

Environment Research and Technology Development Fund

環境省環境研究総合推進費終了研究等成果報告書

PM2.5成分および黄砂が循環器・呼吸器疾患に及ぼす短期曝露影響に関する研究
(5-1452)

平成26年度～平成28年度

Research on Health Effects of Short-term Exposure to PM2.5,
Composition, and Asian Dust Particles on Cardiovascular and Respiratory Diseases

国立研究開発法人国立環境研究所
東京農工大学
工学院大学
熊本大学医学部附属病院
熊本大学

平成29年5月

環境省
総合環境政策局総務課環境研究技術室
環境保健部環境安全課環境リスク評価室
地球環境局総務課研究調査室

PM2.5成分および黄砂が循環器・呼吸器疾患に及ぼす短期曝露影響に関する研究

(5-1452)

I. 成果の概要	i
1. はじめに（研究背景等）	i
2. 研究開発目的	i
3. 研究開発の方法	i
4. 結果及び考察	ii
5. 本研究により得られた主な成果	vii
6. 研究成果の主な発表状況	viii
7. 研究者略歴	x
II. 成果の詳細	
（1）PM2.5成分の曝露評価モデルの精緻化に関する研究 （国立研究開発法人国立環境研究所）	1
要旨	1
1. はじめに	1
2. 研究開発目的	2
3. 研究開発方法	2
4. 結果及び考察	6
5. 本研究により得られた成果	23
6. 国際共同研究等の状況	24
7. 研究成果の発表状況	24
8. 引用文献	28
（2）越境大気微粒子中の金属、有機物の分析 （東京農工大学）	30
要旨	30
1. はじめに	30
2. 研究開発目的	31
3. 研究開発方法	32
4. 結果及び考察	34
5. 本研究により得られた成果	38
6. 国際共同研究等の状況	39
7. 研究成果の発表状況	39
8. 引用文献	42
（3）個別粒子の化学組成イメージングに関する研究 （工学院大学）	43
要旨	43
1. はじめに	43
2. 研究開発目的	44
3. 研究開発方法	44
4. 結果及び考察	45
5. 本研究により得られた成果	54
6. 国際共同研究等の状況	55
7. 研究成果の発表状況	55
8. 引用文献	57

(4) 大気中粒子が救急搬送に及ぼす影響の疫学研究 (熊本大学医学部付属病院)	58
要旨	58
1. はじめに	58
2. 研究開発目的	59
3. 研究開発方法	59
4. 結果及び考察	60
5. 本研究により得られた成果	67
6. 国際共同研究等の状況	67
7. 研究成果の発表状況	67
8. 引用文献	68
(5) 粒子成分、黄砂の急性心筋梗塞・心肺停止発症に対する影響と 高感受性集団に関する研究 (熊本大学)	69
要旨	69
1. はじめに	69
2. 研究開発目的	70
3. 研究開発方法	70
4. 結果及び考察	71
5. 本研究により得られた成果	82
6. 国際共同研究等の状況	82
7. 研究成果の発表状況	82
8. 引用文献	84
III. 英文Abstract	85

課題名 5-1452 PM2.5成分および黄砂が循環器・呼吸器疾患に及ぼす短期曝露影響に関する研究
 課題代表者名 高見 昭憲（国立研究開発法人国立環境研究所 地域環境研究センター・副センター長）
 研究実施期間 平成26～28年度
 累計予算額 153,793千円（うち平成28年度：48,659千円）
 予算額は、間接経費を含む。

本研究のキーワード PM2.5、黄砂、越境大気汚染、粒子化学組成、健康影響、救急搬送、急性心筋梗塞

研究体制

- (1)PM2.5成分の曝露評価モデルの精緻化に関する研究（国立研究開発法人国立環境研究所）
- (2)越境大気微粒子中の金属、有機物の分析（国立大学法人東京農工大学）
- (3)個別粒子の化学組成イメージングに関する研究（学校法人工学院大学）
- (4)大気中粒子が救急搬送に及ぼす影響の疫学研究（国立大学法人熊本大学医学部附属病院）
- (5)粒子成分、黄砂の急性心筋梗塞・心肺停止発症に対する影響と高感受性集団に関する研究（国立大学法人熊本大学）

研究概要

1. はじめに（研究背景等）

近年、中国をはじめとする東アジア地域の経済発展に伴い、これらの地域からの大気汚染物質の放出が増加しており深刻な問題となっている。これらの汚染物質は季節風により風下側の日本へ長距離輸送されることが知られており、その国内大気への影響やそれがもたらす健康への影響が懸念されている。日本国内では2009年に微小粒子状物質（PM2.5）に係る環境基準が設定され、今後取り組むべき調査研究として、化学組成に着目した疫学研究、循環器疾患患者や循環器疾患に対するリスクの高い者を対象とした疫学研究が挙げられた。また、2013年2月に設置された「PM2.5に関する専門家会合」では、注意喚起のための暫定的な指針となる値を1日平均値 $70 \mu\text{g m}^{-3}$ と定めたが、高感受性集団においては低濃度でも健康影響が生じる可能性は否定できず、新たな知見の蓄積が求められている。さらに、黄砂の健康影響に対する関心も高く、黄砂に係わる呼吸器疾患やアレルギー疾患を対象とした疫学知見が蓄積されているが、循環器疾患を対象とした疫学知見はほとんどない。このような背景のもと、PM2.5や黄砂の質量濃度や化学組成の解析と、循環器疾患に対するリスクの高い者を対象とした粒子状物質の健康影響の知見の蓄積することが求められている。

2. 研究開発目的

北部九州地区を対象として粒子状物質（PM2.5及び黄砂）の質量濃度および化学組成の観測を行い、越境大気汚染が及ぼす国内都市大気への影響を明らかにすることを大気観測の目的とした。また、熊本における循環器疾患発症（主に心筋梗塞）や全国主要都市の救急搬送データを取得し、粒子状物質の質量濃度や化学組成データと結合して統計的に解析することにより、PM2.5や黄砂の短期曝露が健康に及ぼす影響を明らかにすることを疫学研究の目的とした。

3. 研究開発の方法

(1)PM2.5成分の曝露評価モデルの精緻化に関する研究

熊本市の熊本大学において大気エアロゾル化学成分連続自動分析装置（Aerosol Chemical Speciation Analyzer: ACSA 紀本電子）を用いて、質量濃度と化学組成を測定した。ACSAはフィルター上に捕集した粒子を、水溶液で抽出し、比濁法や吸収法で硫酸イオン、硝酸イオン、水溶性有機物を測定する装置である。また、福岡市の福岡大学においてエアロゾル質量分析計（Aerosol Mass Spectrometer: AMS Aerodyne）を用いて質量濃度と化学組成を測定した。AMSは600℃に加熱した蒸発器において粒子成分を蒸発し、電子衝撃法でイオン化し、質量分析法で硫酸イオン、硝酸イオン、アンモニウムイオン、有機物などを分析する装置である。熊本市や福岡市内の常時監視局のPM2.5測定データもあわせて解析し、越境大気汚染の都市大気への影響を分析した。また、化学組成データを疫学解析のために提供した。

以下の4つについて、粒子状物質の化学組成が及ぼす健康への影響について解析を行った。福岡県内の18医療機関における急性心筋梗塞ため入院した患者情報を用い、福岡においてAMSで測定した粒子の化学組成と心筋梗塞との関連についてケースクロスオーバーデザインを用いて検討した（対象年：2012～2013年）。福岡大から提供された粒子に含まれる水溶性の成分データと福岡市の救急搬送データを組み合わせ、化学組成と各種疾患による救急搬送との関連について一般化線形モデルを用いて解析した（対象年：2005～2012年）。名古屋市を対象として、名古屋市から提供された粒子状物質成分情報を用いて、粒子の化学組成が日死亡数へ及

ぼす影響を解析した(対象年:2003-2007年)。熊本市においてACSAを用いて測定した化学組成と急性心筋梗塞発症との関連を解析した(対象年:2014年)。

(2)越境大気微粒子中の金属、有機物の分析 (国立大学法人 東京農工大学)

越境大気汚染が卓越する冬季から春季にかけて、熊本及び東京において、ハイボリウムサンプラー及びカスケードインパクターを用いた粒子の捕集を行い、粒子に含まれている多環芳香族炭化水素類(Polycyclic Aromatic Hydrocarbons: PAHs)の定量分析、金属元素及びイオン成分の粒径別濃度測定を行った。カスケードインパクター(ナノサンプラーMODEL 3180, KANOMAX)による粒子捕集は、ポリテトラフルオロエチレン(polytetrafluoroethylene, PTFE)フィルターを用いて流量 40 L min^{-1} で約24時間行った。粒径(d)の分級は、 $d \geq 10 \mu\text{m}$ (Q10), $10 > d \geq 2.5 \mu\text{m}$ (Q2.5), $2.5 > d \geq 1.0 \mu\text{m}$ (Q1), $1.0 > d \geq 0.5 \mu\text{m}$ (Q0.5), $0.5 > d \geq 0.1 \mu\text{m}$ (Q0.1), $0.1 \mu\text{m} > d$ (QB)の6粒径で行い、観測前後にフィルターの秤量を行うことによって粒子の質量濃度を算出した。粒子を捕集したフィルターの半分は、イオンクロマトグラフ(島津製作所)により水溶性イオン成分(Na^+ , NH_4^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-})を分析した。残り半分は、酸分解及び抽出後に誘導結合プラズマ質量分析計(Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer: ICP-MS)により金属成分31元素(^7Li , ^{23}Na , ^{24}Mg , ^{27}Al , ^{39}K , ^{43}Ca , ^{51}V , ^{53}Cr , ^{55}Mn , ^{57}Fe , ^{59}Co , ^{60}Ni , ^{63}Cu , ^{66}Zn , ^{69}Ga , ^{75}As , ^{82}Se , ^{85}Rb , ^{88}Sr , ^{95}Mo , ^{107}Ag , ^{111}Cd , ^{115}In , ^{118}Sn , ^{121}Sb , ^{133}Cs , ^{137}Ba , ^{139}La , ^{205}Tl , ^{208}Pb , ^{209}Bi)を定量した。ハイボリウムサンプラーにより石英繊維フィルター上に捕集したサンプルからPAHsを抽出、定量した。

(3)個別粒子の化学組成イメージングに関する研究

熊本ならびに福岡にて個別粒子分析用の粒子試料をシリコン基板上に捕集した。捕集した粒子は、黄砂、海塩、硫酸塩エアロゾルなどに着目して飛行時間型二次イオン質量分析計(Time-of-Flight Secondary Ion Mass Spectrometer: TOF-SIMS 自作)によって分析した。TOF-SIMS法は、試料にイオンを照射し、試料から放出された二次イオンを飛行時間型質量分析計で検出する装置である。粒子に含まれる元素やその化学形態を分析できる。また、イオンビームを照射して粒子を削ることにより、粒子内部の構造や化学組成を分析することが可能である。解析の要点として塩素化により液状化している黄砂と一般的な黄砂の違いに着目し、粒子表面および粒子内部の構造を分析し、粒子内での化学物質の分布を解析した。さらに、塩素化した黄砂と塩素化していない黄砂が観測された日について、AMSなどで測定された化学組成分析データとの比較を行い、塩素化のメカニズムについて検討を行った。

(4)大気中粒子が救急搬送に及ぼす影響の疫学研究

全国主要都市において、大気中粒子状物質の短期変動や黄砂の濃度変動が救急搬送件数に及ぼす影響について、疫学的手法を用いて検討した。全国7都市(札幌市、仙台市、名古屋市、大阪市、広島市、福岡市、熊本市)を研究対象地域とし、救急搬送データは総務省消防庁より提供された救急業務統計情報を用いた。解析対象として急病による救急搬送のうち18歳以上の成人を対象とした。PM2.5濃度は、大気汚染物質広域監視システム及び環境省PM2.5モニタリング事業データを用いた。2009年度以前の札幌市、仙台市、名古屋市のPM2.5濃度測定は、Tapered Element Oscillating Microbalance (TEOM)法により、大阪市、広島市、福岡市、熊本市および2010年度以降の札幌市、仙台市、名古屋市の測定は、線吸収法により行われている。黄砂は各市に最も近い気象観測所の目視観測情報を用いた。各都市について、日々の急病による救急搬送件数と、PM2.5日平均濃度との関連を検討するために、Poisson回帰分析を行った。各都市の影響推定値をランダム効果モデルの手法を用いて統合した。結果はPM2.5の単位濃度当たりの救急搬送リスクの変化率(%),あるいは黄砂日の非黄砂日に対する救急搬送リスクの変化率(%)で示した。

(5)粒子成分、黄砂の急性心筋梗塞・心肺停止発症に対する影響と高感受性集団に関する研究

熊本県内でのPM2.5や黄砂が急性心筋梗塞に及ぼす影響について、疫学的手法を用いて解析した。急性心筋梗塞(Acute Myocardial Infarction: AMI)のデータは、熊本急性冠症候群研究会(Kumamoto Acute Coronary Events [KACE] study group)のデータを用いた。KACEは熊本県内での全例調査を行っている。2016年9月時点で、2009年1月1日から2014年12月31日までに熊本県内で発症したAMIデータが蓄積されている。また、院外心停止症例については、2005年から総務省消防庁が前向き(Forward)観察研究として全国的に登録を開始したデータを用いた。登録はウツタイン様式^{1), 2)}に従って報告されており、心原性心停止と非心原性心停止に分類することができる。2016年9月時点で、2005年1月1日から2014年12月31日までの院外心原性心停止症例を都道府県別データとして利用した。

4. 結果及び考察

(1)PM2.5成分の曝露評価モデルの精緻化に関する研究

越境大気汚染の影響について観測データを用いて解析した。PM2.5の質量濃度を $10 \mu\text{g m}^{-3}$ 以下、 10 以上 $35 \mu\text{g m}^{-3}$ 未満、 $35 \mu\text{g m}^{-3}$ 以上の3段階に分け、PM化学組成の割合を求めた(図(1)-1)。この結果、PM2.5濃度が高い時は SO_4^{2-} の割合が高く、PM2.5濃度が低くなるにしたがって有機物および NO_3^- の割合が高くなる傾向が見ら

れた。PM_{2.5}濃度が高い時はSO₄²⁻の割合が高く越境大気汚染の影響が大きいと考えられ、濃度が低い時はNO₃⁻の割合が高く、自動車排気ガスなどローカルな大気汚染物質の影響が相対的に大きくなることが明らかとなった。

2016年2月～3月の熊本と福岡のPM化学成分およびPM_{2.5}質量濃度について比較した結果を(図(1)-2)に示す。福岡と熊本ではPMは同様の濃度変動を示しており、越境大気汚染が九州地方の広範囲に広がっていることを示唆している。また、福岡のPM化学成分はSO₄²⁻が25%で、NO₃⁻が11%であるのに対し、熊本ではSO₄²⁻の割合が16%程度であり、NO₃⁻の割合が13%と高かった。これらの結果は福岡と熊本の地域的な大気質の違いを反映していると考えられ、NO₃⁻の前駆物質は自動車排気ガスなどの燃焼によるローカル汚染が主要起源であるNO_xであり、福岡、熊本共に越境大気汚染の影響に加え、ローカル汚染の影響が大きいことがわかった。

公開されている2014年～2015年の福岡市香椎一般大気測定局のPM_{2.5}測定データを用いて、質量濃度の日平均値の頻度分布を分析した結果(図(1)-3)、注意喚起の基準である70 μg m⁻³を超える日は無かった。PM_{2.5}の高濃度日が少なかったことはよかったが、疫学統計解析を行うために必要なデータが得られなかったため、注意喚起の基準の妥当性を検討することはできなかった。

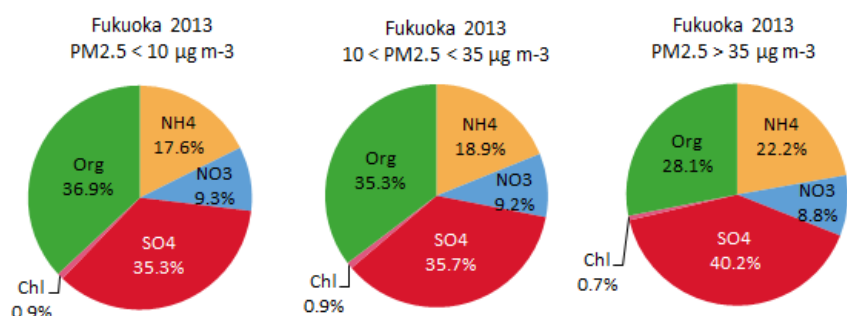


図1 AMSで観測されたPM_{2.5}濃度別のPM化学組成

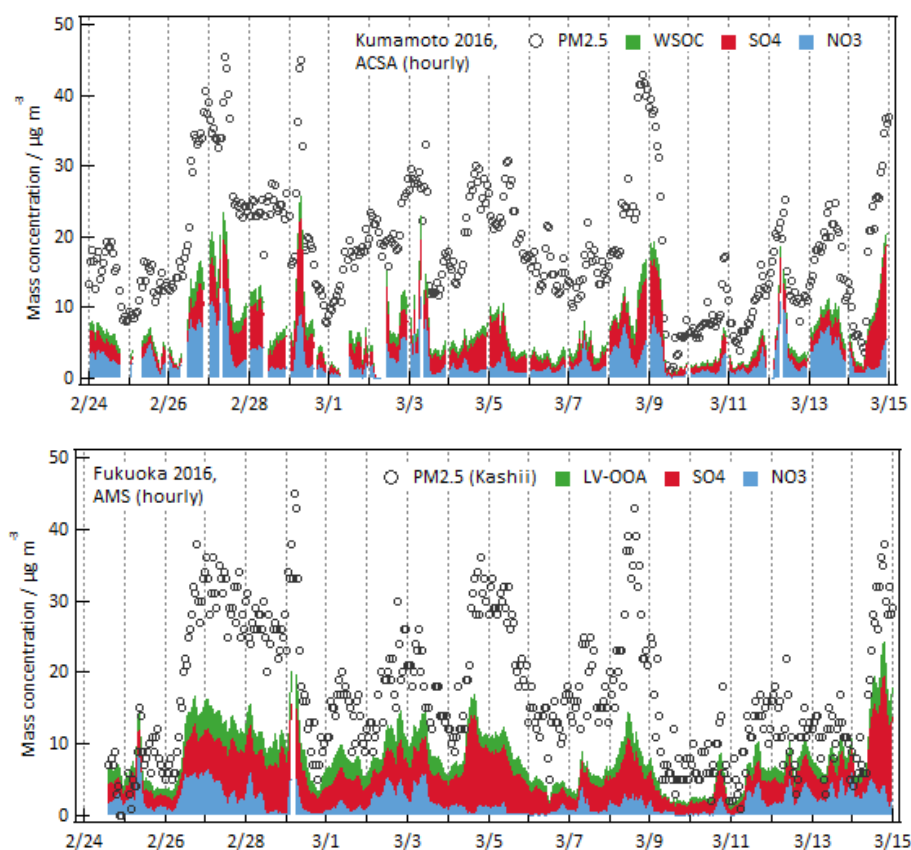


図2 2016年2月～3月の福岡、熊本におけるPM観測結果

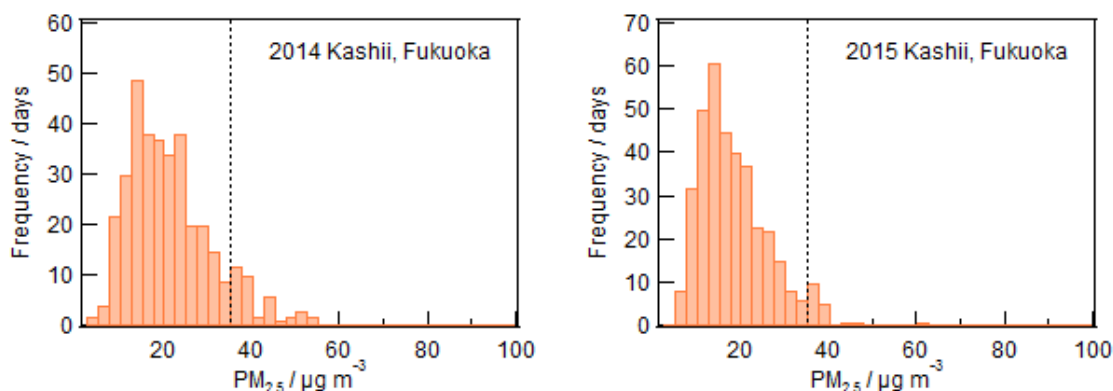


図3 福岡市香椎一般測定局におけるPM2.5質量濃度日平均値の頻度分布(点線は $35 \mu\text{g m}^{-3}$)

粒子の化学組成が及ぼす健康への影響について検討した。2012～2013年に福岡県内18医療機関に入院した患者2012人のうち、粒子の化学組成濃度が観測されている期間と対応する1283人(男性930人、女性353人、平均年齢70.6歳)を対象に検討したところ、硝酸イオン、及び、有機物に対し一部の遅れ(ラグ)でオッズ比(相対的なリスクの比)が1を超えていたが、いずれも統計的に有意な関連はみられなかった。救急搬送との関連では、全急病、循環器疾患、呼吸器疾患による救急搬送との間にも統計的に有意な正の関連はみられなかった。名古屋市のデータを用いて検討したところ、複数の成分が全死亡、循環器疾患死亡、呼吸器疾患死亡との間に統計的に有意な正の関連がみられたが、他の成分(有意な関連のみられた硫酸塩、EC、OCなど)で調整すると統計的に有意ではなくなった。熊本市における検討では、硫酸イオンと急性心筋梗塞発症とが関連しているような傾向が観察された。成分濃度を用いた検討は、いずれも研究期間が限られておることもあり、統計学的な検出力が足りずに明らかな関連はみられなかったが、特定の成分が他の成分よりも影響が大きい可能性が示唆された。

(2)越境大気微粒子中の金属、有機物の分析

中国の年間石炭消費量は世界最大であり、ここからは鉛(Pb)が最も大量に排出されるため、Pbを中国から長距離輸送されたトレーサーとし、また、自動車のブレーキパッドの機械的なすり減りから排出されるもっとも主要な金属成分である銅(Cu)をローカル汚染のトレーサーと定め、燃焼過程から生じるPbには $0.5-1\mu\text{m}$ の粒径中の濃度を、摩り減り過程から生じるCuには $2.5-10\mu\text{m}$ の粒径中の濃度を用いて、越境汚染の有無を識別するためにPb/Cu比を算出した。全季節において、比較のため別途観測を行ったりモート地域の沖縄県辺戸岬の値が最大であり、東京の値が最低となっていた。このことから、ローカル汚染に対する越境汚染の寄与は、図(2)-1に示すように辺戸岬>熊本>東京順で大きいことが示された。

さらに、Pb濃度が 10ng m^{-3} 以上かつPb/Cu比が1.75以上の日を越境汚染時と定義し、Pb濃度が 5ng m^{-3} 未満かつPb/Cu比が1.75未満の日をローカル汚染時と定義して解析したところ、越境汚染時のPM2.5濃度は平均して $31.4\mu\text{g m}^{-3}$ であり、日本の環境基準値に近い値であった。

Pb/Cu比の指標を用いて季節別に NO_3^- の越境寄与を推定したところ、春、秋、冬における微小粒径領域の越境寄与率はそれぞれ50%、50%、70%であり、冬において最も高い寄与率を示した。微小粒径領域の NO_3^- の主要化学形態である NH_4NO_3 は気温が高いと熱分解してガス状の HNO_3 と NH_3 になり、 HNO_3 は周囲に存在する粗大粒子の表面に吸着されるため NO_3^- が主に粗大粒径領域に存在するようになる。冬は気温が低いために、都市域における微小粒径領域の NO_3^- の化学形態である NH_4NO_3 の熱分解反応が起こりにくい条件下であったため、微小粒径領域の NO_3^- は、冬において他の季節より長距離輸送されやすいことが示唆された。

PAHs組成に着目した発生源の寄与評価には、都市域サイトである熊本、東京の組成に加えて、越境汚染の影響のみ受けるリモートサイトの沖縄辺戸岬のデータを加え、中国由来の気塊を捉えた日の組成を比較のため用いた。異性体比であるフルオランテンとピレンの比より、冬季における越境汚染の寄与は辺戸>熊本>東京であることが示唆された。また、各地点における石炭燃焼のトレーサーPAHsであるフェナントレン、フルオランテン、ピレン、クリセンと金属元素成分のヒ素、セレン、カドミウム、鉛(As、Se、Cd、Pb)の微小粒子濃度より、大陸からの越境汚染である石炭燃焼由来のPAHsの寄与は、東京よりも熊本のほうが大きいことが示唆された。一方、ガソリン燃焼のトレーサーPAHsであるインデノピレン(IcdP)、ベンゾペリレン(BghiP)、コロネン(COR)が総濃度に占める割合は東京で最も高く、冬季の東京ではローカルのガソリン燃焼由来PAHsの寄与が大きかったと推察された。

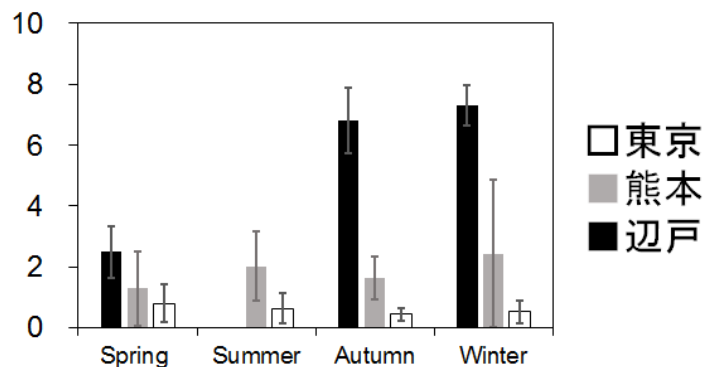


図4 東京、熊本、沖縄辺戸岬におけるPb/Cu比

(3) 個別粒子の化学組成イメージングに関する研究

黄砂はアルミナ、シリカ、マグネシア、炭酸カルシウムなどで構成された自然由来の粒子であるが、様々な汚染物質を付着して飛来してくるため、汚染状況によっては非常に有害な物質と成り得る。特に、日本へ越境輸送されてくる黄砂の一部は酸性ガスと塩化ナトリウムによって塩素化しており、主成分の炭酸カルシウムが塩化カルシウムに変化している可能性が高いことが個別粒子解析によってわかった。

2014/10/16と2014/10/17に福岡で捕集された試料において、10/16では塩素化した黄砂が多く、10/17では未反応の黄砂が多く観察された。塩素化した黄砂ではアルミナやマグネシアの粒はそのままの状態に残っており、炭酸カルシウムのみが吸湿性を持つ塩化カルシウムに置き換わっていることがわかった。いわゆる塩素ロス反応と関連し、 SO_x や NO_x などの汚染物質と触れた黄砂がこのように変化すると考えられる。また炭酸カルシウムが塩化カルシウムに変化していることは、試薬レベルでの実験などにおいても確認され、さらに塩素化した黄砂を凍結したまま分析することで、塩化カルシウムの部分から水分(氷)を検出することにも成功した。この二日間を後方流跡線で解析した結果、10/16の試料は大陸沿岸部の工業地帯上空を浮遊し、さらに長時間海上を浮遊していることがわかった。一方で、10/17の試料では比較的大気汚染の少ないルートを飛行し、さらに海上に存在する時間も短いことがわかった。これらの結果は、黄砂の塩素化反応に必要な、 SO_x 、 NO_x 、 NaCl (海塩)などの化学種の飛行ルート上の存在量の観点から考えて、理論的な考察と良い一致を示している。

以上のことから、黄砂の個別粒子観察は、汚染の度合いや、浮遊履歴の判断材料になることが期待される。しかし、土壌系の粒子も塩素化していない黄砂と形状や成分において類似しており、黄砂と一般土壌を明確に区別しなければ、全黄砂中の塩素化した黄砂の割合を算出することは難しい。一般的に黄砂中のカルシウム(Ca)濃度は他の土壌粒子と比べて高い傾向にあるため、装置の定量性を上げて土壌粒子や黄砂を分析した結果、Caの濃度が二極化していることが確認できた。また、それぞれ成分の存在比もおおよそ他のバルク分析データと一致しているため、Ca濃度に着目すれば、黄砂粒子とその他の土壌粒子を区別できることがわかった。

以上の結果から、日本で観測される土壌系粒子を大きく4種類(一般的な黄砂、塩素化した黄砂、大陸由来の土壌系粒子、国内起源の土壌系粒子)に分類し、それぞれの越境輸送モデルを提案した。このモデルに当てはめて分析を行えば、越境輸送される黄砂に付着した大気汚染の程度を評価することが可能である。ただし、TOF-SIMSによる高倍率化学組成イメージングは分析時間などの観点から、統計的に有効な大規模な粒子データを取得することは困難である。そのため、低倍率で観察した多数粒子データから、画像解析技術と多変量解析(クラスター解析)を用いて、粒子を分類するシステムを開発した。このシステムを用いて、2016/3/1~8の試料について塩素化した黄砂と未反応の黄砂を数えた。観測期間中で特に塩素化した黄砂の比率が高かった試料は、3/3/15:00と3/7/15:00であった。これに対応する後方流跡線を計算すると、中国沿岸部の都市部や工業地帯上空を通り、東シナ海を渡って飛来していることがわかり、前述の考察と一致している。さらにAMSと比較してみると、硝酸系の微粒子($2.5 \mu\text{m}$ 以下)が非常に高濃度存在しその後濃度が下がっている際に、塩素化した黄砂が飛来してきていることがわかった。これは、海塩の塩素ロス反応によって大気中の硝酸が粗大粒子(硝酸ナトリウム)に取り込まれたためだと考えられる。実際にAMSからも粗大粒子($2.5 \mu\text{m}$ 以上)の硝酸濃度の上昇が確認でき、また個別粒子解析によっても硝酸ナトリウムの粗大粒子が多数観察できた。本成果により、後方流跡線とAMSのデータから直接的には観測できない塩素化した黄砂が飛来している日を予測できる可能性があるということが示された。

(4) 大気中粒子が救急搬送に及ぼす影響の疫学研究

人口10万人当たり1日の救急搬送件数には都市間の差を認め、特に大阪市で多かった。PM2.5濃度と救急搬送件数との関係は都市によりパターンが異なっていたが、名古屋、大阪、福岡では当日の影響が最も大きく有意であった。7都市を統合した結果ではPM2.5濃度が $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 上昇した場合の当日の救急搬送リスクの増加

率は1.1%であった(図(4)-1)。黄砂による影響の統合値では当日の救急搬送件数が有意に増加したが、地域によりパターンの相違を認めた。福岡市において大気中粒子を粗大粒子と微小粒子に分けてそのイオン成分濃度を測定し、救急搬送件数との関係を検討したが、大気中粒子のイオン成分濃度と救急搬送件数との間には有意な関係が認められなかった。さらに、PM2.5の傷病別救急搬送件数への影響を検討した結果では、呼吸器疾患では暴露早期から救急搬送件数が増加したが、循環器疾患では有意な関連を認めなかった。

これらの結果より、PM2.5や黄砂の短期暴露により急病による救急搬送件数が増加する可能性が示唆され、それらの影響は比較的早期に表れる可能性があることが分かった。また、大気環境因子の急病発生に対する影響には地域差や疾患による差が認められるため、その要因についてさらなる検討が必要であることが分かった。

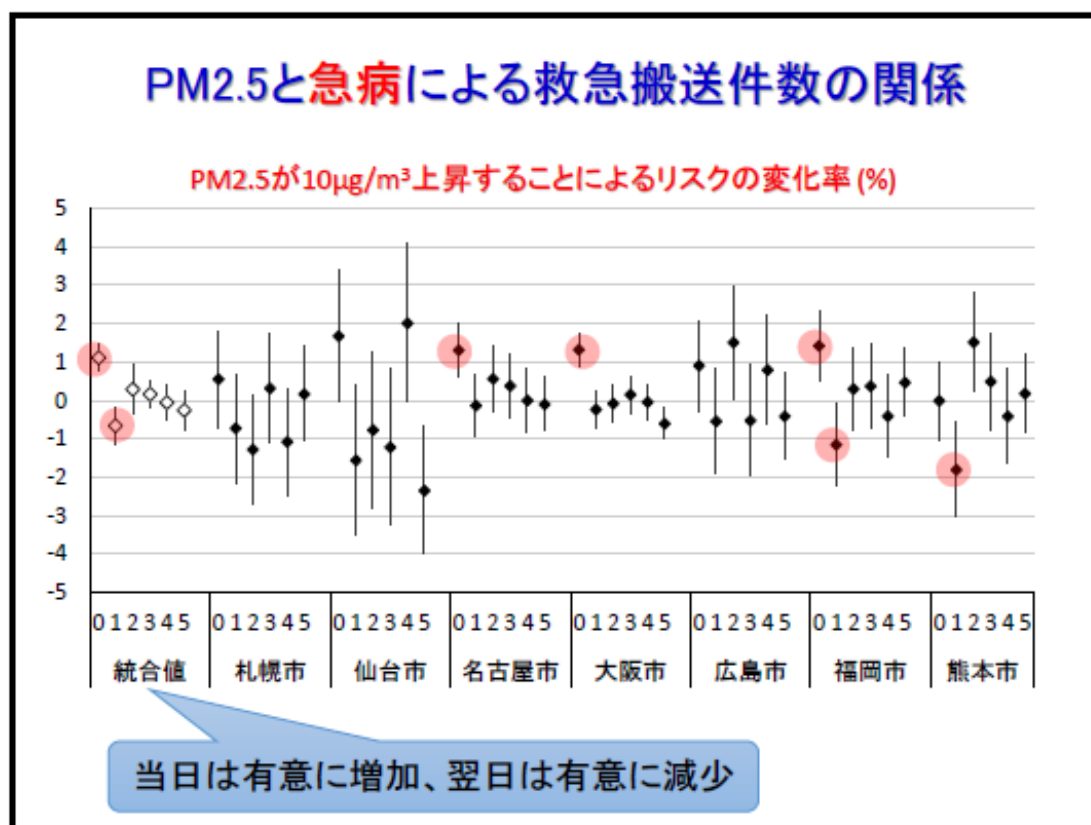


図5 PM2.5と急病による救急搬送件数の関係

(5) 粒子成分、黄砂の急性心筋梗塞・心臓停止発症に対する影響と高感受性集団に関する研究

黄砂と急性心筋梗塞について解析した結果、急性心筋梗塞発症の前日の黄砂と有意に関係しており、この関係は気温や相対湿度、大気汚染物質などで調整しても不変であった(図(5)-1)。サブ解析をおこなったところ、65歳以上の高齢者や冠危険因子が重積している症例を持つ患者に発症しやすいことが判明した。PM2.5と急性心筋梗塞について解析した結果、急性心筋梗塞発症の前日や前々日と関係している可能性があり、気温や相対湿度、大気汚染物質などで調整してもこの関係は変わらなかった。サブ解析をおこなったところ(図(5)-2)、女性が影響を受けやすく、女性においてのみ解析すると、冠危険因子が重積している症例を持つ患者に発症しやすいことが判明した。

黄砂と院外心原性心停止について解析した結果、院外心原性心停止発症の前々日と関係している可能性があり、気温や相対湿度、大気汚染物質などで調整してもこの関係は変わらなかった。サブ解析をおこなったところ、65歳以上の高齢者において発症しやすいことが判明した。PM2.5と院外心原性心停止について解析した結果、院外心原性心停止発症の前日や前々日と関係している可能性があり、大気温度や相対湿度、大気汚染物質などで調整するとこの関係は有意であった。サブ解析をおこなったところ、女性において発症しやすいことが判明した。

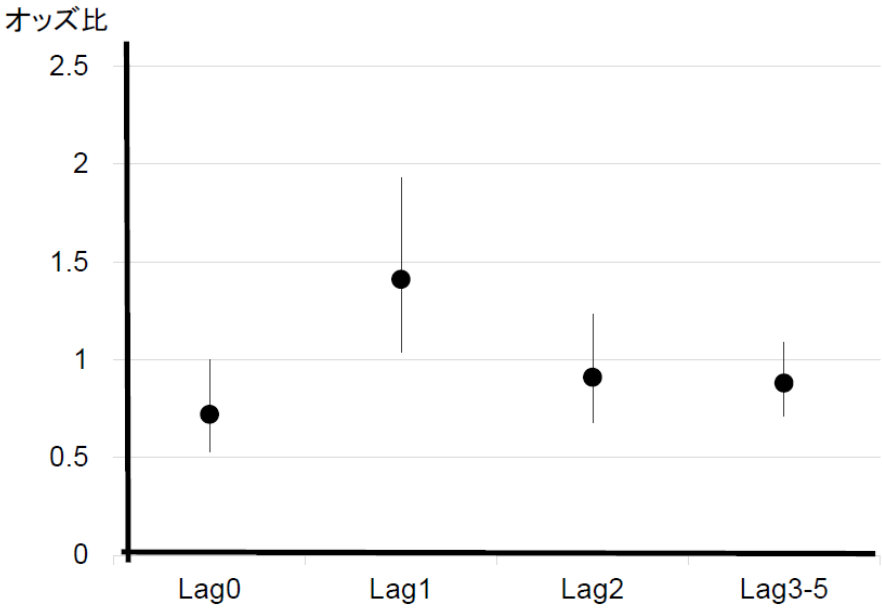


図6 黄砂とAMI発症との関係

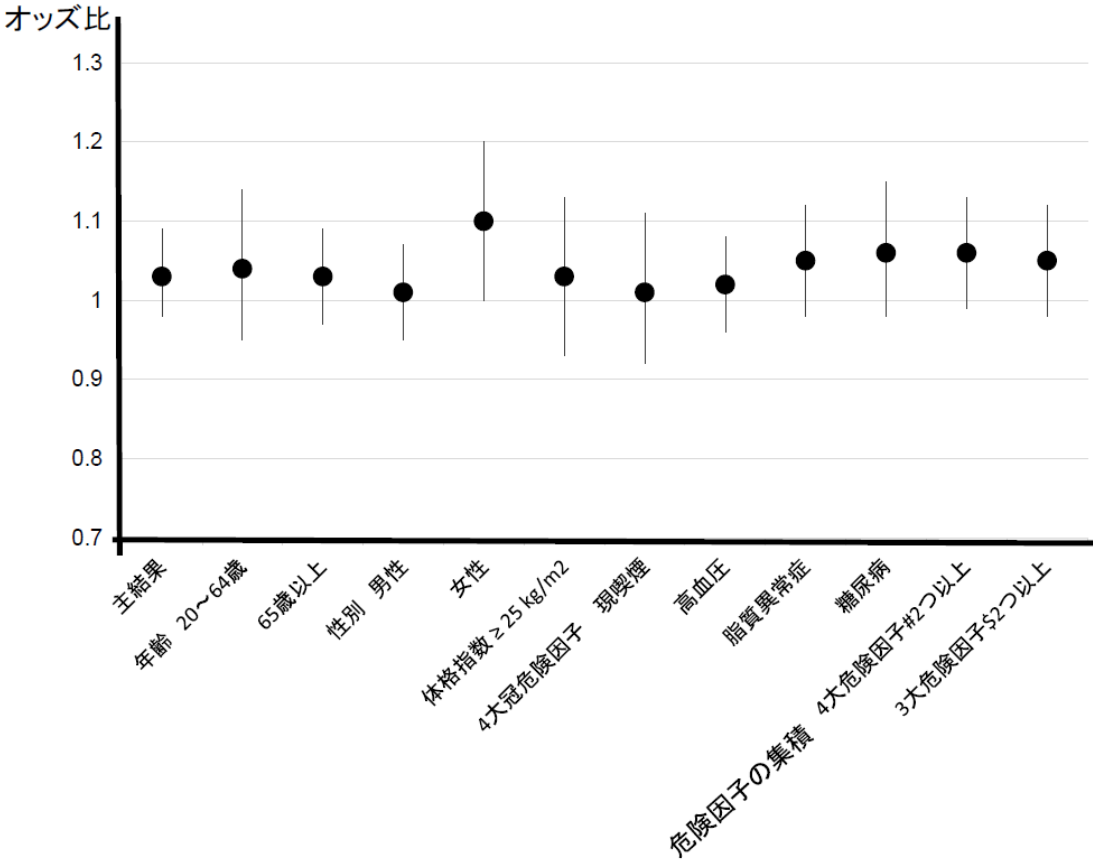


図7 急性心筋梗塞発症前日および前々日のPM2.5の平均濃度 (lag1-2) (10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 上昇あたり)との関係におけるサブ解析

5. 本研究により得られた主な成果

(1) 科学的意義

微小粒子中のイオン成分、金属成分、有機物(PAH)などの化学組成分析を行うことで、越境大気汚染が都市大気に及ぼす影響を明らかにすることが可能となった。また、ここ数年間のPM2.5質量濃度の解析により、北部九州地区(福岡)では注意喚起情報を出すような高濃度日は無かったことが分かった。黄砂の塩素化反応のメカニズムを明らかにし、日本で観測される土壌系粒子の輸送モデルを構築することに成功した。さらに、画像解析と多変量解析を複合させたシステムを開発することで、これまで困難であった塩素化した黄砂の定量的な観測

が可能となった。

PM2.5や黄砂の短期暴露により急病による救急搬送件数が増加する可能性が示唆され、それらの影響は比較的早期に表れる可能性があることが分かった。急性心筋梗塞や院外心原性心停止発症については、発症の前日や前々日の黄砂やPM2.5濃度が深く関係していることを明らかにした。さらに、黄砂においては高齢者が影響を受けやすく、冠危険因子（高血圧、糖尿病、脂質異常症、喫煙など）が重積している症例に急性心筋梗塞を起こしやすく、PM2.5においては女性が影響を受けやすいことが判明した。粒子の化学組成と健康影響の関係については、統計学的な検出力が不足し明確な関連はみられなかったが、特定の成分が他の成分よりも影響が大きい可能性があることは示唆された。

(2)環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない

<行政が活用することが見込まれる成果>

平成 25 年 1 月以降中国の PM2.5 汚染が注目されており、日本でもその影響が懸念されている。しかし国際的な交渉においては、観測された微小粒子が本当に中国由来のものであるかの検証は不可欠である。本研究の成果により、越境大気汚染由来の微小粒子と国内由来の微小粒子を科学的根拠に基づき分けることができるようになり、国際的な環境問題について外交交渉をするうえで重要な裏付けデータとなる。黄砂の塩素化と大気汚染状況の関係が明らかとなったため、塩素化した黄砂をモニタリングすれば、大気汚染状況を判断することが可能である。また、本解析によって個々の粒子の実態が明らかになったため、健康影響の 1 つの指標として本成果を活用することができる。

PM2.5や黄砂の短期暴露による急病の救急搬送件数には地域差が認められることから、今後それぞれの地域での対策に活用が期待される。黄砂やPM2.5濃度の上昇が少なからず急性心筋梗塞や院外心原性心停止といった病態発症に影響していると思われる。特に高齢者や女性、冠危険因子の重積は高感受性集団と考えられるため、注意喚起情報発信のために活用が期待される。また、現在の日本のPM2.5の日平均値の環境基準は $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ であるが、今回の結果を考慮すると基準値の妥当性や高感受性集団への影響について今後さらなる検討が必要であり、行政における活用が見込まれる。これまで微小粒子状物質を含む環境中の汚染物質に対する高感受性集団を同定した研究は少なく、本研究の行政に対する貢献は大きいと思われる。

6. 研究成果の主な発表状況

(1)主な誌上発表

<査読付き論文>

- 1) A. TAKAMI, T. MIYOSHI, S. IREI, A. YOSHINO, K. SATO, A. SHIMIZU, M. HAYASHI, K. HARA, N. KANEYASU, and S. HATAKEYAMA: Aerosol Air Quality Research, 16, 2, 314–322 (2016)
Analysis of organic aerosol in Fukuoka, Japan using a PMF method
- 2) A. YOSHINO, A. TAKAMI, K. SATO, A. SHIMIZU, N. KANEYASU, S. HATAKEYAMA, K. HARA, and M. HAYASHI: Atmosphere, 7, 51–65 (2016)
Influence of trans-boundary air pollution on the urban atmosphere in Fukuoka, Japan
- 3) K. UEDA, M. YAMAGAMI, F. IKEMORI, K. HISATSUNE, and H. NITTA: J Epidemiol., 26, 5, 249–57 (2016)
Associations Between Fine Particulate Matter Components and Daily Mortality in Nagoya, Japan
- 4) 高見昭憲: 大気環境学会誌、51、1、29–30 (2016)
2000 年代初めの中国島嶼部、山岳地における大気観測
- 5) 上田佳代、TASMIN Saira、高見昭憲、五藤大輔、大石瑞樹、PHUNG Vera Ling Hui、安河内秀輔、CHOWDHURY Pratiti Home: 大気環境学会誌、51、6、245–256 (2016)
大気中微小粒子状物質の長期曝露が死亡に及ぼす影響: 疫学研究における曝露と健康影響の評価に関する系統的レビューとメタ解析
- 6) K. MISAWA, A. YOSHINO, A. TAKAMI, T. KOJIMA, S. TATSUTA, Y. TANIGUCHI, and S. HATAKEYAMA: Aerosol Air Quality Research, 17, 444–452 (2016)
Continuous observation of the mass and chemical composition of PM2.5 using an automatic analyzer in Kumamoto, Japan
- 7) I. CHANDRA, S. KIM, T. SETO, Y. OTANI, A. TAKAMI, A. YOSHINO, S. IREI, K. PARK, T. TAKAMURA, N. KANEYASU, S. HATAKEYAMA: Atmospheric Environment, 141, 30–40 (2016)
New particle formation under the influence of the long-range transport of air pollutants in East Asia

<査読付論文に準ずる成果発表>

特に記載すべき事項はない

(2)主な口頭発表(学会等)

- 1) 吉野彩子、高見昭憲、三好猛雄、伊禮聡、佐藤圭、清水厚、兼保直樹、畠山史郎、原圭一郎、林政彦: 第

20 回大気化学討論会 (2014)

「九州北部における微小粒子の化学組成解析」

- 2) K. MISAWA, A. YOSHINO, T. KOJIMA, and A. TAKAMI: 2015 Asian Aerosol Conference, Kanazawa, Japan 2015
“Continuous monitoring of trans-boundary particulate matters in Kumamoto, Japan
- 3) 村野健太郎、大石興弘、濱村研吾、畠山史郎、坂本哲夫、小島知子、三澤健太郎、吉野彩子、高見昭憲: 第 56 回大気環境学会年会 (2015)
「太宰府における大気汚染物質観測による越境・地域大気汚染研究」
- 4) 三澤健太郎、吉野彩子、高見昭憲、小島知子、村野健太郎、畠山史郎、坂本哲夫: 第 56 回大気環境学会年会 (2015)
「熊本におけるPM_{2.5}の化学成分別連続観測」
- 5) 上田佳代、笠岡俊志、Tasmin Saira¹、道川武紘、新田裕史、吉野彩子、三澤健太郎、高見昭憲: 第 56 回大気環境学会年会 (2015 年 9 月)、東京
「PM2.5 の短期曝露と急病による救急搬送との関連: 複数都市における検討」
- 6) V. L. H. PHUNG, K. UEDA, S. TASMIN, M. OOISHI, S. YASUKOUCHI, A. HONDA, and H. TAKANO: 9th Asian Aerosol Conference, Kanazawa, Japan, June 2015.
“Emergency Ambulance Dispatches due to Acute Illness and Ambient Particulate Matter “
- 7) V. L. H. PHUNG, K. UEDA, S. TASMIN, M. OOISHI, S. YASUKOUCHI, Y. UEHARA, A. PHOSRI, A. HONDA, and H. TAKANO, Conference of ISEE-ISES AC2016 (札幌) 2016 年 6 月 26~29 日
“Short-term exposure to ambient fine particulate matter (PM2.5) on emergency ambulance dispatches due to acute illnesses in Japan: A multi-city study”.
- 8) K. UEDA, M. OOISHI, H. ODASHIMA, S. TASMIN, V. L. H. PHUNG, S. YASUKOUCHI, Y. UEHARA, A. HONDA, H. TAKANO, 第 26 回国際喘息学会日本・北アジア部会 (福岡) 2016 年 9 月 17、18 日
“Association between PM2.5 and hospitalization due to asthma for children and adolescent: exploring susceptibility factors”
- 9) M. KAJINO, M. DEUSHI, N. OSHIMA, T. MAKI, Y. INOMATA, K. SATO, A. TAKAMI, and S. HATAKEYAMA: 9th Asian Aerosol Conference (2015)
“Modeling Northeast Asian aerosol mass, size, chemistry, and mixing type”
- 10) 杉山太一、島田幸治郎、畠山史郎、C. K. CHAN、Y. P. KIM、G. LIN、高見昭憲: 第 33 回エアロゾル科学・技術研究討論会 (2016)
「熊本における PAH の観測－越境汚染とローカル汚染の識別－」
- 11) 辰田詩織、島田幸治郎、三澤健太郎、吉野彩子、高見昭憲、畠山史郎: 第 57 回大気環境学会年会 (2016)
「粒径別エアロゾルイオン成分による東アジア由来越境大気汚染の解析」
- 12) 三浦香央理、島田幸治郎、佐藤圭、吉野彩子、高見昭憲、畠山史郎: 第 57 回大気環境学会年会 (2016)
「PAHs の広域分布、季節変化と発生源の解析」
- 13) 谷口祐太、八木里紗、島田幸治郎、吉野彩子、高見昭憲、畠山史郎: 第 57 回大気環境学会年会 (2016)
「熊本における大気中の金属成分の季節変動」
- 14) 畠山史郎、杉山太一、島田幸治郎、吉野彩子、高見昭憲、村野健太郎、小島知子、坂本哲夫: 第 57 回大気環境学会年会 (2016)
「熊本および東京における越境汚染とローカル汚染の識別指標」
- 15) S. HATAKEYAMA: 18th Annual Meeting of China Association for Science and Technology, Workshop on Atmospheric Haze and Advanced PM2.5 Control Technologies, Xi'an, China, (2016) (Plenary)
“Measurements of Air Pollutants on Islands and on the top of Mt. Fuji”
- 16) 笠岡俊志: 第 19 回日本臨床救急医学会総会・学術集会 (2016 年 5 月)
「大気中の微小粒子状物質 (PM2.5) が急病による救急搬送に及ぼす影響」
- 17) S. KOJIMA, K. MATSUI, K. UEDA, H. NITTA, and H. OGAWA, American Heart Association Scientific Sessions 2014 Chicago, Illinois (2014)
“Asian dust has an impact on the incident of acute myocardial infarction～a time-stratified case-crossover study”
- 18) S. KOJIMA, K. MATSUI, K. UEDA, H. NITTA, and H. OGAWA, Japanese Circulation Society Scientific Sessions Sendai (2016)
“Asian dust has an impact on the incident of acute myocardial infarction～a time-stratified case-

crossover study”

7. 研究者略歴

課題代表者：高見 昭憲

京都大学工学部卒業、博士(D.Phil.)、国立環境研究所地域環境研究センター広域大気環境研究室室長、現在、国立環境研究所地域環境研究センターセンター長

研究分担者

1) 新田裕史

東京大学医学部卒業、保健学博士、国立環境研究所環境健康研究センターセンター長、現在、国立環境研究所フェロー

2) 道川武紘

慶應義塾大学医学部卒業、博士(医学)、現在、国立環境研究所環境リスク・健康研究センター環境疫学研究室主任研究員

3) 畠山史郎

東京大学理学部卒業、理学博士、国立環境研究所大気圏環境部大気反応研究室室長、東京農工大学大学院農学研究院教授、現在、埼玉県環境科学国際センター総長

4) 坂本哲夫

横浜国立大学工学部卒業、工学博士、東京大学生産技術研究所助教授、現在、工学院大学先進工学部応用物理学科教授

5) 笠岡俊志

山口大学医学部卒業、医学博士、山口大学大学院医学系研究科救急・生体侵襲制御医学准教授、現在、熊本大学医学部附属病院救急・総合診療部教授

6) 小島淳

熊本大学医学部卒業、医学博士、熊本大学大学院医学薬学研究部循環器病態学助手、現在、熊本大学大学院生命科学研究部心不全先進医療共同研究講座特任准教授

参考文献

1) Cummins R.O, Chamberlain D.A, Abramson N.S, et al. Recommended guideline for uniform reporting of data from out-of-hospital cardiac arrest: the Utstein style — a statement for health professionals from a task force of the American Heart Association, the European Resuscitation Council, the Heart and Stroke Foundation of Canada, and the Australian Resuscitation Council. Circulation 1991;84: 960–75.

2) Jacobs I, Nadkarni V, Bahr J, et al. Cardiac arrest and cardiopulmonary resuscitation outcome reports: update and simplification of the Utstein templates for resuscitation registries: a statement for healthcare professionals from a task force of the International Liaison Committee on Resuscitation. Circulation 2004;110:3385– 97.

5-1452 PM2.5成分および黄砂が循環器・呼吸器疾患に及ぼす短期曝露影響に関する研究

(1) PM2.5成分の曝露評価モデルの精緻化に関する研究

国立研究開発法人国立環境研究所

地域環境研究センター

環境リスク・健康研究センター

<研究協力者

高見昭憲

新田裕史・道川武紘

上田佳代（京都大学）小島知子（熊本大学）>

平成26～28年度累計予算額：89,015千円（うち平成28年度：26,896千円）

予算額は、間接経費を含む。

[要旨]

越境大気汚染の影響を受けやすい北部九州地域である熊本および福岡においてガスおよび粒子状の大気汚染物質の観測を行い、微小粒子状物質（PM2.5）や黄砂による大気汚染の状況を把握すると共に、同地区における循環器疾患発症や救急搬送データを取得し、粒子状物質が健康へおよぼす影響について統計的な評価を行った。熊本ではPM2.5質量濃度、粒子状物質中の無機塩、水溶性有機物、黒色炭素の測定を行った。福岡ではPM中の無機塩、有機物の観測を行った。さらに、名古屋市においてフィルターサンプリングしたPM2.5中のイオン成分および炭素成分データを疫学解析に用いた。福岡において得られたPM化学成分をPM2.5濃度別に仕分けした結果、PM2.5濃度が高い時は硫酸塩の割合が高く、PM2.5濃度が低い時は硝酸塩の割合が高かった。PM有機成分のマスペクトルを用いて因子解析（Positive Matrix Factorization, PMF）を行った結果、PM2.5濃度が高く硫酸塩濃度が高い時は、酸化がすすんだ有機物の割合が高く、越境大気汚染による影響が示唆された。一方で、PM2.5濃度が比較的低く硝酸塩濃度が高い時は、排出されて間もない炭化水素様の有機物の割合が高く、福岡市および周辺から排出されるローカルな大気汚染物質の影響が示唆された。得られたPM化学成分データを用いて、日々の死亡、救急搬送、急性心筋梗塞発症との関連について疫学的手法を用いて検討した。福岡において循環器疾患発症により入院した患者数とPM成分濃度との関連において、硝酸塩、および有機物の一部の時間的遅れ（ラグ）でオッズ比は1を超えていたが、いずれも有意な関連はみられなかった。名古屋市においては、複数の成分と全死亡、循環器疾患死亡、呼吸器疾患死亡との間に有意な正の関連がみられた。熊本市における検討では、硫酸塩と急性心筋梗塞発症とが関連しているような傾向が観察された。PM成分濃度を用いた検討は、いずれも研究期間が限られており、統計学的な検出力が足りずに明らかな関連はみられなかったが、特定の成分が他の成分よりも影響が大きい可能性が示唆された。

[キーワード]

PM2.5、黄砂、化学組成、越境大気汚染、健康影響、救急搬送

1. はじめに

近年、中国をはじめとする東アジア地域の経済発展に伴い、これらの地域からの大気汚染物質

の放出が増加しており深刻な問題となっている。これらの汚染物質は季節風に乗って風下側の日本へ長距離輸送されることが知られており、その影響が懸念されている。日本国内では2009年に微小粒子状物質（PM_{2.5}）に係る環境基準が設定され、今後取り組むべき調査研究として、化学組成に着目した疫学研究、循環器疾患患者や循環器疾患に対するリスクの高い者を対象とした疫学研究が挙げられた。

現在のPM_{2.5}の環境基準は質量濃度基準であるが、健康被害をもたらすのは化学物質であり、どの粒子にどのような化学物質が含まれているのか、また、どのような化学物質が健康被害をもたらすのかを特定することは、よりの確な環境基準を策定するに当たり非常に重要である。粒子状物質（Particulate Matter, PM）の化学組成分析は従来から行われているが、疫学研究とリンクした研究は国内外ともに限られている。また、上記環境基準の設定では外国の結果も用いられており、国内に適用可能か検討が必要である。

2013年1月から4月にかけて九州地区ではPM_{2.5}の質量濃度が高くなり、PM_{2.5}の健康への影響についての議論が活発化している。2013年2月に設置された「PM_{2.5}に関する専門家会合」では、健康への短期曝露影響が出現する可能性が高くなると予測される濃度水準として、注意喚起のための暫定的な指針となる値を1日平均値70 $\mu\text{g m}^{-3}$ と定めたが、高感受性集団においては低濃度でも健康影響が生じる可能性は否定できず、新たな知見の蓄積が求められている。

一方、黄砂の健康影響に対する関心も高く、呼吸器疾患やアレルギー疾患を対象とした疫学知見が蓄積されているが、循環器疾患を対象とした疫学知見はほとんどない。

2. 研究開発目的

福岡、熊本は共に北部九州地区に位置し、冬季から春季にかけて季節風に乗って長距離輸送されてくる大気汚染物質の影響を受けやすくそれらを捉えやすいと考えられる。また、福岡市は人口155万人、熊本市は75万人ほどの大きな都市であり、自動車排気ガスなどのローカルな都市大気汚染物質の影響も大きいと考えられ、都市大気への越境大気汚染の寄与について詳細な検討が可能である。本研究では、福岡および熊本においてPMの重量濃度および化学組成（無機塩、有機物、金属元素、黒色炭素など）を観測し、北部九州地域の都市大気への越境大気汚染の寄与について検討する。また、同地区における循環器疾患発症（主に心筋梗塞）や救急搬送データなど医療データを取得し、粒子状物質の健康影響を統計的に評価することで、PM_{2.5}及び黄砂の短期曝露に関する健康影響を明らかにすることを目的とした。

3. 研究開発方法

（1）大気観測および解析

福岡県福岡市、太宰府市、熊本県熊本市において大気中のPM化学組成観測を行った。それぞれの測定装置の写真を図(1)-1に示す。

福岡市では福岡大学（33.55°N、130.36°E）において大気観測を行った。福岡大学は福岡市の中心部から5 km圏内の城南区に位置し、周囲を高速道路や幹線道路、鉄道が走り、近隣には住宅街や商業地区も多く自動車排気ガスなどのローカルな都市大気汚染物質の影響を受けやすいと考えられる。福岡大学の理学部18号館4階に設置したエアロゾル質量分析計（Aerosol Mass Spectrometer、AMS、Aerodyne Research, Inc.）を用いPM化学成分質量濃度を通年測定した。実験室の窓側に配

した集中配管から PM2.5 カットサイクロン (BGI SCC 0.732, Mesa Labs, Inc.) を経て AMS に大気試料を流量 0.1 Lmin^{-1} で導入した。導入された試料はエアロダイナミックレンズによりガス成分と粒子成分に分離され粒子ビームを生成する。分離された粒子は約 600°C に加熱した蒸発装置により気化され、電子衝撃法により 70 eV でイオン化し四重極質量分析計で化学組成を分析した^{1) - 3)}。硫酸イオン (SO_4^{2-})、硝酸イオン (NO_3^-)、アンモニウムイオン (NH_4^+)、塩化物イオン (Cl^-) の質量濃度についてそれぞれの質量スペクトルを基に定量した。定量には静電分級器 (Differential Mobility Analyzer 3081, TSI Inc.) により分級した粒径 350 nm の硝酸アンモニウム (NH_4NO_3) を用いた。有機物は AMS で測定した全質量から上記で定量した既知の無機イオンや窒素、酸素などのガス成分を引いた残りである。AMS による測定の時間分解能は 10 分であった。大気常時監視局である香椎一般大気環境測定局 (福岡市東区香住ヶ丘) および長尾一般大気環境測定局 (福岡市城南区长尾) の PM2.5 質量濃度データを収集し、解析に用いた。さらに、有機物データを Positive Matrix Factorization (PMF) 法により解析し、有機物の質量スペクトルのフラグメントパターンからそれらの起源について推定した⁴⁾。

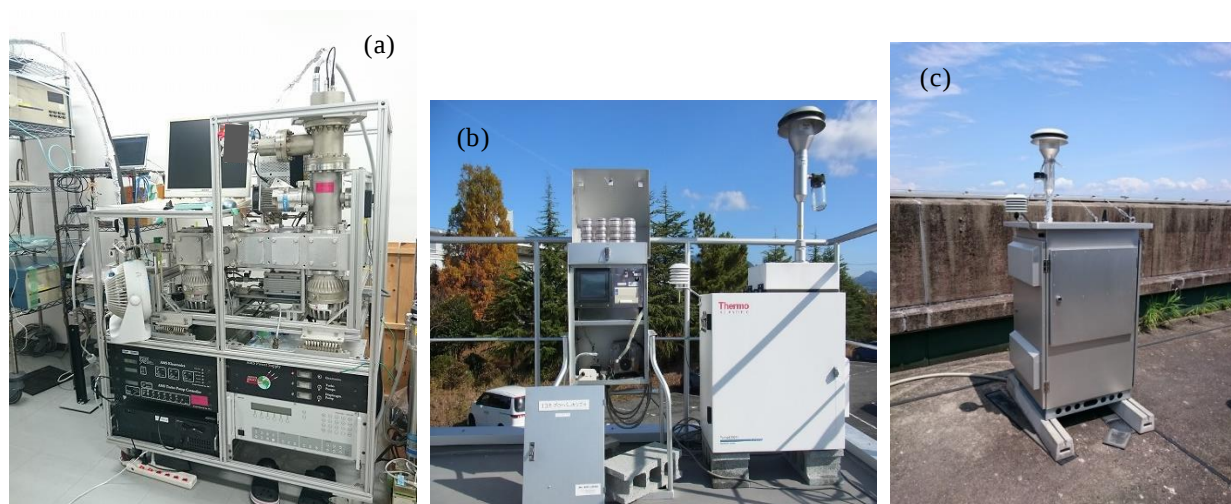
太宰府市では一般大気環境測定局の一つである福岡県保健環境研究所 (33.30°N , 130.30°E) において観測を行った。太宰府市は福岡市の中心部からおよそ 10 km 南に位置し、福岡市内とほぼ同様の大気質が観測されている。2014 年 10 月 14~31 日、12 月 16~23 日、2015 年 7 月 27~8 月 7 日、10 月 26~11 月 6 日、2016 年 2 月 29~3 月 11 日、10 月 17~28 日の 6 回にわたり 10 ライングローバルサンプラー (東京ダイレック) を用いたフィルターパック法による大気中のガス・粒子の同時捕集を 12 時間毎 (0:00-12:00, 12:00-24:00) に行った。フィルターパック法とは多段のフィルターホルダーに特性の異なるフィルターを装着して空気を吸引して PM やガスをフィルター上に捕集する方法である。本観測で用いたフィルターパックは 4 段で、1 段目 (F0) では ADVANTEC 社製 T080A047A フィルターを用い PM を捕集した。2 段目 (F1) では PALL 社製 ULTIPOR フィルターを用い、ガス状物質、主に硝酸 (HNO_3) を捕集した。3 段目 (F2) では ADVANTEC 社製 No.51A フィルターを 6 %炭酸カリウムおよび 2 %グリセリン水溶液に含浸させたものを用い、ガス状物質、主に二酸化硫黄 (SO_2) を捕集した。4 段目 (F3) では ADVANTEC 社製 No.51A フィルターを 5%リン酸および 2 %グリセリン水溶液に含浸させたものを用い、ガス状物質、主にアンモニア (NH_3) を捕集した。フィルターを回収後、4 等分程度に切り、超音波抽出した。抽出液はろ過後イオンクロマトグラフを用いて該当するイオン種 (Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-} , Na^+ , NH_4^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+}) を定量し、大気汚染物質の大気中濃度を求めた。同局において常時観測されている PM2.5 質量濃度データを解析に用いた。

熊本市では熊本大学黒髪キャンパス (32.81°N , 130.73°E) の自然科学研究科棟屋上に新たに大気エアロゾル化学成分連続自動分析装置 (Aerosol Chemical Speciation Analyzer, ACSA-14、紀本電子工業) を設置し PM 質量濃度および PM 中の化学成分の通年連続観測・分析を行った。熊本大学黒髪キャンパスは熊本市の中心部である中央区に位置し交通量の多い幹線道路や鉄道が近隣を走っている。周囲は住宅が多いが商業地区が近く、ローカルな大気汚染物質の影響を受ける。ACSA では仮想インパクタにより粗大粒子と微小粒子に分級し 1 時間ごとにテープ状のフッ素樹脂フィルターに捕集する。捕集した粒子の質量濃度をベータ線吸収法により測定し、黒色炭素粒子 (Optical Black Carbon, OBC) を近赤外散乱法により測定した後、フィルター上の粒子は硫酸アンモニウム ($(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$) 水溶液により抽出され抽出液が測定セルに導入される。測定セルでは NO_3^-

と水溶性有機炭素（Water Soluble Organic Carbon、WSOC）が紫外吸光法により測定され、 SO_4^{2-} が光散乱検出器を用いた塩酸バリウム（ BaCl_2 ）の比濁法により測定される。熊本市京町一般大気環境測定局（熊本市中央区京町）の $\text{PM}_{2.5}$ 質量濃度データを収集し、ACSA による測定結果と比較した。

観測期間中の気塊の軌跡についてアメリカ海洋大気庁（NOAA）の後方流跡線解析モデル Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory Model（HYSPLITT）を用いて計算した^{5), 6)}。硫酸塩、ダストの空間分布について Chemical Weather Forecasting System（CFORS）を用いて予想・計算した^{7), 8)}。

集中観測期間における福岡・熊本の観測結果はサブテーマ 2 および 3 の分析結果と合わせて解析し、PM に含まれる化学組成を明らかにした。さらに、この解析結果と通年の連続観測結果を疫学班に提供した。



図(1)-1 福岡、熊本における大気中 PM 化学成分観測装置 (a) AMS（福岡大学）
(b) 10 ライングローバルサンプラー（福岡県保健環境研究所）(c) ACSA-14（熊本大学）

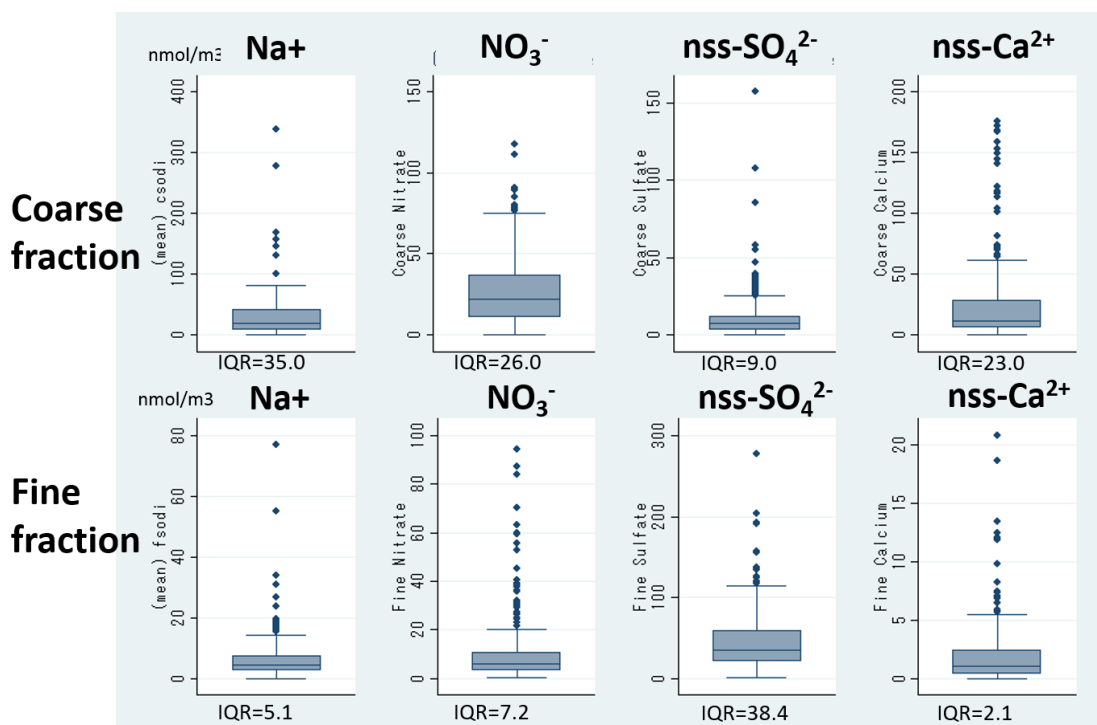
（２）疫学解析

名古屋市、福岡市、および熊本市で連続観測された粒子成分の濃度情報を用いて、日々の死亡、救急搬送、急性心筋梗塞発症との関連について疫学的手法を用いて検討した。

健康アウトカム情報として、名古屋市では2003-2007年の粒子状物質成分および日死亡数の情報を用いた。福岡では、2005～2012年における福岡市の急病による救急搬送情報（全急病、循環器疾患、呼吸器疾患によるもの）、2012～2013年に福岡県内の18医療機関に急性心筋梗塞のため入院した患者情報を用いた。熊本では、熊本県内で発症した急性心筋梗塞をほぼ全例登録している熊本急性冠症候群研究（Kumamoto Acute Coronary Events [KACE] study）の2014年患者情報を用いた。このKACEデータは、心筋梗塞の発症日を把握できていることが特徴である。

成分濃度として、名古屋市では $\text{PM}_{2.5}$ のフィルターサンプルを用いて得られた、イオン成分と炭素成分の濃度情報を用いた。福岡では、エアロゾル質量分析計（AMS）によるPM化学成分重量濃度の連続観測で得られた硫酸イオン（ SO_4^{2-} ）、硝酸イオン（ NO_3^- ）、アンモニウムイオン（ NH_4^+ ）物イオン（ Cl^- ）、有機物濃度の情報、および3月～夏までにフィルターサンプリングして得られた

PMを抽出した水溶性成分（ナトリウムイオン、硝酸イオン、非海塩性硫酸イオン、非海塩性カルシウムイオン）データを用いた。水溶性成分データは、値に大幅なばらつきがみられるため（図(1)-2）、濃度の1パーセンタイル以下、99パーセンタイル以上を外れ値としてデータから除いた。



図(1)-2 2009～2011年（3～7月）の福岡におけるPM粒子成分の箱ひげ図。

上段は粗大成分、下段は微小成分

熊本市では、大気測定チームが2014年9月からAerosol Chemical Speciation Analyzer（ACSA、紀本電子工業）を使って連続測定した粒子状物質の化学組成データを用いた。測定された化学組成は、OBC（ブラックカーボン）、NO₃⁻イオン、WSOC（水溶性有機物）、SO₄²⁻イオンであった。関連を検討するために、救急搬送と水溶性成分の検討では、それぞれの水溶性成分濃度を低濃度（25パーセンタイル値未満）、中濃度（25パーセンタイル値～75パーセンタイル値未満）、高濃度（75パーセンタイル値以上）の3カテゴリーに分類し、低濃度に対する中濃度および高濃度のリスク比と95%信頼区間を推定した。死亡と心筋梗塞による入院・発症と成分との関連については、それぞれの成分濃度の四分位範囲（IQR）あたりのオッズ比と95%信頼区間を推定した。いずれの研究においても曜日、季節性、気温などの交絡因子を調整した。また、PM成分への曝露から急性心筋梗塞発症・入院、救急搬送、死亡に至るまでには遅れ（ラグ）がある可能性があるため、当日から数日前までのラグの影響についても検討した。

目視による黄砂判定は、黄砂の有無しか判定できず、曝露量—健康影響の評価ができない。本課題では、まず、福岡市においてSPMとPM_{2.5}濃度の差（cPM）および比（PM ratio）を算出して、これらを用いて黄砂の量を反映する黄砂曝露指標について検討した。黄砂日について、cPMあるいはPM ratioの25パーセンタイル値(P25)、50パーセンタイル値(P50)、75パーセンタイル値(P75)で区切り、cPM濃度/PM ratioの小さい順にQ1、Q2、Q3、Q4とした。次に、cPMやPM ratioを用いて作成し

た黄砂曝露のカテゴリーが黄砂粒子を反映することを確認するため、福岡市内で観測された非海塩性カルシウムイオンと比較した。

さらに、黄砂粒子の定量的な曝露指標として、黄砂時における粗大粒子を反映するcPM（SPM濃度とPM_{2.5}濃度の差）、PMratio（SPM濃度とPM_{2.5}濃度の比）を複数都市（仙台市、名古屋市、大阪市、福岡市、熊本市）の救急搬送情報と結合し、関連について検討した。各都市について、cPM、PMratioの値をもとに、黄砂日をmild（黄砂粒子量が少ない：各指標の33パーセンタイル未満）、moderate（黄砂粒子量が中程度：各指標の33～66パーセンタイル）、heavy（黄砂粒子量が多い：各指標の67パーセンタイル以上）に分け、この3区分について、Poisson回帰分析を行った。解析では、交絡因子として気象、インフルエンザ流行、季節を調整し、非黄砂日に対する各区分の救急搬送リスクの変化率と95%信頼区間を算出した。

4. 結果及び考察

（1）大気観測および解析

福岡におけるAMSによる2015年および2016年の観測結果および福岡市香椎一般大気測定局のPM_{2.5}質量濃度を図(1)-3に示す。2014年、2015年は日本の下記特有の高湿度条件や台風の直撃などもありAMSの故障が頻繁にあり観測できた期間が少なかった。2016年はそれらを踏まえ夏季の観測は中止した。福岡におけるPM化学成分は有機物、SO₄²⁻、NO₃⁻が主であった。福岡では越境大気汚染の影響が強いとSO₄²⁻の割合が高くなるが、ローカル汚染の影響を強く受けると有機物と共にNO₃⁻が高くなる傾向が観察された。

これらを定量的に評価するため、データ数が多かった2013年の観測データを用いてPM_{2.5}の質量濃度を10 µg m⁻³以下、10以上35 µg m⁻³未満、35 µg m⁻³以上の3段階に分け、PM化学組成の割合を求めた（図(1)-4）。この結果、PM_{2.5}濃度が高い時はSO₄²⁻の割合が高く、PM_{2.5}濃度が低くなるにしたがって有機物およびNO₃⁻の割合が高くなる傾向が見られた。PM_{2.5}濃度が高い時は越境大気汚染の影響が大きく、濃度が低い時はローカルな大気汚染物質の影響が相対的に大きくなることが明らかとなった。

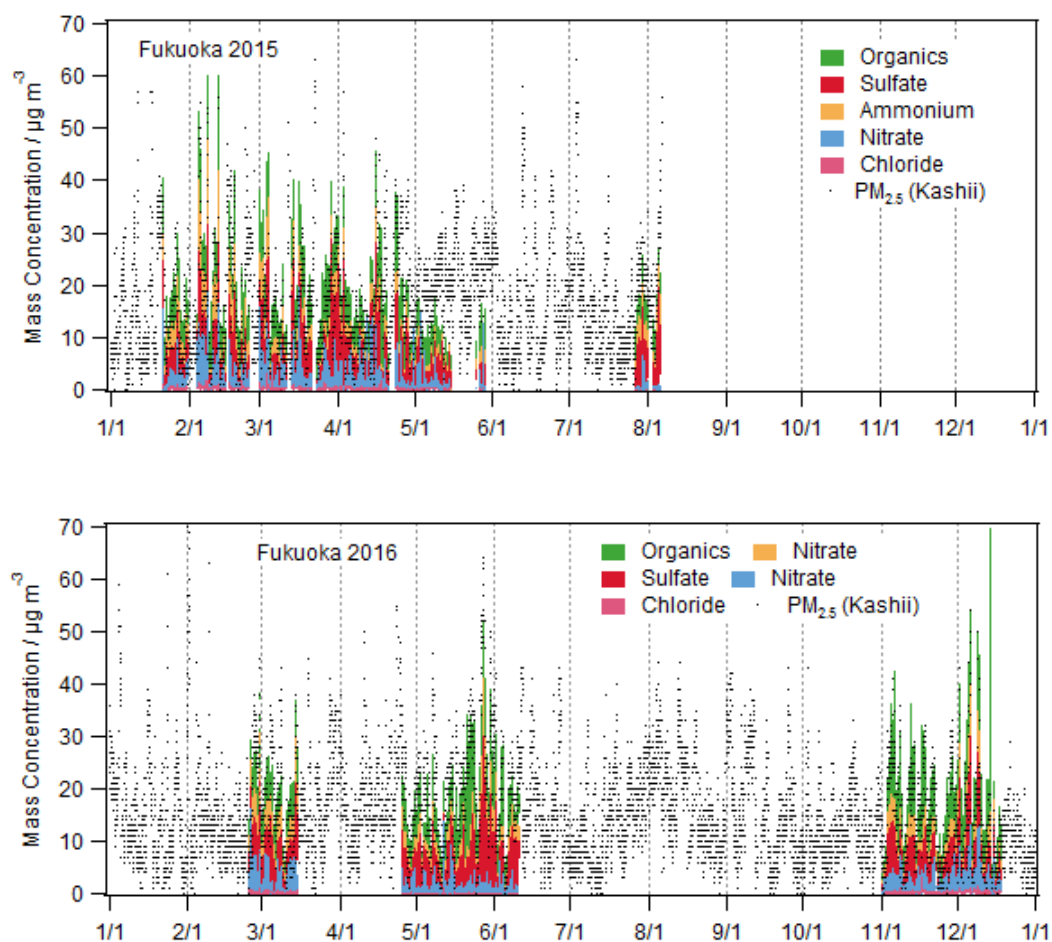
2013年にAMSで観測された有機物の質量スペクトルのPMF解析を行った。それぞれのファクターの質量スペクトルを図(1)-5に示す。PMF解析の結果、福岡では、

1) m/z = 44(COO⁺フラグメント)を主とした酸化が進んでいる有機物(low-volatile oxygenated organic aerosol, LV-OOA)

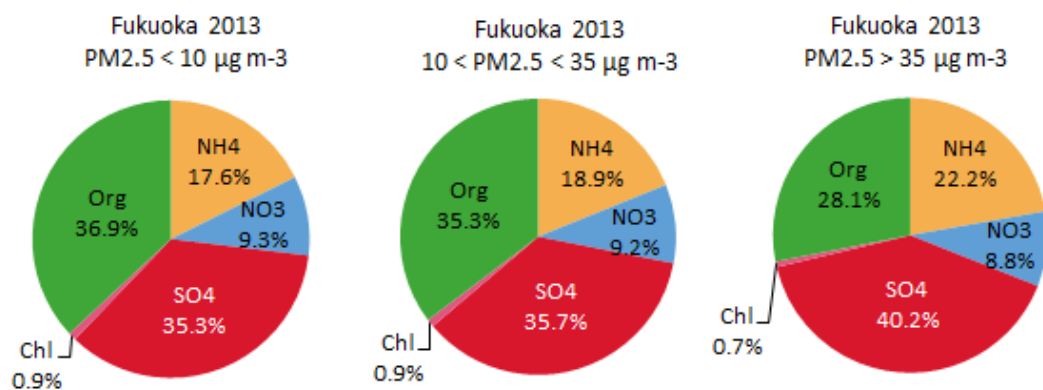
2) m/z = 41、43、55、57 (C₃H₅⁺、CH₂CHO⁺、C₃H₇⁺、C₄H₇⁺、C₄H₉⁺フラグメント)を主とした部分的に酸化されている有機物(semi-volatile oxygenated OA, SV-OOA)と排出されて間もないほとんど酸化されていない有機物(hydrocarbon-like OA, HOA)

を含む2つのファクターに分類された。

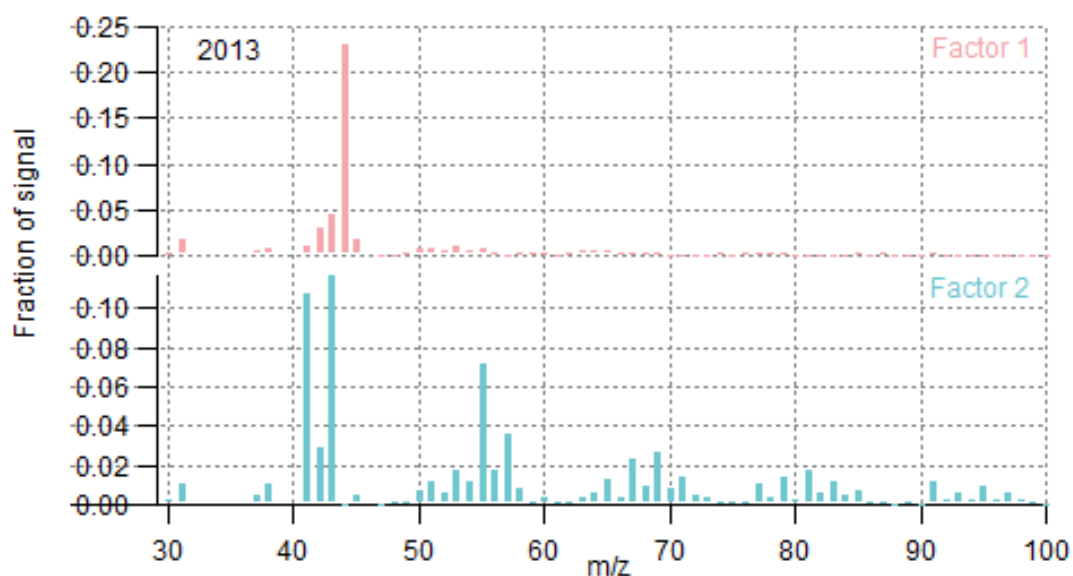
さらに、PMF解析で得られた各ファクターをPM化学成分と同様にPM_{2.5}の質量濃度によって分け、それぞれの割合を求めた（図(1)-6）。PM化学組成同様に、PM_{2.5}濃度が高いと長距離輸送されたと考えられる酸化がすすんだLV-OOAの割合が高く、PM_{2.5}濃度が低くなるにしたがってあまり酸化されていないSV-OOAや福岡やその近郊から排出されたと考えられるHOAの割合が高くなる傾向が見られた。これらの結果から、福岡は越境大気汚染とローカルな大気汚染の両方の影響を受ける複雑な大気質であると考えられる。



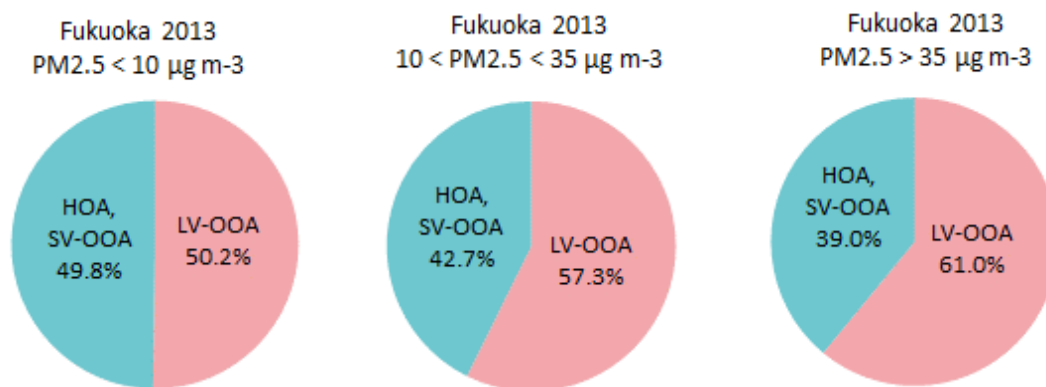
図(1)-3 福岡におけるAMSによるPM化学成分観測結果（上段：2015年、下段：2016年）



図(1)-4 AMSで観測されたPM_{2.5}濃度別のPM化学組成

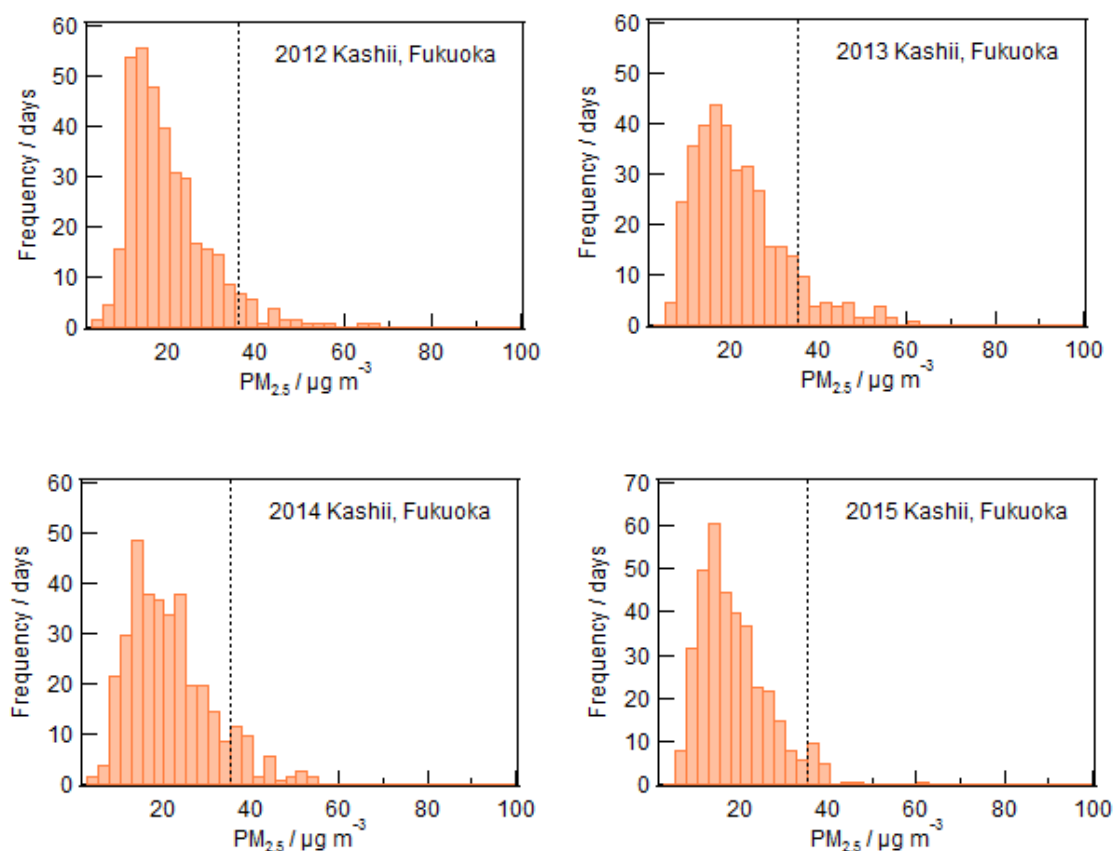


図(1)-5 PMF解析によって得られた各ファクターの質量スペクトル
(Factor 1: LV-OOA、Factor 2: SV-OOA、HOA)



図(1)-6 PM2.5濃度別に分けたPMF解析によって得られた各ファクターの割合

公開されている2012年～2015年の福岡市香椎一般大気測定局のPM2.5測定データを用いて、質量濃度の日平均値の頻度分布を分析した結果(図(1)-7)、注意喚起の基準である70 µg m⁻³を超える日は無かった。疫学統計解析を行うために必要なデータが得られなかったため、注意喚起の基準の妥当性を検討することはできなかった。



図(1)-7 福岡市香椎一般測定局におけるPM2.5質量濃度日平均値の頻度分布（点線は $35 \mu\text{g m}^{-3}$ ）

太宰府における主要なイオン成分 (Cl^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+}) およびガス成分 (HCl 、 HNO_3 、 SO_2 、 NH_3) の観測結果 ($\mu\text{g m}^{-3}$) を表(1)-1および(1)-2にまとめた。 SO_4^{2-} 、 Ca^{2+} については Na^+ 濃度から算出した海塩性の SO_4^{2-} および Ca^{2+} をそれぞれから差し引いた非海塩性 (non-sea salt) の nss-SO_4^{2-} 、 nss-Ca^{2+} を用いて解析を行った。

表(1)-1 太宰府においてフィルターパック法により捕集されたPM中イオン成分

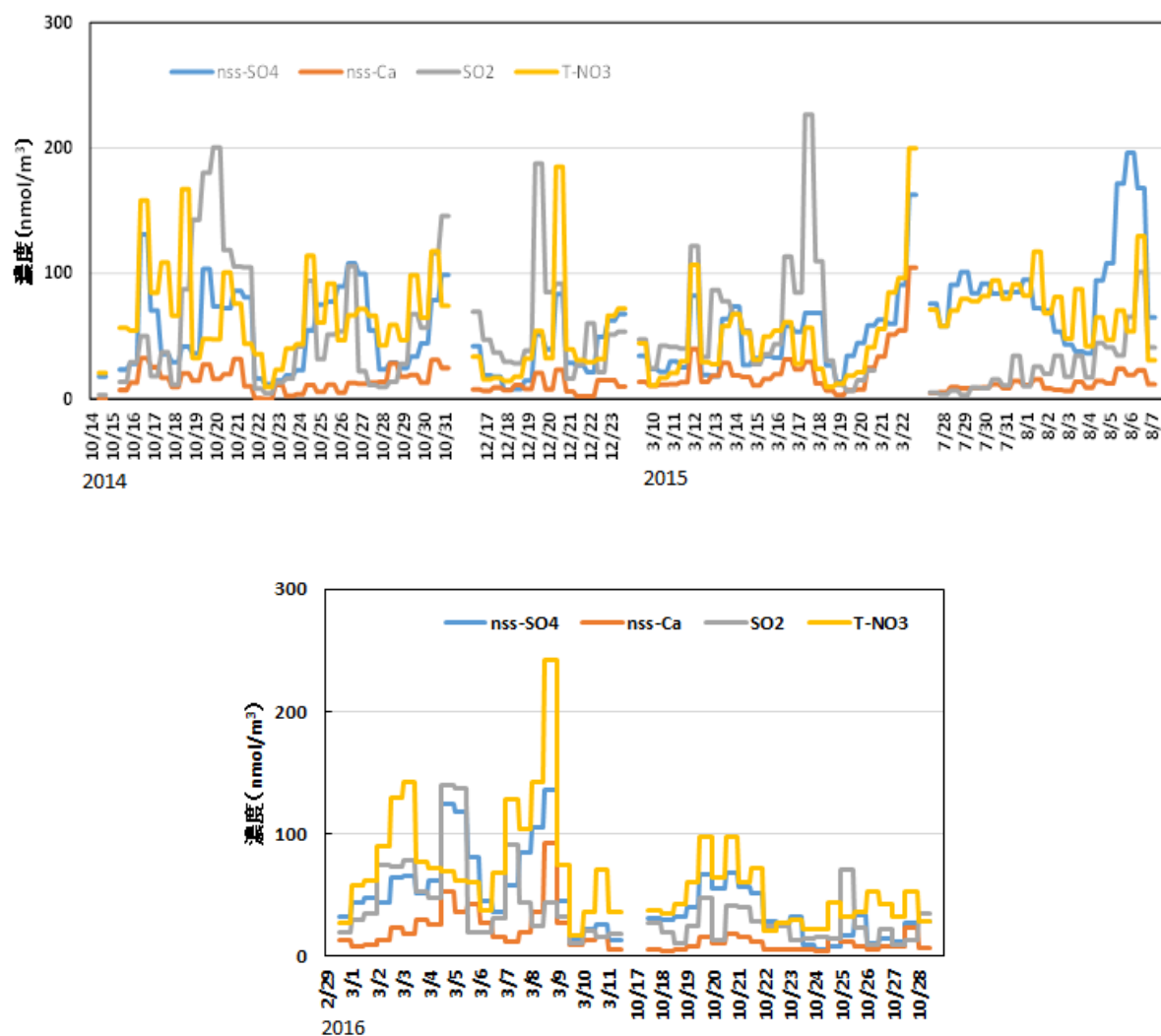
	PM2.5 ($\mu\text{g m}^{-3}$)	Cl^- ($\mu\text{g m}^{-3}$)	NO_3^- ($\mu\text{g m}^{-3}$)	nss-SO_4^{2-} ($\mu\text{g m}^{-3}$)	Na^+ ($\mu\text{g m}^{-3}$)	NH_4^+ ($\mu\text{g m}^{-3}$)	K^+ ($\mu\text{g m}^{-3}$)	Mg^{2+} ($\mu\text{g m}^{-3}$)	nss-Ca^{2+} ($\mu\text{g m}^{-3}$)
2014 Oct	21	2.0	2.6	5.6	1.7	1.8	0.22	0.22	0.61
2014 Dec	17	3.8	2.4	3.9	2.7	1.3	0.19	0.31	0.44
2015 Jul	23	0.27	1.3	8.6	0.89	3.2	0.16	0.11	0.46
2015 Oct	19	1.0	2.9	3.8	1.0	1.6	0.20	0.13	0.64
2016 Mar	21	2.0	4.2	5.7	1.6	2.7	0.22	0.24	1.0
2016 Oct	13	0.69	1.6	3.0	1.0	1.5	0.10	0.14	0.37
Average	19	1.6	2.5	5.1	1.5	2.0	0.18	0.19	0.58

表(1)-2 太宰府においてフィルターパック法により捕集されたガス成分

	HCl ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	HNO ₃ ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	SO ₂ ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	NH ₃ ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
2014 Oct	0.73	1.6	3.9	2.5
2014 Dec	0.19	0.42	3.6	1.1
2015 Jul	1.0	2.0	1.7	2.6
2015 Oct	0.69	1.5	1.9	2.0
2016 Mar	0.58	0.81	2.9	1.5
2016 Oct	0.68	1.2	1.6	2.8
Average	0.65	1.3	2.6	2.1

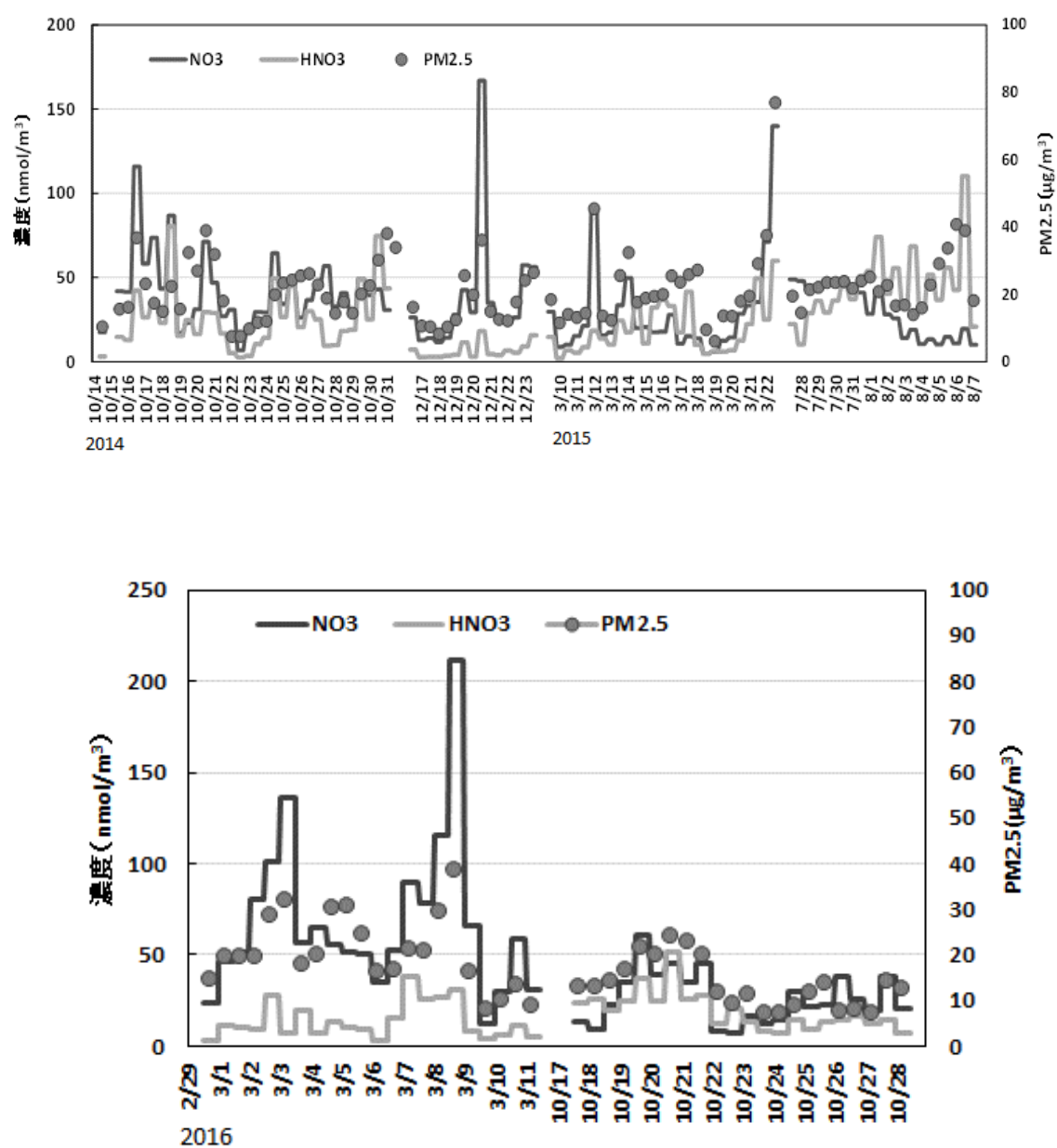
2014年の観測では、10月16日、19日、25-27日、12月20日、3月22日に高濃度の nss-SO_4^{2-} が観測された（図(1)-8）。PM2.5質量濃度と nss-SO_4^{2-} 濃度にはよい相関が見られ、 nss-SO_4^{2-} 濃度はPM2.5濃度の約1/4であった。九州地方は近年桜島、阿蘇と火山活動が活発化している。 nss-SO_4^{2-} 濃度とSO₂濃度の比較や後方流跡線解析の結果から、越境大気汚染と火山活動の影響を区別してみる。10月16日は nss-SO_4^{2-} 濃度>SO₂濃度であり、後方流跡線解析の結果を見ると気塊が大陸から飛来していることから越境大気汚染と推測される。10月20日前後はSO₂濃度> nss-SO_4^{2-} 濃度であり、後方流跡線解析によると気塊が国内を通過しており火山活動やローカルな大気汚染物質の影響が推測される。10月26日、31日とも同様の解析により火山活動の影響が推測される。12月20日は nss-SO_4^{2-} 濃度とSO₂濃度がどちらも高いが、後方流跡線解析から12月20日は大陸からの気塊が到達していることがわかり、越境大気汚染と推測される。12月19日は非常に高濃度のSO₂が観測されており、火山活動の影響であると考えられる。図(1)-9に示したように3月12日はPM2.5質量濃度が高いこと、T-NO₃（PM中NO₃⁻+ガス状HNO₃）濃度> nss-SO_4^{2-} 濃度から越境大気汚染と推測される。一方、3月17日はSO₂濃度> nss-SO_4^{2-} 濃度であり、かつ nss-SO_4^{2-} 濃度>T-NO₃濃度、後方流跡線解析から火山活動の影響が推測される。黄砂起源である nss-Ca^{2+} の高濃度は10月16日に観測された。

2015年夏、秋と2016年春の観測で特筆すべきはこの3期間の平均T-NO₃濃度がほぼ同等レベル（夏季（74 nmol m⁻³）、秋季（72 nmol m⁻³）、春季（81 nmol m⁻³））であったことである。最高濃度は（春季（242 nmol m⁻³）、秋季（156 nmol m⁻³）、夏季（130 nmol m⁻³））であり、強い光化学汚染があったと推定される。図(1)-8に各成分の濃度変動を示した。8月5、6日は nss-SO_4^{2-} 濃度>T-NO₃濃度≒SO₂濃度であった。8月6日0:00～12:00は nss-SO_4^{2-} 濃度が極端に高かったが、12:00～翌8月7日0:00はT-NO₃濃度も高くなった。CFORSモデルのシミュレーション結果を見ると（図(1)-10）、8月5日から7日にかけて大陸から硫酸塩濃度の高い気塊が到達してきたことに加え、移動速度の小さな台風がフィリピン海沖に存在していて、大気の拡散が小さく、光化学反応が進んだため高濃度の nss-SO_4^{2-} やT-NO₃が観測されたと考えられる。秋季観測では、ほぼ全期間を通じてT-NO₃濃度> nss-SO_4^{2-} 濃度であった。11月4日0:00～12:00には高濃度のSO₂が観測されたが、 nss-SO_4^{2-} 濃度はそれほど高くはなかった。

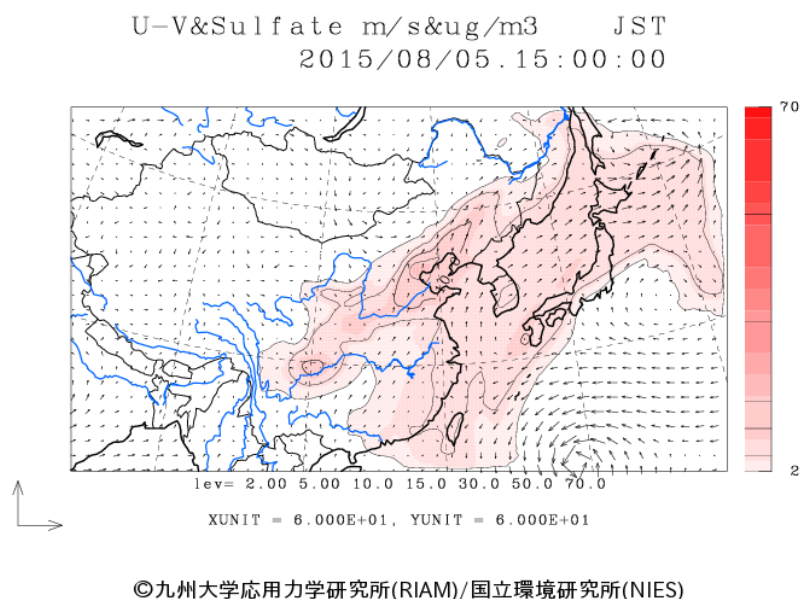


図(1)-8 太宰府市においてフィルターパック法により捕集されたPM中nss-SO₄²⁻、nss-Ca²⁺、ガス状SO₂、T-NO₃（PM中NO₃⁻ + ガス状HNO₃）濃度

2016年春季は大気汚染物質濃度の変動が激しかった。3月2、3日はT-NO₃濃度 > nss-SO₄²⁻濃度であったが、SO₂濃度も若干高かった。3月4日0:00～12:00、5日12:00～0:00はSO₂濃度 ≒ nss-SO₄²⁻濃度 > T-NO₃濃度となり火山活動の影響が推測され、nss-Ca²⁺濃度も上昇した。3月7、8日はT-NO₃濃度がnss-SO₄²⁻濃度より高く、3月8日0:00～12:00に最高濃度を示した。nss-Ca²⁺濃度も全観測期間の最高濃度（92 nmol m⁻³）を示した。2016年の春季観測の平均nss-SO₄²⁻濃度（60 nmol m⁻³）は秋季観測（31 nmol m⁻³）の約2倍であり、春季観測の平均 NO₃⁻濃度（68 nmol m⁻³）は秋季観測（27 nmol m⁻³）の約2.5倍であった。図(1)-9に見られるように3月3日前後と8日前後に高濃度のNO₃⁻（最高濃度211 nmol m⁻³）が観測された。3月8日前後に黄砂起源であるnss-Ca²⁺が高濃度（92 nmol m⁻³）で観測された。



図(1)-8 太宰府市においてフィルターパック法により捕集された PM 中 NO_3^- 、ガス状 HNO_3 、および $\text{PM}_{2.5}$ 質量濃度

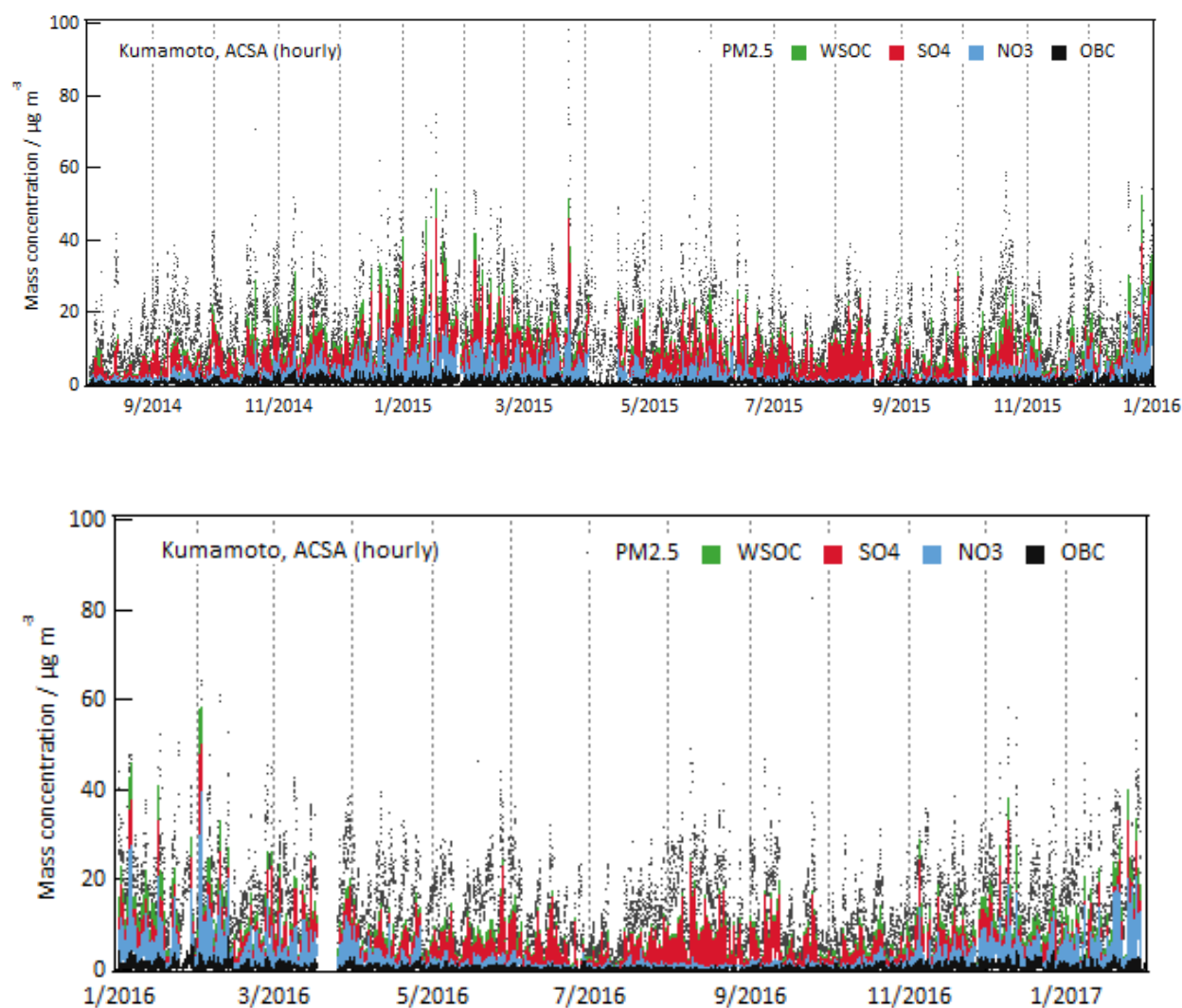


図(1)-10 CFORSによる2015年8月5日15:00における硫酸塩の濃度分布予想

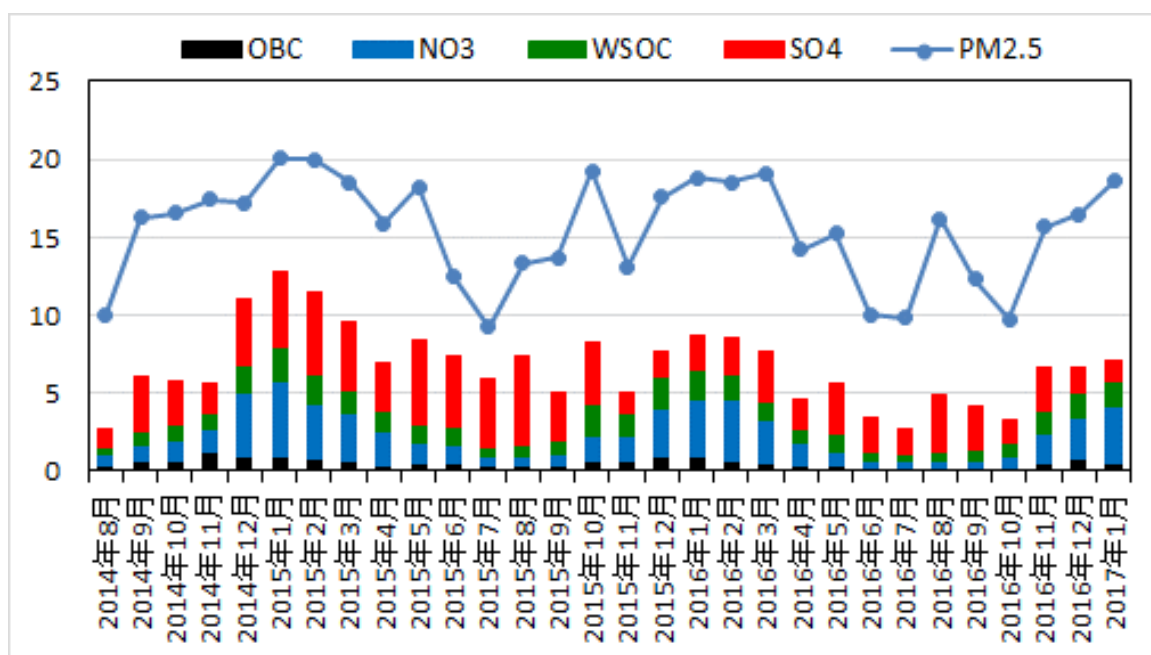
熊本でACSAにより観測されたPM_{2.5}質量濃度、OBC、WSOC、SO₄²⁻、NO₃⁻を図(1)-11に示す。熊本のPM化学成分は福岡と同様にSO₄²⁻、NO₃⁻が大きな割合を示していた。一ヶ月の平均値(図(1)-12)を見ると福岡と比較してNO₃⁻の割合が高いことがわかった。

太宰府の集中観測期間に相当する期間について細かく見てみると、2014年秋の観測では10月16日夜、18日、20日夜に高濃度のPM_{2.5}が観測された。このうち16日夜と18日はSO₄²⁻も高濃度であったが20日夜は比較的濃度であった。また、これらの日に熊本に到達する気塊の後方流跡線解析結果を見ると、大宰府と同様に、16日、18日は気塊が大陸から来ているのに対し、20日は国内から来ていることがわかる。以上のことから、16日と18日にPM_{2.5}が高濃度で観測されたのは越境大気汚染の影響であると考えられる。また、20日の高濃度イベントについては近隣の常時監視局(京町一般大気測定局)における濃度変動との比較などからローカルな発生源(野焼き等)による影響であると推定される。冬の観測では、12月19日および20日にPM_{2.5}が高濃度で観測された。後方流跡線解析の結果から19日の気塊は主に国内から来ているが20日昼頃より大陸からの気塊が到達していることが分かった。したがって19日の高濃度イベントは国内由来、20日の高濃度イベントは大陸由来であると考えられる。また、図(1)-13にPM_{2.5}濃度と併せて近隣の常時監視局(京町一般大気測定局)で測定されたSO₂の濃度変化を示す。19日に非常に高濃度のSO₂が観測されており、これは九州地方の火山(阿蘇山、桜島)の影響であると考えられる。さらに、20日の午前中には降雨があり、これに伴いPM_{2.5}濃度の減少がみられる。つまり19日の高濃度イベントは火山の影響であり、20日午前中の降雨により空気が清浄になった後、20日午後に大陸からの汚染気塊が到達しPM_{2.5}濃度が上昇したと考えられる。以上の観測結果は図(1)-8で示した福岡での観測結果とも非常によく一致しており、越境大気汚染や火山による大気汚染物質の影響は局所的なものではなく、九州地方を含む広範囲に同様の影響を及ぼしていると考えられる。

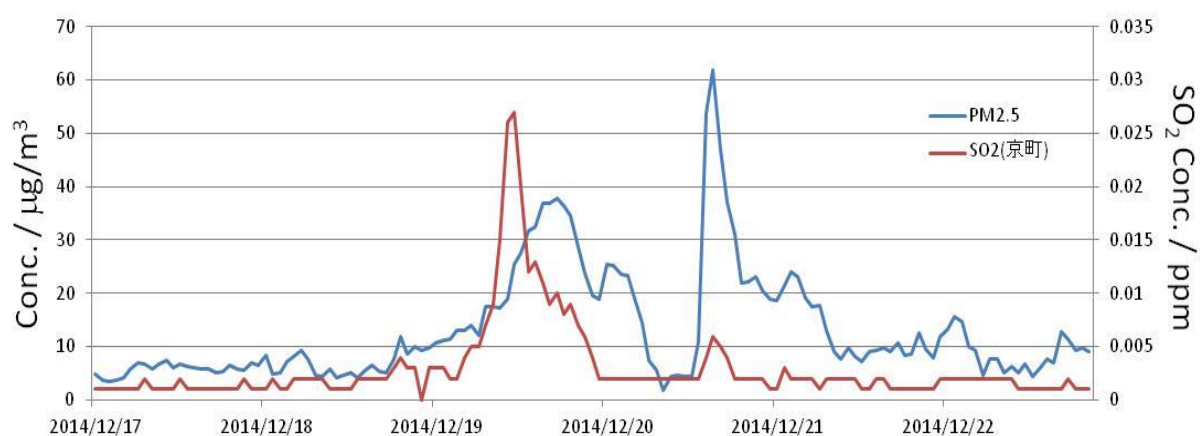
2016年2月～3月の熊本と福岡のPM化学成分およびPM2.5質量濃度について比較した結果を図(1)-14に示す。ここで、福岡ではAMSで観測した有機物のPMF解析から得られたLV-OOAを熊本のACSAで観測したWSOCと同等として解析した。福岡と熊本ではPMは同様の濃度変動を示しており、越境大気汚染が九州地方の広範囲に広がっていることを示唆している。また、福岡のPM化学成分は SO_4^{2-} が25%で、 NO_3^- が11%であるのに対し、熊本では SO_4^{2-} の割合が16%程度であり、 NO_3^- の割合が13%と高いことがわかる(図(1)-15)。太宰府に設置された九州大学鶴野教授のACSA観測結果と比較しても同様の結果が得られており、AMSとACSAの測定方法の違いによる差異ではないことが裏付けられている。したがってこれらの結果は福岡と熊本の地域的な大気質の違いを反映していると考えられる。 NO_3^- の前駆物質は自動車排気ガスなどの燃焼によるローカル汚染が主要起源である NO_x であり、福岡、熊本共に越境大気汚染の影響に加え、ローカル汚染の影響が大きいことがわかった。熊本は福岡よりも規模の小さい都市であるが福岡よりも高濃度の NO_3^- が観測されており、ローカルな大気汚染物質の動態の把握や健康への影響についての検討が重要であると考えられる。



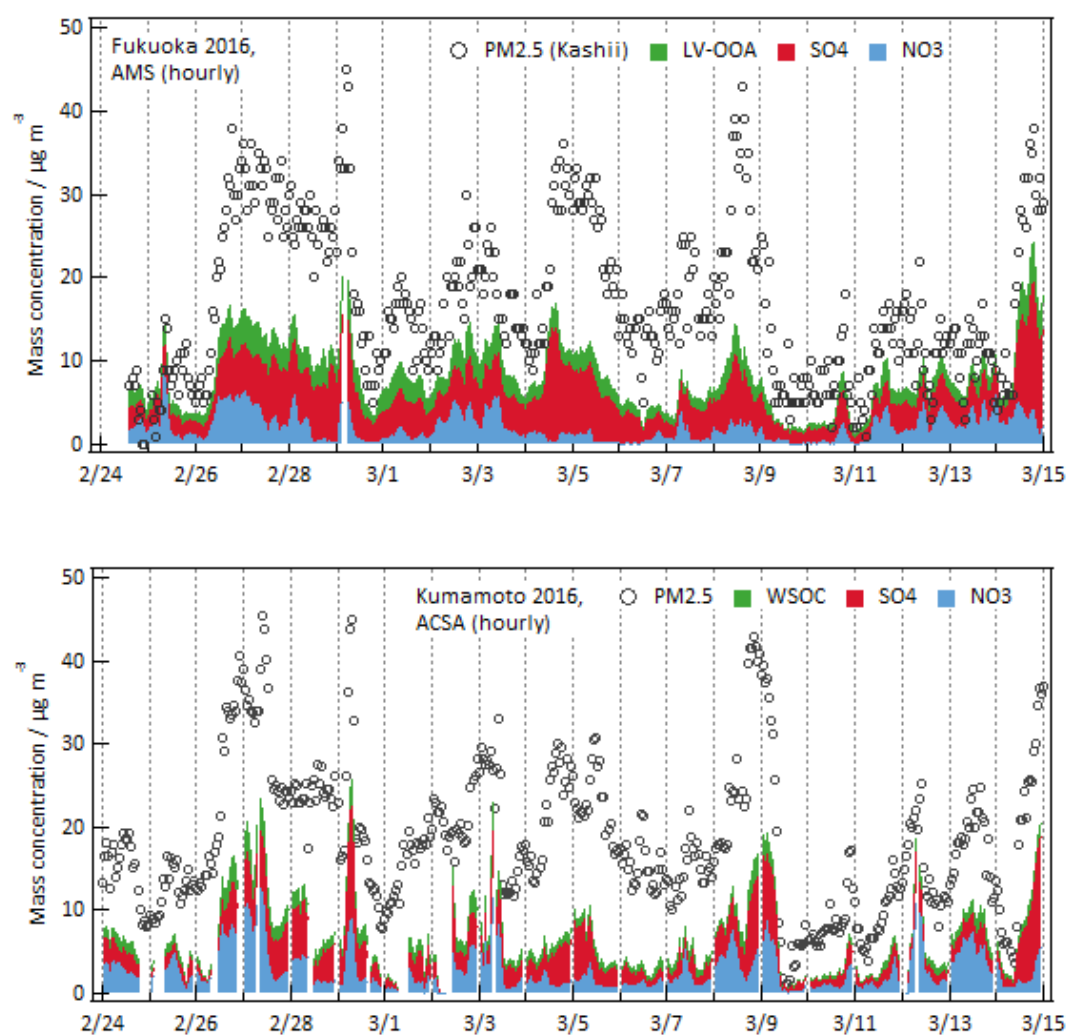
図(1)-11 熊本におけるACSAによるPM2.5および化学成分観測結果



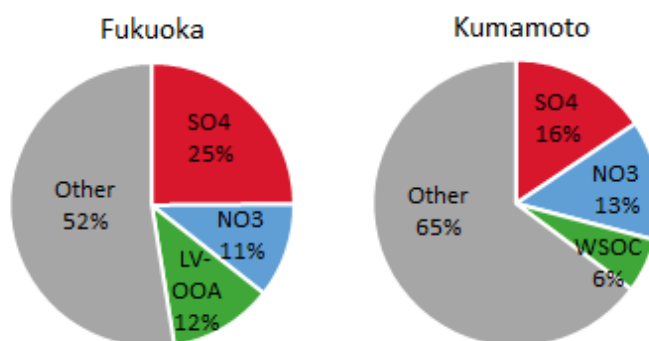
図(1)-12 熊本におけるACSAによるPM観測結果の一ヶ月平均値



図(1)-13 2014年12月の熊本におけるPM2.5とSO₂の濃度変動



図(1)-14 2016年2月～3月の福岡（上段）、熊本（下段）におけるPM化学成分観測結果

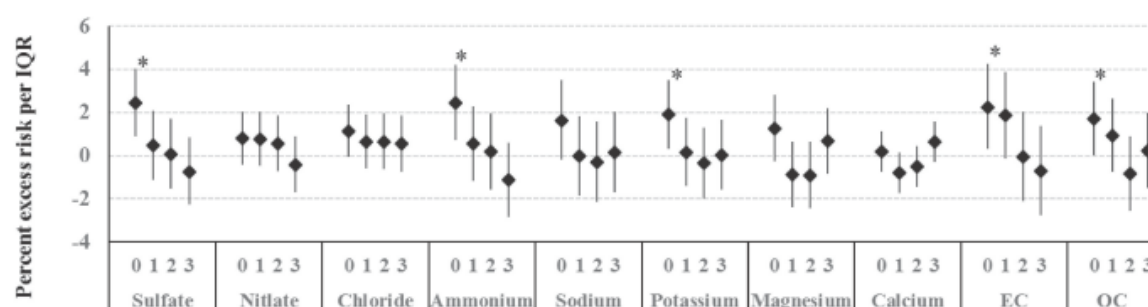


図(1)-15 2016年2月～3月の福岡、熊本におけるPM化学成分の割合

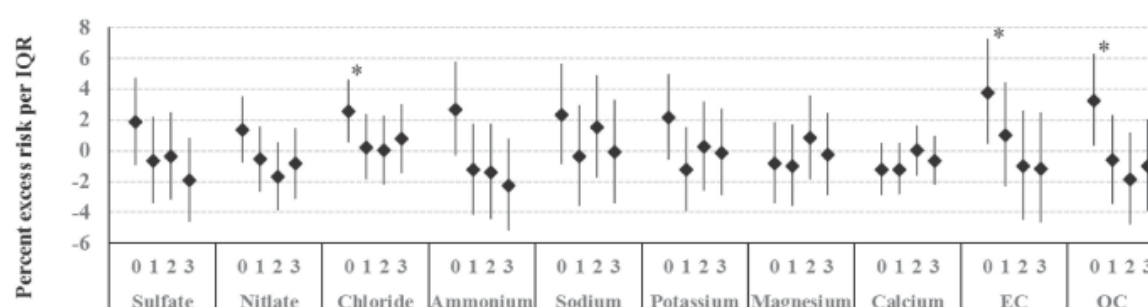
(2) 疫学解析

名古屋市における死亡との関連については、複数の成分で有意な正の関連がみられた。すなわち、全死亡は、硫酸塩、カリウム、EC、OCと、循環器疾患死亡は塩化物イオン、EC、OCと、呼吸器疾患死亡は硫酸塩、硝酸塩、カリウムとの間に有意な正の関連がみられた。一方、他の成分濃度を調整すると有意な関連はみられなくなったが、硫酸塩と全死亡、呼吸器疾患との関連は正であった（図(1)-16）。

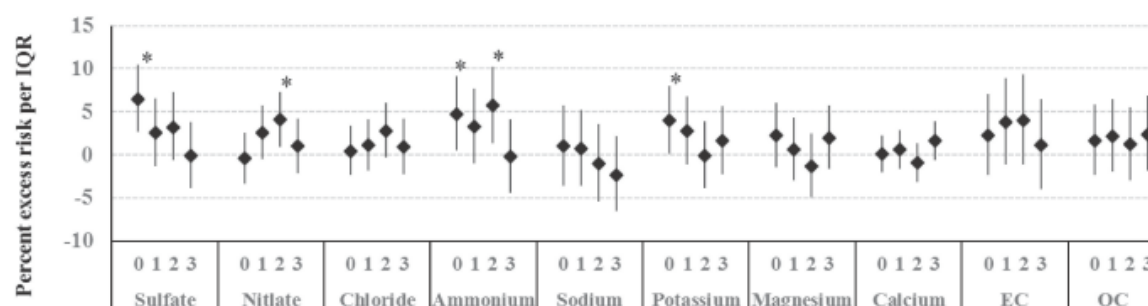
A) All-cause mortality



B) Cardiovascular mortality

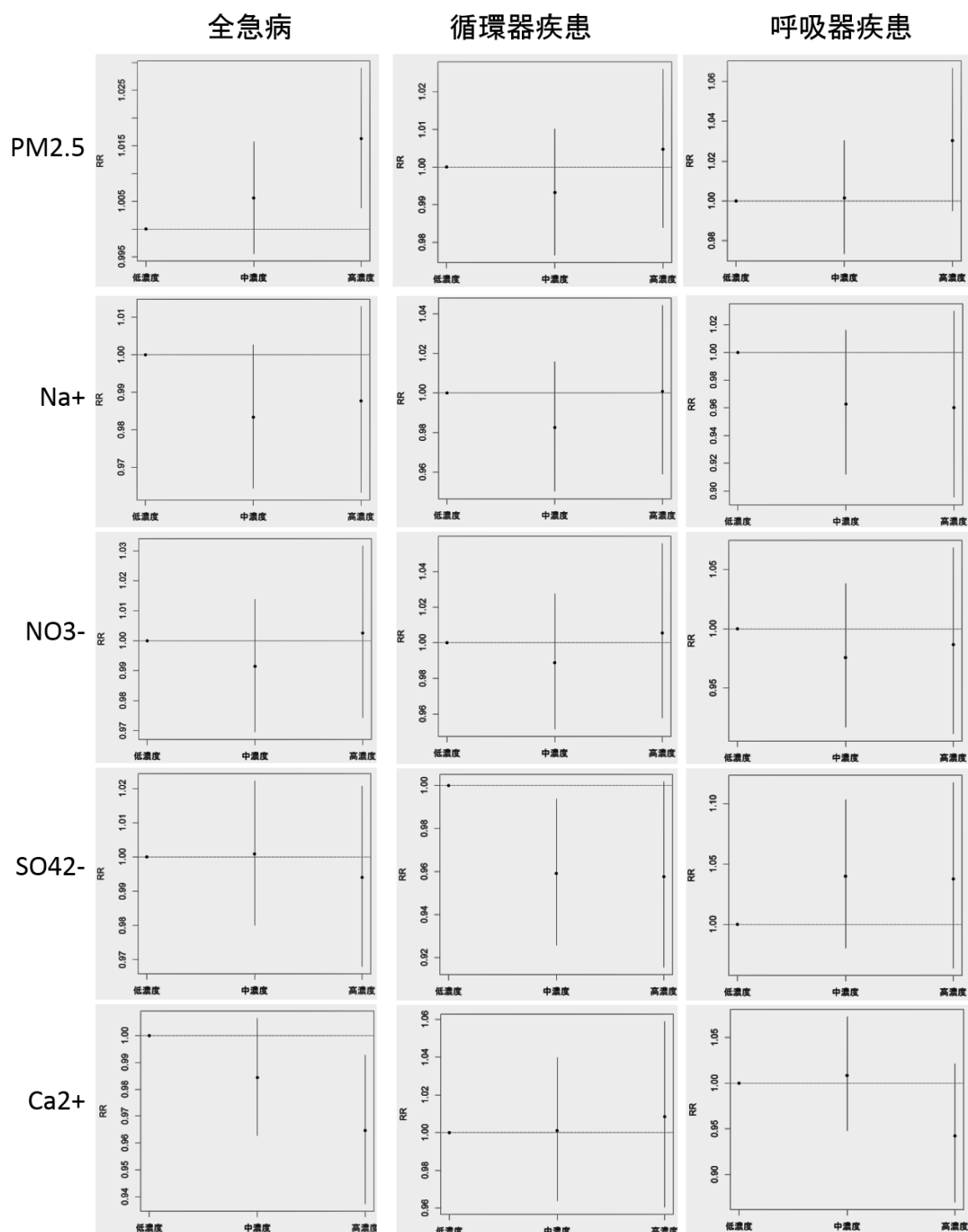


C) Respiratory mortality



図(1)-16 当日～3日前の各成分のIQR変化あたりの全死亡(A)、循環器疾患死亡(B)、呼吸器疾患死亡(C)の変化率(%) (業績の誌上発表(4))

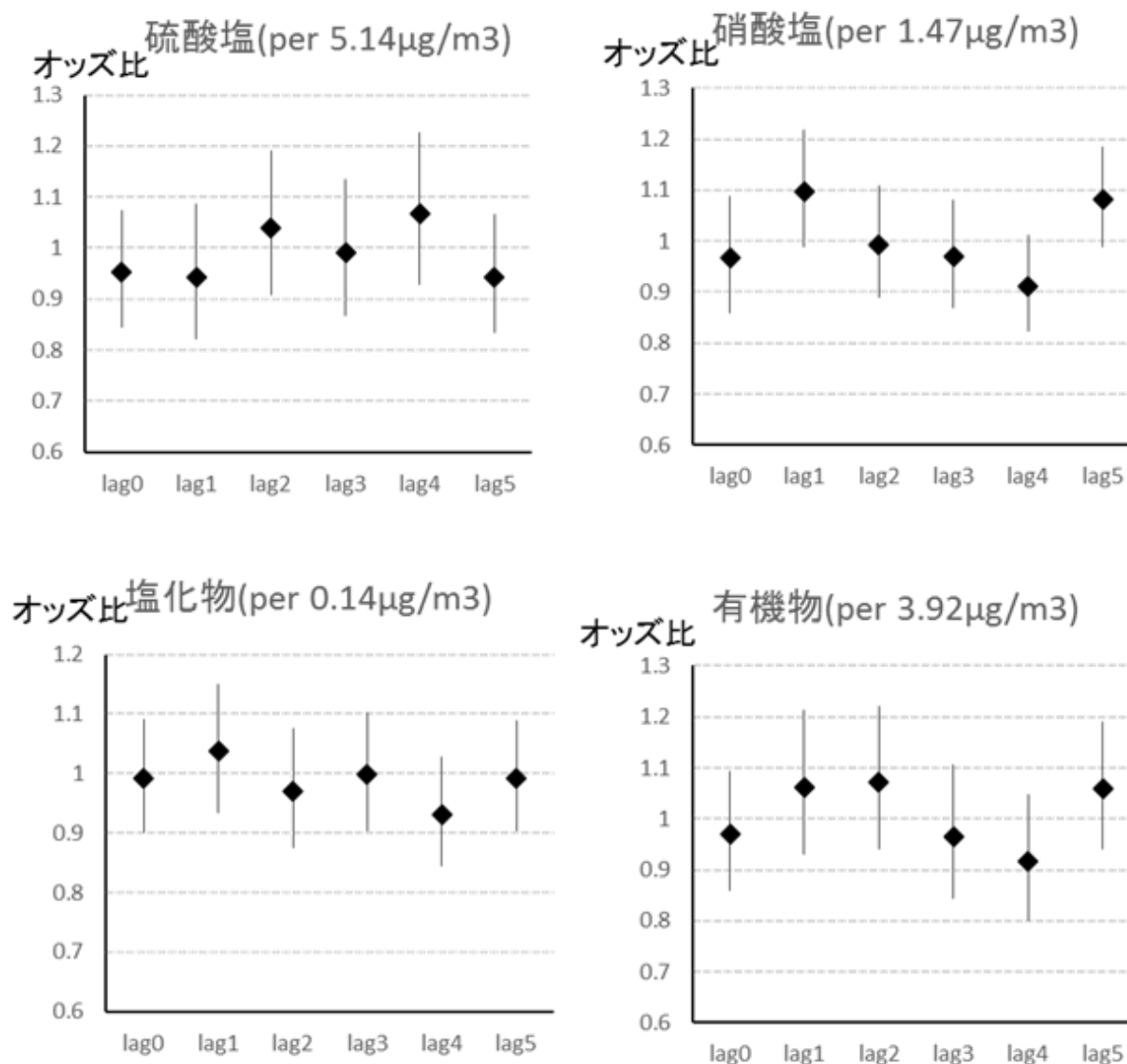
図(1)-17では、福岡における救急搬送を用いた検討結果を示す、PM2.5重量濃度は、中濃度、高濃度とリスク比は大きくなる傾向がみられた。一方、いずれの水溶性成分との間にも有意な関連はみられなかった。硫酸塩と呼吸器疾患による救急搬送は、低濃度と比べて、中濃度、高濃度とリスク比が大きくなる傾向がみられた。



図(1)-17 当日と前日のPM2.5重量濃度および各水溶性成分低濃度（参照カテゴリ）に対する中濃度、高濃度のリスク比とその95%信頼区間（口頭発表（8））

福岡におけるPM化学成分濃度と急性心筋梗塞との関連についての検討では、2012～2013年までの間に県内18医療機関に入院となった患者数1,283人（男性930人、女性353人、平均年齢70.6歳）について、硝酸塩、および有機物の一部のラグでオッズ比は1を超えていたが、いずれも有意な関連はみられなかった（図(1)-18）。

成分の観測期間や健康アウトカム情報が同時に観測されている期間が比較的限られており、統計学的な検出力が足りずに明らかな関連はみられなかったが、特定の化学成分が他の成分よりも影響が大きい可能性が示唆された。



図(1)-18 当日から5日前までにおける各PM化学成分がIQR増加した場合の急性心筋梗塞のオッズ比とその95%信頼区間

表(1)-3 黄砂日におけるcPMとPM ratioの分布

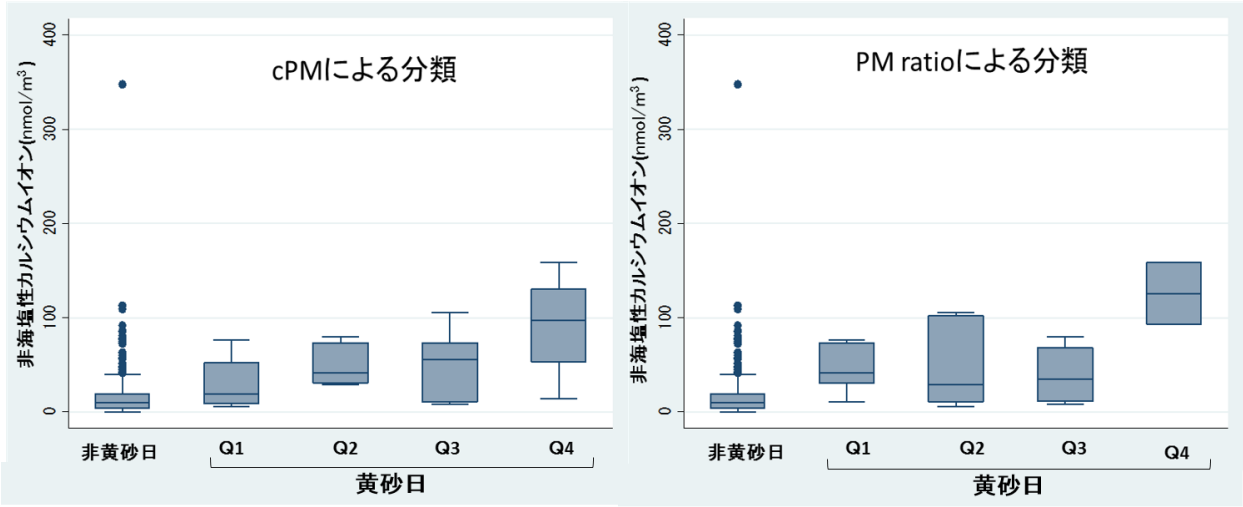
	Q1	Q2	Q3	Q4
cPMによる分類	16.8 μ g/m ³ 未満	16.8 μ g/m ³ 以上 23.3 μ g/m ³ 未満	23.3 μ g/m ³ 以上 47.0 μ g/m ³ 未満	47.0 μ g/m ³ 以上
PM ratioによる分類	1.62未満	1.62以上1.80未満	1.80以上2.06未満	2.06以上

目視でなく粒子量に基づいた黄砂曝露指標を検討するために、福岡市において、黄砂日をcPMとPM ratioの分布に基づいて4つに分類し、量の少ない方からQ1、Q2、Q3、Q4に分け(表(1)-3)、それぞれのカテゴリーにおける非海塩性カルシウム濃度の分布について比較した(図(1)-19)。非海塩性カルシウム濃度は、黄砂が飛来するときには濃度が上がり、鉱物粒子濃度の指標となるため、黄砂粒子濃度を反映すると考えられる。cPMによる分類では、非海塩性カルシウム濃度は、Q4、Q3、Q2、Q1の順に高かった。PM ratioでは、Q1がQ2、Q3に比較して高かった。このことより、cPM濃度は、黄砂飛来日における黄砂粒子量を反映していると考えられる。

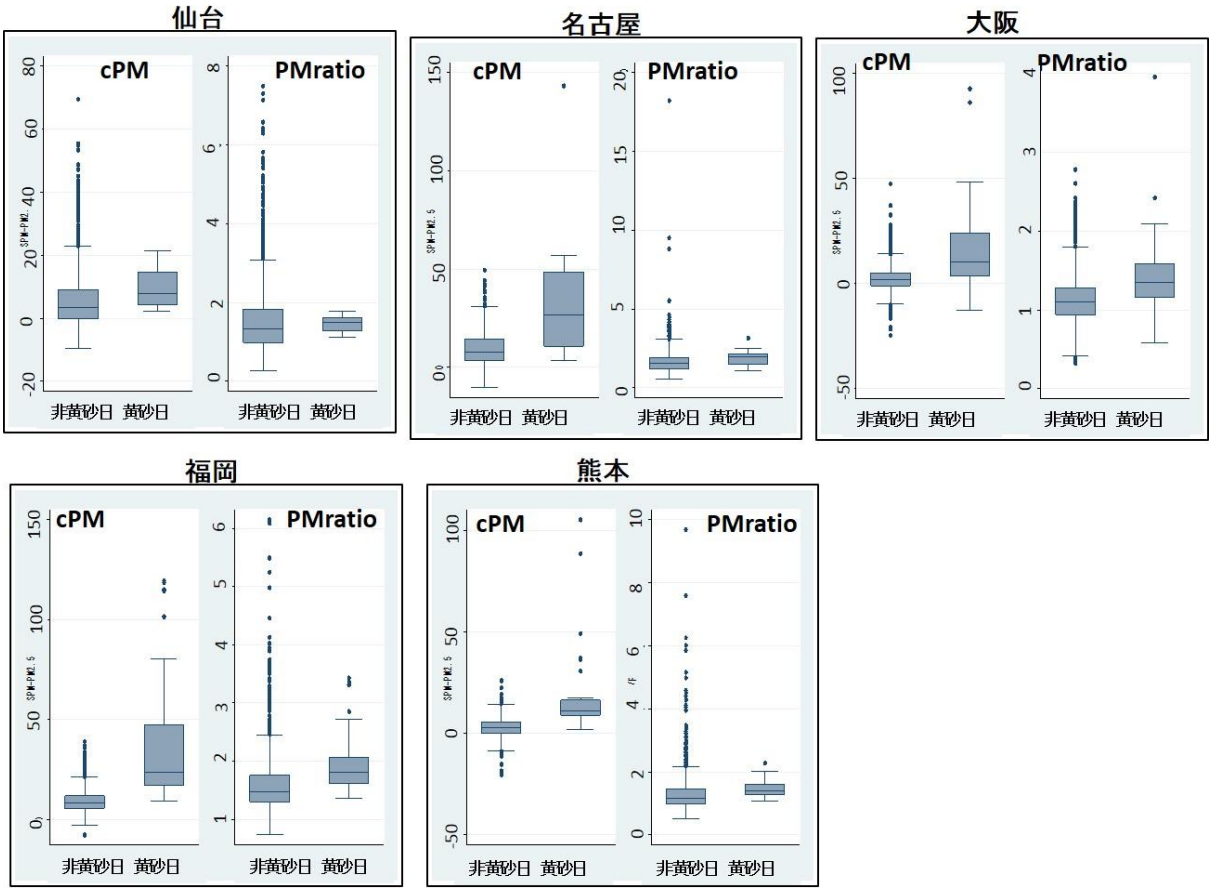
次に、5都市(仙台市、名古屋市、大阪市、福岡市、熊本市)において、黄砂日と非黄砂日におけるcPMとPM ratioを算出したところ、いずれの地点でも黄砂日の方が非黄砂日に比較して値が大きかった(図(1)-20)。cPM・PM ratioは、黄砂の有無だけでなく粗大粒子を多く含む黄砂粒子の量を反映するため、黄砂の曝露量—健康影響関係を評価するための新たな曝露指標となりうる。

さらに、黄砂粒子の半定量的な指標として開発したcPMとPM ratioを用いて救急搬送との関連について検討した。研究期間中の黄砂観測日は、札幌市(2007~2010年)、仙台市(2007-2010年)、名古屋市(2008-2011年)、大阪市(2008-2011年)、広島市(2010-2011年)、福岡市(2009-2011年)、熊本市(2010-2013年)が、それぞれ3、13、14、28、21、29、34日であった。そのため、札幌市を除く都市についてcPM、PM ratioそれぞれを3区分(mild、moderate、heavy)に分けて、当日の各指標と救急搬送数との関連について検討した(図(1)-21)。熊本市を除いて、黄砂日は非黄砂日(non-AD)に比較して、救急搬送リスクが増加した。ただ、3区分(mild、moderate、heavy)では、明らかな量—反応関係はみられず、各都市によってパターンは異なった。たとえば、仙台市ではmoderateのリスクが最も大きかったが、大阪市では区分ごとに差はみられず、福岡市のPM ratioについては、mildでのみリスクの上昇がみられた。これらの検討から、PM成分濃度や、cPM、PM ratioは、健康影響を定量的に検討する曝露指標になりうると考えられた。

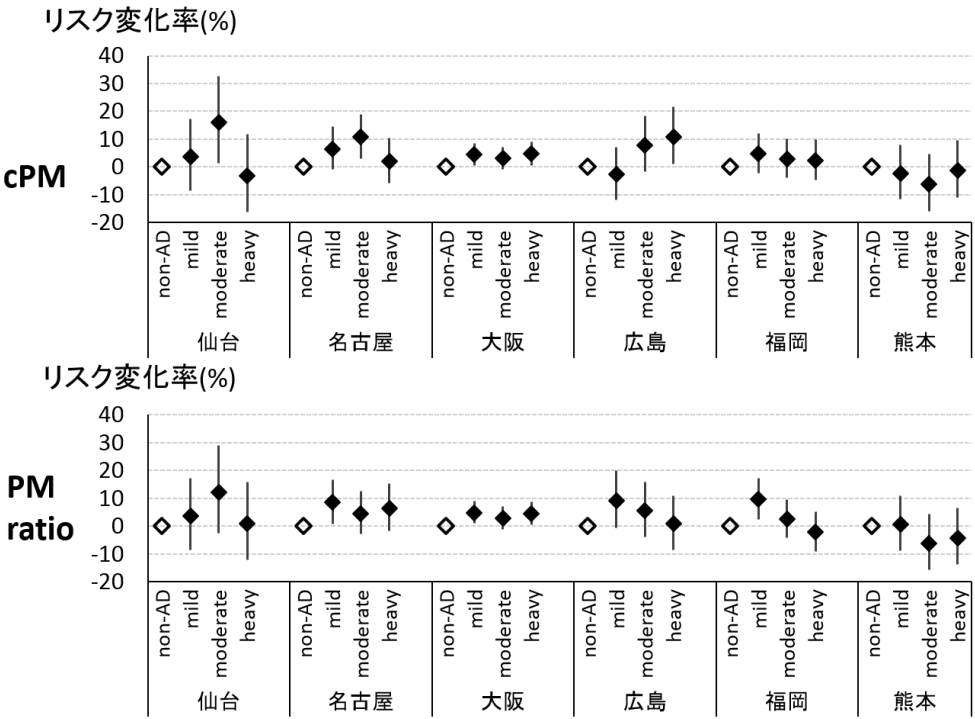
最後に熊本市におけるPM2.5の化学組成と急性心筋梗塞発症との関連の結果をまとめる。有効であった心筋梗塞データが2014年末までだったので、2014年9月~12月までに発症した275名について関連解析を行った。表(1)-4には、この4か月のPM2.5化学組成濃度を整理した。解析対象者数が少ないので統計学的な検出力が不足していたが、SO₄イオンに関して急性心筋梗塞発症と関連しているような傾向が観察された。



図(1)-19 福岡市における黄砂曝露指標別非海塩性カルシウム濃度の箱ひげ図



図(1)-20 各市の非黄砂日/黄砂日におけるcPMとPMratioの箱ひげ図



図(1)-21 非黄砂日と比較した場合の、黄砂日のcPM（上段）、PM ratio（下段）区分別、救急搬送リスクの増加率(%)とその95%信頼区間。

表(1)-4 心筋梗塞発症1～2日前のPM2.5化学組成濃度と相関（2014年9月～12月）

化学組成	平 均 (標準偏差)	percentile			相関			
		25	50	75	OBC	NO ₃	WSOC	SO ₄
OBC (ブラックカーボン)	0.8 (0.5)	0.5	0.8	1.2	1			
NO ₃ イオン	2.0 (1.6)	1	1.4	2.4	0.56	1		
WSOC (水溶性有機物)	1.2 (0.7)	0.7	1.0	1.5	0.69	0.88	1	
SO ₄ イオン	3.2 (2.0)	1.8	2.9	3.8	0.33	0.45	0.60	1

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

熊本及び福岡においてPMの質量濃度および化学組成分析を行い、越境大気汚染、都市大気（ローカル）汚染、火山など自然起源の影響を明らかにすることができた。福岡での観測の解析では、PM_{2.5}濃度と化学組成の関係を半定量的に示し、濃度が低い時は硝酸イオン、あまり酸化されていない有機物（SV-OOA、HOA）濃度が高いなど都市で発生した自動車などのローカルな発生源の影響が大きく、濃度が高い時には硫酸イオンが高く酸化された有機物（LV-OOA）の割合が大きいなど、越境大気汚染の影響が大きいことを示した。フィルターパック法によりSO₂、SO₄²⁻を同時測定することにより、九州地区でしばしばみられる火山の影響（SO₂濃度が上昇）を明らかにした。また熊本での観測においても、越境大気汚染の影響が大きい日はSO₄²⁻濃度が高く、阿蘇山の噴火の影響が顕著な時はSO₂濃度が高く、近隣常時監視局データも合わせて解析すると、野焼きなどローカルな汚染の寄与も明らかとなった。福岡と熊本のPM_{2.5}質量濃度や化学組成の変動を比較すると、同じ様な濃度変動を示しており、越境大気汚染が九州地方の広範囲に広がっていることを示唆していた。福岡、熊本共にPM_{2.5}の濃度が相対的に低い場合は硝酸イオンの割合が高く、PM_{2.5}の濃度の変動要因としては、越境大気汚染の影響に加え、ローカル汚染の影響も無視できないことが明らかとなった。2012年～2015年の福岡市香椎一般大気測定局のPM_{2.5}測定データを解析したところ、注意喚起の基準である70 μg m⁻³を超える日は無かったことが分かった。

疫学解析において、cPMやPM ratioは、黄砂粒子の特に粗大粒子を反映する曝露指標となり得る可能性が示唆された。PMの成分濃度を用いた検討は、いずれも研究期間が限られており、統計学的な検出力が足りずに明らかな関連はみられなかったが、特定の成分が他の成分よりも影響が大きい可能性が示唆された。PM成分を用いた健康影響評価をすることにより、どの成分がどの健康事象との関連があるか検討が可能となる。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

以下各種委員会において、本研究課題で得られた知見の一部を活用した。

- ・ 環境省大気モニタリングデータ総合解析ワーキンググループ委員会に参加し、越境大気汚染の総合的解析方法を検討した。（高見）
- ・ 韓国環境省主催のLong-range Transboundary Air Pollutants in Northeast Asia（LTP）プロジェクトに環境省担当官と共に参加し、越境大気汚染の総合的解析方法を検討した。（高見）
- ・ 環境省有害金属対策基礎調査検討会に参加し、我が国における国際的観点からの有害金属類対策の基礎的な検討を行った。（高見）
- ・ 黄砂の健康影響に関する疫学研究を行うワーキンググループ委員会に参加し、黄砂の健康影響の疫学手法を用いて検討した。（上田）
- ・ 微小粒子状物質等疫学調査実施班の会合に参加し、粒子状物質の健康影響の疫学的評価について検討した。（新田、上田）
- ・ 光化学オキシダント等大気汚染物質文献レビュー検討会に参加し、粒子状物質の過去の疫学知見について整理した。（新田、上田）

（上田は研究協力者）

<行政が活用することが見込まれる成果>

本研究の成果により、越境大気汚染由来の微小粒子と国内由来の微小粒子を硫酸イオン、硝酸イオン、有機物の酸化割合などを指標として、数値シミュレーションなどを活用することによって科学的根拠に基づき寄与を推定できるようになる。今後日中韓大臣会合（TEMM）やそのワーキンググループ、あるいは課題代表者も参加しているLong-range Transport of Pollutant（LTP）プロジェクトなど国際的な環境問題について議論をするうえで重要な科学的根拠となる。

PM成分を用いた疫学的検討により、どの成分がより健康影響が大きいかが明らかとなり、対策の優先順位を検討する知見となることが期待される。

これらの知見は今後も上記各種委員会などで活用されることが見込まれる。

6. 国際共同研究等の状況

- ・ JSTの戦略的国際科学技術協力推進事業により中国環境科学研究院の研究者と共同研究を進めており、平成26年10月に同時観測を行った。（高見）
- ・ 平成27年3月に同研究院が行った中国海南島西方海上における航空機観測に協力した。（高見）
- ・ 平成27年28年の秋季の集中観測に、東京農工大 畠山史郎教授（当時、サブ2分担者）と協力し、Chak K.Chan（香港城市大学、香港）、Neng-Huei Lin（台湾中央大学、台湾）、Yong Pyo Kim（梨花女子大学、韓国）などとともに東京農工大学グローバルイノベーション研究機構による国際共同研究（「島嶼および山岳を用いた東アジアの越境大気汚染のネットワーク解析」）を行った。それぞれの地域での同時観測を行い、データを共同で解析した。また成果を国際誌に共著で投稿した（現在審査中。本研究課題への謝辞あり）。（高見）

7. 研究成果の発表状況

（1）誌上発表

<論文（査読あり）>

- 1) A. TAKAMI, T. MIYOSHI, S. IREI, A. YOSHINO, K. SATO, A. SHIMIZU, M. HAYASHI, K. HARA, N. KANEYASU, and S. HATAKEYAMA: Aerosol Air Quality Research, 16, 2, 314-322 (2016), Analysis of organic aerosol in Fukuoka, Japan using a PMF method.
- 2) 高見昭憲：大気環境学会誌、51、1、29-30（2016）、2000年代初めの中国島嶼部、山岳地における大気観測。
- 3) A. YOSHINO, A. TAKAMI, K. SATO, A. SHIMIZU, N. KANEYASU, S. HATAKEYAMA, K. HARA, and M. HAYASHI: Atmosphere, 7, 51-65 (2016), Influence of trans-boundary air pollution on the urban atmosphere in Fukuoka, Japan.
- 4) K. UEDA, M. YAMAGAMI, F. IKEMORI, K. HISATSUNE, and H. NITTA: J Epidemiol., 26, 5, 249-57 (2016), Associations Between Fine Particulate Matter Components and Daily Mortality in Nagoya, Japan.

- 5) 上田佳代、TASMIN Saira、高見昭憲、五藤大輔、大石瑞樹、PHUNG Vera Ling Hui、安河内秀輔、CHOWDHURY Pratiti Home：大気環境学会誌、51、6、245-256 (2016)、大気中微小粒子状物質の長期曝露が死亡に及ぼす影響：疫学研究における曝露と健康影響の評価に関する系統的レビューとメタ解析。
- 6) K. MISAWA, A. YOSHINO, A. TAKAMI, T. KOJIMA, S. TATSUTA, Y. TANIGUCHI, and S. HATAKEYAMA: Aerosol Air Quality Research, 17, 444-452 (2016), Continuous observation of the mass and chemical composition of PM2.5 using an automatic analyzer in Kumamoto, Japan.

<査読付論文に準ずる成果発表>

特に記載すべき事項はない

<その他誌上発表（査読なし）>

- 1) 高見昭憲、吉野彩子 (2014) 光化学スモッグとPM2.5は関係あるのでしょうか？ 畠山史郎、三浦和彦編著、みんなが知りたいPM2.5の疑問25、成山堂書店 pp138-1

(2) 口頭発表（学会等）

- 1) 高見昭憲、吉野彩子：福岡大学「福岡から診る大気環境」研究所 (FitEH) 設立記念研究会 (2014)
「福岡大学におけるエアロゾル化学組成の分析」
- 2) A. TAKAMI: International Workshop on Air Quality in Asia, Ha Noi, Vietnam, (2014)
“Ground observation of particulate matter in East China Sea Area”
- 3) 高見昭憲、三好猛雄、伊禮聡、清水厚、佐藤圭、吉野彩子、定永靖宗、坂東博、畠山史郎：第31回エアロゾル科学・技術研究討論会 (2014)
「沖縄辺戸岬における微小粒子の粒子質量と化学組成の長期観」
- 4) 吉野彩子、高見昭憲、三好猛雄、伊禮聡、佐藤圭、清水厚、兼保直樹、畠山史郎、原圭一郎、林政彦：第31回エアロゾル科学・技術研究討論会 (2014)
「福岡市における微小粒子の化学組成解析」
- 5) 吉野彩子、高見昭憲、三好猛雄、伊禮聡、佐藤圭、清水厚、兼保直樹、畠山史郎、原圭一郎、林政彦：第20回大気化学討論会 (2014)
「九州北部における微小粒子の化学組成解析」
- 6) 高見昭憲：日本技術士会埼玉県支部講演会 (2014)
「東アジアへの大気汚染の現状と日本への影響について」
- 7) 高見昭憲、菅田誠治、清水厚、森野悠：SATテクノロジーショーケース2015 (2015)
「PM_{2.5}等の広域大気汚染に対する国立環境研究所・地域環境研究センターの取り組み」
- 8) K. UEDA, M. YAMAGAMI, F. IKEMORI, K. HISATSUNE, H. NITTA: 第25回日本疫学会学術総会 (2015)
“The association between particulate matter components and daily mortality in Nagoya”
- 9) 高見昭憲、三好猛雄、伊禮聡、吉野彩子、林政彦、原圭一郎、兼保直樹、畠山史郎：粉体工学会2015年度春期研究発表会 (2015)

「都市および離島における有機エアロゾル測定とPMF解析」

- 10) 三澤健太郎、吉野彩子、高見昭憲、大石興弘、村野健太郎：第27回酸性雨東京講演会（2015）
「熊本・福岡における越境汚染微粒子の化学成分ごとの連続観測」
- 11) A. TAKAMI, T. MIYOSHI, A. SHIMIZU, Y. SADANAGA, J. KUROKAWA, S. IREI, A. YOSHINO, K. SATO, I. MATSUI, N. SUGIMOTO, Y. MORINO, T. NAGASHIMA, D. GOTO, T. OHARA, A. YUBA, H. BANDOW, and S. HATAKEYAMA: 2015 Asian Aerosol Conference, Kanazawa, Japan, 2015
“Ten years monitoring of mass and chemical composition at Cape Hedo Station, Okinawa, Japan”
- 12) K. MISAWA, A. YOSHINO, T. KOJIMA, and A. TAKAMI: 2015 Asian Aerosol Conference, Kanazawa, Japan, 2015
“Continuous monitoring of trans-boundary particulate matters in Kumamoto, Japan”
- 13) A. YOSHINO, A. TAKAMI, T. MIYOSHI, S. IREI, K. SATO, A. SHIMIZU, N. KANEYASU, S. HATAKEYAMA, K. HARA, and M. HAYASHI: 2015 Asian Aerosol Conference, Kanazawa, Japan, 2015
“Analysis of chemical composition of fine aerosols measured at urban and rural sites in northern part of Kyushu, Japan”
- 14) V.L.H. PHUNG, K. UEDA, S. TASMIN, M. OOISHI, S. YASUKOUCHI, A. HONDA, and H. TAKANO: 2015 Asian Aerosol Conference, Kanazawa, Japan, 2015
“Emergency Ambulance Dispatches due to Acute Illness and Ambient Particulate Matter”
- 15) 村野健太郎、大石興弘、濱村研吾、畠山史郎、坂本哲夫、小島知子、三澤健太郎、吉野彩子、高見昭憲：第56回大気環境学会年会（2015）
「太宰府における大気汚染物質観測による越境・地域大気汚染研究」
- 16) 三澤健太郎、吉野彩子、高見昭憲、小島知子、村野健太郎、畠山史郎、坂本哲夫：第56回大気環境学会年会（2015）
「熊本におけるPM_{2.5}の化学成分別連続観測」
- 17) 三澤健太郎、吉野彩子、高見昭憲、小島知子、村野健太郎、畠山史郎、坂本哲夫、上田佳代、道川武紘、新田裕史：第56回大気環境学会年会、健康環境分科会（2015）
「九州北部におけるPM_{2.5}の化学成分分析」
- 18) 上田佳代、笠岡俊志、Tasmin Saira、道川武紘、新田裕史、吉野彩子、三澤健太郎、高見昭憲：第56回大気環境学会年会（2015）
「PM_{2.5}の短期曝露と急病による救急搬送との関連：複数都市における検討」
- 19) 三澤健太郎、吉野彩子、高見昭憲、辰田詩織、畠山史郎、小島知子：第33回エアロゾル科学・技術研究討論会（2016）
「熊本におけるACSAを用いた1時間ごとのPM_{2.5}成分分析」
- 20) 村野健太郎、大石興弘、濱村研吾、畠山史郎、坂本哲夫、小島知子、三澤健太郎、吉野彩子、高見昭憲：第57回大気環境学会年会（2016）
「太宰府における大気汚染物質観測による越境・地域大気汚染研究（2）」
- 21) 吉野彩子、高見昭憲、三澤健太郎、兼保直樹、畠山史郎、西田千春、原圭一郎、林政彦：第57回大気環境学会年会（2016）

「都市および郊外地域における有機エアロゾルのPMF解析」

- 22) 上原大和, 上田佳代, 林政彦, 原圭一郎, Saira Tasmin, 大石瑞貴, Arthit Phosri, Vera Phung Ling Hui, 安河内秀輔, 本田晶子, 高野裕久: 第57回大気環境学会年会 (2016)
「大気エアロゾル中の水溶性成分濃度と急病による救急搬送数との関連」
- 23) 高見昭憲, 吉野彩子: 2016年度福岡から診る大気環境研究所研究会 (2016)
「福岡におけるエアロゾル化学組成のAMSによる観測」
- 24) V.L.H. PHUNG, K. UEDA, S. TASMIN, M. OOISHI, S. YASUKOUCHI, Y. UEHARA, A. PHOSRI, A. HONDA, and H. TAKANO: Conference of ISEE-ISES AC2016, 2016
“Short-term exposure to ambient fine particulate matter (PM_{2.5}) on emergency ambulance dispatches due to acute illnesses in Japan: A multi-city study”
- 25) A. PHOSRI, K. UEDA, S. TASMIN, M. OOISHI, V.L.H. PHUNG, S. YASUKOUCHI, Y. UEHARA, A. HONDA, and H. TAKANO: Conference of ISEE-ISES AC2016, 2016
“Specific fine particulate matter compositions enhanced the association between airborne pollen and daily consultations for pollinosis in Fukuoka, Japan”
- 26) K. UEDA, M. OISHI, H. ODASHIMA, S. TASMIN, V.L.H. PHUNG, S. YASUKOUCHI, Y. UEHARA, A. HONDA, and H. TAKANO: 第26回国際喘息学会日本・北アジア部会 (2016)
“Association between PM_{2.5} and hospitalization due to asthma for children and adolescent: exploring susceptibility factors”

(3) 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

(4) 「国民との科学・技術対話」の実施

43

- 1) 福岡大学が「理学と医学と工学の共同で探る越境物質×ご当地物質＝??」というテーマで設立記念研究会を開催した。学内外から16件の発表が行われ、発表者を含めて42名の参加を得た。研究会の様子は、NHK、RKBでも取材され、NHKは当日の昼のニュースで放映した。これに参加し発表、議論、および取材を受けた。(高見)
- 2) 「国立環境研究所 夏の一般公開」において、大気、呼気、線香などの粒子個数濃度測定を一般市民(子供から大人まで)に行ってもらい、あわせて、PM_{2.5}の解説などを行い、大気エアロゾルに関して啓蒙を行った。(高見)
主催: 国立環境研究所 実施者: 国立環境研究所 地域環境研究センター 大気系グループ、
場所: 国立環境研究所 日時: 2014年7月19日土, 2015年7月18日, 2016年7月23日
- 3) 「公益社団法人日本技術士会 埼玉県支部」の会員約30名に対し、大気エアロゾル、PM_{2.5}、越境大気汚染について約2時間講演した。(高見) 高見昭憲(2014) 東アジアへの大気汚染の現状と日本への影響について. 主催 公益社団法人日本技術士会 埼玉県支部 場所: 埼玉県浦和市 「浦和パルコ10階コムナーレ内浦和コミュニティセンター」 日時: 2014年10月26日
- 4) 一般の人参加した下記のシンポジウムに参加し、健康影響についてポスター発表を行った。(高見)

中島映至, 高見昭憲他 (2014) 大気環境物質のためのシームレス同化システム構築とその応用.
地球温暖化に関する国際シンポジウム – 変化する気候への適応と未来の姿 –

日時: 2014年11月25日 (火)、場所: 国連大学 ウ・タント国際会議場 (東京都渋谷区)

- 5) 一般の人参加した下記のシンポジウムに参加し、越境大気汚染についてポスター発表を行った。(高見)

高見昭憲, 菅田誠治, 清水厚, 森野悠 (2015) PM2.5等の広域大気汚染に対する国立環境研究所・地域環境研究センターの取り組み

筑波テクノロジーショウケース2015、日時 2015年1月21日 場所 つくば国際会議場

- 6) 「国立環境研究所公開シンポジウム」において一般の人を対象に課題についてポスター発表を行った。(高見) 日時: 2015年6月19日 (東京), 2016年6月17日 (京都), 6月24日 (東京)
- 7) 京都大学地球環境学堂において大学院生に対して環境マネジメントセミナー「Regional Air Pollution and Transboundary air pollution」という講義を2時間行った。(高見) 日時: 2016年5月20日
- 8) 茗溪学園高等学校SSH講演会において、高校1年生を対象に「PM2.5と越境大気汚染とその影響」というタイトルで50分×2クラスの講義を行った。(高見) 日時: 2016年7月8日

(5) マスコミ等への公表・報道等

- 1) 京都新聞 (2017年1月24日, 18頁) 「PM2.5濃度上昇で・・・」において、誌上発表 5) について紹介された。(上田)

(6) その他

特に記載すべき事項はない

8. 引用文献

- 1) Jayne, J.T.; Leard, D.C.; Zhang, X.; Davidovits, P.; Smith, K.A.; Kolb, C.E.; Worsnop, D.R. Development of an Aerosol mass spectrometer for size and composition analysis of submicron particles. *Aerosol Science and Technology* 2000, 33, 49–70, doi: 10.1080/027868200410840.
- 2) Takami, A.; Miyoshi, T.; Shimono, A.; Hatakeyama, S. Chemical composition of fine aerosol measured by AMS at Fukue Island, Japan during APEX Period. *Atmospheric Environment* 2005, 39, 4913–4924, doi:10.1016/j.atmosenv.2005.04.038.
- 3) Canagaratna, M.R.; Jayne, J.T.; Jimenez, J.L.; Allan, J.D.; Alfarra, M.R.; Zhang, Q.; Onasch, T.B.; Drewnick, F.; Coe, H.; Middlebrook, A.; Delia, A.; Williams, L.R.; Trimborn, A.M.; Northway, M.J.; DeCarlo, P.F.; Kolb, C.E.; Davidovits, P.; Worsnop, D.R. Chemical and microphysical characterization of ambient aerosols with the Aerodyne aerosol mass spectrometer. *Mass Spectrometry. Reviews* 2007, 26, 185–222, doi: 10.1002/mas.20115.
- 4) Paatero, P.; Tapper, U. Positive matrix factorization: A non negative factor model with ; Weimer, S. optimal utilization of error estimates of data values. *Environmetrics* 1994, 5, 111–126.
- 5) Draxler, R.R.; Rolph, G.D. HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory)

- Model Access via NOAA ARL READY Website (<http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>). 2012, NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD.
- 6) Rolph, G.D. Real-time Environmental Applications and Display sYstem (READY) Website (<http://ready.arl.noaa.gov>). 2012, NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD.
 - 7) Uno, I.; Carmichael, G.R.; Streets, D.G.; Tang, Y.; Yienger, J.J.; Satake, S.; Wang, Z.; Woo, J.H.; Guttikunda, S.; Uematsu, M.; Matsumoto, K.; Tanimoto, H.; Yoshioka, K.; Iida, T. Regional Chemical Weather Forecasting System CFORS: Model descriptions and analysis of surface observations at Japanese island stations during the ACE-Asia experiment. *Journal of Geophysical Research* 2003, 108, 8668, doi: 10.1029/2002JD002845.
 - 8) CFORS (Chemical weather FORecasting System) Web page. <http://www-cfors.nies.go.jp/~cfors/9>

（２）越境大気微粒子中の金属、有機物の分析

国立大学法人東京農工大学

名誉教授

畠山 史郎

<研究協力者>

島田幸治郎（平成27～28年度）

平成26～28年度累計予算額：15,863千円（うち平成28年度：5,200千円）

予算額は、間接経費を含む。

[要旨]

粒子状物質（Particulate Matter: PM、または、エアロゾル）の化学成分分析から越境汚染とローカル汚染の寄与を明らかにすることを目的とし、都市域である熊本県熊本市と東京都府中市（一部東京都八王子市）及びリモート地域である沖縄辺戸岬で粒子の捕集と化学成分の分析を行い、比較した。最初に、金属元素成分のうちアンチモン（Sb）の微小域及び粗大域の粒子濃度が越境とローカルの指標となり得ることを示した。次に、粒子中の金属成分のうち石炭燃焼起源と推定される成分である鉛（Pb）と、反応性が高く長距離輸送後には濃度が下がり、ローカル汚染の指標となる多環芳香族化合物（PAH）の1つであるインデノ[c,d]ピレン（IcdP）の比を用いることにより、越境汚染とローカル汚染の寄与を明らかにした。また、0.5～1 μmの粒径中のPbを中国から長距離輸送されたトレーサー、自動車のブレーキパッドのすり減りに由来する2.5～10 μmの粒径中の銅（Cu）をローカル汚染のトレーサーと定めPb/Cu比を比較したところ、ローカル汚染に対する越境汚染の寄与の大きさは、辺戸岬＞熊本＞東京であった。次にPb濃度が10 ng m⁻³以上かつPb/Cu比が1.75以上の日を越境汚染時、Pb濃度が5 ng m⁻³未満かつPb/Cu比が1.75未満の日をローカル汚染時と定め、季節別にNO₃⁻の越境寄与を推定したところ、春、秋、冬における微小域の越境寄与率はそれぞれ50%、50%、70%であり、冬において最も高い寄与率を示した。さらに、PAHs組成に着目した発生源の寄与評価から、冬季における越境汚染の寄与は辺戸＞熊本＞東京であることが示された。また、各地点におけるPAHs（フェナントレンなど）や金属元素（ヒ素など）の石炭燃焼のトレーサーの微小粒子中濃度より、大陸からの越境汚染である石炭燃焼由来のPAHsの寄与は、熊本が東京よりも大きいことが分かった。一方、IcdPなどガソリン燃焼のトレーサーPAHsが総濃度に占める割合は東京で最も高く、冬季の東京ではローカルのガソリン燃焼由来PAHsの寄与が大きかったと推察された。

[キーワード]

越境大気汚染、エアロゾル、金属成分、イオン成分、PAHs

1. はじめに

平成25年（2013年）1月～2月に中国の北京を中心とする広い地域でPM2.5（直径が2.5 μm以下の微小な粒子）が日本の環境基準（1日の平均値で35 μg m⁻³）をはるかに超える高濃度で観測された

ため、日本でもその影響が広く関心を集め、社会問題にもなった^{1,2)}。同様の高濃度汚染は平成25年から26年の冬季にも中国の広域で発生した。日本国内でも、PM2.5の高濃度 ($\geq 70 \mu\text{g m}^{-3}$) が予測されるときに、各自治体等で発令されることとなった注意喚起が何回も発表されたため、一般にもPM2.5が関心を持たれることとなった。中国では通常、実濃度ではなく、AQI (Air Quality Index) という指標で示されるが、その値が300以上の「危険」と警告されるレベルに達したため、日本にも健康に対する被害があるのではないかと恐れられたものであろう。とくに、PM2.5という呼び名がそれまであまり聞かれておらず、環境の指標にしていなかったのも、何か目新しいものが大陸から飛んでくるらしいと言う憶測を呼んだものと思われる。2009年9月に日本でも欧米にならってPM2.5に関する環境基準が決められ、PM2.5の測定も広く行われるようになってきたところで、2013年の騒動が起こり、マスコミによる扇動的な報道とも相まって大きな社会現象となったものと言えるだろう。

本研究では微小粒子の化学成分に着目し、平成26年度の研究では金属元素成分のうちアンチモン (Sb) の微小域および粗大域の粒子濃度が越境とローカルの指標となり得ることを示した。平成27年度においては、エアロゾル中の金属成分のうち石炭燃焼起源と推定される成分である鉛 (Pb) と、反応性が高く長距離輸送後には濃度が下がり、ローカル汚染の指標となる多環芳香族化合物 (PAHs) の1つであるインデノ[c,d]ピレン (IcdP) の比を用いることにより、越境汚染とローカル汚染の寄与をより明瞭に見ることが可能となった。

これらの解析をさらに発展させて、平成28年度には(1)金属元素成分、(2)イオン成分、(3)多環芳香族炭化水素類 (PAHs) を対象として分析し、粒径別測定や成分測定から発生源 (発生している地域)、発生の起源 (粒子を発生する物理的・化学的プロセス) を明らかにし、日本国内における越境汚染とローカル汚染の寄与を実測値から求めることにした。(1)では、汚染物質の中でも環境中で変質を起こさない特徴を持つ金属成分とその粒径に着目し、これらが発生した地域や発生した過程を調査することを目指した。この解析では、熊本県熊本市・東京都府中市の他に沖縄県辺戸岬を加えて都市域と清浄域の3地点においてエアロゾルを捕集し、それに含まれる金属成分の分析を行うことで、それらの発生起源を明らかにし、そして、大陸からの越境汚染の寄与と国内のローカル汚染の寄与の評価を行った。(2)ではイオン成分のうちで、特に長距離輸送の間の化学変化が著しいナイトレート (NO_3^-) について、エアロゾルの粒径別分析の結果から都市域のナイトレートに対する越境汚染とローカル汚染の寄与を定量的に評価した。(3)では、PAHsの広域分布に着目し、PAHsの季節変化や発生源の解明を目的として行った。特に、本研究の対象地である熊本でのデータに加えて、沖縄県辺戸岬で行った長期集中観測のデータを加え、長距離輸送されたPAHsの季節変動や経年変化を明らかにするとともに、本研究の対象地である熊本県・東京都で沖縄辺戸岬との同時観測を行い、都市域サイトにおける越境汚染とローカル汚染の寄与を評価した。

2. 研究開発目的

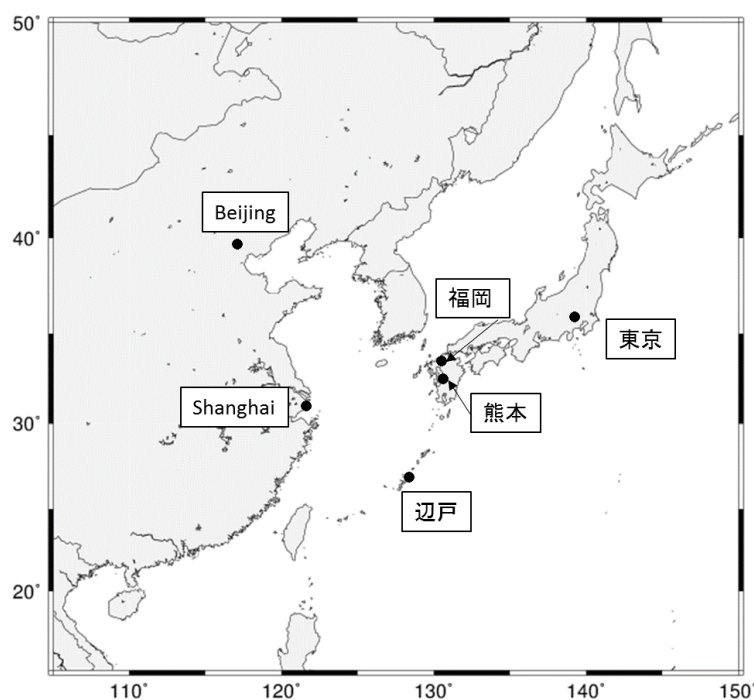
PM_{2.5}を中心とする大気中の微小粒子状物質 (エアロゾル) は、気象や気候への影響だけでなく、人間の健康にも大きな影響を与えるので、その発生源や発生の起源の解明は重要な問題である。特に東京などの都市域においてはその域内でのローカルな発生が大きい上に、そこに越境汚染の影響が重なることになれば、健康被害の防止はより困難となり、環境基準の達成についてもその方策が難しくなる。本研究では健康影響の検討を行う熊本においてエアロゾルの化学的な分析を行い、

越境汚染とローカル汚染の寄与を実測データに基づき定量的に行うことを目的とした。比較のため、ローカル汚染の影響がほとんどない沖縄県の本島北端の辺戸岬、および東京の東京農工大学構内（府中市および八王子市）でも観測、解析を行って、越境汚染とローカル汚染の定量的な寄与率推定を行うこととした。

3. 研究開発方法

（１） 観測地点と観測期間

沖縄県辺戸岬、熊本県熊本大学、東京都東京農工大学の3地点（図(2)-1）において大気エアロゾルの観測を行った。沖縄県辺戸岬（以後、辺戸とする）は沖縄本島の最大都市である那覇市から100 kmほど離れた本島最北端に位置する。交通量も少なく、民家や工場などもほとんどないため人為起源汚染物質の排出源がほとんどないバックグラウンドサイトと言える。加えて辺戸は、中国や韓国、日本、東南アジア、太平洋を通過した気塊が到達する地点であり、長距離輸送された大気汚染の特徴を知るのに適した場所に位置している。辺戸は上海から約650 kmの距離に位置する。サンプリングは、国立環境研究所辺戸岬大気・エアロゾル観測ステーション（26.87°N、128.26°E、海拔60m）の建物屋上（地上約3 m）で行った。



図(2)-1 サンプリングサイトと周辺の主要都市

熊本県熊本市（以後、熊本とする）は中国北京から1350 kmの距離に位置し、辺戸岬とは約700 kmの距離がある。観測は熊本大学（32.81°N、130.73°E）理学部総合研究実験棟の屋上（地上約30 m）で行った。熊本市は人口74万人を有する政令指定都市であり、交通量も多い。近傍には福岡県

北九州市を中心とした北九州工業地帯や大都市福岡市が存在し、付近の交通量も多いためローカルな人為起源粒子が観測される地域である。

東京における観測は主に東京農工大学（以後、東京とする）府中キャンパス5号館（35.41°N、139.29°E）の2階実験室のベランダで行った。なお、東京の夏季における観測のみ、府中市ではなく、こちらより約15 km西に離れた東京農工大学フィールドミュージアム多摩丘陵（東京都八王子市）にて行った。

辺戸岬では、春季（2014/4/13-17、2015/3/12-16）と秋季（2014/10/17-21、2015/10/26-11/7、2016/10/24-11/5）と冬季（2013/12/13-17）にそれぞれ観測を行った。熊本では、春季（2015/3/13-17、2016/3/1-7）と夏季（2015/7/27-8/2）と秋季（2014/10/14-21、2015/10/26-31、2016/10/25-30）と冬季（2014/12/17-21）にそれぞれ観測を行った。東京では、春季（2015/3/13-17、2016/3/1-7）と夏季（2015/7/27-8/2）と秋季（2016/10/24-30）と冬季（2014/12/17-21）にそれぞれ観測を行った。

（２）観測方法

1) エアロゾルサンプル捕集

エアロゾルの捕集には、6段の粒径別捕集が可能なカスケードインパクト（ナノサンプラー、MODEL 3180、日本カノマックス株式会社）と、エアロゾル全量を捕集するハイボリウムエアサンプラー（HV-1000F、柴田科学株式会社）2台を使用した。このうち1台はPAHs捕集用としてエアロゾル全量を、他の1台にはハイボリウムエアサンプラー用PM2.5インパクトを設置してPM2.5を捕集した。

ナノサンプラーによる捕集にはPTFEフィルター（PF020、ADVANTEC）を使用し、 $D_p > 10 \mu\text{m}$ （D10）、 $10 \geq D_p > 2.5 \mu\text{m}$ （D2.5）、 $2.5 \geq D_p > 1.0 \mu\text{m}$ （D1）、 $1.0 \geq D_p > 0.5 \mu\text{m}$ （D0.5）、 $0.5 \geq D_p > 0.1 \mu\text{m}$ （D0.1）、 $0.1 \mu\text{m} \geq D_p$ （DB）（ D_p は粒径）の各粒径のエアロゾルを流量約40 L min⁻¹で、午前10時頃～翌日午前10時頃まで約24時間捕集した。

PM2.5捕集用ハイボリウムエアサンプラーは吸引流量740 L min⁻¹に設定し、午前10時～翌日午前10時まで約24時間の捕集を行った。エアロゾルの捕集にはテフロンフィルター（WP-500-50、203 × 254 mm、SUMITOMO ELECTRIC）を使用した。

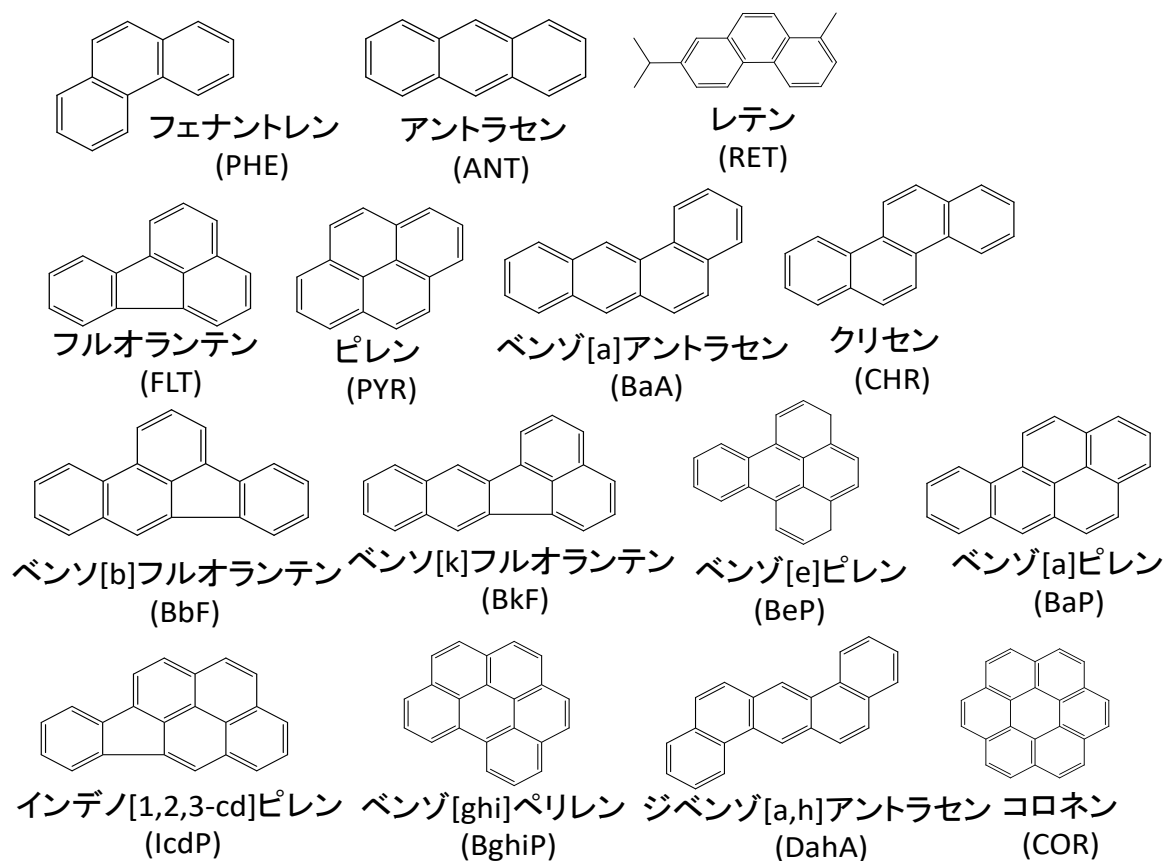
PAHs分析のためのエアロゾル全量の捕集には、ハイボリウムエアサンプラーを吸引流量1000 L min⁻¹に設定し、石英繊維フィルター（QR-100、203 × 254mm、ADVANTEC）上に全浮遊粒子を捕集した。午前10時から翌日の午前10時まで約24時間捕集を行った。

2) 分析

金属元素成分の分析は、ナノサンプラーによるサンプル捕集後、フィルターの半分を用いてHF、HNO₃、H₂O₂を用いた密閉加熱分解によってフィルターから抽出し、その分解溶液に含まれる金属元素を、誘導結合プラズマ質量分析計（ICP-MS）により定量した。定量した元素は、Na、Mg、Al、K、V、Mn、Fe、As、Se、Sr、Cd、Sb、Ba、Pb、Biの15種類である。

イオン成分の分析は、ナノサンプラーによるサンプル捕集後、フィルターの他の半分を用いて、蒸留水による超音波抽出の後、イオンクロマトグラフ（島津製作所）により8種の水溶性イオン成分（Na⁺、NH₄⁺、K⁺、Ca²⁺、Mg²⁺、Cl⁻、NO₃⁻、SO₄²⁻）を分析した。SO₄²⁻、Ca²⁺、K⁺についてはNa⁺濃度から算出した海塩性のSO₄²⁻、Ca²⁺およびK⁺をそれぞれから差し引いた非海塩性（non-sea salt）のnss-SO₄²⁻、nss-Ca²⁺、nss-K⁺を解析に用いた。

ハイボリュームサンプラーによる捕集後のフィルターを、メタノール、ジクロロメタンを用いて有機物を超音波抽出し、さらにシリカゲルカラムを用いて化学成分を分離しPAHsの分析試料とした。得られた試料はGC-MSにより分析し、図(2)-2に示した15種類のPAHsを定量した。なお、データ解析には本研究室で2008年以降継続されてきた観測によるデータも用いた。



図(2)-2 分析した15種類のPAHs

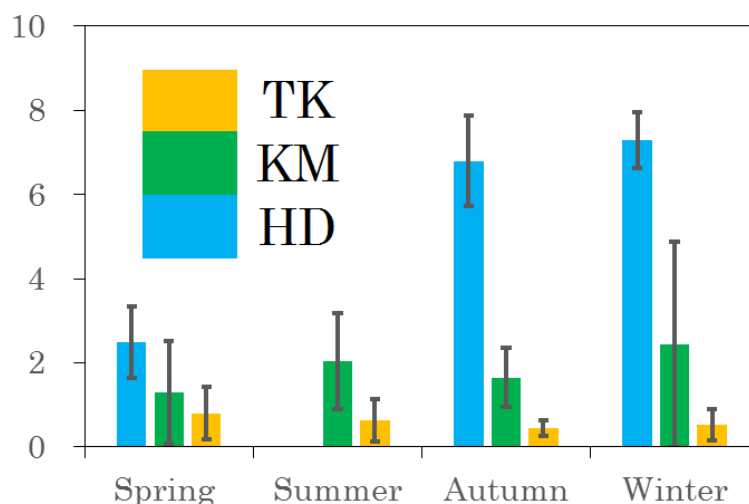
4. 結果及び考察

(1) 金属元素成分からの越境、ローカル識別

1) Pb/Cu比

中国の年間石炭消費量は世界最大であり、ここからはPbが最も大量に排出されるため、Pbを中国から長距離輸送されたトレーサーと定めた。また、自動車のブレーキパッドの機械的なすり減りから排出されるもっとも主要な金属成分はCuであることから、Cuをローカル汚染のトレーサーと定めた。燃焼過程から生じるPbには0.5～1 μmの粒径中の濃度を、摩り減り過程から生じるCuには2.5～10 μmの粒径中の濃度を用いて、越境汚染の有無を識別するためにPb/Cu比を算出すると、全季節において辺戸岬の値が最大であり、図(2)-3に示したように各地点の季節別のPb/Cu比は、全季節で辺戸岬において値が最も大きく、東京が最も小さかった。この結果から、辺戸岬において越境汚染の寄与が特に大きいことが見て取れる。その中でも、辺戸岬の秋季(6.8)と冬季(7.3)の値が特に大きかった。後方流跡線解析の結果によると、辺戸岬の春季は気塊が主に太平洋から輸送さ

れてきていたが、秋季と冬季は主に気塊が大陸から輸送されてきていた。このため、秋季と冬季に越境汚染が顕著であったことが分かる。さらに、秋季と冬季で比較すると、冬季の方が若干ではあるが比の値が大きくなっていたことから、特に冬季に越境汚染の寄与が大きかったことが示唆された。本研究室における先行研究³⁾においても、辺戸岬では、冬季にもっとも中国の石炭燃焼の影響を受けると報告しており、本研究の結果と良く一致している。



図(2)-3 各季節に辺戸、熊本および東京において測定された微小粒子中のPbと粗大粒子中のCuの濃度比

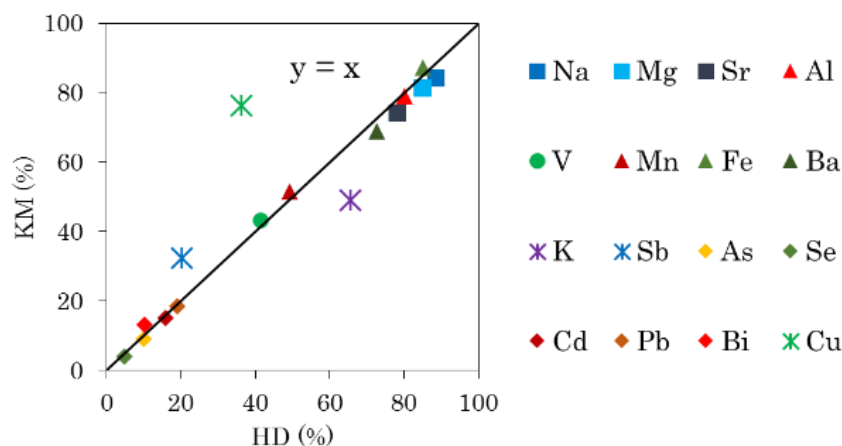
2) 辺戸岬と熊本における同気塊中の金属成分

中国から辺戸岬に到達する気塊には、九州上空を通過した後には到達するパターンが存在する。このパターンにおける、大陸由来の越境汚染と九州由来の越境汚染のそれぞれの規模を評価するために、辺戸岬と熊本で同気塊を捉えた期間に測定した金属成分各15元素が、それぞれ粗大域に存在する割合の相関を取った（図(2)-4）。両者には非常に高い相関がみられ、ほとんどの元素が1対1の直線上に位置した。しかし、CuとSbとKのみ1対1の直線上から外れた位置にプロットされた。CuとSbとK以外の、1対1の直線上に位置する13成分は、熊本から辺戸岬に輸送されてくる過程で、粗大域に含まれる割合が変化しなかったことが分かる。つまり、これらの成分は熊本と沖縄において粒径分布が等しく、熊本、辺戸岬それぞれのローカルな大気汚染物質の影響をほぼ受けていないことを示している。このことから熊本にて観測された主に石炭燃焼から排出されるPb、Cd、As、Seなどの重金属成分は、大半が大陸由来のものであることが示唆された。これに対し、1対1の直線上から外れた位置にプロットされたCuとSbとKについては、大陸由来の越境汚染以外のローカル汚染の寄与が何かしらあると考えられる。

SbとCuは、辺戸岬に比べ、熊本において粗大域に多く存在した。熊本と東京における粗大域のSbとCuの排出源は同じであると考えられ、大都市域における自動車のブレーキダストといったローカル汚染が寄与していると考えられる。

一方、Kは、その粒径分布を見ると、三地点とも2.5～10 μmの粗大域に濃度のピークを持つが、

熊本と東京では $0.5 \sim 1 \mu\text{m}$ の微小域にも濃度のピークが見られた。粗大域のKには海塩粒子や土壌粒子などの自然起源粒子が寄与することが知られている。これに対して、微小域のKは廃棄物燃焼やバイオマス燃焼などから排出される。熊本および東京ではKと Cl^- イオンの相関が高いことから、Kには廃棄物燃焼といったローカル汚染が寄与していたものと考えられる。



図(2)-4 辺戸岬と熊本における各金属成分の全粒径中の濃度合計に対する粗大粒径中の濃度合計の相関

(2) 硝酸イオンの越境：ローカル比

越境汚染が卓越している日（越境汚染時）と地元由来の汚染が卓越しており越境汚染の影響が少ない日（ローカル汚染時）を越境汚染とローカル汚染のマーカーである Pb/Cu 比を用いて識別した。微小粒子に含まれる Pb は代表的な越境汚染のトレーサーである。上記のように、熊本におけるエアロゾル中の Cu は地元の自動車排出に由来する。したがって、越境汚染の寄与が高いと、 Pb/Cu 比は高くなる。 Pb 濃度が 10 ng m^{-3} 以上かつ Pb/Cu 比が1.75以上の日を越境汚染時と定義し、 Pb 濃度が 5 ng m^{-3} 未満かつ Pb/Cu 比が1.75未満の日をローカル汚染時と定義した。

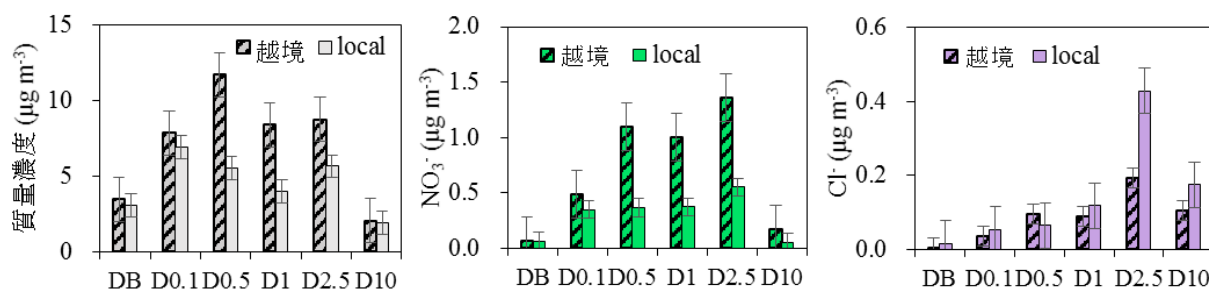
越境汚染時の $\text{PM}_{2.5}$ 濃度は $31.4 \mu\text{g m}^{-3}$ であり、ローカル汚染時の1.6倍の濃度であって、日本の環境基準値に匹敵する程度であった。質量濃度もイオン成分濃度も越境汚染時の微小域におけるピークは液滴モードである $\text{D}_{0.5}$ のステージであった。凝集モードである $\text{D}_{0.1}$ のステージは地元由来の汚染が支配的であり、 $\text{D}_{0.5}$ のステージは越境汚染が支配的であることが示された（図(2)-5）。

nss-SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 以外に、 nss-Ca^{2+} と nss-K^+ も越境汚染時に濃度が約2～2.5倍上昇し、二次生成無機エアロゾル以外にもダストやバイオマス燃焼由来の粒子が越境汚染時に到達することが分かった。

越境汚染時には海塩粒子の変質による Cl^- の不足が示された。到達した気塊に HNO_3 や H_2SO_4 等の強酸性物質またはその前駆体が高濃度で含まれていたことにより海塩の変質が進行したと考えられる。微小域で最も越境寄与が大きかったのは NO_3^- と nss-K^+ であり、越境寄与率は約57%であった。粗大域で最も越境寄与が大きかったのは NH_4^+ であり、続いて nss-K^+ 、 NO_3^- の順に越境寄与率は高かった。

季節別に NO_3^- の越境寄与を推定したところ、春、秋、冬における微小域の越境寄与率はそれぞれ

50%、50%、70%であり、冬において最も高い寄与率を示した。微小域の NO_3^- の主要化学形態である NH_4NO_3 は気温が高いと熱分解してガス状の HNO_3 と NH_3 になり、 HNO_3 は周囲に存在する粗大粒子の表面に吸着されるため NO_3^- が主に粗大域に存在するようになる。冬は気温が低いために、都市域における微小域の NO_3^- の化学形態である NH_4NO_3 の熱分解反応が起こりにくい条件下であった。これにより、微小域の NO_3^- は、冬に他の季節より長距離輸送されやすいことが示唆された。



図(2)-5 熊本における越境汚染時とローカル汚染時の
粒径別質量濃度および NO_3^- イオンと Cl^- イオンの粒径別濃度

(3) PAHの変化

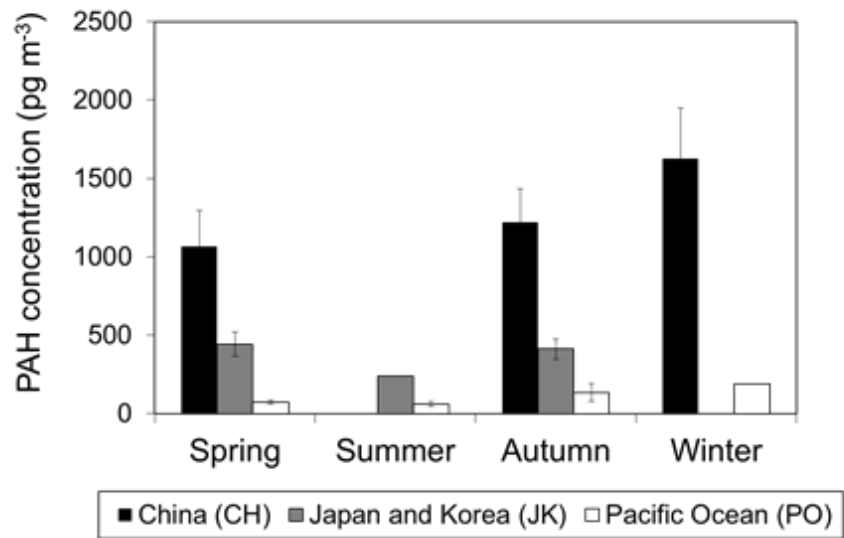
1) 東アジア域から辺戸に長距離輸送されたPAHsの季節変動と経年変化

2008年～2015年の辺戸において、分析した全15種類のPAHsの総濃度（ $\Sigma 15\text{PAHs}$ 濃度）の季節変動は冬>春≒秋>夏であった。後方流跡線解析により気塊起源を中国由来（CH）、日本・韓国由来（JK）、太平洋由来（PO）の3つに分類したところ、冬季はCHが95%、夏季はPOが92%であり、PAHs濃度の季節変動は気塊起源に依存することが明らかとなった。PAHsの高濃度に寄与したCHについて、PAHsの組成、異性体比、Positive Matrix Factorization法（PMF法）による統計的解析、の3つの観点から発生源推定を行った。組成からは、3-4環PAHsの割合が高く、石炭燃焼の寄与が示唆され、異性体比の $\text{FLT}/(\text{FLT}+\text{PYR})$ 、 $\text{IcdP}/(\text{IcdP}+\text{BghiP})$ からは、特に冬季において石炭燃焼およびバイオマス燃焼の寄与が高いことが示唆された。さらに、PMFによる発生源の寄与推定の結果、春季と冬季は石炭燃焼およびバイオマス燃焼の寄与が高く、寄与率は総PAHs濃度と良い相関を示した。

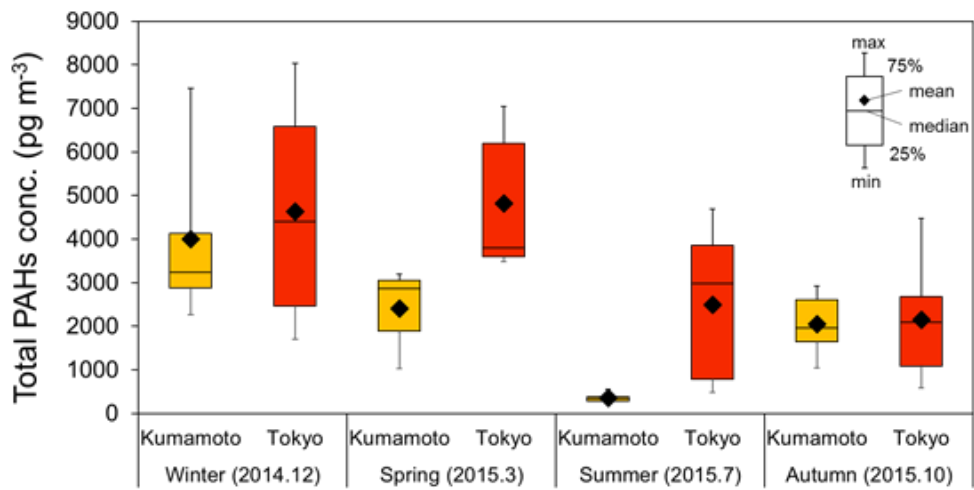
2) 都市域サイトの熊本・東京における越境汚染とローカル汚染の寄与評価

$\Sigma 15\text{PAHs}$ 濃度は、熊本・東京ともに冬季に高濃度、夏季に低濃度であった。これは3～4環PAHsのガス/粒子分配や光化学反応が気温に依存したことに起因すると推察された。PAHsのエイジングの指標であるベンゾ[a]ピレンとベンゾ[e]ピレンの濃度比（BaP/BeP）より、東京（冬）はローカル汚染の寄与が大きく、熊本（冬）はローカル汚染に越境汚染が加わっていることが示唆された。さらに冬季においては、発生源のトレーサーとなるPAHsおよび金属元素成分の濃度より、大陸からの越境汚染に基づく石炭燃焼の寄与は熊本>東京であったことが示された。一方、東京ではローカルのガソリン排ガスの寄与が大きかったと推察された。後方流跡線解析などから越境汚染が到達したと推察された12/20においては、PAHsと金属元素成分のトレーサーおよびPMF法による発生源推定より、熊本では大陸から輸送された石炭燃焼由来のPAHsが高濃度に寄与し、一方、東京では

ローカル排出されたガソリン燃焼由来のPAHsが高濃度に寄与したことが明らかとなった。



図(2)-6 各気塊起源の季節別PAHs平均濃度



図(2)-7 熊本・東京における総PAH濃度の季節変動

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

これまでモデルの結果からは推定されていたが、実測値に基づく解析がなかった都市域の微小

粒子に対する越境汚染とローカル汚染の寄与について、実測値に基づき、定量的に解析することができた。

（２）環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

以下の委員会において、本研究課題で得られた知見の一部を活用した。

- ・ 環境省大気モニタリングデータ総合解析ワーキンググループ委員会に参加し、越境大気汚染の総合的解析方法を検討した。（畠山（座長）・高見）

<行政が活用することが見込まれる成果>

- ・ 東京や熊本などの大都市域における微小粒子に対する越境汚染とローカル汚染を定量的に識別することができるようになった。国際的な取り組み、国内における削減対策いずれにもデータが使用できることになるので、今後両面から大気汚染の削減に取りかかることができる。

6．国際共同研究等の状況

- ・ 東京農工大学グローバルイノベーション研究機構の国際共同研究

「島嶼および山岳を用いた東アジアの越境大気汚染のネットワーク解析」

カウンターパート：Chak K.Chan（香港城市大学、香港）、Neng-Huei Lin（台湾中央大学、台湾）、Yong Pyo Kim（梨花女子大学、韓国）

平成27年28年の秋季の集中観測にそれぞれの地域で同時観測を行い、データを共同で解析した。また成果を国際誌に共著で投稿した（現在審査中。本研究課題への謝辞あり）。

7．研究成果の発表状況

（１）誌上発表

<論文（査読あり）>

- 1) I.CHANDRA, S. KIM, T. SETO, Y. OTANI, A. TAKAMI, A. YOSHINO, S. IREI, K. PARK, T. TAKAMURA, N. KANEYASU, and S. HATAKEYAMA: Atmospheric Environment, 141, 30–40 (2016). doi:10.1016/j.atmosenv.2016.06.040, New particle formation under the influence of the long-range transport of air pollutants in East Asia
- 2) A.TAKAMI, T. MIYOSHI, S. IREI, A. YOSHINO, K. SATO, A. SHIMIZU, M. HAYASHI, K. HARA, N. KANEYASU, and S. HATAKEYAMA: Aerosol Air Quality Res., 16(2), 314-322 (2016). doi: 10.4209/aaqr.2015.03.0145, Analysis of organic aerosol in Fukuoka, Japan using a PMF method
- 3) A. YOSHINO, A. TAKAMI, K. SATO, A. SHIMIZU, N. KANEYASU, S. HATAKEYAMA, K. HARA, and M. HAYASHI: Atmosphere, 7(4), 51 (2016); doi:10.3390/atmos7040051, Influence of trans-boundary air pollution on the urban atmosphere in Fukuoka, Japan
- 4) K. MISAWA, A. YOSHINO, A. TAKAMI, T. KOJIMA, S. TATSUTA, Y. TANIGUCHI, and S. HATAKEYAMA: Aerosol Air Quality Res., 17 (2), 444-452 (2017); doi: 10.4209/aaqr.2016.07.0290, Continuous Observation of the Mass and Chemical Composition of PM_{2.5} using an Automatic Analyzer in Kumamoto, Japan

<査読付論文に準ずる成果発表>

特に記載すべき事項はない。

<その他誌上発表（査読なし）>

- 1) 畠山史郎：ながれ（日本流体力学会誌）、34 (1)、33-40（2015）
「長距離越境大気汚染と大気化学反応」
- 2) 畠山史郎：ぶんせき（日本分析化学会）、2015-10、425-428（2015）
「大気汚染物質の化学と分析」
- 3) 畠山史郎：エアロゾル研究、30(4)、242-247（2015）
「東アジアから輸送されるエアロゾル化学成分の20年間の航空機観測と地上観測」
- 4) 畠山史郎：空気清浄、54 (2)、77-78（2016）
「酸性雨から越境大気汚染・PM2.5へ」
- 5) 畠山史郎、野口恒：もっと知りたいPM2.5の科学、日刊工業新聞社、pp156（2016）
- 6) T. IZUTA ed.: Air Pollution Impacts on Plants in East Asia, Springer Japan, Tokyo, 3-20, 2017
Chapter 1 “Gaseous Species (by Shiro Hatakeyama)” ISBN: 978-4-431-56436-2
- 7) T. IZUTA ed.: Air Pollution Impacts on Plants in East Asia, Springer Japan, Tokyo, 21-42, 2017
Chapter 2 “Aerosols (by Shiro Hatakeyama)” ISBN: 978-4-431-56436-2
- 8) 畠山史郎：極地（日本極地研究振興会誌）、53(1)、56-62（2017）
「南極大気を見る視点—大気中の化学反応：都市大気汚染と越境大気汚染」

（2）口頭発表（学会等）

- 1) S. HATAKEYAMA：9th Asian Aerosol Conference, Kanazawa, Japan, 2015 (Plenary)
“Aerial Observations for 20 Years and Ground-based Observations of Aerosols Transported from East Asia”
- 2) K. SHIMADA, K. MIURA, A. YOSHINO, A. TAKAMI, K. SATO, S. HASEGAWA, A. FUSHIMI, X. YANG, X. CHEN, F. MENG, and S. HATAKEYAMA: 9th Asian Aerosol Conference, Kanazawa, Japan, 2015
“Differences of PAHs in Asian outflow simultaneously measured at Tuoji, China, Fukue and Cape Hedo, Japan”
- 3) 杉山太一、島田幸治郎、三浦香央理、Y.P KIM、C. K. CHAN、G. LIN、高見昭憲、畠山史郎：第21回大気化学討論会（2015）
「熊本におけるPAHの観測 —越境汚染とローカル汚染の識別」
- 4) Y. TANIGUCHI, K. SHIMADA, A. FUSHIMI, A. TAKAMI, and S. HATAKEYAMA: The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies 2015 (Pacifichem 2015), Honolulu, USA, 2015
“Long term and seasonal variation of carbonaceous aerosols in Okinawa, Japan”
- 5) S. TATSUTA, K. SHIMADA, A. YOSHINO, A. TAKAMI, and S. HATAKEYAMA: The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies 2015 (Pacifichem 2015), Honolulu, USA, 2015

- “Size-segregated analysis of ionic composition of aerosols transported from the East Asia to Cape Hedo, Okinawa through Kumamoto City
- 6) K. MIURA, X. YANG, X. CHEN, F. MENG, K. SATO, A. TAKAMI, and S. HATAKEYAMA: The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies 2015 (Pacifichem 2015), Honolulu, USA, 2015
 “Polycyclic aromatic hydrocarbons transported from China to Japanese island in the East China Sea”
 - 7) S. HATAKEYAMA, Y. ARAKI, K. SHIMADA, A. YOSHINO, A. TAKAMI, X. YANG, X. CHEN, and F. MENG: The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies 2015 (Pacifichem 2015), Honolulu, USA, 2015
 “Simultaneous measurements of aerosol metallic compositions at three Chinese and Japanese island sites”
 - 8) 杉山太一、島田幸治郎、畠山史郎、C. K. CHAN、Y. P. KIM、G. LIN、高見昭憲：第33回エアロゾル科学・技術研究討論会（2016）
 「熊本におけるPAHの観測－越境汚染とローカル汚染の識別－」
 - 9) 水越麻夏、島田幸治郎、畠山史郎：第28回酸性雨東京講演会（2016）
 「FM多摩丘陵におけるエアロゾルナイトレートと金属成分」
 - 10) 辰田詩織、島田幸治郎、三澤健太郎、吉野彩子、高見昭憲、畠山史郎：第57回大気環境学会年会（2016）
 「粒径別エアロゾルイオン成分による東アジア由来越境大気汚染の解析」
 - 11) 三浦香央理、島田幸治郎、佐藤圭、吉野彩子、高見昭憲、畠山史郎：第57回大気環境学会年会（2016）
 「PAHsの広域分布、季節変化と発生源の解析」
 - 12) 谷口祐太、八木里紗、島田幸治郎、吉野彩子、高見昭憲、畠山史郎：第57回大気環境学会年会（2016）
 「熊本における大気中の金属成分の季節変動」
 - 13) 畠山史郎、杉山太一、島田幸治郎、吉野彩子、高見昭憲、村野健太郎、小島知子、坂本哲夫：第57回大気環境学会年会（2016）
 「熊本および東京における越境汚染とローカル汚染の識別指標」
 - 14) S. HATAKEYAMA: 18th Annual Meeting of China Association for Science and Technology, Workshop on Atmospheric Haze and Advanced PM_{2.5} Control Technologies, Xi'an, China, 2016 (Plenary)
 “Measurements of Air Pollutants on Islands and on the top of Mt. Fuji”
 - 15) 畠山史郎：日中韓PM_{2.5}シンポジウム 埼玉発「PM_{2.5}の今を知る」（2016）（基調講演）
 「日本の越境大気汚染・PM_{2.5}の現状と今後の課題」
 - 16) 畠山史郎：全国大気汚染防止連絡協議会第62回全国大会（2016）（招待講演）
 日本の越境大気汚染—PM_{2.5}と光化学オキシダント—
 - 17) 畠山史郎：埼玉県環境計量協議会 発表会（2016）（特別講演）
 「最近の大気環境とその規制動向について」
 - 18) 畠山史郎：第40回環境大気モニタリング分科会研究会（2017）

「飛行機、島嶼、高山山上で測った越境大気汚染－エアロゾルとオゾン－」

(3) 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

(4) 「国民との科学・技術対話」の実施

- 1) 平成28年度彩の国環境大学開講式公開講座「PM_{2.5}とは何か？どこからやってくるのか？」(主催：埼玉県環境科学国際センター、平成28年8月27日、埼玉県環境科学国際センター研修室、観客約100名)にて講演。(畠山)
- 2) 日中韓国際シンポジウム”埼玉発「PM_{2.5}の今を知る」”(主催：埼玉県、平成28年10月6日、さいたま市民会館おおみや小ホール、観客約200名)にて講演。「日本の越境大気汚染・PM_{2.5}の現状と今後の課題」(畠山)

(5) マスコミ等への公表・報道等

- 1) TBS 朝チャン (H28年12月20日、中国のPM_{2.5}高濃度の発生と日本への影響について説明)(畠山)
- 2) 香港フェニックステレビ Webニュース (H29年2月15日以降配信：「専門家：日専門家：中日応加強環保合作 共同対応霧霾(中日は環境保護協力を強化して霧・土煙に共同で応えるべきです)」<http://v.ifeng.com/news/society/201702/010495b8-f900-47c3-a1fd-26427582ace0.shtml> (畠山)

(6) その他

特に記載すべき事項はない。

8. 引用文献

- 1) 畠山史郎、「越境する大気汚染 中国のPM_{2.5}ショック」、PHP 新書、pp.210 (2014).
- 2) 畠山史郎、三浦和彦編著、「みんなが知りたいPM_{2.5}の疑問 25」、成山堂、pp.160 (2014).
- 3) K. Shimada, M. Shimada, A. Takami, S. Hasegawa, A. Fushimi, T. Arakaki, I. Watanabe, S. Hatakeyama, Mode and Place of Origin of Carbonaceous Aerosols Transported From East Asia to Cape Hedo, Okinawa, Japan, *Aerosol and Air Quality Research*, **15** (3), 799-813 (2015). doi:10.4209/aaqr.2014.09.0190

(3) 個別粒子の化学組成イメージングに関する研究

学校法人工学院大学

先進工学部 応用物理学科

坂本哲夫

平成26～28年度累計予算額：21,086千円（うち平成28年度：7,150千円）

予算額は、間接経費を含む。

[要旨]

熊本と福岡において捕集した試料を単一微粒子内部構造解析装置（FIB-TOF-SIMS）によって分析を行った。また、一部日本国内の大気微粒子との比較を行うために、工学院大学（東京都八王子市）で同様のサンプラーを用いて微粒子の採取を行った。さまざまな粒子が飛来しているが、特に代表的な粒子として、黄砂などの土壌粒子、海塩などのイオン結晶系の粒子、硝酸塩エアロゾルなどの微小粒子に着目して解析を行った。黄砂の中には塩素化反応によって主成分の炭酸カルシウムが塩化カルシウムに変化することで潮解性を持ち、多量の水分を含んだ粒子に変化していることが明らかになった。塩素化反応は硝酸などの酸性ガスと塩化ナトリウム（海塩由来など）によって引き起こされることが明らかになったため、越境大気汚染の新たな指標として塩素化した黄砂の可能性を示すことに成功した。次のステップとして、塩素化黄砂の変動を観測し、疫学データやバルク観測データとの相関の確認となるが、黄砂の塩素化の度合いを定量的に評価するためには、一般土壌との区別を可能にしなければならない。一般的な黄砂はゴツゴツとした形状をしており、その他の土壌粒子と見た目で判断することは難しい（塩素化した黄砂は液状化しているため見た目で分類可能）。本研究ではCa濃度を比較することで、一般土壌と黄砂を分類することに成功した。その結果、塩素化した黄砂の変動を定量的に観測できる手法を開発することができた。海塩は塩素ロス反応に代表されるように、エアロゾル粒子の浮遊中での化学反応に大きな寄与を持っている。海塩をはじめとするイオン結晶性の粒子の反応解明のために、大気中での状態や生成過程に着目して分析を行った。その結果、黄砂の塩素化反応の副生成物である硝酸ナトリウムなどの粒子は、液相の状態で反応が進行している可能性が高いということがわかった。また、PM_{2.5}以下の微小粒子についても、硫酸塩や硝酸塩エアロゾルを中心に、組成や付着物などを明らかにした。また、凍結分析によってこれらの粒子から水分を検出することに成功した。

[キーワード]

越境大気汚染、黄砂、海塩、塩素化、九州、単一微粒子履歴解析、粒別分析、TOF-SIMS

1. はじめに

近年の著しい東アジア大陸部の経済発展に伴い環境中への大気汚染物質の放出量も急増しており、これらの汚染物質が偏西風によって国境を越えて日本国内にも飛来し影響を及ぼすことが懸念されている。このため越境大気汚染に関しては、大気汚染物質の地上観測等による科学的に裏付けされた定量的なデータが必要とされている。さらには、実際にどのような粒子に対して注意喚起

を行えばよいかなど、健康や環境への影響を明確にしていく必要もある。そのため、疫学や毒性学などと共に複合的に健康影響などを評価していくことになる。エアロゾル質量分析法（AMS）などの伝統的なバルク分析（多量の粒子を纏めて分析する）データは、平均値としてのデータの信頼性が高く、濃度変動などの連続観測に向いている一方で、粒子間のわずかな違いなどを観察することは困難である。一方で、電子線やイオンビームなどの走査プローブを用いた顕微鏡による観察では、個々の粒子に着目して分析することができるため、バルク分析データではわからなかった粒子間のわずかな違いなどの観察に適している。

我々はイオンビームを集束化し、40 nm程度の分解能で単一微粒子からスパッタリングにより放出された成分を高感度に検出できる分析装置を開発した¹⁾。この方法はイオンビームによって粒子表面を削り飛ばしながら分析するため、イオンビームの走査条件によっては、あたかも粒子を真っ二つに切ったような断面の加工も可能である。このような先端技術を用いれば、単一微粒子内の混合状態や内部構造を明らかにすることができ、従来のバルク分析データを補完し、疫学や毒性学の根拠となる粒子構造データを得ることも可能である。

2. 研究開発目的

単一微粒子履歴解析装置（FIB-TOF-SIMS）を用いた個別粒子の構造解析を行い、典型的な粒子（黄砂、海塩、硫酸塩など）において、表面付着物、内部混合など、どのような化学物質が含まれ、どこに存在しているのかを明らかにする。これをバルク連続観測や後方流跡線解析の結果と組み合わせることで、典型的な越境汚染微粒子の起源および履歴の解析を行う。

3. 研究開発方法

（1）黄砂などの土壌系粒子の分析

熊本（熊本大学：32.8N、130.7E）ならびに福岡（福岡大学：33.5N、130.4）にて可動ステージ式インパクター型サンプラーを用いて捕集した粒別分析用のエアロゾル試料を黄砂に着目してTOF-SIMSによって分析した。特に本研究により明らかとなった塩素化し液状化している黄砂と一般的な黄砂の違いに着目し、粒子表面および粒子内部のどの部分に、どのような化学物質が含まれているのか明らかにした。さらに、塩素化した黄砂日と塩素化していない黄砂日との間でバルク観測データと比較を行い、塩素化のメカニズムについて検討を行った。

（2）海塩などのイオン結晶系の粒子の分析

海塩は塩素ロス反応に代表されるように、エアロゾル粒子の浮遊中での化学反応に大きな寄与を持っている。海塩をはじめとするイオン結晶性の粒子の履歴解明のために、大気中での状態や生成過程に着目して分析を行った。黄砂同様、熊本と福岡で捕集した試料を海塩などのイオン結晶系の粒子に着目してTOF-SIMSによって分析した。粒子表面および粒子内部のどの部分に、どのような化学物質が含まれているのかマッピングし、粒子の生成・成長過程などについて、個々の粒子の構造面から検討を行った。

（3）硫酸塩・硝酸塩エアロゾルなどの微小粒子の分析

黄砂同様、熊本と福岡で捕集した捕集した試料を硫酸塩や硝酸塩エアロゾルなどの微小粒子に

着目してTOF-SIMSによって分析した。国内起源の粒子と区別するため工学院大学（東京都八王子市）で捕集した試料と比較を行った。

（４）従来の大気データとの相関

個別粒子解析による粒子数の変動データを作成し、AMSなどの伝統的な大気データとの比較を行った。特にどのような条件において黄砂の塩素化反応が進行しているのかAMSなどのデータと参照し、塩素化に特徴的なパターンを見出すことを目的とした。試料は2016年3月1～8日を用いた。塩素化の判断は電子顕微鏡画像からの目視と画像解析（形状クラスター解析）の2種類で用いて行った。

４．結果及び考察

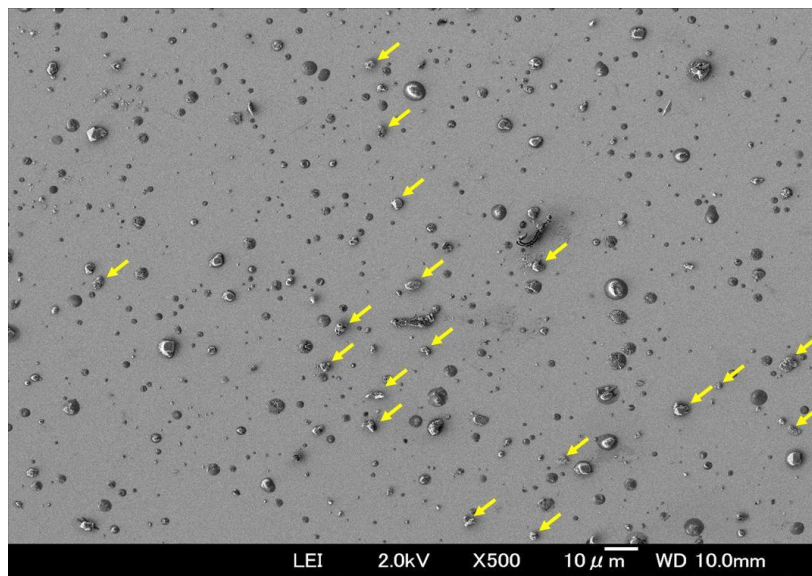
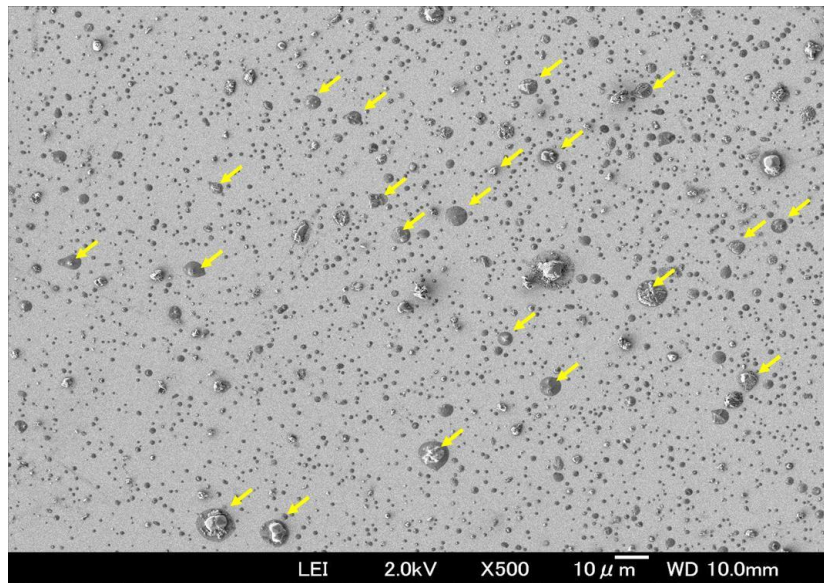
（１）黄砂などの土壌系粒子の分析

黄砂は自然由来の粒子で、アルミナ、マグネシア、シリカ、炭酸カルシウムなどの成分で構成されているが、一方で様々な汚染物質を表面に付着して飛来してくるため、汚染状況によっては非常に有害な物質と成り得る。その中でも特に、日本へ越境してくる黄砂の一部は酸性ガス（ NO_x , SO_x など）と塩化ナトリウムによって塩素化しており、主成分の炭酸カルシウムが塩化カルシウムに変化している可能性が高いことが個別粒子解析によってわかった。黄砂の塩素化の主な反応モデルを以下に示す。

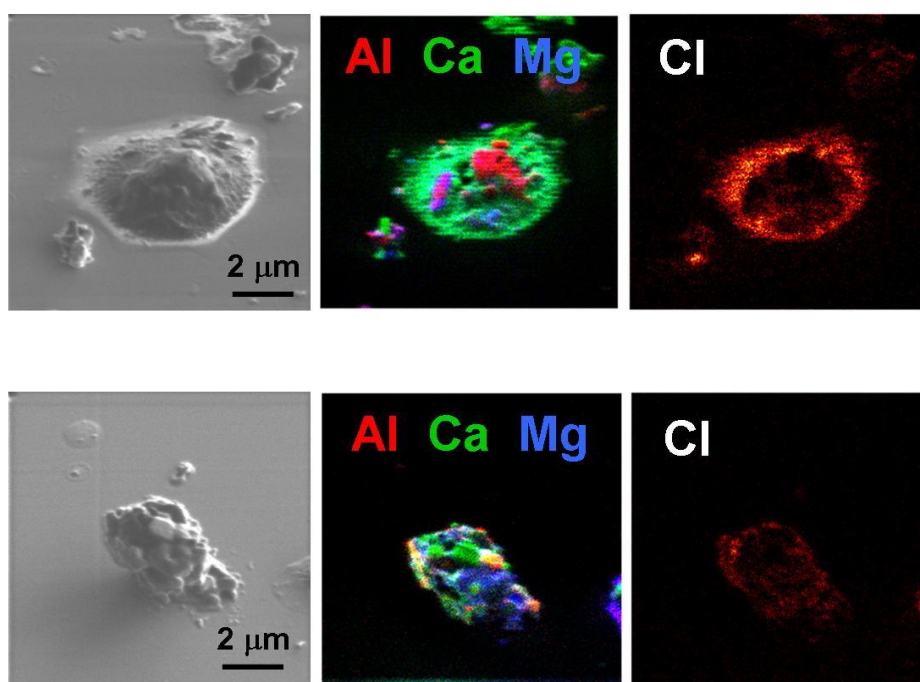
- ・ $\text{NaCl} + \text{HNO}_3 \rightarrow \text{NaNO}_3 + \text{HCl}$
- ・ $\text{HCl} + \text{CaCO}_3 \rightarrow \text{CaCl}_2 \text{（潮解性物質）} + \text{H}_2\text{O} + \text{CO}_2$

図(3)-1に2014/10/16と2014/10/17の試料のSEM（走査型電子顕微鏡）による低倍率観察像を示す。また、図(3)-2にそれぞれの状態の黄砂粒子の高倍率成分分布像を示す。2014/10/16と2014/10/17の福岡で捕集された試料において、黄砂粒子が多数観察され、さらに10/16では塩素化した黄砂が多く、10/17では未反応の黄砂が多く観察された。図(3)-2において、未反応の黄砂ではアルミナやマグネシアの粒はそのままの状態に残っており、炭酸カルシウムのみが吸湿性を持つ塩化カルシウムに置き換わっていることがわかる。いわゆる塩素ロス反応と関連し、 SO_x や NO_x などの汚染物質と触れた黄砂がこのように変化すると考えられる。また炭酸カルシウムが塩化カルシウムに変化していることは、試薬レベルでの実験などにおいても確認され、さらに塩素化した黄砂を凍結分析したまま分析することで、塩化カルシウムの部分から水分（氷）を検出することにも成功した。

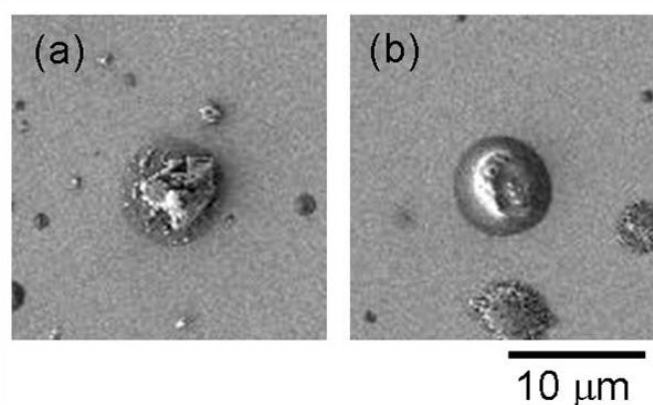
次に、10/16と10/17において、未反応の黄砂と塩素化した黄砂の存在比の変動について検討を行った。しかし、TOF-SIMSによる高倍率化学組成イメージングは分析時間などの観点から、統計的に有効な大規模な粒子データを取得することは困難である。そのため、低倍率で観察した多数粒子データから、画像解析技術と多変量解析（クラスター解析）を用いて、粒子を分類分けするシステムを開発した。図(3)-3に10/16と10/17において、開発したシステムによって、それぞれ似た特徴をもつ粒子に分類分けされた粒子のSEM像を示す。未反応の黄砂は角張った形をしており、塩素化して流動性をもつ黄砂は捕集の衝撃によって基板上で円状に広がるっているため、見た目での区別が可能である。図(3)-3において、未反応の黄砂と塩素化した黄砂が別の粒子として区別されているのが確認できる。図(3)-4に開発したシステムを用いて算出した10/16と10/17におけるそれぞれの状態の黄砂の存在比を示す。



図(3)-1 福岡で捕集した試料のSEMによる低倍率観察(上)2014/10/16、(下)2014/10/17
(※図中の矢印は、それぞれの日に特徴的な状態の黄砂)



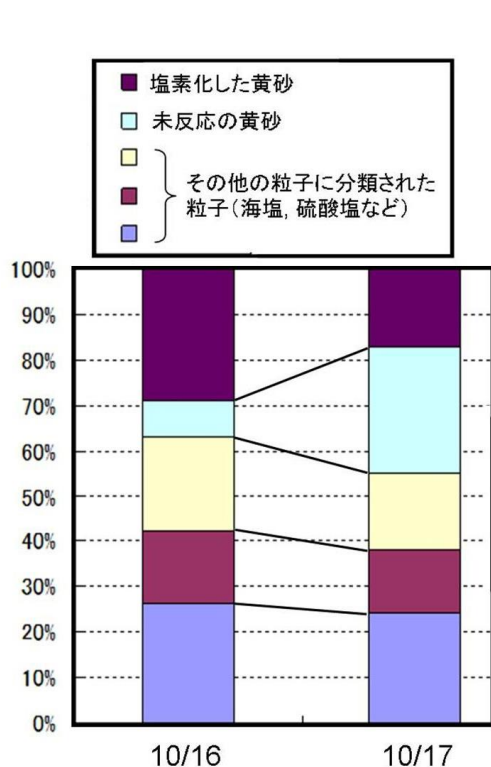
図(3)-2 黄砂粒子の成分分布像、(上)10/16:塩素化した黄砂、(下)10/17:未反応の黄砂



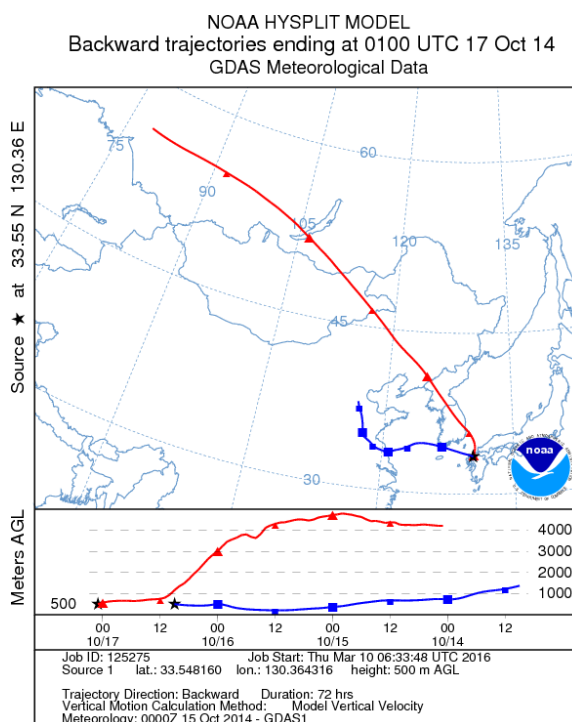
図(3)-3 画像解析と多変量解析によって分類された粒子のSEM像

(a)未反応の黄砂、(b)塩素化した黄砂

10/16と10/17のわずかな時間差で、未反応の黄砂と塩素化した黄砂の存在比に大きな変動が観測された理由について検討を行った。図(3)-5に10/16と10/17に捕集された試料の後方流跡線解析の結果を示す。その結果、10/16の試料は大陸沿岸部の工業地帯上空を浮遊し、さらに長時間海上を浮遊していることがわかった。一方で、10/17の試料では比較的大気汚染の少ないルートを飛行し、さらに海上に存在する時間も短いことがわかった。これらの結果は、黄砂の塩素化反応に必要な、 SO_x 、 NO_x 、 NaCl （海塩）などの化学種の飛行ルート上の存在量の観点から考えて、理論的な考察と非常に良い一致を示している。



図(3)-4 画像解析と多変量解析によるそれぞれの状態の黄砂の存在比



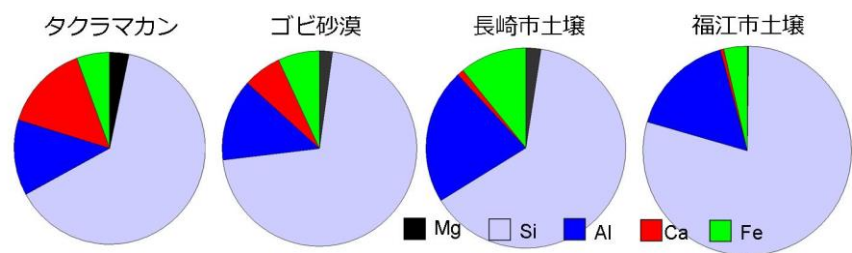
図(3)-5 捕集した試料の後方流跡線解析 (NOAA; <http://www.arl.noaa.gov/>)

以上のことから、黄砂の状態を観察することは、汚染の度合いや、浮遊履歴の判断材料になることが期待される。しかし、一方で黄砂の塩素化の度合いを定量的に評価することは難しい。その理由に土壌系の粒子が塩素化していない黄砂と形状や成分において類似していることが挙げられる。黄砂と一般土壌を明確に区別しなければ、全黄砂中の塩素化した黄砂の割合を算出することは難しい。一般的に黄砂中のCa濃度は他の土壌粒子と比べて高い傾向にある。表(3)-1と図(3)-6に黄砂と九州における土壌粒子の成分比を示す²⁾。そのため、通常よりもイオンビームによって削り飛ばす量を多くし、ある程度定量的に粒子の成分を検出できるように分析を行った。図(3)-7に定量性を上げて土壌粒子や黄砂を分析した結果を示す。また、粒子数を増やし、粒子中のCaの割合をプロットしたものを図(3)-8に示す。これらの結果からCaの濃度が二極化していることがわかる。また、それぞれ成分の存在比もおおよそ他のバルク分析データと一致しているため、Ca濃度に着目すれば、黄砂粒子とその他の土壌粒子を区別することができる。

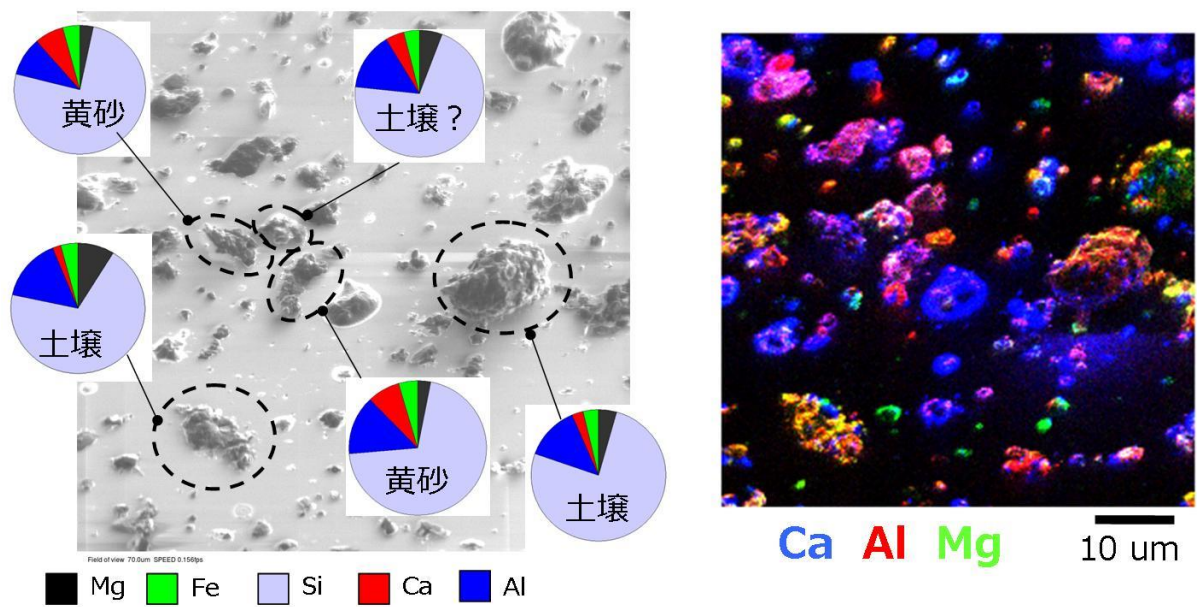
以上の結果から、日本で観測される土壌系粒子には大きく4種類（一般的な黄砂、塩素化した黄砂、大陸由来の土壌系粒子、国内起源の土壌系粒子）に分類し、それぞれの越境輸送モデルを図(3)-9のように提案する。このモデルに当てはめて分析を行えば、黄砂における越境汚染の度合いを評価することが可能である。

表(3)-1 バルクデータによる黄砂と土壌粒子の成分比

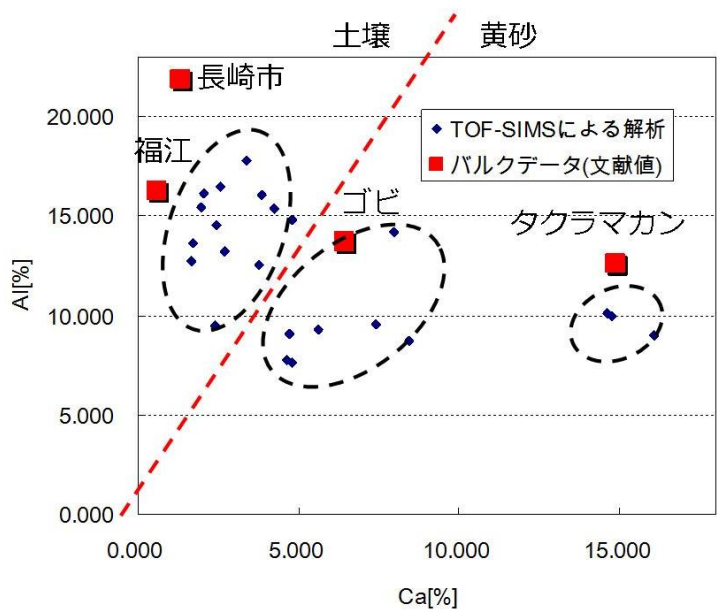
	黄砂の成分 (タクラマカン砂漠) [%]	黄砂の成分 (ゴビ砂漠) [%]	一般土壌の成分 (割合) [%]	
			長崎市	福江
Mg	3.462	2.125	2.627	0.390
Si	63.589	70.841	63.420	79.128
Al	12.577	13.711	21.903	16.284
Ca	14.885	6.444	1.314	0.619
Fe	5.488	6.878	10.736	3.578



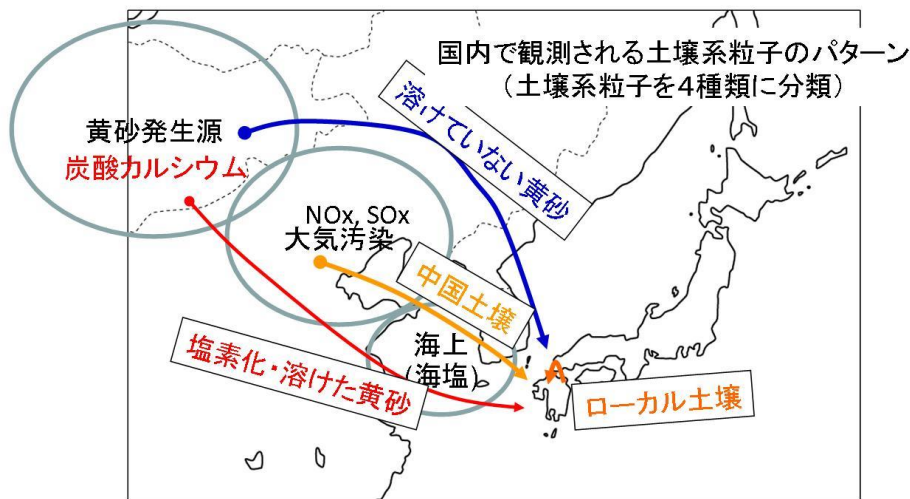
図(3)-6 バルクデータによる黄砂と土壌粒子の成分比(円グラフ)



図(3)-7 TOF-SIMSによる黄砂と土壌粒子の成分比
(左)二次電子像と成分比、(右)TOF-SIMS成分イメージング



図(3)-8 TOF-SIMSによる黄砂と土壌粒子の成分比(Ca% vs Al%)



図(3)-9 国内で観測される土壌系粒子の輸送モデル

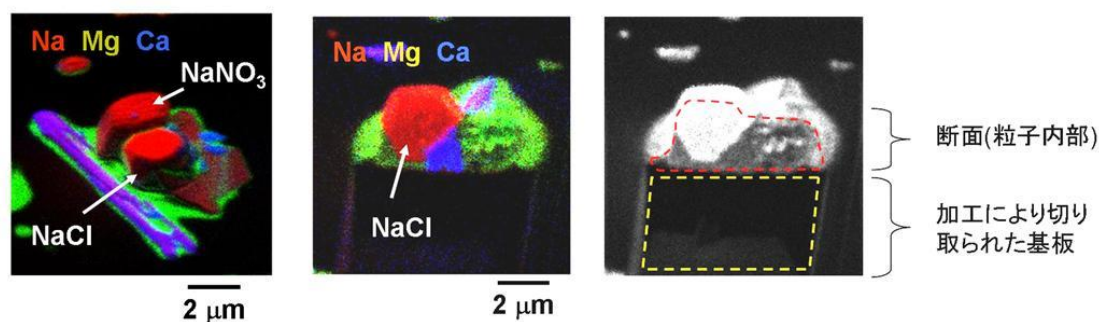
(2) 海塩などのイオン結晶粒子の浮遊中の状態

黄砂の塩素化反応において述べたように、海塩などの粒子は、エアロゾルの大気中での化学反応に重要な役割を担っている。また、イオン結晶系の粒子は、主に水溶性が高いため、吸引した際の影響の即効性は高いと考えられる。そのため、海塩などのイオン結晶性の粒子の高分解能成

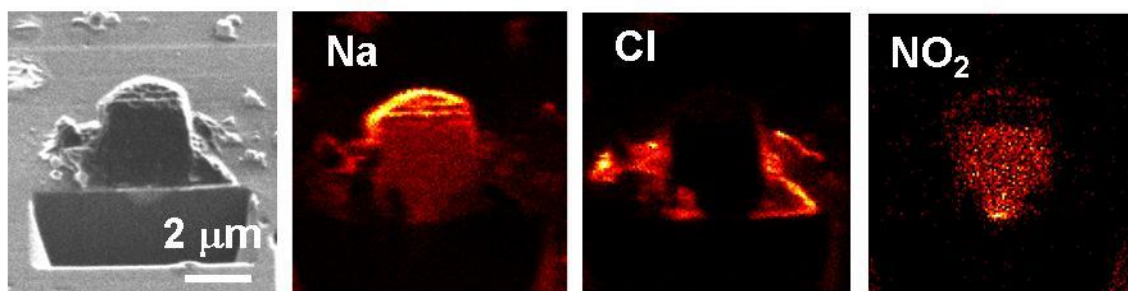
分イメージングを行った。図(3)-10に海塩を含んだイオン結晶性の粒子の成分分布像を示す。これらの結果から、イオン結晶性の粒子において以下に記す特徴が観察された。

- ・ 結晶の対称性が低いこと（周辺の粒子に立体障害を受けていること）
- ・ 同種の結晶が隣り合ったものがないこと（例: NaCl同士が付着していない）
- ・ 結晶同士が密接に隣り合っていること

空気中でそれぞれの粒子が固体の結晶として存在しているのであれば、周辺の粒子の立体障害を受ける可能性は低く、さらに捕集時の衝撃でバラバラになる可能性が高い。また結晶同士が空中で付着しているのであれば、同種の結晶同士が隣接したものが観察されなければならない。以上のことから、海塩をはじめとするイオン結晶性の粒子は捕集されるまでは水分を含み、溶液中にイオンとなって分散している可能性が高いということが考えられる。これが基板上、もしくは真空装置へ導入した際に水分が蒸発し、それぞれの結晶が析出したと考えられる。この結果は黄砂の塩素化反応にも関連しており、海塩がいわゆる塩素ロス反応によって硝酸ナトリウムに変化する反応において、この反応が固相（塩化ナトリウム）－気相（硝酸ガス）間で起こっているならば、海塩の表面のみが硝酸ナトリウムに変化する粒子が見つかるはずである。しかし我々の分析において現在のところ、硝酸ナトリウム中に未反応部分の塩化ナトリウムが存在している粒子は見つかっていない。そのため、この反応は多量の水分を含んだ液相-気相間で進行している可能性が高い。典型的な硝酸ナトリウム粒子の内部成分イメージングを図(3)-12に示す。大気中の粒子について特に水分を含んだ状態について観察することは、大気中の湿度の問題もあって非常に困難である。この結果は個別粒子解析が浮遊中の粒子の状態について言及した重要な成果である。



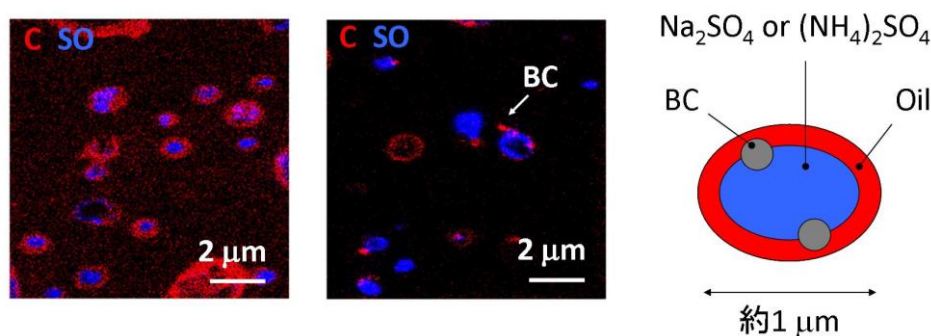
図(3)-10 海塩を含んだ粒子の内部成分分布像
(左)粒子表面、(中央)断面、(右)総二次イオン像



図(3)-11 硝酸ナトリウムの結晶内部の成分分布

(3) 硫酸塩エアロゾルなどの微小粒子

硫酸塩エアロゾル粒子を分析した結果と構造の模式図を図(3)-12に示す。硫酸塩や硝酸塩の表面には油分など有機系化合物が付着しており、さらにブラックカーボン（BC）が付着していることがわかる。BCは九州で捕集された粒子に多くみられ、工学院大学（東京都八王子市）で捕集した硫酸塩や硝酸塩エアロゾルに付着していることは少なかった。また九州の粒子では鉛（Pb）などの重金属が検出されることもしばしばあった。つまり、BCに着目すれば、国内起源か越境輸送された粒子かを見分けることが可能である。また、硫酸塩や硝酸塩中のBCはレンズ効果により地球温暖化の影響が懸念されているが、大気中で球形を保つためにはある程度の水分を含み液滴状になっていなければならない³⁾。我々は粒子を凍結し分析を行うことによって、これらの粒子内部から水分を検出することに成功した。本成果により、越境粒子の区別が可能となり、さらに粒子の温暖化への効果などの環境影響の解析も可能であることが示された。



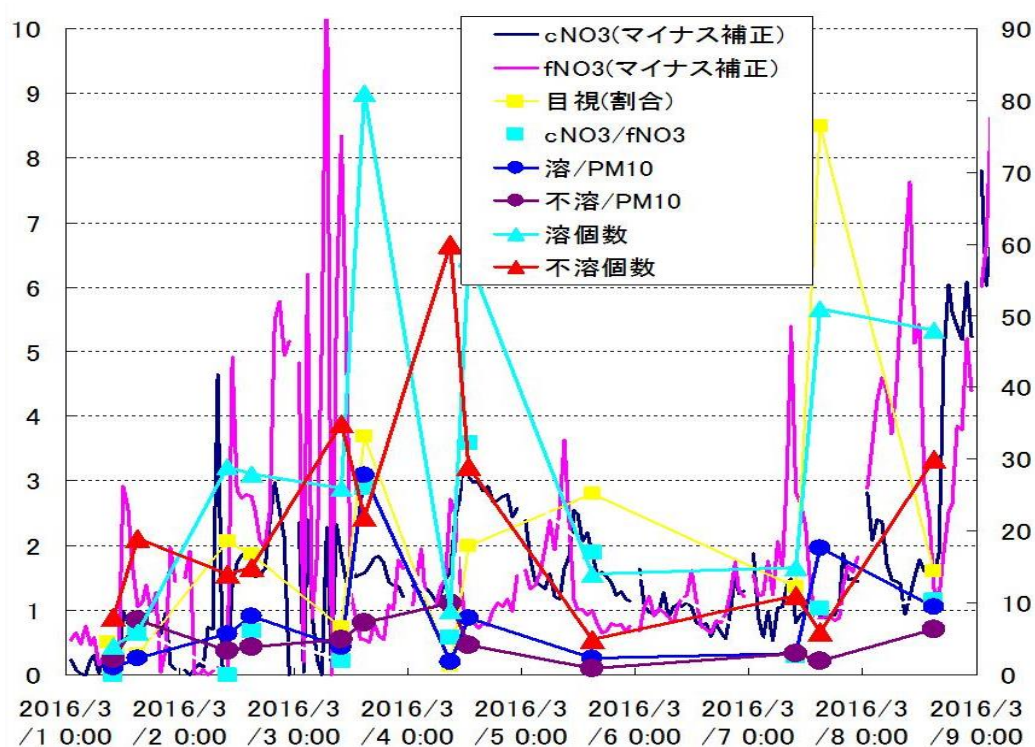
図(3)-12 硫酸塩エアロゾルの構造

(左)スパッタ前の成分分布、(中央) スパッタ後の成分分布、(右) 構造模式図

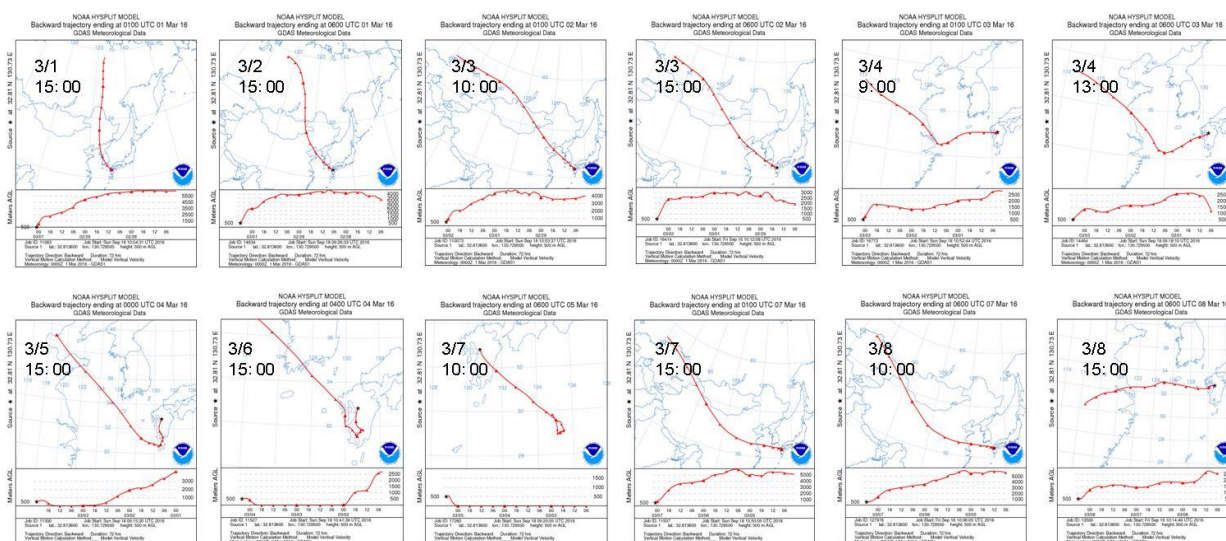
(4) 従来の大気データとの相関

これまで個別粒子解析によって新たに判明した知見を従来の大気データとの比較を行った。特に塩素化した黄砂がAMSなどのバルクデータにどのように反映されているかが明らかになれば、塩素化黄砂日の連続観測が可能になるため、例えば疫学データと塩素化した黄砂の比較が行える。2016年3月1～8日の試料を用いて、電子顕微鏡画像からの目視と粒子の形状をもとにした多変量解析によって、塩素化した黄砂と未反応の黄砂を数え上げた。数え上げの結果とAMSによる濃度変

動をまとめたものを図(3)-13に示す。捕集期間中の後方流跡線の結果を図(3)-14に示す。観測期間中で特に塩素化した黄砂の比率が高かった試料は、3/3/15:00と3/7/15:00であった。この部分の後方流跡線を計算すると、中国沿岸部の都市部や工業地帯上空を通り、東シナ海を渡って飛来していることがわかる。さらにAMSと比較してみると、硝酸系の微粒子（粒径 $2.5\text{ }\mu\text{m}$ 以下）が非常に高濃度に存在しその後濃度が下がっている際に、塩素化した黄砂が飛来してきている。これは、海塩の塩素ロス反応によって大気中の硝酸が粗大粒子（硝酸ナトリウム）に移動したためだと考えられる。実際にAMSからも粗大粒子（ $2.5\text{ }\mu\text{m}$ 以上の硝酸濃度の上昇が確認でき、また個別粒子解析によっても硝酸ナトリウムの粗大粒子が多数観察できた。しかし、この仮説によれば、3/2/15:00の試料においても塩素化した黄砂が多くなければならないが、実際には塩素化した黄砂の量は少なかった。すでに（１）節で述べたように、これは、Caによる土壌粒子との区別を反映できていないため黄砂以外の土壌系の粒子が多数存在しており、実際には塩素化するルートであっても黄砂自体がすくなかった可能性が考えられる。その根拠に、3/4/15:00もAMSを観る限りでは塩素化している可能性が高いが、後方流跡線では明らかに国内起源のルートであるため、一般土壌では塩素化は起きず未反応の黄砂として認識され、結果塩素化した黄砂が少ないという判定となった。越境してくる黄砂と一般土壌を画像解析のみで見分けることができれば、この解析の精度は著しく向上することが期待できる。本成果により、後方流跡線とAMSのデータから直接的には観測できない塩素化した黄砂が飛来している日を予測できる可能性があるということが示された。



図(3)-13 塩素化した黄砂の変動とAMSによる濃度変動



図(3)-14 捕集期間中の後方流跡線図

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

黄砂の塩素化反応のメカニズムを明らかにし、日本で観測される土壌系粒子の輸送モデルを構築することに成功した。また塩素化している黄砂が飛来してくるパターンをAMSや後方流跡線のデータにおおよそ反映させることに成功した。さらにその過程において、画像解析と多変量解析を複合させたシステムを開発することで、個々の粒子の情報を保存したまま、バルク分析のような大量の粒子データを処理できるようになった。これにより「どのような日に、どのような種類の粒子が、どのくらい存在するか？」という半定量的な観測が可能となった。現在塩素化した黄砂を定量的に判断できる手法はなく、今後は特に、塩素化黄砂と健康影響の比較において本手法の活躍が期待できる。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない

<行政が活用することが見込まれる成果>

本研究により、黄砂の塩素化メカニズムを解明したことにより、塩素化した黄砂をモニタリングすれば、大気汚染状況を判断することが可能だということがわかった。また、本解析によって個々の粒子の実態が明らかになったため、健康影響の1つの指標として本成果を活用することができると考えられる。

6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文(査読あり)>

特に記載すべき事項はない

<査読付論文に準ずる成果発表>

特に記載すべき事項はない

<その他誌上発表(査読なし)>

- 1) 坂本哲夫: ナノスケールの物質計測と物質制御: PM_{2.5} 分析顕微鏡と有機 EL デバイスの開発、クリーンテクノロジー (日本工業出版)、24(7)、pp.69-72、2014 年 7 月 10 日
- 2) 坂本哲夫: 光アライアンス、26(2)、18-22 (2015) 「集束イオンビーム/レーザーイオン化法による単一微粒子の履歴解析」
- 3) 坂本哲夫: パリティ、30(1)、82-85 (2015) 「新型顕微鏡で見る PM2.5 の正体」
- 4) M. MORITA, K. KANENARI, K. OBANA, T. ONOZAWA, T. YOSHIMOTO and T. SAKAMOTO: REPORT OF RESEARCH CENTER OF ION BEAM TECHNOLOGY HOSEI UNIVERSITY 34, 76-79 (2016), "High Resolution Analysis of Aerosol Particles Collected in Kyushu Area"

(2) 口頭発表(学会等)

- 1) 坂本哲夫: 2014 年第 1 回 TMS 研究会講演 (2014)
「PM2.5 個別粒子分析のための高分解能 TOF-SIMS 装置の開発と越境微粒子分析への応用」
- 2) 坂本哲夫: イノベーションジャパン 2014 (2014)
「PM2.5 粒子を 1 つずつ成分イメージング可能な質量顕微鏡」
- 3) T. SAKAMOTO: The 1st Innovation Forum of Advanced Engineering Education (IFAEE), Tokyo, Japan, 2014
“Individual Analysis of PM2.5 by means of High-Resolution Time-of-Flight Secondary Ion Mass Spectrometry”
- 4) 牧野裕、武田勇輔、山本祥吾、伊藤龍太、坂本哲夫: 第 33 回法政大学イオンビーム工学研究所シンポジウム (2014)
「大気微粒子の SEM 像による形状識別と統計データ取得」
- 5) 坂本哲夫、高見昭憲、畠山史郎、坂東博、村野健太郎、藤井正明、笠岡俊志、小川久雄、小島知子、上田佳代: マイクロビームアナリシス第 141 委員会第 151 回研究会 (2015)
「高分解能 TOF-SIMS/SNMS による越境 PM2.5 の分析」
- 6) 牧野裕、伊藤龍太、武田勇輔、山本祥吾、坂本哲夫: 第 27 回酸性雨東京講演会 (2015)
「SEM を用いたエアロゾル粒子の形状分類方法の研究」
- 7) K. KANENARI, J. ICHINOSE, K. OHISHI, and T. SAKAMOTO: 2015 Asian Aerosol Conference,

2015, Kanazawa, Japan

"Individual Particle Analysis of Aerosols Under Frozen Condition"

- 8) T. SAKAMOTO: 2015 Asian Aerosol Conference, 2015, Kanazawa, Japan

"Imaging Mass Spectrometry Analysis of Aerosols by means of the High Resolution TOF-SIMS",

- 9) M. MORITA, K. KANENARI, S. TAGATA, K. OHISHI, and T. SAKAMOTO: The 17th Scientific International Symposium on SIMS and Related Techniques Based on Ion-Solid Interactions 2015 (SISS-17), 2015, Tokyo, Japan

"Cluster Analysis of Aerosol Particles with FIB-TOF-SIMS"

- 10) 森田真人、金成啓太、大石乾詞、坂本哲夫：第76回応用物理学会秋季学術講演会（2015）

「急速凍結TOF-SIMS分析法の開発とエアロゾル中の揮発性物質の分析」

- 11) 坂本哲夫、森田真人、三澤健太郎、吉野彩子、村野健太郎、畠山史郎、高見昭憲：第56回大気環境学会年会（2015）

「九州における越境ならびに地域汚染時のエアロゾルの粒別分析」

- 12) M. MORITA, K. KANENARI, S. TAGATA, K. OHISHI, and T. SAKAMOTO: 10th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices'15, 2015, Matsue, Japan

"Cluster Analysis of Aerosol Particles with TOF-SIMS"

- 13) T. SAKAMOTO: 13th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality, 2015, Kobe, Japan

"Individual Analysis of PM2.5 and Yellow Sands by means of High Resolution TOF-SIMS"

- 14) M. MORITA, S. TAGATA, and T. SAKAMOTO: The 14th International Symposium on Advanced Technology, 2015, Tokyo, Japan

"Study on Imaging Analysis for Aerosol Particles"

- 15) T. SAKAMOTO, M. MORITA, A. TAKAMI, S. HATAKEYAMA, K. MURANO, H. OGAWA, and K. UEDA: The 14th International Symposium on Advanced Technology, 2015, Tokyo, Japan

"Individual Analysis of Aerosol Particles Using a High-Resolution TOF-SIMS"

- 16) 森田真人、金成啓太、尾花和樹、小野沢敬浩、吉本健、坂本哲夫：第34回法政大学イオンビーム工学研究所シンポジウム（2015）

「九州における越境微粒子の高分解能TOF-SIMS分析」

- 17) 森田真人、金成啓太、尾花和樹、小野沢敬浩、吉本健、田形昭次郎、大石乾詞、坂本哲夫：日本学術振興会マイクロビームアナリシス第141委員会第163回研究会（2016）

「急速凍結TOF-SIMS分析法の開発と揮発性成分の分析」

- 18) 森田真人、金成啓太、尾花和樹、小野沢敬浩、吉本健、田形昭次郎、笹岡俊志、小川久雄、畠山史郎、村野健太郎、高見昭憲、坂本哲夫：第28回酸性雨東京講演会（2016）

「TOF-SIMS個別粒子解析へのクラスター分析の応用」

- 19) 金成啓太、森田真人、尾花和樹、小野沢敬浩、吉本健、坂本哲夫：第28回酸性雨東京講演会（2016）

「急速凍結TOF-SIMS分析法の開発および含水エアロゾルの分析」

- 20) 金成啓太、森田真人、田形昭次郎、境悠治、三澤健太郎、吉野彩子、畠山史郎、村野健太郎、

- 高見昭憲、坂本哲夫：第57回大気環境学会年会（2016）
「九州における越境微粒子の高空間分解能個別粒子分析」
- 21) 森田真人、金成啓太、田形昭次郎、境悠治、三澤健太郎、吉野彩子、畠山史郎、村野健太郎、
高見昭憲、坂本哲夫：第57回大気環境学会年会（2016）
「飛行時間型二次イオン質量分析における含水エアロゾルの分析」
- 22) 金成啓太、森田真人、田形昭次郎、坂本哲夫：Innovation Forum of Advanced Engineering and
Education, 2016
「高空間分解能TOF-SIMS/SNMS装置の開発とエアロゾル・黄砂分析の応用」
- 23) 金成啓太、大西真志、田形昭次郎、森田真人、坂本哲夫：第35回法政大学イオンビーム工学
研究所シンポジウム（2016）
「SEMによる形状識別による黄砂の分類」

（３）知的財産権

特に記載すべき事項はない

（４）「国民との科学・技術対話」の実施

- 1) 日本学術会議 公開シンポジウム 「越境大気汚染と酸性雨ー現場から将来予測までー」、
（主催：日本学術会議 環境学委員会環境科学分科会、2016年11月8日、日本学術会議講堂、
観客約100名）にて講演（坂本）
- 2) 第26回東京大学環境安全研究センターシンポジウム「PM_{2.5}の実態と健康影響・機構影響」（主
催：東京大学環境安全研究センター、2016年12月20日、東京大学武田先端知ビル・武田ホー
ル、観客約100名）にて講演（坂本）

（５）マスコミ等への公表・報道等

- 1) フジテレビジョン「とくダネ！」の天気予報コーナーで、黄砂に黒色炭素（PM_{2.5}）が付着し
ている様子をとらえた画像が紹介された。（2015年3月2日放映）（坂本）
- 2) TBS「あさチャン！」のニュースコーナーで、PM_{2.5}の画像が紹介された。（2015年3月24日放
映）（坂本）

（６）その他

特に記載すべき事項はない

8. 引用文献

- 1) T. Sakamoto, M. Koizumi, J. Kawasaki and J. Yamaguchi, Appl. Surf. Sci., **255** (2008) 1617.
- 2) 西川雅貴, 黄砂エアロゾルによる物質輸送とそれに伴う化学組成変化, 名古屋大学, 1991, 博
士論文
- 3) Y. Kondo, Monogr. Environ. Earth Planets., **3** (2015) 1.

（４）大気中粒子が救急搬送に及ぼす影響の疫学研究

国立大学法人熊本大学医学部附属病院

救急・総合診療部

笠岡 俊志

平成26～28年度累計予算額：10,894千円（うち平成28年度：3,822千円）

予算額は、間接経費を含む。

〔要旨〕

大気中の微小粒子状物質の曝露によりヒトの健康への悪影響が報告されているが、日本国内において大気中粒子が病気の発症や増悪に及ぼす影響について詳細に検討した研究は少ない。一方、消防機関で収集されている救急搬送データは、日々の急病発生状況を反映していると考えられる。本研究では、救急搬送データと大気環境データを用いて大気中の粒子状物質の短期曝露が急病発生に及ぼす影響について検討した。

救急搬送データは総務省消防庁より提供された全国7都市（札幌市、仙台市、名古屋市、大阪市、広島市、福岡市、熊本市）の救急業務統計情報を用いた。PM2.5濃度は国立環境研究所および環境省から提供された各都市にある測定局の1時間値から算出された日平均値を用いた。PM2.5の曝露による遅延効果（ラグ）も考慮し当日～5日後までの影響についてDistributed lag modelを用いて検討した。

1日当たりの救急搬送数には都市間の差を認め特に大阪市で多かった。各都市におけるPM2.5濃度の平均値は11.3～20.5 $\mu\text{g m}^{-3}$ であった。PM2.5と救急搬送との関連は都市によりラグのパターンが異なっていたが、名古屋市、大阪市、福岡市では当日の影響が最も大きく有意であった。7都市を統合した結果ではPM2.5が10 $\mu\text{g m}^{-3}$ 上昇した場合の当日の救急搬送リスクの増加率は1.1%であった。また、PM2.5の疾患別救急搬送数への影響を検討した結果では、呼吸器疾患では暴露早期から救急搬送数が増加したが、循環器疾患では有意な関係を認めなかった。

本研究ではPM2.5の短期曝露により急病による救急搬送数が増加する可能性が示唆された。その影響には地域差や疾患による差を認めることが明らかとなった。

〔キーワード〕

大気中粒子、PM2.5、黄砂、短期曝露、救急搬送

1. はじめに

大気中の微小粒子状物質の曝露によりヒトの健康への悪影響が報告されているが、日本国内において大気中粒子が病気の発症や増悪に及ぼす影響について詳細に検討した研究は少ない。一方、日本では119番通報によって救急車が現場出動し、救急患者を医療機関に搬送しているが、消防機関で収集されている救急搬送データは、日々の急病発生状況を反映していると考えられる。本研究では、救急搬送データと大気環境データを用いて大気中の粒子状物質の短期曝露が急病発生に及ぼす影響について検討する。

2. 研究開発目的

全国の主要都市において、大気中の粒子状物質濃度の短期変動や黄砂が救急搬送数に及ぼす影響について、疫学的手法を用いて明らかにし、環境因子という側面から予防対策を提言する。

3. 研究開発方法

平成26年度は、救急搬送データの収集と解析を行った。研究地域としては、主にPM2.5の観測データがあり、人口の多い政令指定都市を対象とし、救急搬送データを原因疾患別に分類し、地域間比較を行った。

平成27年度は、救急搬送データおよび大気環境データを結合し、各都市における救急搬送数とPM2.5濃度や黄砂との関連について定量的に分析した。

平成28年度は、大気中粒子の成分分析を行っている地域（福岡市）について、イオン成分と救急搬送数の関連について検討した。大気中粒子を粗大粒子（Coarse）と微小粒子（Fine）に分けて、それぞれにおけるナトリウムイオン（ Na^+ ）、硝酸イオン（ NO_3^- ）、非海塩性硫酸イオン（ nss-SO_4^{2-} ）、非海塩性カルシウムイオン（ nss-Ca^{2+} ）の日別濃度を解析に用いた。

さらに、全国主要都市におけるPM2.5濃度が疾患別救急搬送数に及ぼす影響について分析した。検討した疾患は、呼吸器疾患および循環器疾患である。

対象地域・データ収集・統計解析の手法は以下のとおりである。全国7都市（札幌市、仙台市、名古屋市、大阪市、広島市、福岡市、熊本市）を研究対象地域とした。本研究の対象地域の面積、人口、研究対象期間を表(4)-1に示す。

救急搬送データは、総務省消防庁および熊本市より提供された救急業務統計情報を用いた。このデータには、出動日時、事故種別、搬送患者の性別、年齢区分、疾病区分等の情報を含む。本研究の解析対象として、18歳以上の成人を対象とし、全救急搬送のうち60%を占める（図(4)-2）事故種別「急病」による救急搬送を用いた。

PM2.5濃度は、国立環境研究所（大気汚染物質広域監視システム）および環境省（PM2.5モニタリング事業）から提供されたデータの日平均値を用いた。2009年度以前の札幌市、仙台市、名古屋市のPM2.5濃度測定は、Tapered Element Oscillating Microbalance（TEOM）法により、大阪市、広島市、福岡市、熊本市および2010年度以降の札幌市、仙台市、名古屋市の測定はβ線吸収法により行われた。黄砂は各都市に最も近い気象観測所の目視観測情報を用いた。

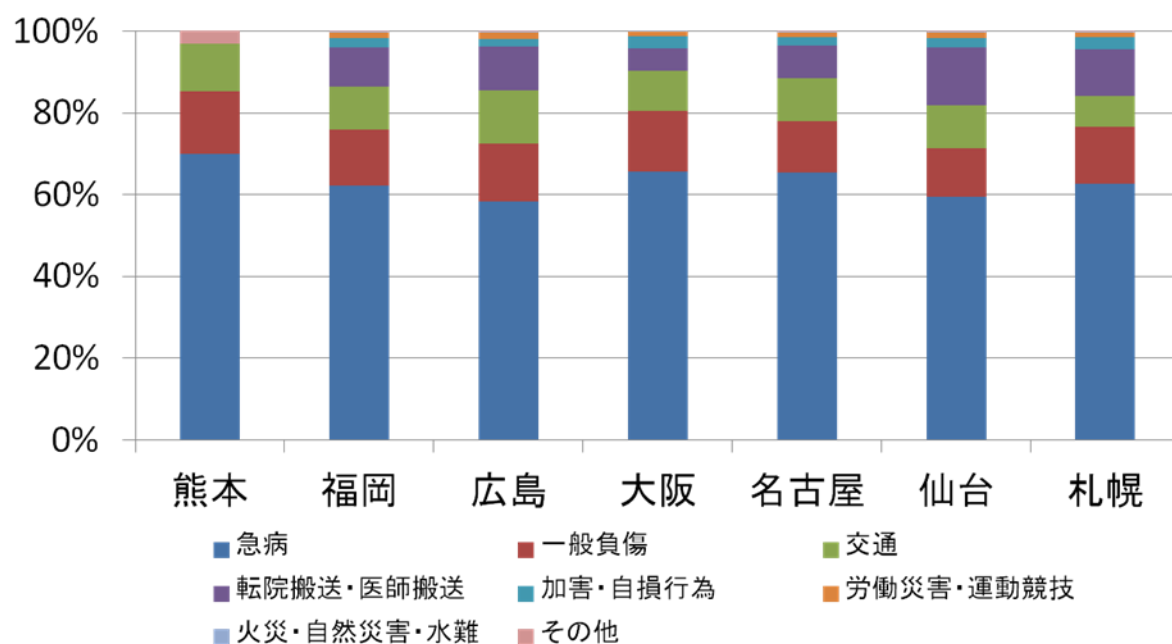
PM2.5および黄砂と日々の救急搬送数との関連について検討するために、各都市について、Poisson回帰分析を用いて定量的に評価した。交絡因子として、季節、曜日、祝日、気温、相対湿度について調整した。当日～5日後までの影響について、Distributed lag modelを用いて推定し、影響の時間的関係についても検討した。結果はPM2.5の単位濃度（ $10 \mu\text{g m}^{-3}$ ）当たりの救急搬送リスクの変化率（%）、あるいは黄砂日の非黄砂日に対する救急搬送リスクの変化率（%）とした。各都市の影響推定値を算出した後、メタ解析（ランダム効果モデル）を用いて統合した。全急病による救急搬送だけでなく、疾患別（循環器疾患、呼吸器疾患）による救急搬送についても検討した。

本研究では、サブテーマ1から提供される福岡市におけるPM2.5成分濃度の情報を用いて、PM2.5成分と救急搬送数との関連についても検討した。PM2.5成分は、福岡大学において毎年3月から7月半ばまで観測されているものを用いた。用いた成分は、粒子を粒径 $2 \mu\text{m}$ より大きい粗大粒子（Coarse）

とそれより小さい微小粒子（Fine）に分けて測定したものであり、ナトリウムイオン（Na⁺）、硝酸イオン（NO³⁻）、非海塩性硫酸イオン（nss-SO₄²⁻）、非海塩性カルシウムイオン（nss-Ca²⁺）濃度である。

表(4)-1 対象地域の面積と人口

都市名	面積 (km ² , 2010 年)	人口(2010 年)	研究対象期間
札幌市	1121.12	1,913,545	2007/1/1 ~2010/3/31
仙台市	783.54	1,045,986	2007/1/1 ~2010/3/31
名古屋市	326.43	2,263,894	2007/1/1 ~2011/12/31
大阪市	222.47	2,665,314	2008/1/1 ~2011/12/31
広島市	905.41	1,173,843	2010/4/1 ~2011/12/31
福岡市	341.32	1,463,743	2009/1/1 ~2011/12/31
熊本市	389.53	734,474	2010/4/1 ~2013/12/31



図(4)-1 各都市における救急搬送の内訳

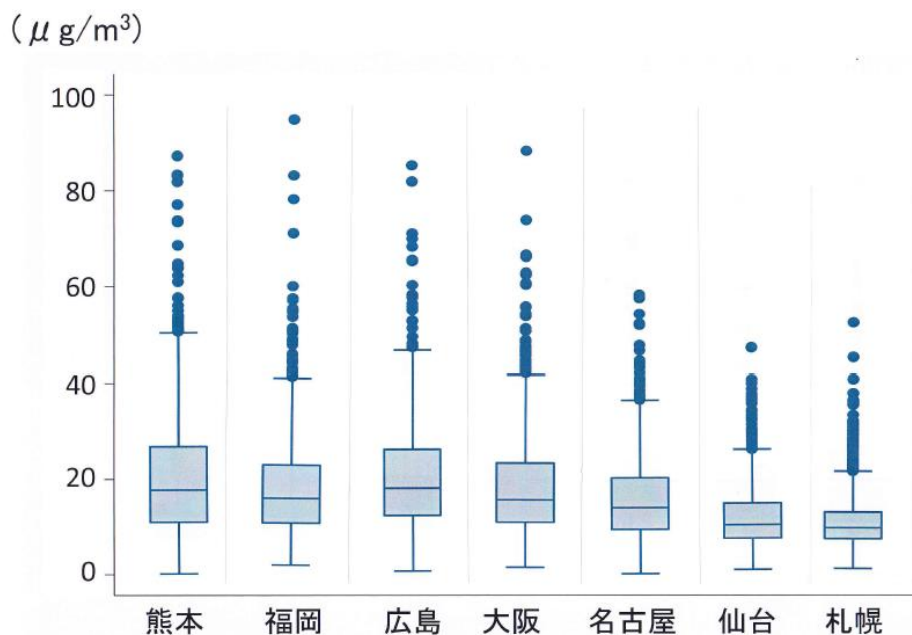
4. 結果及び考察

(1) 結果 表(4)-2には、日々の急病による救急搬送数（上段）、および人口10万人当たり1日の急病による救急搬送数（下段）を示す。救急搬送数には都市間の差を認め、人口10万人あたりの比較では、特に大阪市で多かった。

図(4)-2に、研究期間中の都市別PM2.5濃度の箱ひげ図を示す。平均PM2.5濃度は11.3(札幌市)～20.5(広島市) $\mu\text{g m}^{-3}$ であり、西日本で高い傾向がみられた。最高濃度が注意喚起基準値である70 $\mu\text{g m}^{-3}$ を超えるのは、関西から西の地域で複数みられた。

表(4)-2 日々の急病による救急搬送数

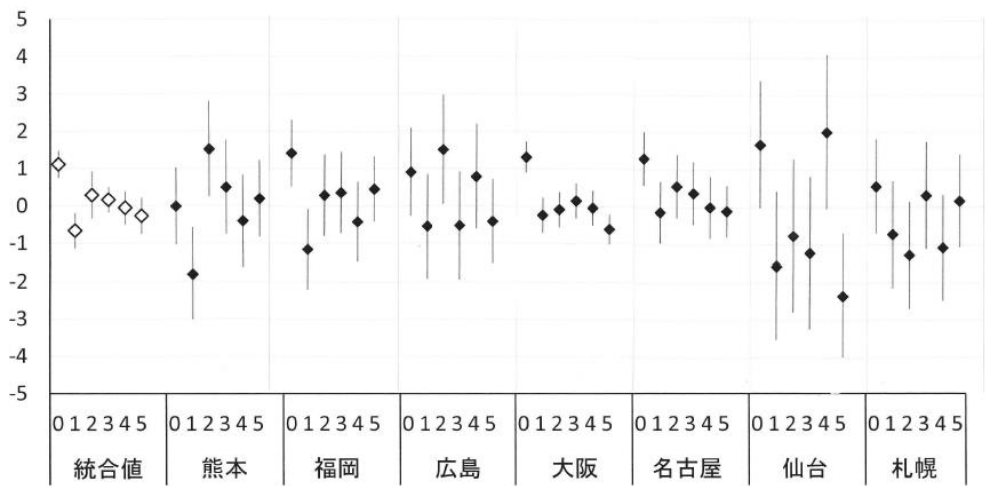
都市名	対象日数 (日)	救急搬送数(件/日)			
		平均	標準偏差	最小	最大
札幌市	1186	103.5	12.8	66	164
仙台市	1186	50.7	8	29	97
名古屋市	1460	150	22.6	91	250
大阪市	1461	283.9	29.8	209	387
広島市	640	68.7	10.7	44	105
福岡市	1093	85.7	12.4	47	140
熊本市	1369	41.7	7.6	21	71
都市名	対象日数 (日)	救急搬送数(件/日・人口10万人)			
		平均	標準偏差	最小	最大
札幌市	1186	5.4	0.7	3.4	8.6
仙台市	1186	4.8	0.8	2.8	9.3
名古屋市	1460	6.6	1	4	11
大阪市	1461	10.7	1.1	7.8	14.5
広島市	640	5.9	0.9	3.7	8.9
福岡市	1093	5.9	0.8	3.2	9.6
熊本市	1369	5.7	1	2.9	9.7



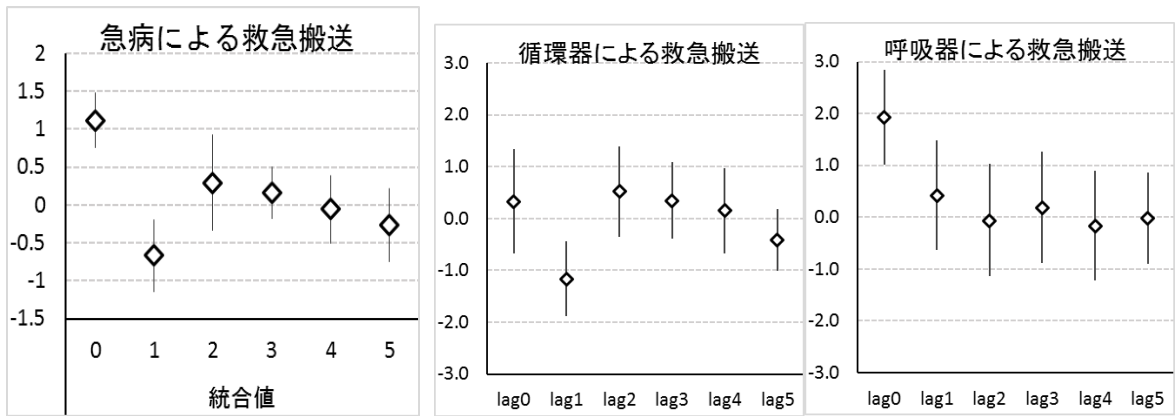
図(4)-2 都市別のPM2.5濃度の箱ひげ図

PM2.5濃度と救急搬送数との関係は都市によりラグのパターンが異なっていた（図(4)-3）が、名古屋、大阪、福岡では当日（横軸の0）の影響が最も大きく有意であった。7都市を統合した結果ではPM2.5濃度が10 $\mu\text{g m}^{-3}$ 上昇した場合の当日の救急搬送リスクの増加率は1.1%であった（図(4)-4）。疾患別検討では、循環器疾患との有意な関連は認められず、呼吸器疾患との間に当日のPM2.5濃度と有意な関連が認められた。

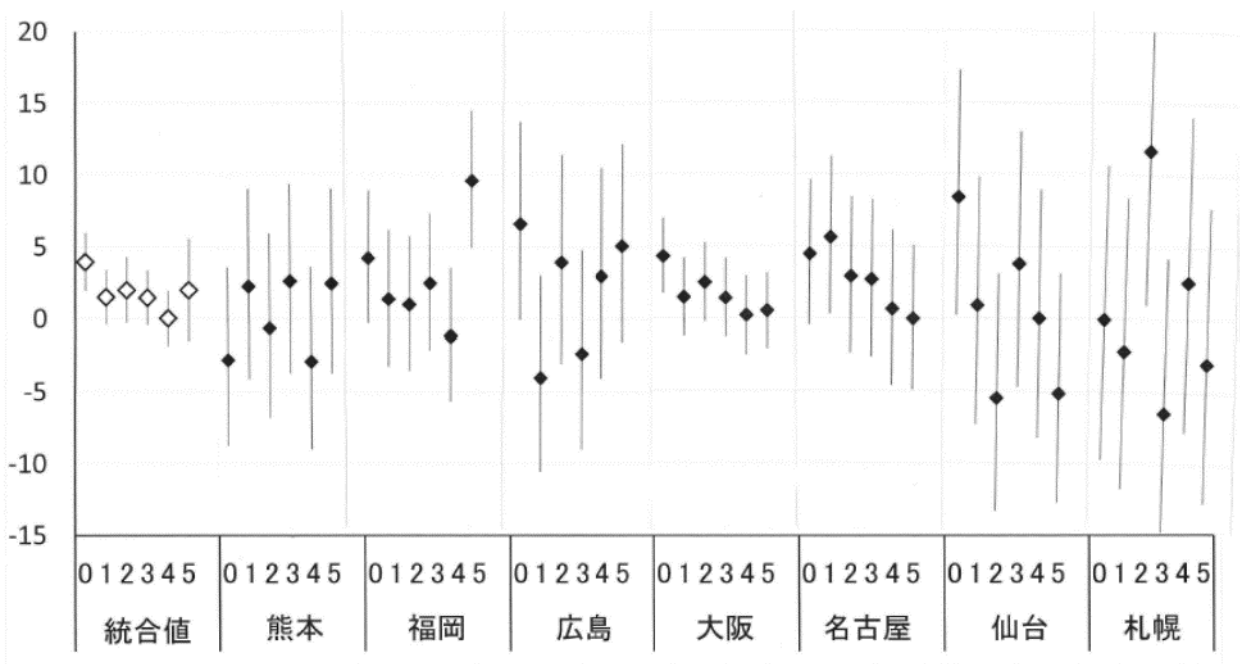
黄砂による影響の統合値では、概して当日～2日前の黄砂の影響がみられたが、福岡市では5日前の黄砂との関連が有意な関連を認め、他とはパターンが異なった。また、熊本市では有意な関連は認められなかった（図(4)-5）。統合した結果では、全急病による救急搬送数との有意な関連は当日でのみ認められた（図(4)-6）。疾患別検討においては、循環器疾患との関連は認めず、呼吸器疾患と有意な関連が認められた。



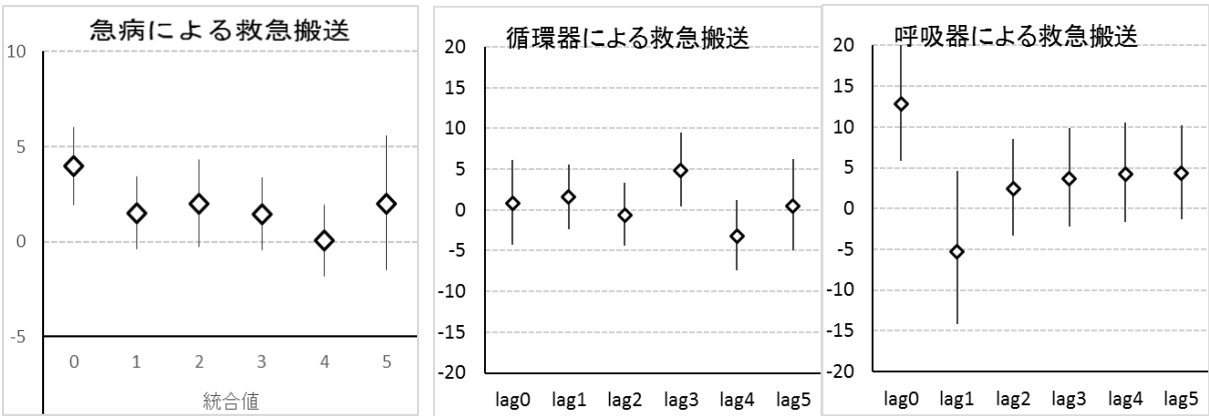
図(4)-3 都市別のPM2.5濃度と救急搬送数の関係。各都市における当日（横軸の0）～5日前（横軸の5）のPM2.5濃度が $10 \mu\text{g m}^{-3}$ 上昇することによる急病の救急搬送数の増加率（％）を示す。



図(4)-4 急病および疾患別における、PM2.5濃度が $10 \mu\text{g m}^{-3}$ 増加することによる救急搬送数の増加率（％）（7都市の統合値）

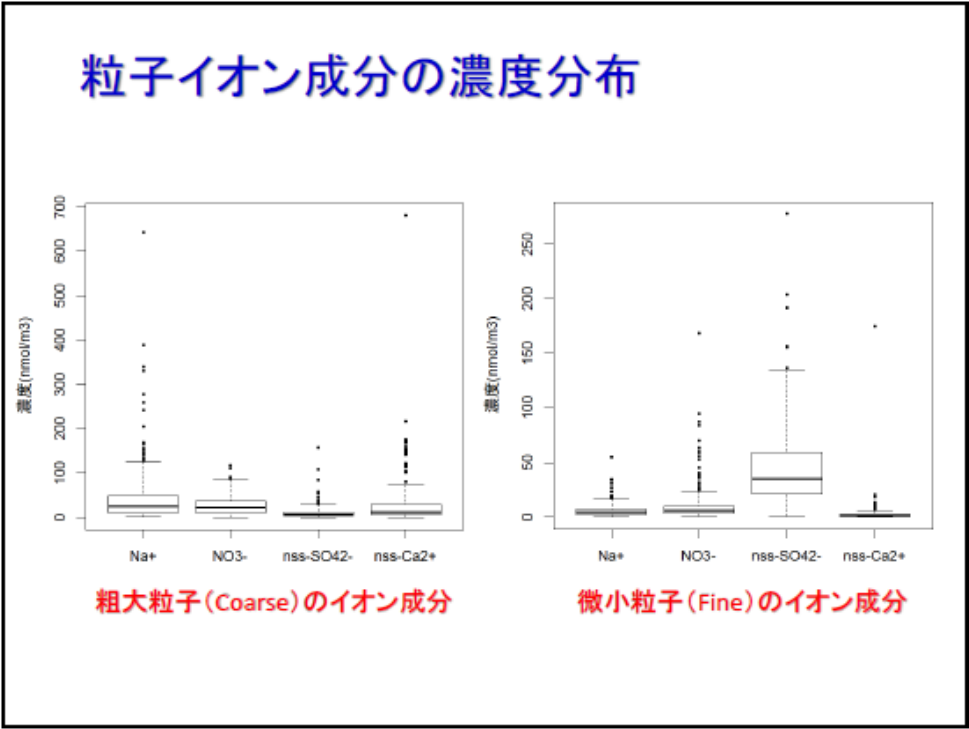


図(4)-5 都市別の黄砂と救急搬送数の関係。各都市における当日（横軸の0）～5日前（横軸の5）の黄砂による急病救急搬送数の増加率（％）を示す。

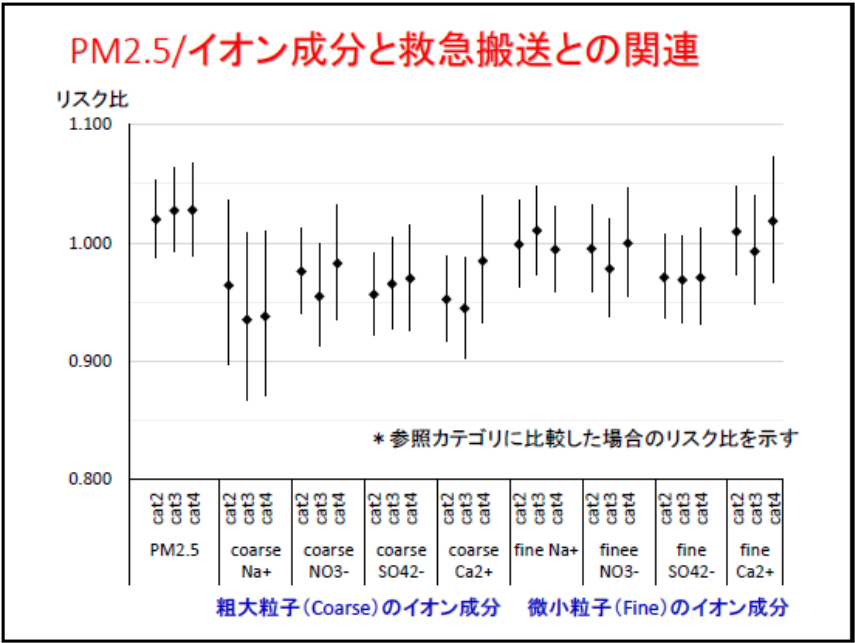


図(4)-6 急病および疾患別における、黄砂による救急搬送数の増加率（％）（7都市の統合値）

図(4)-7は、福岡市において観測した粗粒子と微粒子のイオン成分濃度の箱ひげ図を示したものである。概して、 Na^+ 、 NO_3^- 、 nss-Ca^{2+} は粗大粒子の方が濃度は高かったが、 nss-SO_4^{2-} のみ微小粒子濃度の方が高かった。急病による救急搬送数と各PM2.5成分との関連について検討したところ、いずれの成分においても有意な関係は見られなかった（図(4)-8）。



図(4)-7 大気中粒子のイオン成分の濃度分布



図(4)-8 イオン成分と救急搬送数の関係

（２）考察

本研究では、大気中の微小粒子状物質の暴露がヒトの健康に与える影響を検討するため、急病のため病院に救急搬送される患者数を用いて検討を行った。対象とした政令指定都市においては人口当たりの救急搬送患者数に地域差を認めるとともに（表(4)-2）、PM2.5濃度にも地域差を認めたため（図(4)-2）、結果の解釈や今後の対策には地域差を考慮した対応が必要と考えられた。また、今回用いた救急搬送データは全国の消防本部から消防庁に報告されたデータを集計したものであり、各都市の救急搬送の実態を反映しているデータではあるが、傷病名は最終診断ではない可能性があるため注意が必要である。救急搬送数の地域差は急病発生そのものの地域差であるとともに、119番通報を行って救急車を呼ぶことに対する意識の違いも影響している可能性が考えられる。

１）PM2.5の急病発症への影響について

PM2.5の短期暴露により急病による救急搬送数が増加する可能性が示唆された。影響は主に呼吸器疾患に対するものであり、それらの影響は比較的早期に表れると考えられた。そのため慢性呼吸器疾患（慢性気管支炎や気管支喘息など）を有する患者等に対してPM2.5への暴露を避ける注意喚起が重要と考えられた。逆に循環器疾患においては有意な関係を認めなかったが、さらに細分して（急性心筋梗塞など）検討する必要も考えられる。

２）黄砂の急病発症への影響について

黄砂の短期暴露により急病による救急搬送、特に呼吸器疾患による救急搬送が増加する可能性が示唆された。PM2.5と同様に、その影響は比較的早期に表れると考えられた。そのため、慢性呼吸器疾患（慢性気管支炎や気管支喘息など）を有する患者等に対して黄砂への暴露を避ける注意喚起が重要と考えられた。

３）大気中粒子のイオン成分と急病発症の関係について

福岡市におけるイオン成分と救急搬送数との関係については、明らかな傾向がみられなかった。理由としては調査期間が春の数年間に限られており、検出力が十分でなかった可能性がある。複数地点での検討も必要と思われる。

４）健康被害の地域差について

大気環境因子の急病発生に対する影響には地域差や疾患による差を認めた。その要因について、生活習慣による暴露の違い（窓の開閉、エアコンの違い等）や成分組成の違いが挙げられるが、今後の検討が必要である。さらに、今回は短期暴露の影響を検討したが、居住している地域で長期間暴露された場合の影響についても検討が必要と考えられる。

５）急病発症と救急搬送の関係について

本研究では疾患発症を示す健康アウトカムとして救急搬送の情報をを用いた。救急搬送データは、図(4)-2に示す通り、約6割を急病が占め、急性疾患発症を反映すると考えられる。また、各救急搬送に関する情報はすべて記録されているため、消防本部が管轄する地域全体を代表する情報と考えられる。蓄積される情報には、性別、年齢区分、搬送時の診断名、重症度などが含まれている。

一方、救急搬送となる診断名には地域差があり、診断の誤分類が疫学研究の推定値に影響を与えるため、解釈には注意が必要である。さらに、大気環境因子によってヒトの健康への悪影響（急病）が発生しても救急車ではなく自力で病院を受診することも考えられ、医療機関単位での調査（救急病院を受診した患者数など）も今後の課題と考えられた。

6）健康被害への対策について

PM2.5による健康被害のうち、1年間に約117万人が貿易や越境汚染などの国際的な影響を受けて死亡していると、中国や米国などの研究チームが推計し科学雑誌に報告した。PM2.5濃度が西日本の都市で高かったように（図(4)-2）、日本で観測されるPM2.5濃度の上昇は中国大陆からの影響も考えられている。大気汚染による健康被害は本研究で示された短期暴露による影響のみならず、長期暴露による影響も危惧されるため、大気汚染物質の測定と情報公開、住民への注意喚起など、急病発症に対する予防活動の重要性が認識された。

5．本研究により得られた成果

（１）科学的意義

救急搬送数の変動で評価したPM2.5や黄砂の短期暴露による健康被害は、地域差や疾患による差を認めることが明らかとなった。

（２）環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

<行政が活用することが見込まれる成果>

PM2.5や黄砂の短期暴露により救急搬送される急病が増加する可能性が示唆されたため、地域差を考慮した（特に西日本において）、環境濃度測定や住民への啓発活動の推進が期待される。

6．国際共同研究等の状況

特に掲載すべき事項はない。

7．研究成果の発表状況

（１）誌上発表

<論文（査読あり）>

特に記載すべき事項はない。

<査読付論文に準ずる成果発表>

特に記載すべき事項はない。

<その他誌上発表（査読なし）>

特に記載すべき事項はない。

(2) 口頭発表 (学会等)

1) 笠岡俊志：第19回日本臨床救急医学会総会・学術集会 (2016)

「大気中の微小粒子状物質 (PM_{2.5}) が急病による救急搬送に及ぼす影響」

(3) 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

(4) 「国民との科学・技術対話」の実施

特に記載すべき事項はない。

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

(6) その他

特に記載すべき事項はない。

8. 引用文献

特に記載すべき事項はない。

（５）粒子成分、黄砂の急性心筋梗塞・心肺停止発症に対する影響と高感受性集団に関する研究

国立大学法人 熊本大学大学院生命科学研究部
(同)

小島 淳
小川久雄（平成26-27年度）

平成26～28年度累計予算額：16,935千円（うち平成28年度：5,591千円）

予算額は、間接経費を含む。

〔要旨〕

日本ではこれまで粒子状物質である黄砂やPM2.5の心血管系疾患に関する影響を検討したものは少ない。本研究の目的は、熊本県において急性心筋梗塞や院外心原性心停止の発症に黄砂やPM2.5が関係しているのか検証することである。対象は熊本県内で発症した急性心筋梗塞と院外心原性心停止全症例である。急性心筋梗塞は2004年より熊本県内で発症した急性心筋梗塞全例調査を行っている熊本急性冠症候群研究会データを、院外心原性心停止は2005年より総務省消防庁が収集している全国ウツタインデータの中から熊本県で発症した全例を抽出した。地上レベルの黄砂と気象変数は熊本地方気象台で測定されたものを用いた。大気汚染物質については、国立環境研究所と熊本県のデータを使用した。黄砂やPM2.5との関係を検討するために、時間層別化ケースクロスオーバーデザインを用いた。黄砂が発生した翌日に急性心筋梗塞が発症しやすく、大気温度（気温）や相対湿度、大気汚染物質などで調整してもその関係は不変であった。冠危険因子（高血圧や糖尿病、脂質異常症、喫煙）が重積するほど、黄砂の影響を受けて急性心筋梗塞が発症しやすかった。PM2.5は濃度が上昇するほど急性心筋梗塞を発症しやすく、特に女性で有意に発症しやすかったため女性のみで解析を行ったところ、危険因子が重積しているほど急性心筋梗塞を発症しやすいことが判明した。続いて院外心原性心停止について検討した。黄砂が見られた翌々日に急性心筋梗塞が発症しやすい傾向が見られ、大気温度や相対湿度、大気汚染物質などで調整してもその関係は不変であった。特に65歳以上の高齢者で明らかに発症しやすかった。PM2.5は濃度が上昇するほど院外心原性心停止を発症しやすく、特に女性や65歳以上の高齢者で有意に発症しやすかった。粒子状物質は急性心筋梗塞や院外心原性心停止発症と関係しており、今後発症予防のために、特に高感受性集団においては注意喚起できるかもしれない。現在の日本のPM2.5の環境基準値が妥当であるのか、今後さらなる検討が必要である。

〔キーワード〕

黄砂、PM2.5、急性心筋梗塞、院外心原性心停止、ウツタインデータ

1. はじめに

粒子状物質（PM）とは、マイクロメートルの大きさの固体や液体の微粒子のことで、主に、燃焼で生じた煤、風で舞い上がった土壌粒子（黄砂など）、工場や建設現場で生じる粉塵のほか、燃焼による排出ガスや石油からの揮発成分が大気中で変質してできる粒子などからなる。細かなPMを吸入することで、心血管系疾患に関する入院率や死亡率などが上昇することが示されている¹⁾。

またPMは心血管系疾患発症のトリガーになると考えられている²⁾。一方、黄砂（Asian Dust : AD）とは、特に中国を中心とした東アジア内陸部の砂漠または乾燥地域の砂塵が、強風を伴う砂塵嵐（砂嵐）などによって上空に巻き上げられ、春を中心に東アジアなどの広範囲に飛散し、地上に降り注ぐ気象現象である。日本ではAD情報は気象庁によって発表される。熊本県ではPM2.5濃度が70 $\mu\text{g m}^{-3}$ を超えると注意喚起が行われる。日本では心血管系疾患に関するPM2.5やADの影響を検討したものは少ない。

日本では現在、急性心筋梗塞（Acute Myocardial Infarction: AMI）の発症を、個々の医療機関では把握しているものの、全国規模で登録するシステムがないため、正確な発症数は不明である。我々は熊本県内で発症したAMIを全例調査するために、熊本急性冠症候群研究会（Kumamoto Acute Coronary Events [KACE] study group）を2004年に発足した³⁾。2016年9月時点で、2009年1月1日から2014年12月31日までに熊本県内で発症したAMIデータが蓄積されている。また院外心停止症例について、2005年から総務省消防庁が前向き観察研究として全国的に登録を開始した。登録はウツタイン様式に従って報告されており、心原性と非心原性に分類することができる。2016年9月時点で、2005年1月1日から2014年12月31日までの院外心原性心停止症例を、都道府県別に全データを抽出することができる。

2. 研究開発目的

本研究の目的は、熊本県において、急性心筋梗塞や院外心原性心停止の発症に黄砂やPM2.5が関係しているのか検証することである。

3. 研究開発方法

熊本県は九州の中央に位置し、面積約7,400km²、人口約180万人で毎年ほぼ一定している。Kumamoto Acute Coronary Events（KACE）studyは前向き多施設観察研究で、冠動脈インターベンション施行可能である県内21施設が参加している。熊本県内で発症した急性心筋梗塞患者はKACE studyに参加している21施設のいずれかに搬送されている背景がある³⁾。よって我々は熊本県内で発症した急性心筋梗塞をほぼ全例把握できているKACEデータを用いた。急性心筋梗塞はEuropean Society of Cardiology/American Heart Association/World Heart Federation/Task Forceの共同によって提案されている心筋梗塞の定義（universal definition of myocardial infarction）に基づいて診断された⁴⁾。急性心筋梗塞を発症したが急性期に病院に搬送されなかった場合は亜急性心筋梗塞と診断し、新規発症の心筋梗塞として登録された。急性心筋梗塞による院外心停止で入院に至らなかった患者は除外された。

院外心停止データであるウツタインデータ*について、全国の消防本部がウツタイン様式オンライン入力要領に従ってデータを収集し、収集したデータを次のいずれかの方法により消防庁システムへ登録した。

- ① 消防庁オンラインシステムの登録画面にデータを直接入力し、そのデータを登録する。
- ② 国が提供している「救急調査オフライン処理システム」の登録画面にデータを入力し、そのデータを消防庁オンラインシステムに登録する。
- ③ 消防本部が独自に保有する統計システムを用いてデータを入力し、消防庁オンラインシステムに整合するようにデータ変換したものを登録する。

さらに報告のあったデータを以下の方針に基づき精査し、2005年からの全てのウツタインデータを改めて見直し、全てのウツタイン統計データの再集計を行った。消防庁オンラインシステムの登録画面にデータを直接入力し、そのデータを登録し、熊本県のデータを抽出した。

- ① システムやコンバートによるエラーであることが明らかであるものについては、修正可能であれば修正、又は各消防本部に確認し修正する。
- ② 各消防本部別・各項目別のエラー件数が、それぞれの消防本部における心肺機停止症例数からみて25%以上だった場合、当該消防本部に確認し修正する。
- ③ 最終的には都道府県にてデータを確認し、熊本県の心原性心停止症例のみ抽出する（非心原性心停止症例は除外する）。

*ウツタインデータ：心肺停止症例をその原因別に分類するとともに、心肺停止時点での目撃の有無、バイスタンダーや救急隊員による心肺蘇生の有無やその開始時期、除細動の有無などに応じて傷病者の経過を詳細に記録したデータのこと。

黄砂はおもに東アジア（タクラマカン砂漠やゴビ砂漠など）からの砂塵に由来する。地上レベルの黄砂と気象変数は熊本地方気象台で測定された。黄砂の観測は目視により決定された（<http://www.jma.go.jp/en/kosa/>）。視程が10 km未満の場合は黄砂の観測ありとした。毎日の大気温度（気温）や相対湿度は1時間ごとの測定値を用いて計算された。本研究では黄砂については、2009年1月1日から2012年12月31日までのデータを用いた。

大気汚染物質については、国立環境研究所と熊本県のデータを使用した。特にPM2.5は2010年4月1日より上益城郡の益城町役場で測定されており、2012年12月31日までのデータを用いた。また大気汚染物質であるオキシダント（Ox）、NO₂、SO₂については熊本市内の錦ヶ丘観測所で1時間ごとに測定されているものを用いた（各汚染物質の測定回数が5回未満のときのみ24時間の平均濃度を使用した）。Ox、NO₂、SO₂については2009年1月1日から2012年12月31日までのデータを用いた。

黄砂やPM2.5とAMI発症との関係を検討するために、時間層別化ケースクロスオーバーデザインを用いた。同一症例内でケースの期間とコントロールの期間を設定し比較を行った。ケースの期間は急性心筋梗塞や院外心原性心停止発症日と定義した。コントロールの選択は、長期間におよぶ傾向や季節性のような共変量で調整した（例えば発症日が5月20日であったとすると、コントロール日として5月6日、5月13日、5月27日が選択された）。

ロジスティック回帰モデルを用いて大気温度や相対湿度で調整後の黄砂やPM2.5と関連した疾患発症のオッズ比や95%信頼区間を算出した。さらに大気汚染物質の影響も考えられるため、OxやNO₂、SO₂を加えて解析した。解析はSASバージョン9.4（SAS Institute, Inc., Cary, NC, USA）を用いて行った。

4. 結果及び考察

（1）黄砂・PM2.5と急性心筋梗塞との関連

2009年1月1日から2014年12月31日までにAMIを発症した4,722例が対象である。この中で解析データが不足している87例、PM2.5の測定開始以前（2009年1月1日から2010年3月31日）の1,249例、急性心筋梗塞発症日が不詳である111例、熊本県外在住の97例、院内発症である271例を除外した2,907例が本研究の対象である。急性心筋梗塞患者の背景であるが、高齢者である65歳以上の高齢者が1926名（65%）を占め、男性が2062名（71%）、現喫煙者が888名（32%）、体格指数25 kg/m²

以上である肥満者が824名（29%）、高血圧症が2083名（73%）、脂質異常症が1648名（58%）、糖尿病が1092名（38%）であった。

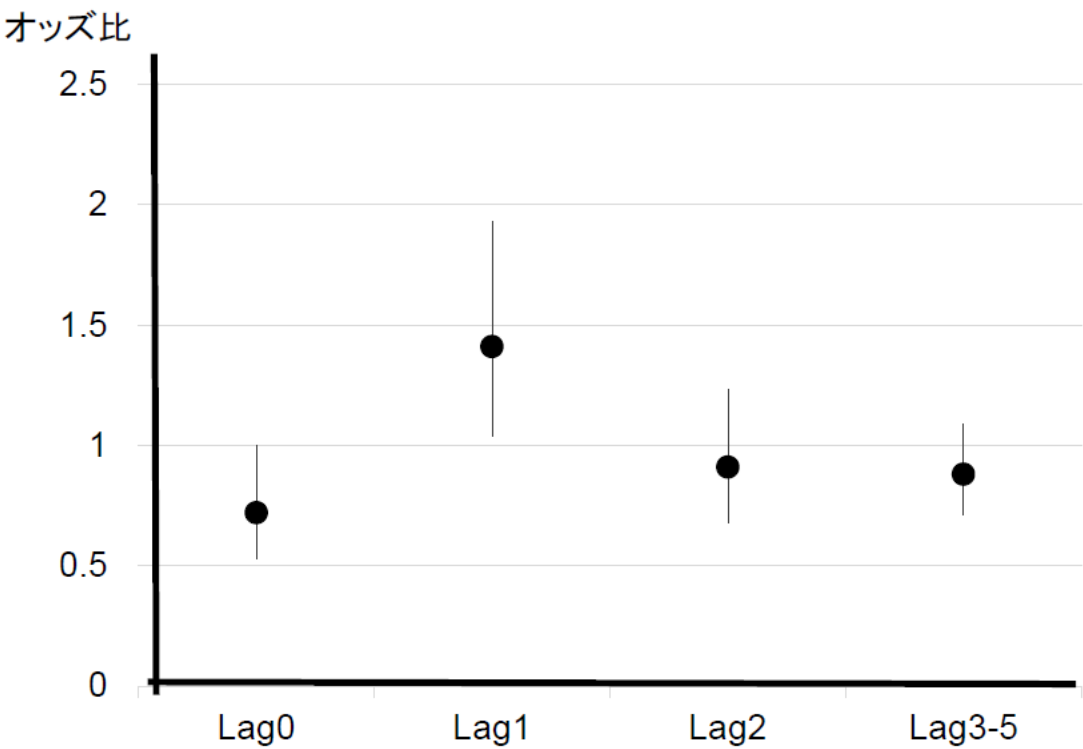
本研究期間である2010年4月1日から2014年12月31日に測定されたPM2.5やNO₂、Ox、SO₂および大気温度や相対湿度について、平均値や最低値、最高値などをまとめたものが表(5)-1である。PM2.5の環境基準である35 $\mu\text{g m}^{-3}$ を上回る測定日は全体の約11%であった。また、同期間中の黄砂日は34日であった。大気汚染物質の濃度を黄砂日と非黄砂日において比較したところ、PM2.5：35.8 $\pm$ 17.4 vs 20.4 $\pm$ 11.5 $\mu\text{g m}^{-3}$ 、NO₂：10.6 $\pm$ 3.4 vs 10.6 $\pm$ 4.6 ppb、Ox：54.2 $\pm$ 16.9 vs 39.4 $\pm$ 16.0 ppb、SO₂：5.3 $\pm$ 3.3 vs 3.5 $\pm$ 1.9 ppbであり、NO₂以外のPM2.5やOx、SO₂では黄砂日で高い値であった。

黄砂発生日とAMI発症との関係を図(5)-1に示す。AMIが発症した日の黄砂（lag0）との関連は見られなかったが、発症前日の黄砂（lag1）と有意に関連している（オッズ比：1.41）ことが判明した。

急性心筋梗塞発症前日の黄砂（lag1）との関係について、大気温度や相対湿度、大気汚染物質などで調整したものを表(5)-2に示す。調整後も急性心筋梗塞は有意に発症しやすく、休日や祝日を除いた平日においてはさらに発症しやすく、オッズ比は1.56であった。

表(5)-1 環境因子の分布状況（lag1-2）

大気汚染物質	平均（標準偏差）	最低値	パーセンタイル					
			25	35	50	75	80	89
PM2.5 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	20.8 (11.9)	0.3	12.3	14.9	19.2	27.0	29.0	35.0
NO2 (ppb)	10.7 (4.5)	1.9	7.1		10.4	13.6		
Ox (ppb)	39.6 (15.0)	7.7	29.2		36.9	49.7		
SO2 (ppb)	3.5 (1.6)	1.0	2.4		3.2	4.3		
大気温度 ($^{\circ}\text{C}$)	16.7 (8.7)	-0.7	9.0		16.8	24.3		
相対湿度 (%)	69.1 (9.6)	34.5	62.5		69.0	75.5		

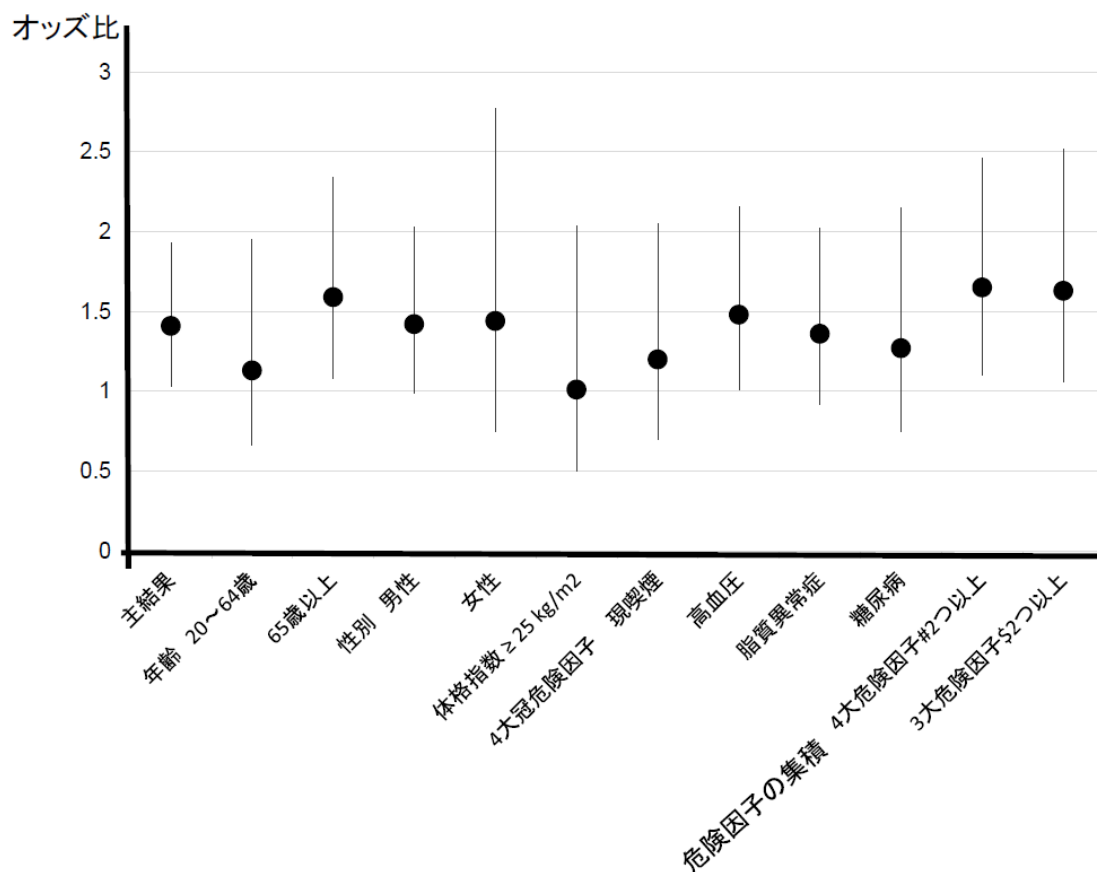


図(5)-1 黄砂とAMI発症との関係

表(5)-2 急性心筋梗塞発症前日の黄砂（lag1）との関係

	n	オッズ比	95%信頼区間	
Crude model	2,907	1.41	1.04	1.93
大気温度（lag0-2）調整後		1.41	1.03	1.93
大気温度＋相対湿度（lag0-2）調整後		1.41	1.03	1.93
大気温度＋相対湿度＋PM2.5（lag1-2）調整後		1.40	1.01	1.93
大気温度＋相対湿度＋NO ₂ , O ₃ , SO ₂ （lag1-2）調整後		1.40	1.02	1.93
大気温度＋相対湿度＋PM2.5（lag1-2）＋NO ₂ , O ₃ , SO ₂ （lag0-2）調整後		1.36	0.98	1.88
大気温度＋相対湿度＋インフルエンザ調整後		1.41	1.03	1.93
大気温度（lag0-2）＋相対湿度（lag0-2）調整後				
休日や祝日を除く	2,773	1.56	1.12	2.18

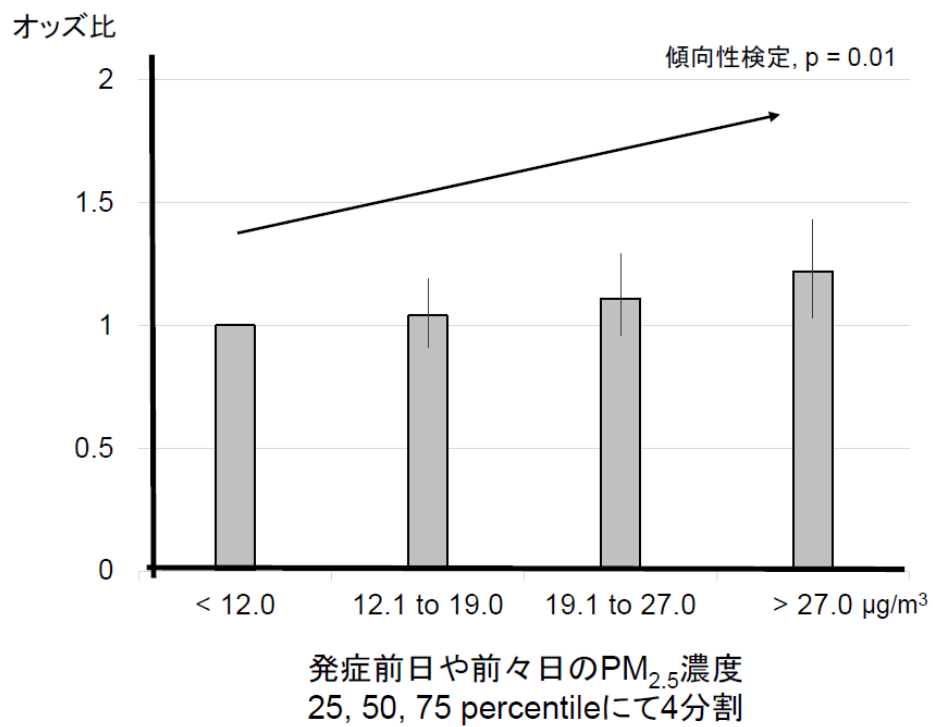
さらにサブ解析を行ったところ（図(5)-2）、65歳以上の高齢者や高血圧を有する症例で有意に急性心筋梗塞は発症した。冠危険因子である高血圧や糖尿病、脂質異常症、喫煙が重積するとさらに急性心筋梗塞が発症しやすい結果であった（4大危険因子：現喫煙・高血圧症・脂質異常症・糖尿病、3大危険因子：高血圧症・脂質異常症・糖尿病）。



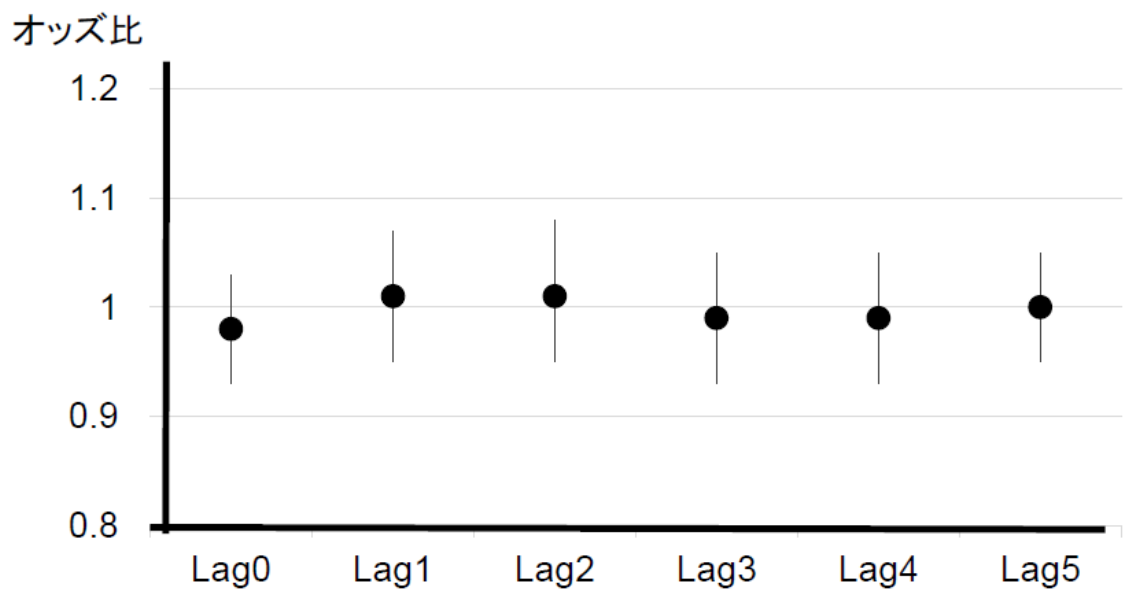
図(5)-2 急性心筋梗塞発症前日の黄砂（lag1）に関するサブ解析

続いてPM2.5との関連について検討した。まず、PM2.5の測定値により4分割し、傾向分析における有意水準をみたものが図(5)-3である。PM2.5濃度 $< 12.0 \mu\text{g m}^{-3}$ を基準にすると、PM2.5濃度 $> 27.0 \mu\text{g m}^{-3}$ の群では有意に急性心筋梗塞を発症しやすいことが判明した。

PM2.5と急性心筋梗塞I発症との関係を図(5)-4に示す。急性心筋梗塞発症は、前日や前々日のPM2.5濃度上昇（ $10 \mu\text{g m}^{-3}$ 上昇あたり）と関係がある傾向が判明したため、急性心筋梗塞発症の前日（lag1）と前々日（lag2）の2日間のPM2.5平均濃度（lag1-2）をとることとした。



図(5)-3 PM_{2.5}濃度カテゴリー分析



図(5)-4 PM_{2.5}濃度と急性心筋梗塞発症との関係

急性心筋梗塞発症とPM2.5濃度（10 $\mu\text{g m}^{-3}$ 上昇あたり）との関係について、大気温度や相対湿度、大気汚染物質などで調整したものを表(5)-3に示す。調整後もPM2.5上昇に対し急性心筋梗塞は発症しやすい傾向あるも有意差は見られなかった。休日や祝日を除いた平日においても同様であった。

さらにサブ解析を行ったところ、図(5)-5で示すように女性で有意に急性心筋梗塞が発症した。冠危険因子（高血圧や糖尿病、脂質異常症、喫煙）が重積するとPM2.5上昇は急性心筋梗塞を発症しやすかったが、有意差は見られなかった。

女性だけに絞り、再度サブ解析を行ったところ（表(5)-4）、PM2.5濃度上昇は脂質異常症を有する症例において急性心筋梗塞を発症しやすく、さらに冠危険因子が重積しているほど急性心筋梗塞を発症しやすいことが判明した。

表(5)-3 急性心筋梗塞発症の前日および前々日のPM2.5平均濃度（lag1-2）
（10 $\mu\text{g m}^{-3}$ 上昇あたり）との関係（調整後）

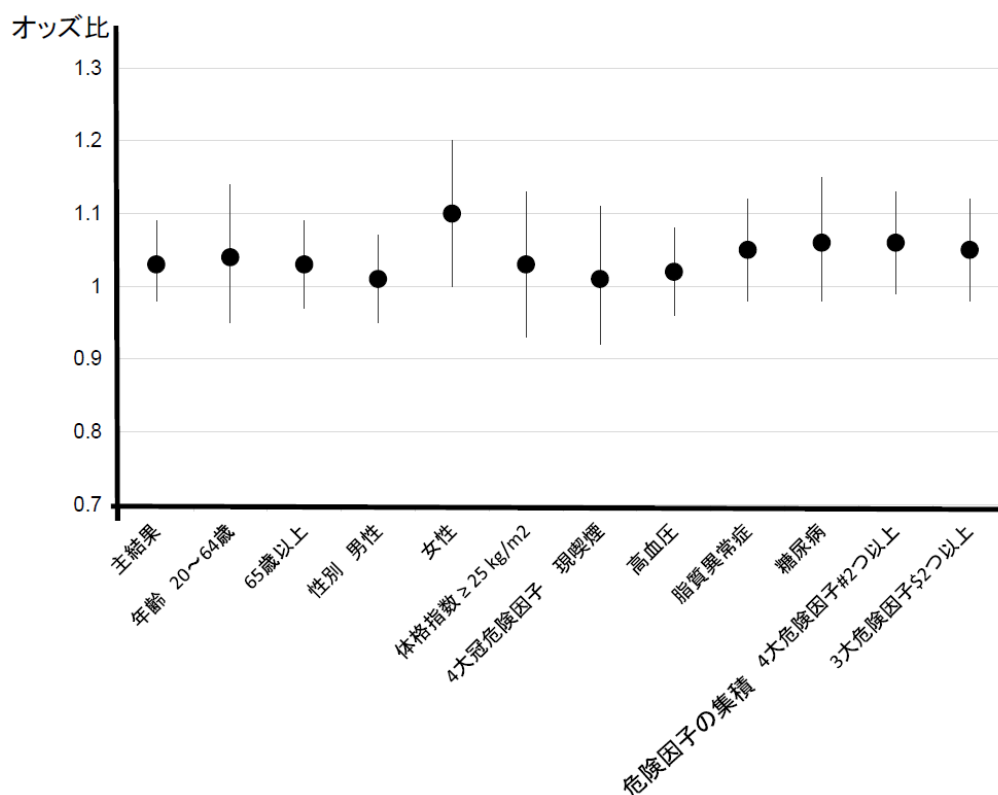
	n	オッズ比	95%信頼区間	
Crude model	2,780	1.02	0.97	1.08
大気温度（lag0-2）調整後		1.03	0.98	1.08
大気温度＋相対湿度（lag0-2）調整後		1.03	0.98	1.09
大気温度＋相対湿度＋NO ₂ 、O ₃ 、SO ₂ （lag0-2）調整後		1.04	0.98	1.10
大気温度＋相対湿度（lag1-2）＋インフルエンザ調整後		1.03	0.98	1.09
大気温度＋相対湿度（lag0-2）調整後				
休日や祝日を除く	2,632	1.03	0.98	1.09

表(5)-4 PM2.5濃度10 $\mu\text{g m}^{-3}$ 上昇（lag1-2）とAMI発症との関係におけるサブ解析（女性のみ）

	n	オッズ比	95%信頼区間	
Main result in women	805	1.10	1.00	1.20
年齢				
20～64歳	127	1.21	0.96	1.53
65歳以上	678	1.07	0.97	1.19
冠危険因子				
現喫煙	83	1.07	0.79	1.46
高血圧	608	1.09	0.97	1.21
脂質異常症	420	1.14	1.00	1.29
糖尿病	272	1.15	0.97	1.36
危険因子の集積				
4大危険因子 ^a のうち2つ以上	433	1.17	1.03	1.33
3大危険因子 ^b のうち2つ以上	419	1.17	1.02	1.33

^a4大危険因子：現喫煙、高血圧、脂質異常症、糖尿病

^b3大危険因子：高血圧、脂質異常症、糖尿病



図(5)-5 急性心筋梗塞発症前日および前々日のPM2.5の平均濃度 (lag1-2)
($10 \mu\text{g m}^{-3}$ 上昇あたり) との関係におけるサブ解析

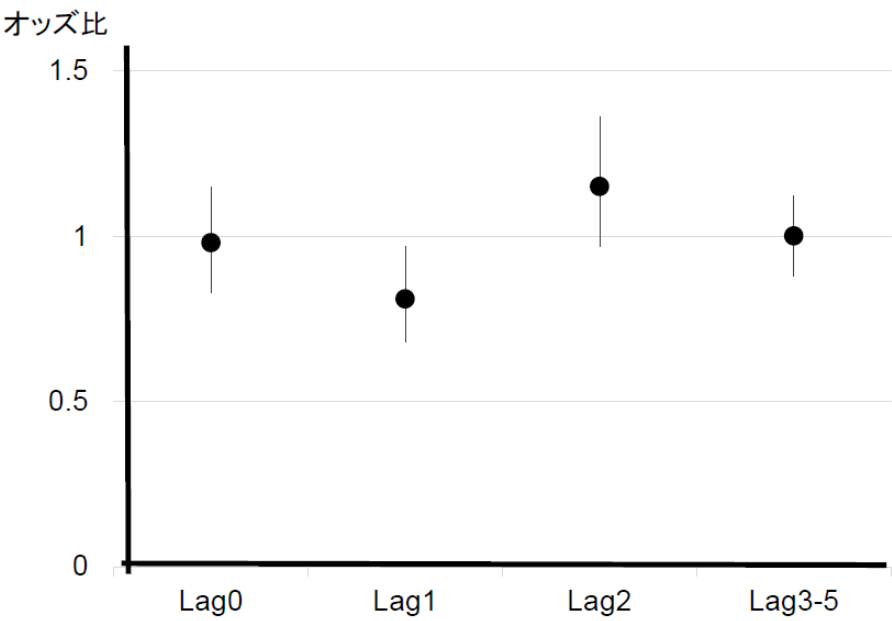
(2) 黄砂・PM2.5と院外心原性心停止との関連

黄砂との関連については、2005年4月1日から2014年3月31日までに熊本県内で院外心停止となった4,722例が対象である。この中で20歳未満である301例、非心原性心停止である6,394例を除外した8,298例が本研究の対象である。PM2.5との関連については、測定開始以降（2010/4/1）の3,863例を解析対象とした。院外心原性心停止患者の背景であるが、高齢者である65歳以上の高齢者が6865名（83%）を占め、男性が4661名（56%）であった。

本研究期間である2005年4月1日から2014年3月31日において、PM2.5やNO₂、Ox、SO₂および大気温度や相対湿度について、平均値や最低値、最高値などをまとめたものが表(5)-5である。PM2.5の環境基準である $35 \mu\text{g m}^{-3}$ を上回る測定日は全体の約11%であった。また同期間中の黄砂日は106日であった。大気汚染物質の濃度を黄砂日と非黄砂日において比較したところ、PM2.5： 45.7 ± 31.5 vs $22.4 \pm 12.3 \mu\text{g m}^{-3}$ 、NO₂： 11.8 ± 4.5 vs 12.7 ± 5.8 ppb、Ox： 50.7 ± 15.2 vs 37.1 ± 14.8 ppb、SO₂： 5.3 ± 2.5 vs 4.0 ± 2.1 ppbであり、NO₂以外のPM2.5やOx、SO₂では黄砂日で高い値であった。

表(5)-5 環境因子の分布状況（lag1-2）

			パーセンタイル						
大気汚染物質	平均 (標準 偏差)	最低 値	25	35	50	75	80	89	最高値
PM2.5 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	20.8 (11.9)	0.3	12.3	14.9	19.2	27.0	29.0	35.0	85.2
NO2 (ppb)	10.7 (4.5)	1.9	7.1		10.4	13.6			27.1
Ox (ppb)	39.6 (15.0)	7.7	29.2		36.9	49.7			94.2
SO2 (ppb)	3.5 (1.6)	1.0	2.4		3.2	4.3			12.5
大気温度 ($^{\circ}\text{C}$)	16.7 (8.7)	-0.7	9.0		16.8	24.3			31.6
相対湿度 (%)	69.1 (9.6)	34.5	62.5		69.0	75.5			95.5



図(5)-6 黄砂発生日と院外心原性心停止との関係

まず、黄砂発生日と院外心原性心停止発症との関係を図(5)-6に示す。院外心原性心停止が発生した日の黄砂 (lag0) や前日の黄砂 (lag1) は関係が見られなかったが前々日の黄砂 (lag2) に発症しやすい傾向がある (オッズ比 : 1.15) が判明した。

院外心原性心停止発生前々日の黄砂 (lag2) について、大気温度や相対湿度、大気汚染物質などで調整したものを表(5)-6に示す。調整後も院外心原性心停止発生前々日の黄砂 (lag2) との関係について、休日や祝日を除いた平日においても解析を行ったが、傾向は認められるものの統計学的に有意なものではなかった。

さらにサブ解析を行ったところ、65歳以上の高齢者で有意に院外心原性心停止は発症した (表(5)-7) 。続いてPM2.5の測定値により4分割し、傾向分析における有意水準をみたものが図(5)-7である。PM2.5濃度 < 12.0 $\mu\text{g m}^{-3}$ を基準にすると、PM2.5濃度 > 27.0 $\mu\text{g m}^{-3}$ の群では有意に院外心原性心停止を発症しやすいことが判明した。

PM2.5と院外心原性心停止発症との関係を図(5)-8に示す。院外心原性心停止におけるPM2.5濃度 (10 $\mu\text{g m}^{-3}$ 上昇あたり) は、前日や前々日に発症しやすい傾向があることが判明したため、院外心原性心停止発症の前日 (lag1) と前々日 (lag2) の2日間 (lag1-2) のデータの平均をとることとした。

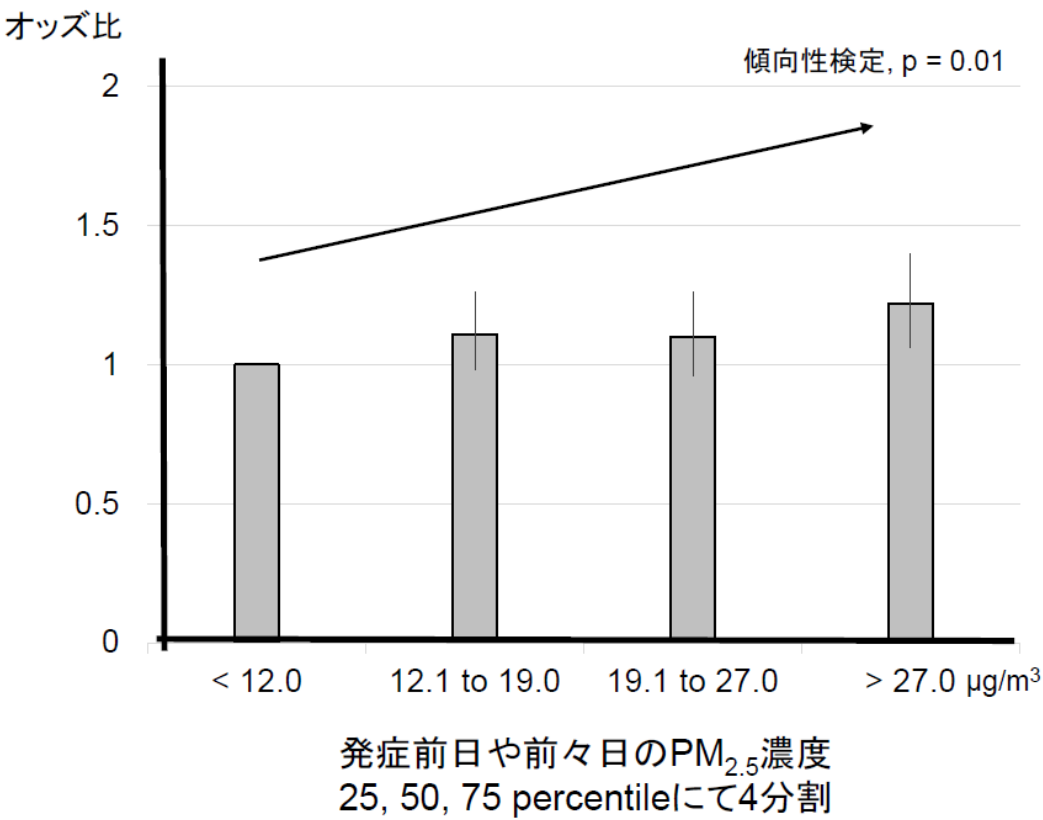
院外心原性心停止発生におけるPM2.5濃度 (10 $\mu\text{g m}^{-3}$ 上昇あたり) について、大気温度や相対湿度、大気汚染物質などで調整したものを表(5)-8に示す。調整後もPM2.5上昇に対し院外心原性心停止は有意に発症しやすかった。休日や祝日を除いた平日においても同様であった。さらにサブ解析を行ったところ、表(5)-9で示すように女性で有意に院外心原性心停止は発症した。

表(5)-6 院外心原性心停止発生前々日の黄砂 (lag2) との関係 (調整後)

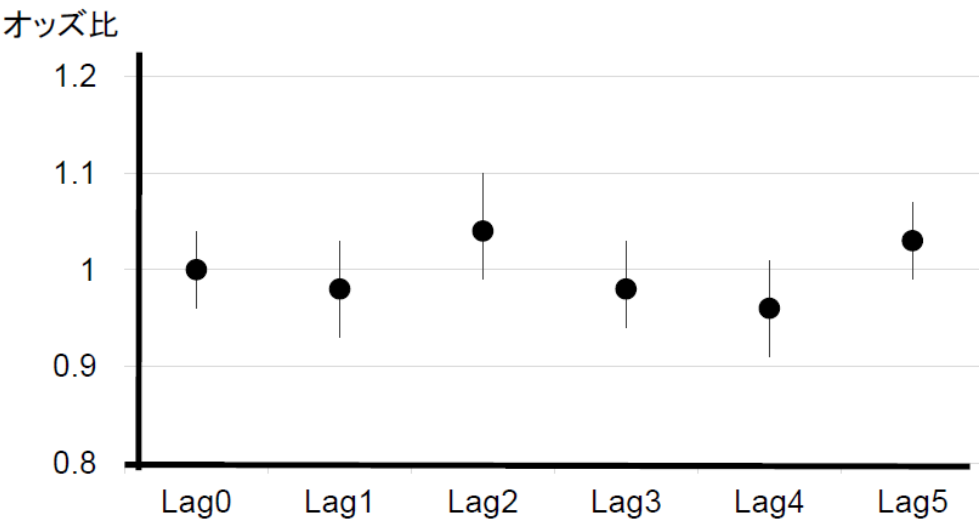
	n	オッズ比	95%信頼区間	
Crude model	8,298	1.15	0.97	1.36
大気温度 (lag0-2) 調整後		1.14	0.95	1.35
大気温度+相対湿度 (lag0-2) 調整後		1.14	0.97	1.35
大気温度+相対湿度+PM2.5 (lag1-2) 調整後		1.11	0.94	1.32
大気温度+相対湿度+NO ₂ , O ₃ , SO ₂ (lag1-2) 調整後		1.13	0.95	1.33
大気温度+相対湿度+PM2.5 (lag1-2) + NO ₂ , O ₃ , SO ₂ (lag0-2)		1.11	0.93	1.33
大気温度+相対湿度+インフルエンザ調整後		1.14	0.97	1.35
大気温度 (lag0-2) + 相対湿度 (lag0-2) 調整後				
休日や祝日を除く	7,860	1.10	0.92	1.32

表(5)-7 院外心原性心停止発症の前々日の黄砂（lag2）におけるサブ解析

		n	オッズ比	95%信頼区間		交互作用P値
Main result		8,298	1.14	0.97	1.35	
年齢	20～64歳	1,433	0.80	0.51	1.23	0.20
	65歳以上	6,865	1.22	1.02	1.46	
性別	男性	4,661	1.07	0.86	1.35	0.79
	女性	3,637	1.23	0.96	1.57	



図(5)-7 PM2.5濃度カテゴリー分析



図(5)-8 PM2.5濃度と院外心原性心停止発生との関係

表(5)-8 院外心原性心停止発生前日および前々日のPM2.5平均濃度
(10 $\mu\text{g m}^{-3}$ 上昇あたり) (lag1-2) との関係 (調整後)

	n	オッズ比	95%信頼区間	
Crude model	3,863	1.04	1.00	1.08
大気温度 (lag0-2) 調整後		1.06	1.02	1.11
大気温度+相対湿度 (lag0-2) 調整後		1.06	1.02	1.11
大気温度+相対湿度+N02, O _x , S02 (lag0-2) 調整後		1.07	1.03	1.12
大気温度+相対湿度 (lag1-2) +インフルエンザ調整後		1.06	1.02	1.11
大気温度+相対湿度 (lag0-2) 調整後				
休日や祝日を除く	3,658	1.06	1.02	1.11

表(5)-9 院外心原性心停止発生における前日および前々日のPM2.5平均濃度
(10 $\mu\text{g m}^{-3}$ 上昇あたり) (lag1-2) に関するサブ解析

		n	オッズ比	95%信頼区間		交互作用P値
Main result		3,863	1.06	1.02	1.11	
年齢	20～64歳	643	1.11	1.00	1.23	0.80
	65歳以上	3,220	1.05	1.01	1.10	
性別	男性	2,143	1.02	0.97	1.08	0.08
	女性	1,720	1.11	1.04	1.18	

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

急性心筋梗塞や院外心原性心停止発症に関して、これまで環境汚染物質の影響を臨床的に解析したものは稀少であるが、本研究では急性心筋梗塞や院外心原性心停止発症の前日や前々日の黄砂やPM2.5濃度が深く関係していることを見いだした。さらに黄砂においては高齢者が影響を受けやすく、冠危険因子が重積している症例に急性心筋梗塞を起こしやすく、PM2.5においては女性が影響を受けやすいことが判明した。これまで環境汚染物質に対する高感受性集団を同定した研究は皆無であり、本研究による意義は大きいと思われる。

(2) 環境政策への貢献

黄砂やPM2.5濃度の上昇が少なからず急性心筋梗塞や院外心原性心停止といった病態発症に影響していると思われる。特に高齢者や女性、冠危険因子の重積は高感受性集団と考えられるため、注意喚起する必要があるかもしれない。現在の日本のPM2.5の環境基準は $35 \mu\text{g m}^{-3}$ であるが、今回の結果を考慮するとこの基準値が妥当であるのかは不明であり、また疾患によって異なる可能性もあるため、今後さらなる検討が必要である。

<行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

<行政が活用することが見込まれる成果>

PM2.5の環境基準設定の際の専門委員会報告（2009）では、調査研究に関する今後の課題のひとつとして、国内知見では関連が必ずしも明確ではない循環器疾患への影響に関して、循環器疾患患者や循環器疾患に対するリスクの高い者も対象とした疫学研究に関する知見の蓄積が望まれている。本研究はこの要望に沿った知見を提示したものと考えられ、PM2.5環境基準や注意喚起のための暫定指針が改訂される際には重要な疫学知見として活用されることが期待できる。

6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文（査読あり）>

特に記載すべき事項はない。

<査読付論文に準ずる成果発表>

特に記載すべき事項はない。

<その他誌上発表（査読なし）>

特に記載すべき事項はない。

(2) 口頭発表(学会等)

- 1) S. KOJIMA, K. MATSUI, K. UEDA, H. NITTA, and H. OGAWA: American Heart Association Scientific Sessions 2014 Chicago, Illinois, USA, 2014
 “Asian dust has an impact on the incident of acute myocardial infarction ~a time-stratified case-crossover study~”
- 2) S. KOJIMA, K. MATSUI, K. UEDA, H. NITTA, H. OGAWA: Japanese Circulation Society Scientific Sessions Sendai, Japan, 2016
 “Asian dust has an impact on the incident of acute myocardial infarction ~a time-stratified case-crossover study~”

(3) 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

(4) 「国民との科学・技術対話」の実施

- 1) 第26回東京大学環境安全研究センターシンポジウム「PM2.5の実態と健康影響・気候影響」
 (主催：東京大学環境安全研究センター、2016年12月20日、東京大学武田先端知ビル・武田ホール、観客約100名)「PM2.5の急性心筋梗塞・院外心原性心停止発症に対する高感受性集団の同定」というタイトルで講演

(5) マスコミ等への公表・報道等

- 1) 中国新聞(2017年1月11日、全国版、20頁、「PM2.5高まるリスク」)
- 2) 山陰中央新報(2017年1月12日、全国版、9頁、「PM2.5濃度上昇 急性心筋梗塞など増加」)
- 3) 日本海新聞(2017年1月12日、全国版、11頁、「PM2.5濃度上昇 急性心筋梗塞心停止発症リスク上がる」)
- 4) 下野新聞(2017年1月13日、全国版、16頁、「PM2.5濃度上昇すると急性心筋梗塞リスク増加」)
- 5) 岩手日報(2017年1月13日、全国版、11頁、「急性心筋梗塞心停止 リスク高めるPM2.5」)
- 6) 茨城新聞(2017年1月15日、全国版、18頁、「PM2.5濃度上昇 心筋梗塞や心停止増加」)
- 7) 上毛新聞(2017年1月16日、全国版、16頁、「PM2.5観光影響は」)
- 8) 佐賀新聞(2017年1月17日、全国版、13頁、「PM2.5濃度上昇でリスク 急性心筋梗塞心停止が増加」)
- 9) 河北新報(2017年1月18日、全国版、22頁、「PM2.5濃度上昇すると急性心筋梗塞リスク増加」)
- 10) 中部経済新聞(2017年1月18日、全国版、14頁、「PM2.5の濃度上昇で急性心筋梗塞、心停止が増加」)
- 11) 山形新聞(2017年1月23日、全国版、21頁、「PM2.5濃度上昇 急性心筋梗塞が増」)

- 12) 南日本新聞（2017年2月1日、全国版、14頁、「PM2.5濃度上昇 呼吸器、循環器のリスク増」）
- 13) 秋田魁新報（2017年2月2日、全国版、11頁、「PM2.5濃度上がると・・・急性心筋梗塞心停止が増加」）

（6）その他

特に記載すべき事項はない。

8．引用文献

- 1) Pope CA, 3rd, Muhlestein JB, May HT, Renlund DG, Anderson JL, Horne BD. Ischemic heart disease events triggered by short-term exposure to fine particulate air pollution. *Circulation* 2006;114:2443-8.
- 2) Sun Q, Hong X, Wold LE. Cardiovascular effects of ambient particulate air pollution exposure. *Circulation* 2010;121:2755-65.
- 3) Kojima S, Matsui K, Ogawa H, Kumamoto Acute Coronary Events Study G. Temporal trends in hospitalization for acute myocardial infarction between 2004 and 2011 in Kumamoto, Japan. *Circ J* 2013;77:2841-3.
- 4) Thygesen K, Alpert JS, Jaffe AS et al. Third universal definition of myocardial infarction. *Circulation* 2012;126:2020-35.

Research on Health Effects of Short-term Exposure to PM_{2.5}, Composition, and Asian Dust Particles on Cardiovascular and Respiratory Diseases

Principal Investigator: Akinori TAKAMI

Institution: National Institute for Environmental Studies (NIES)
16-2 Onogawa, Tsukuba-City, Ibaraki 305-8506, JAPAN
Tel: +81-29-850-2509 / Fax: +81-29-850-2579
E-mail: takamia@nies.go.jp

Cooperated by: Department of Environmental Science on Biosphere,
Tokyo University of Agriculture and Technology
School of Advanced Engineering, Kogakuin University
Emergency and General Medicine, Kumamoto University Hospital
Graduate School of Medical Sciences, Kumamoto University

[Abstract]

Key Words: PM_{2.5}, Asian dust, Transboundary air pollution, chemical composition, Health effects, Emergency transportation, Acute myocardial infarction

Exposure to Particulate Matter (PM) including PM_{2.5} and Asian dust (AD) is considered to have an adverse effect on human health. However, there are only few studies in Japan. Japan has been influenced by the long-range transport of air pollution from the Asian continent. It is necessary to understand the origin of PM to make effective policy plans to reduce PM concentration for protecting human health. This project consists of the epidemiological studies to elucidate the PM effect on human health and the chemical analyses of PM to investigate the influence of the transboundary air pollution on the local air quality.

PM sampling was performed at Kumamoto and Fukuoka in Kyushu area, where the transboundary air pollution is severe. PM on filters were analyzed using several different methods, that includes ion chromatography for ions and polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs), ICP-MS for metals, and secondary ion mass analyzer for individual particle analysis. Automatic analyzers including Aerosol Mass Spectrometer and Aerosol Chemical Speciation Analyzer were also used.

The following health outcome data were used in the epidemiological studies: the emergency transportation data from seven major cities throughout Japan provided by the Fire and Disaster Management Agency, and the data for hospitalization due to acute myocardial infarction (AMI) in Kumamoto prefecture collected by the Kumamoto Acute Coronary Events (KACE) study group.

The concentration of sulfate ions and highly oxidized organics were higher in the daytime with high PM_{2.5} concentration, which indicates that the transboundary air pollution influenced the local air quality of Fukuoka and Kumamoto in Kyushu area. We found that the Pb/Cu ratio as well as the fluoranthene/pyrene ratio of PAHs were the good indicators of transboundary air pollution. We also observed the chlorinated AD particles in the water solved status, which indicates that the AD particles were chemically modified by anthropogenic air pollutants during the transport.

The epidemiological studies suggested that short-term exposure to PM_{2.5} increases emergency transportation due to acute illnesses. It became clear that the effect of PM_{2.5} exposure differs by area and disease type. It also suggests that short-term exposure to PM_{2.5} and AD increases AMI, especially for the elderly and the susceptible people with comorbidity. Our results provided a strong evidence to emphasize the education and communication with patients at risk for AMI. The analysis using PM composition data suggested that certain PM compositions, such as sulfate, elemental and organic carbon, were more harmful than others.