

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

大気環境の異なる地域におけるPM_{2.5}及びオゾンの
呼吸器系への影響に関する疫学研究
(5-1456)

平成26年度～平成28年度

An Epidemiological Study on Effects of Fine Particulate Matter (PM_{2.5}) and Ozone
on Respiratory Health in Areas with Different Air Pollution Levels

兵庫医科大学
国立弓削商船高等専門学校
公益財団法人ひょうご環境創造協会
兵庫県環境研究センター

〈研究協力機関〉
国立研究開発法人国立環境研究所

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

大気環境の異なる地域におけるPM_{2.5}及びオゾンの
呼吸器系への影響に関する疫学研究
(5-1456)

I. 成果の概要	i
1. はじめに (研究背景等)	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発の方法	
4. 結果及び考察	
5. 本研究により得られた主な成果	
6. 研究成果の主な発表状況	
7. 研究者略歴	
II. 成果の詳細	
(1) 都市域におけるPM _{2.5} 及びオゾンの喘息発作への影響に関する疫学研究 (兵庫医科大学)	1
要旨	1
1. はじめに	2
2. 研究開発目的	2
3. 研究開発方法	3
4. 結果及び考察	6
5. 本研究により得られた成果	25
6. 国際共同研究等の状況	26
7. 研究成果の発表状況	27
8. 引用文献	29
(2) 大気清浄地区における越境大気汚染の呼吸器への影響に関する研究 (国立弓削商船高等専門学校)	31
要旨	31
1. はじめに	31
2. 研究開発目的	32
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	51
6. 国際共同研究等の状況	51
7. 研究成果の発表状況	51
8. 引用文献	53
(3) 大気中PM _{2.5} の成分測定による環境挙動の解明に関する研究 ((公財)ひょうご環境創造協会兵庫県環境研究センター)	55
要旨	55
1. はじめに	55
2. 研究開発目的	56
3. 研究開発方法	56
4. 結果及び考察	63
5. 本研究により得られた成果	81
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	• • • • • 83
III. 英文Abstract	• • • • • 84

兵庫県姫路市は瀬戸内海に面した工業地域にあり、気管支喘息に関する調査が長年にわたって継続的に実施されている。同市内においてPM_{2.5}の質量及び主要化学成分濃度を連続的に測定して1週間単位および1日単位の喘息発作との関連を評価した。また、瀬戸内海のほぼ中央に位置する離島である愛媛県弓削島において、

高等専門学校の学生を対象に肺機能検査を繰り返して実施するとともに、同島内でPM_{2.5}の質量濃度、イオン、元素等の成分濃度を測定し、Positive Matrix Factorization(PMF)解析を適用して発生源とその寄与濃度を推定した。これらのデータを用いて、両地域におけるPM_{2.5}の成分や発生源の相違による呼吸器系への影響を評価した。さらに、化学輸送モデルを用いた発生源感度解析により、越境移流や国内における船舶等の発生源の影響を定量的に把握することも目的とした。

3. 研究開発の方法

(1)都市域におけるPM_{2.5}及びオゾンの喘息発作への影響に関する疫学研究

1) 気管支喘息発作数調査

姫路市医師会では、1995年度より市内にある約40の医療機関で把握された気管支喘息発作数を1週間(日曜日から土曜日)毎に性、年齢、居住地区(8地区)別に集計している。本研究を実施した2014～2016年度における協力医療機関数は46であり、図2に示したとおり、市全域に及んでいる。

喘息発作の定義は「笛性喘鳴を伴う呼吸困難」とし、医師が診察、問診、喘息日誌等で確認した上で、1週間毎に発作数を医師会に報告している。また、1日単位の喘息発作数を把握するために、2014年7月～2016年3月の21か月間に姫路市休日・夜間急病センターに喘息で受診した患者の性、年齢、居住地等の情報を収集した。

2) 大気中粒子状物質濃度及びその成分の測定

姫路市のほぼ中心部にある兵庫県姫路総合庁舎屋上に大気エアロゾル化学成分自動分析装置(ACSA-14、紀本電子工業)を設置し、年間を通してPM_{2.5}、PM_{10-2.5}の質量濃度(β線吸収法)、元素状炭素(OBC; Optical Black Carbon)濃度(近赤外散乱法)の連続測定を行い、粒径別主要化学成分として硝酸イオン(NO₃⁻)、硫酸イオン(SO₄²⁻)、水溶性有機炭素(WSOC)、水素イオン(H⁺)の濃度を2時間間隔で連続測定を行った。各物質の質量及び成分濃度は、1日平均値及び1週間平均値を求めた。

3) 解析方法

a. 粒子状物質の質量及び主要化学成分と週単位の気管支喘息発作の関連

1週間毎の喘息発作数を従属変数、粒子状物質の質量及び主要化学成分の前週における平均濃度、気温、湿度、気圧、日照時間、季節、調査年度(カテゴリ変数)を独立変数として、一般化線型モデル(GLM)による解析を行った。また、PM_{2.5}の環境基準は1日平均値について設定されているため、各濃度の1週間で最大となる日平均値との関連も検討した。全期間、全年齢の解析に加えて、年齢別(0～14歳、15～64歳、65歳以上)、季節別の解析を行った。結果は、各物質の四分位範囲(IQR: 75パーセンタイル値-25パーセンタイル値)濃度増加したときに喘息発作が何倍になるのかをリスク比で示した。

b. 常時監視による大気中PM_{2.5}濃度と週単位の気管支喘息発作の関連

2012年度以降は市内4地区においてPM_{2.5}の常時監視が行われているため、地区別の喘息発作数と各地区における前週のPM_{2.5}濃度との関連を解析した。PM_{2.5}濃度は週平均値と1日平均の週内最大値がそれぞれ10μg/m³増加当たりの喘息発作のリスク比で示した。また、PM_{2.5}濃度の週平均値及び1日平均の週内最大値をそれぞれ4つの濃度帯に分類し、最低濃度帯に対する各濃度帯の喘息発作リスク比を求めた。

c. 常時監視による大気中O₃濃度と週単位の気管支喘息発作の関連

大気汚染の長期的及び短期的変動と喘息発作との関連を評価するため、1995～2016年度の22年間のデータを用いて、市内の一般環境常時監視測定局(9カ所)におけるO₃濃度と週単位の喘息発作との関連性を解析した。O₃濃度は週平均値、日平均値、1時間値、8時間値の4種の指標を用いて、一般化推定方程式(GEE)により気象条件の他、各地区の二酸化窒素(NO₂)及び浮遊粒子状物質(SPM)濃度を調整し、各指標の四分位範囲増加当たりのリスク比で示した。また、各指標の濃度帯別のリスク比も求めた。

d. 粒子状物質の質量及び主要化学成分と日単位の気管支喘息による受診の関連

姫路市休日・夜間急病センターに喘息発作により受診した0～14歳の患者を対象として、ケースクロスオーバー法を用いて、気圧、湿度、気温、風速、日照時間を調整した上で、受診日及び前日の大気中PM_{2.5}、PM_{10-2.5}、OBC、各粒子中の主要化学成分、市内で常時監視されているO₃、NO₂の日平均値との関連を条件付ロジスティック回帰分析によって解析した。

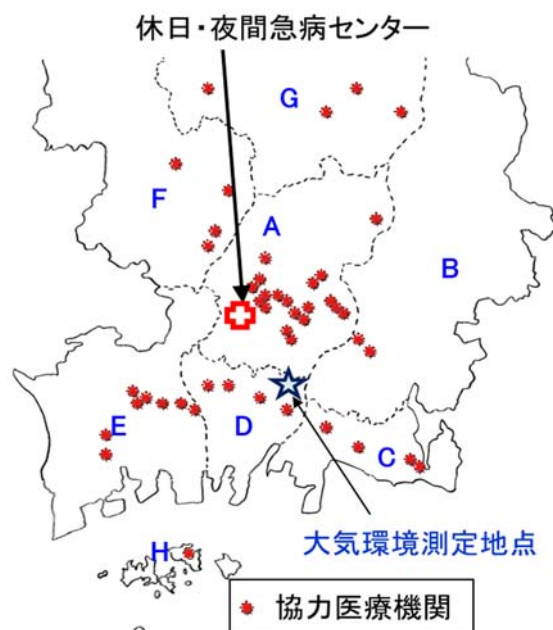


図2 喘息発作調査の協力医療機関と休日・夜間急病センター（A～Hは地区区分）

(2) 大気清浄地区における越境大気汚染の呼吸器への影響に関する研究

1) 大気環境評価

弓削島にある国立弓削商船高等専門学校の校舎屋上に粒子状物質自動測定装置 (SPM-613D、紀本電子工業) を設置し、 $PM_{2.5}$ 、 $PM_{10-2.5}$ 、OBC濃度の連続測定を行なった。また、オゾン・窒素酸化物自動計測器 (OAN-700、紀本電子工業) と二酸化硫黄測定装置 (GFS-252、東亜DKK) を設置して、 O_3 等のガス状大気汚染物質の連続測定を行った。さらに、3) の最大呼気流量 (PEF) と1秒量 (FEV_1) の測定期間中は、学生が長時間過ごす教室内の $PM_{2.5}$ 濃度を測定するため、デジタル粉じん計 (LD-5、柴田科学製) を教室内に設置した。同時に、簡易サンブラを用いて教室内の O_3 と NO_2 の濃度を24時間毎に測定した。

2) 呼吸器症状調査と肺機能検査

国立弓削商船高等専門学校の全学生約600名 (15~23歳) を対象に、毎年4月に米国胸部疾患学会に準拠した標準化質問票を用いて呼吸器・アレルギー症状の調査を実施した。また、全学生を対象に電子スパイロメーター (CHESTGRAPH HI-105、チェスト株式会社) を用いて肺機能検査を行った。なお、同校の学生の約70%は島内にある学生寮で生活しており、その他の学生は近隣地区から船で通学している。

3) 最大呼気流量 (PEF) と1秒量 (FEV_1) の連日自己測定

同意が得られた同校の学生48名 (男子32名、女子16名、15~20歳) を対象に、3年間にわたって毎年5~6月と10~11月にそれぞれ約1か月間、電子式ピークフローメーター (PEF/ FEV_1 Diary、Vitalograph社製) を用いて毎朝PEFと FEV_1 の自己測定を行ってもらった。対象者毎に全期間を通じたPEFと FEV_1 の平均値を求めて、毎日の測定結果は平均値に対する割合 (%) で表した。

解析は、毎日の測定結果 (%) を従属変数とし、検査前日の気温、湿度、対象者の年齢、性別を調整した混合効果モデルを用いて、肺機能検査前24時間の大気汚染物質濃度との関連を評価した。大気汚染物質は同校で測定された粒子状及びガス状物質濃度の他に、サブテーマ (3) で得られた24時間毎の $PM_{2.5}$ 中のイオン及び主要元素成分の濃度、それらにPositive Matrix Factorization (PMF) 解析を適用して推定された発生源因子の寄与濃度を用いた。各検査期間別の解析とともに、全期間の結果を統合した解析を行った。また、対象者のアレルギー疾患の既往の有無別に大気汚染との関連を評価した。

4) 呼気一酸化窒素 ($FeNO$) 濃度の測定

3) のPEFと FEV_1 の測定期間中に、概ね週一度の頻度で対象学生の気道炎症の指標である $FeNO$ 濃度をオフライン法により測定し、同時にスパイロメータを用いた肺機能検査を行った。解析は3) と同様に、対象者毎に全期間を通じた平均値に対する割合 (%) を従属変数とし、気象条件等を調整した混合効果モデルにより、検査前24時間の大気汚染物質濃度との関連を評価した。

(3) 大気中 $PM_{2.5}$ の成分測定による環境挙動の解明に関する研究

1) $PM_{2.5}$ の成分測定と発生源寄与解析

a. $PM_{2.5}$ 試料の採取

$PM_{2.5}$ 試料は $PM_{2.5}$ ローボリウムエアーサンプラー (Thermo Fisher SCIENTIFIC社製 $PM_{2.5}$ シーケンシャルエアーサンプラーModel 2025 (姫路) 及びModel 2025i (弓削)) を各地点に2台ずつ設置し、2014年7月~2016年11月の間に、各季節14日間ずつ毎分16.7Lの流量で大気を24時間連続吸引した。試料採取用ろ紙は、PTFEろ紙と石英繊維ろ紙 (350℃で1時間加熱) の2種類を使用した。

b. 質量濃度及び成分濃度の測定

捕集前後のPTFEろ紙は、相対湿度約35%に調整したデシケータに24時間静置した後、温度 $21.5 \pm 1.5^\circ\text{C}$ 、相対湿度 $35 \pm 5\%$ に調整した秤量室内で、ウルトラミクロ天秤 (Sartorius製、SE2-F) を用いて秤量した。9種のイオン成分 (Cl^- 、 NO_3^- 、 NO_2^- 、 SO_4^{2-} 、 Na^+ 、 NH_4^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+}) は、DIONEX製ICS-2100を用いてイオンクロマトグラフィーにより分析した。29種の無機元素成分 (Na、Al、K、Ca、Sc、Ti、V、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、As、Se、Rb、Mo、Sb、Cs、Ba、La、Ce、Sm、Hf、W、Ta、Th、Pb) は、Thermo製Xシリーズ2を用いて誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS法) により分析した。炭素成分 (OC、EC) は、Sunset Laboratory製カーボンアナライザーを用いて熱分離光学補正法 (IMPROVE_A法) により分析した。

c. レセプターモデルによる $PM_{2.5}$ の発生源寄与解析

$PM_{2.5}$ の発生源情報を得るため、成分濃度データを用いてレセプターモデル (観測地点の成分データから発生源の寄与を統計的に推定する手法) の一種であるPositive Matrix Factorization (PMF) 解析を行った。また、発生源位置に関する情報を得るため、気塊の後方流跡線を用いたConcentration Weighted Trajectory (CWT) 解析を行った。

2) 化学成分連続自動分析データによる汚染要因推定

サブテーマ(1)で実施された姫路市における大気エアロゾル化学成分連続自動分析装置 (ACSA-14) による2

時間単位の自動測定データ(PM_{2.5}、OBC、PM_{2.5}中のNO₃⁻、WSOC、ΔH⁺、SO₄²⁻)及び近傍の大気汚染常時監視測定局のSO₂、NO_x、ポテンシャルオゾン(PO)の測定データを用いて因子分析を行い、汚染要因を推定した。

3) 化学輸送モデルによるPM_{2.5}濃度推計と発生源感度解析

越境移流や国内発生源の影響を定量的に把握するため、化学輸送モデルによる発生源感度解析を行った。気象予測にはWRFv3.6.1、大気質予測にはCMAQv5.0.2を使用した。計算領域は、D1：東アジア(64kmメッシュ)、D2：日本域(16kmメッシュ)、D3：西日本(4kmメッシュ)の3領域とし、地表～100hPaを24層に分割した。気象データはNCEP.FNL、気象庁GPV-MSM、海表面温度データはNCEP_RTG_SST_HRを使用した。排出量データはEAGrid2010-JAPAN、JATOP、OPRF、REASv2.1、FINN、気象庁の火山によるSO₂排出量等を使用した。発生源感度解析は東アジア人為起源、船舶、自動車を対象とし、全排出量による計算と各発生源の排出量を80%に設定した計算との差分を5倍して各発生源の寄与濃度を求めた。

4. 結果及び考察

(1) 都市域におけるPM_{2.5}及びオゾンの喘息発作への影響に関する疫学研究

1) 気管支喘息発作数調査

2014年4月～2017年2月に報告された喘息発作数は33,897件(0～14歳10,620件、15～64歳13,952件、65歳以上9,325件)であった。喘息発作数は、0～14歳及び15～64歳では毎年9月下旬～10月に増加がみられたが、65歳以上は季節による差はみられなかった。

2) 大気環境中粒子状物質濃度の測定

姫路市中心部で測定した2014年4月～2017年3月のPM_{2.5}、PM_{10-2.5}、OBCの平均濃度はそれぞれ12.6 μg/m³、8.9 μg/m³、0.34 μg/m³であり、日平均の最大値はそれぞれ39.2 μg/m³、72.1 μg/m³、1.39 μg/m³であった。PM_{10-2.5}は黄砂飛来が観測された日に高濃度であった。

3) 大気汚染と気管支喘息発作との関連

a. PM_{2.5}の質量及び化学成分との関連

週平均PM_{2.5}のIQR(5.2 μg/m³)当たりの喘息発作リスク比は、全年齢では1.02[95%信頼区間(CI): 0.98, 1.05]と有意ではなかったが、15～64歳では1.05[95%CI: 1.01, 1.09]と有意な増大が認められた(図3)。成分濃度との関連では、PM_{2.5}中のWSOC及びΔH⁺濃度が上昇すると、15～64歳の喘息発作はそれぞれIQR増加当たり1.07[95%CI: 1.02, 1.12]、1.04[95%CI: 1.01, 1.07]と有意に増加した(図3)。0～14歳、65歳以上ではいずれの成分との関連も有意ではなかった。

季節別にみると、全年齢で6～8月はPM_{2.5}のIQR増加当たりのリスク比は1.05[95%CI: 1.00, 1.09]と有意であった(図4)。成分については、3～5月にNO₃⁻とWSOC、6～8月にはΔH⁺濃度が上昇するとそれぞれ喘息発作の有意な増加が認められた(図4)。SO₄²⁻はいずれの季節にも喘息発作との関連はみられなかった。

b. 常時監視による大気中PM_{2.5}濃度との関連

市内4地区で常時監視されているPM_{2.5}濃度の週平均値及び1日平均値が高くなると、各地区における翌週の喘息発作は有意な増加が認められた(それぞれ10 μg/m³増加当たり1.18[95%CI: 1.01, 1.31]、1.07[95%CI: 1.01, 1.13])。

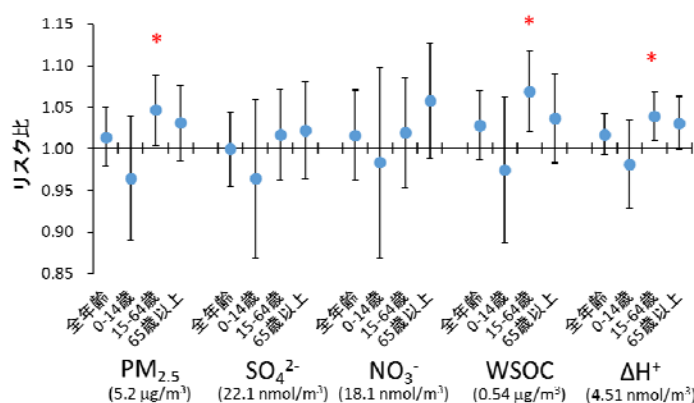


図3 PM_{2.5}の質量・成分濃度の増加による喘息発作リスク(年齢別、それぞれの四分位範囲(IQR)増加当たり、*p<0.05)

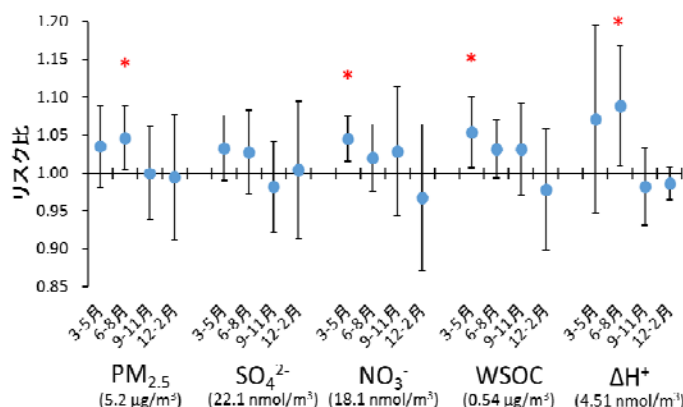


図4 PM_{2.5}の質量・成分濃度の増加による喘息発作リスク(季節別、それぞれの四分位範囲(IQR)増加当たり、*p<0.05)

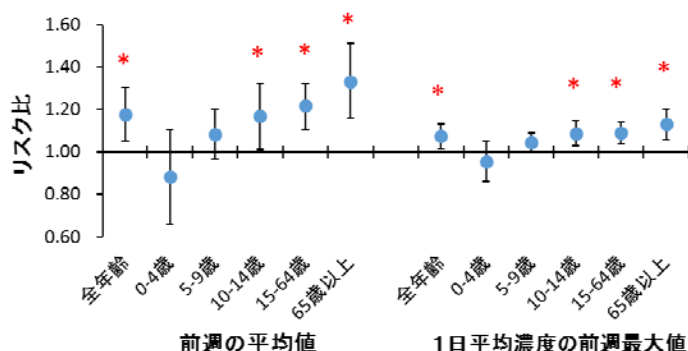


図5 地区別PM_{2.5}濃度の増加による喘息発作リスク(年齢別、それぞれ10 μg/m³増加当たり、*p<0.05)

こうした関連性は年齢が高くなるとともに大きくなり、10歳以上では有意であった(図5)。

各地区のPM_{2.5}の濃度帯別にみると、1日平均濃度の週内最大値が環境基準である35.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えたときのリスク比は、全年齢では1.20 [95%信頼区間: 0.95, 1.45]と1よりは大きい、有意ではなかった(図6)。年齢別には、10歳以上でPM_{2.5}の濃度の上昇とともに喘息発作リスクが有意に増大し、いずれの濃度帯におけるリスク比も有意に高かった。

c. 常時監視による大気中O₃濃度との関連

7地区別の大気中O₃濃度については、週平均値、昼間1時間値、8時間値が上昇すると喘息発作の増加が認められ、季節別には春季と秋季における関連が強かった(図7)。

O₃濃度の週内の8時間最大値の濃度帯別にみると、いずれの年齢層でも濃度の上昇に伴ってリスクが徐々に増大した。米国のO₃に係る環境基準である8時間の最大値が70ppbを超えると40ppb以下の週に対するリスク比は、全年齢では1.31 [95%CI: 1.00, 1.61]、0～14歳では1.30 [95%CI: 1.01, 1.59]であり、いずれも有意であった(図8)。15～64歳、65歳以上では有意でなかったが、観察期間中に70ppbを超えたことが少なかったためと考えられた。

d. 日単位の喘息発作による受診との関連

1日単位の喘息発作による受診は、前日のPM_{2.5}濃度が10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 増加当たり1.01 [95%CI: 0.88, 1.15]と有意ではなかったが、PM_{2.5}中の ΔH^+ 濃度が10nmol/ m^3 上昇すると、1.23 [95%CI: 1.00, 1.50]と有意な増加が認められ、PM_{2.5}の酸性度が喘息発作に影響を与えることが示唆された(表1)。

また、受診前日のO₃濃度が10ppb上昇すると、喘息による受診は1.13 [95%CI: 1.00, 1.28]と有意な増加が認められた。NO₂濃度やPM_{2.5}の質量及び成分濃度で調整しても、O₃濃度の上昇と喘息による受診との関連は有意であった。

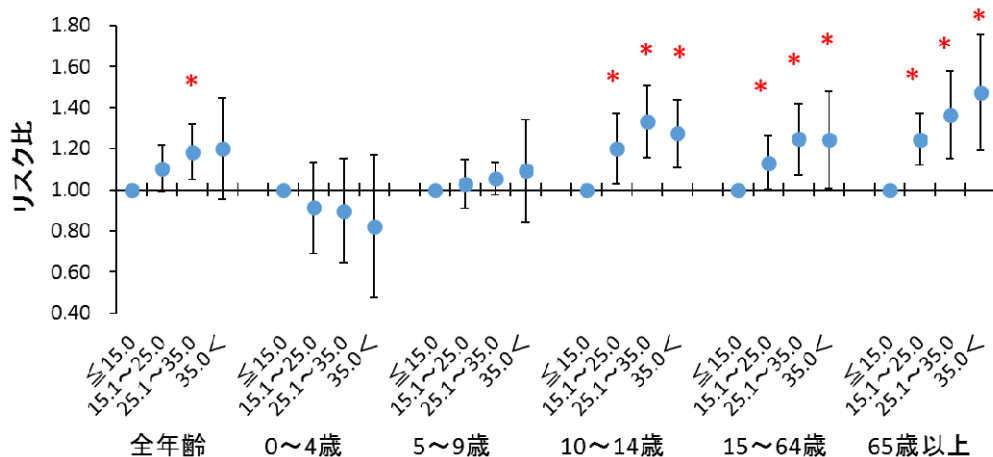


図6 各地区のPM_{2.5}濃度（1日平均濃度の前週最大値）別の喘息発作リスク（年齢別、1日平均濃度の最大値が15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下の週を1とするリスク比、* p<0.05）

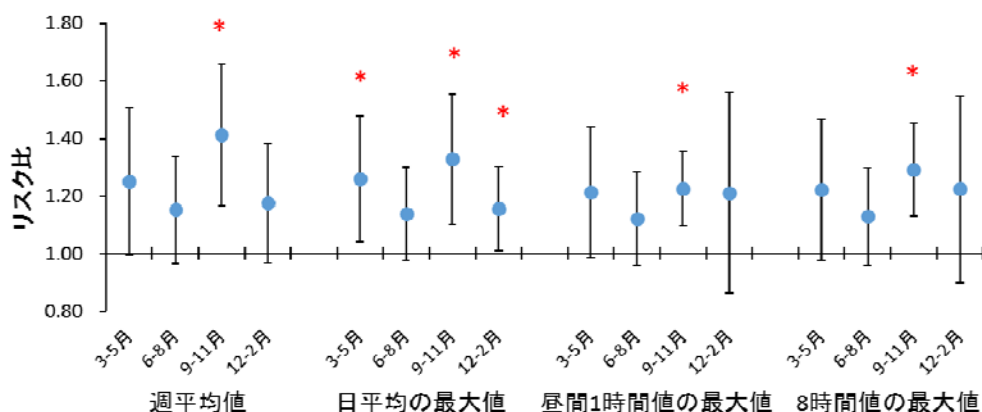


図7 地区別O₃濃度の各種指標と喘息発作の関連（季節別）（それぞれの四分位範囲（週平均値:12.0ppb、日平均の最大値:14.6ppb、昼間1時間値の最大値:30.0ppb、8時間値の最大値:23.6ppb）増加当たり、* p<0.05）

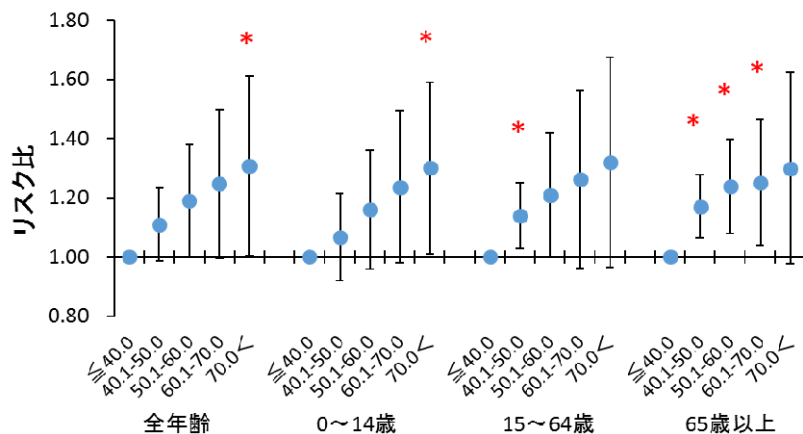


図8 各地区のO₃濃度（前週の8時間最大値）別の喘息発作リスク（年齢別、8時間最大値が40ppb以下の週を1とするリスク比、* p<0.05）

表1 喘息による救急受診と前日のPM_{2.5}質量及びPM_{2.5}中の化学成分濃度との関連

項目	単位量	RR	95%CI
PM _{2.5}	10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	1.01	[0.88, 1.15]
硫酸イオン	10 nmol/ m^3	0.98	[0.94, 1.02]
硝酸イオン	10 nmol/ m^3	1.04	[0.95, 1.14]
水溶性有機炭素	1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	1.27	[0.99, 1.63]
水素イオン	10 nmol/ m^3	1.23*	[1.00, 1.50]

* p<0.05、RR: 相対危険度、CI: 信頼区間

(2)大気清浄地区における越境大気汚染の呼吸器への影響に関する研究

1) 大気環境評価

弓削島における大気中PM_{2.5}濃度の2014～2016年度の平均値は18.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と比較的高かった。1日平均の最大値は64.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、環境基準の短期基準である35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えた日は53日あった。

2) 呼吸器症状調査と肺機能検査

呼吸器症状質問票調査の回収率は毎年97%以上と高かった。喘息様症状（現在）の有症率は、2014年度1.9%、2015年度2.0%、2016年度2.1%と低く、3年間を通してほとんど差がなかった。肺機能検査の実施率は毎年96%以上であり、拘束性または閉塞性の障害が認められた者は毎年2～3%と少数であった。

3) PEFとFEV₁の連日自己測定

a. 検査の実施状況

2014年5～6月の調査には43名（男子29名、女子14名、15～16歳）の同意が得られた。その後、3年間で6回実施した検査には各回42～43名が参加した。1回でも調査に参加した者は48名（男子32名、女子16名）、6回通して参加した者は36名（男子23名、女子13名）であり、のべ5,023回の測定が行われた。PEFおよびFEV₁の平均±標準偏差は、それぞれ405.0±110.3L/min、2.27±0.65 Lであった。

b. 検査時期別の解析

毎日測定したPEFとFEV₁と検査前24時間の大気中PM_{2.5}濃度との関連は検査時期によって異なっており、毎年10～11月にはPM_{2.5}濃度が上昇するとPEF、FEV₁ともに低下したが、5～6月には一貫した関連はみられなかった（図9）。

他の大気汚染物質及びPM_{2.5}中の成分濃度との関連もほぼ同様であり、肺機能と大気汚染との関連は、検査時期や汚染物質の種類によって異なることが示された。

c. 全検査期間を統合した解析

全検査期間の結果を統合した解析では、検査前24時間の屋外PM_{2.5}の質量濃度がIQR（15.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）増加すると、PEFは-1.37% [95%CI:

-1.98, -0.76]、FEV₁は-1.50% [95%CI:

-2.27, -0.74]の有意な低下が認められた（表2）。屋外のOBC、NO₂、SO₂濃度、教室

内のPM_{2.5}、O₃濃度が増加したときにもPEF、FEV₁はともに有意に低下した。屋外のO₃濃度はFEV₁との関連のみが有意であり、PEFとの関連はみられなかった。

同様に、検査前24時間のPM_{2.5}中の炭素（OC、EC）成分、NO₃⁻、SO₄²⁻、Na⁺、NH₄⁺、K⁺のイオン成分、Na、K、Crなどの多くの元素成分の濃度が上昇するとPEF、FEV₁はいずれも有意に低下することが示された（図10、図11）。

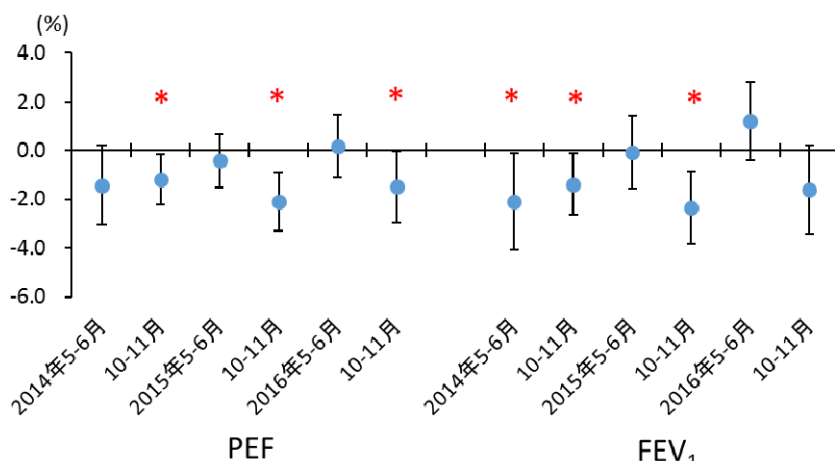


図9 PM_{2.5}濃度とPEF及びFEV₁の変化の関連

（それぞれ四分位範囲（15.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）増加当たりの変化率（%）、* p<0.05）

表2 肺機能値と検査前24時間の大気汚染物質濃度との関連（全期間）

	IQR	最大呼気流量(PEF)		1秒量(FEV ₁)	
		変化率	95%CI	変化率	95%CI
屋外濃度					
PM _{2.5} (μg/m ³)	15.8	-1.37*	[-1.98, -0.76]	-1.50*	[-2.27, -0.74]
PM _{10-2.5} (μg/m ³)	6.4	-0.03	[-0.31, 0.25]	0.19	[-0.16, 0.54]
OBC (μg/m ³)	0.379	-0.85*	[-1.36, -0.34]	-0.71*	[-1.35, -0.07]
O ₃ (ppb)	13.1	-0.21	[-0.73, 0.31]	-0.70*	[-1.35, -0.05]
NO ₂ (ppb)	5.08	-0.84*	[-1.38, -0.29]	-1.14*	[-1.83, -0.45]
SO ₂ (ppb)	0.004	-0.32*	[-0.53, -0.11]	-0.34*	[-0.61, -0.07]
屋内濃度					
PM _{2.5} (μg/m ³)	18.9	-1.21*	[-1.91, -0.52]	-1.26*	[-2.13, -0.39]
O ₃ (ppb)	10.4	-0.67*	[-1.15, -0.19]	-1.12*	[-1.72, -0.52]
NO ₂ (ppb)	2	-0.06	[-0.50, 0.38]	-0.37	[-0.92, 0.17]

検査前24時間の各汚染物質の四分位範囲(IQR)増加当たりの肺機能値の変化率(%), * p<0.05, CI: 信頼区間

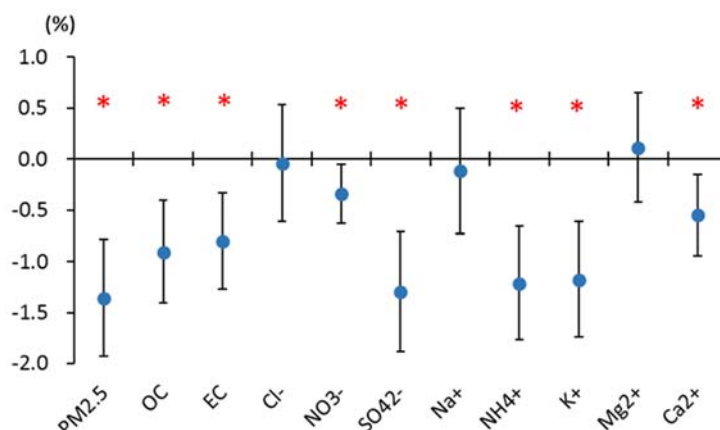


図10 PM_{2.5}質量及び炭素、イオン成分濃度とPEFの変化の関連

（それぞれ四分位範囲濃度増加当たりの変化率（%）、* p<0.05）

d. 発生源因子との関連

PM_{2.5}の成分測定結果にPMF解析を適用して推定された発生源因子の寄与濃度と肺機能の変化との関連を解析したところ、バイオマス・工業系、硫酸塩(石炭系)、道路交通の3つの因子の寄与濃度が増加すると、PEF、

FEV₁はいずれも有意な低下が認められた(表3)。一方、半揮発性粒子はPEFのみ、重油燃焼はFEV₁のみとの関連が有意であった。このことから、PEFとFEV₁に影響を与える大気汚染の特性は異なることが示唆された。

e. アレルギー疾患既往の有無別の解析

アレルギー疾患の既往がある者では、PM_{2.5}の質量濃度、OC、EC、SO₄²⁻、NH₄⁺、K⁺の成分濃度が増加するとFEV₁の有意な低下が認められたが、アレルギーの既往がない者ではいずれの物質との関連も認められなかった(図12)。

同様に、発生源因子との関連では、アレルギー疾患の既往がある者においてのみ、バイオマス・工業系、硫酸塩(石炭系)、重油燃焼、道路交通の4つの因子の寄与濃度が増加するとFEV₁の有意な低下が認められた(図13)。

一方、PEFとの関連は、PM_{2.5}の質量及び成分濃度、発生源因子の寄与濃度ともに、アレルギー疾患の既往の有無による違いはほとんどみられなかった。

これらより、アレルギー疾患の既往を有する者は、大気汚染物質のFEV₁に対する影響を受けやすいと考えられた。

4) FeNO濃度の測定

3年間で48名、のべ820回のFeNO測定を実施し、全期間の平均は29.5±26.1 ppbであった。検査前の屋内外の大気汚染物質、PM_{2.5}中の成分濃度との関連はいずれも認められなかった。発生源因子との関連、アレルギー疾患の既往の有無による違いもみられなかった。対象者の多くが健常者であり、気道炎症の変化が小さかったためであろう。

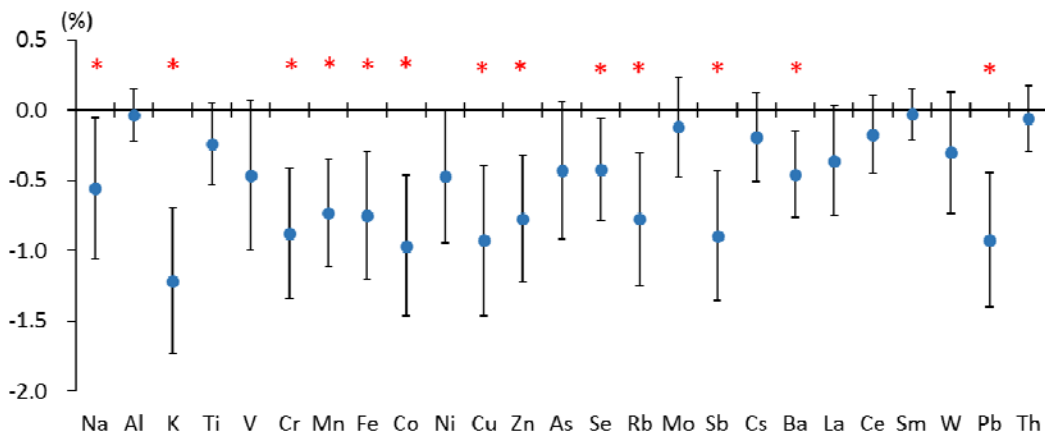


図11 PM_{2.5}中の元素成分濃度とPEFの変化の関連
(それぞれ四分位範囲濃度増加当たりの変化率(%), * p<0.05)

表3 PMF解析により推定されたPM_{2.5}発生源寄与濃度と肺機能値の関連(全期間)

発生源因子	IQR	最大呼気流量(PEF)		1秒量(FEV ₁)	
		変化率	95%CI	変化率	95%CI
半揮発性粒子	0.57	-0.34*	[-0.61, -0.08]	-0.05	[-0.39, 0.28]
バイオマス・工業系	3.98	-0.94*	[-1.47, -0.40]	-0.85*	[-1.52, -0.18]
硫酸塩(石炭系)	6.01	-0.88*	[-1.40, -0.36]	-1.38*	[-2.04, -0.72]
海塩・土壌	1.42	0.02	[-0.58, 0.62]	0.16	[-0.60, 0.92]
重油燃焼	1.46	-0.27	[-0.72, 0.19]	-0.68*	[-1.26, -0.10]
道路交通	1.24	-0.56*	[-1.00, -0.12]	-0.71*	[-1.26, -0.15]

検査前24時間の各発生源因子の寄与濃度の四分位範囲(IQR)増加当たりの肺機能値の変化率(%), * p<0.05, CI: 信頼区間

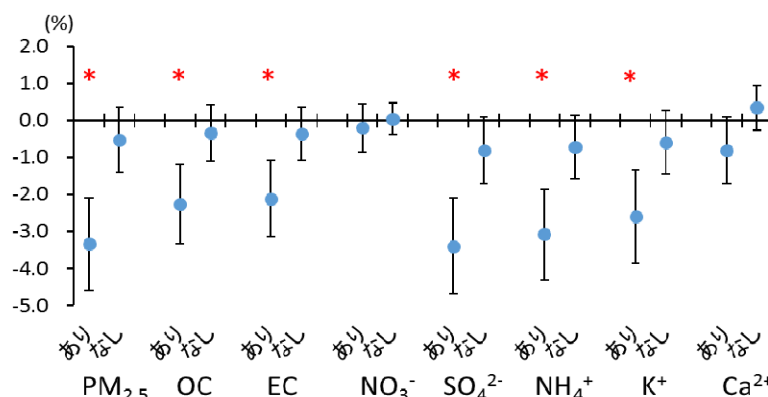


図12 PM_{2.5}質量及び炭素、イオン成分濃度とFEV₁の変化の関連
(アレルギーの有無別、各四分位範囲濃度増加当たりの変化率(%), * p<0.05)

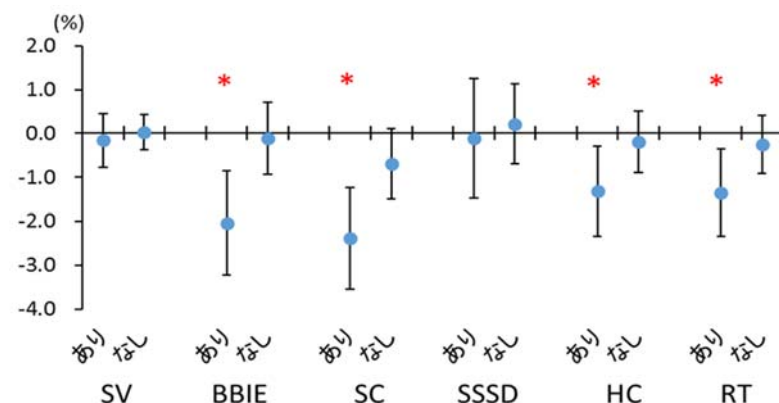


図13 PM_{2.5}の発生源因子の寄与濃度とFEV₁の変化の関連
(アレルギーの有無別、SV:半揮発性粒子、BBIE:バイオマス・工業系、SC:硫酸塩(石炭系)、SSSD:海塩・土壌、HC:重油燃焼、RT:道路交通、* p<0.05)

(3)大気中PM_{2.5}の成分測定による環境挙動の解明に関する研究

1) PM_{2.5}の成分測定と発生源寄与解析

PM_{2.5}の成分濃度データにPMFを適用し、半揮発性粒子(指標元素: NO₃⁻、Cl⁻)、バイオマス燃焼・工業系粉じん(指標元素: OC、EC、K⁺、Rb、Mn、Fe、Zn、As、Se、Pb)、硫酸塩(石炭系)(指標元素: SO₄²⁻、NH₄⁺、As、Pb)、海塩・土壌(指標元素: Na⁺、Mg²⁺、Ca²⁺)、重油燃焼(V、Ni、SO₄²⁻)、道路交通(OC、EC、Cu、Zn、Sb、Ba)を表す6つの因子が得られた。

図14に、姫路市及び弓削島における発生源因子の共通観測期間における平均寄与濃度を示した。全期間では、両地点とも硫酸塩(石炭系)の寄与濃度が最も高く、PM_{2.5}の40%程度を占めた。次いで、姫路市では道路交通の寄与濃度が高く、弓削島ではバイオマス燃焼・工業系粉じんの寄与濃度が高かった。季節別では、硫酸塩(石炭系)は両地点とも夏季に最も高く、秋季に低かった。バイオマス燃焼・工業系粉じんの寄与濃度は、弓削島では秋季に最も高く、秋季に頻繁に行われている農作物残渣の野焼きの影響が示唆された。また、重油燃焼の寄与濃度は、両地点とも春季と夏季に高く、光化学二次生成の影響が示唆された。

図15に、硫酸塩(石炭系)が最も高くなった夏季の、弓削島におけるCWT解析結果を示した。硫酸塩(石炭系)の発生源は、中国南東部の長江デルタ周辺及び東シナ海上に存在する可能性が高く、越境移流の影響を強く受けたと考えられた。

2) 化学成分連続自動分析データによる汚染要因推定

姫路市におけるACSA-14の成分測定データと大気汚染常時監視局のガス成分の測定データに因子分析を適用した。その結果、PM_{2.5}、PM_{2.5}中のNO₃⁻、WSOC、SO₄²⁻の負荷が大きく、長距離輸送や気塊の滞留などで生じた二次生成粒子の寄与を表す因子(FA1)、OBCとNO_xの負荷が大きく、一次排出粒子の寄与を表す因子(FA2)、SO₂とPOの負荷が高く、光化学二次生成の寄与を表す因子(FA3)の3因子が抽出された。

図16に、夏季のPM_{2.5}高濃度期間(2015年7月27日～8月6日)における因子寄与濃度の時間変化を示した。この期間はFA1の寄与が支配的であったが、FA3の寄与が昼間に増加し、夜間に低下する周期的な変化を示したことから、光化学二次生成の影響によりPM_{2.5}の高濃度化が生じたと考えられた。

3) 化学輸送モデルによるPM_{2.5}濃度推計と発生源感度解析

図17に、感度解析手法により求めたPM_{2.5}質量濃度に対する発生源の寄与割合を示した。姫路市、弓削島ともに東アジア人為起源の寄与割合が最も大きく、越境移流の影響を強く受けていると考えられた。また、東アジア人為起源の寄与割合は、姫路市と弓削島で同程度であった(姫路市:44%、弓削島:41%)が、船舶の寄与割合は姫路市よりも弓削島で大きく(姫路市:12%、弓削島:18%)、自動車の寄与割合は弓削島よりも姫路市で大きかった(姫路市:13%、弓削島:5%)。そのため、姫路市では周辺を走行する自動車の影響が大きく、弓削島では周辺の海域を航行する船舶排ガスの影響が大きいことが明らかとなった。

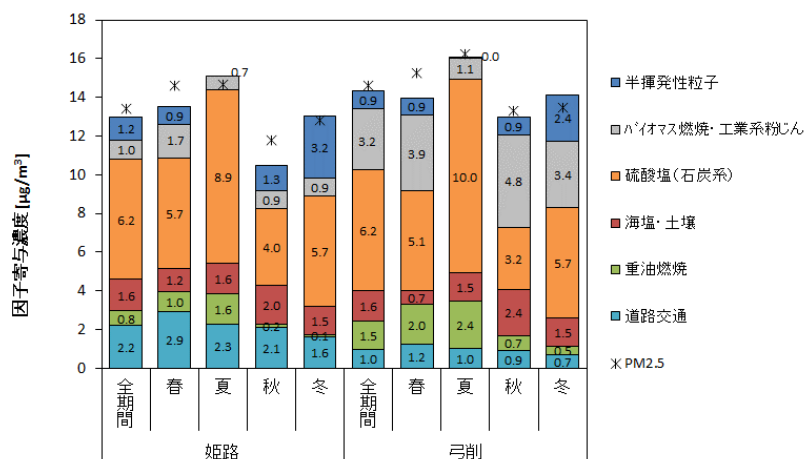


図14 各因子の全期間及び季節別平均寄与濃度

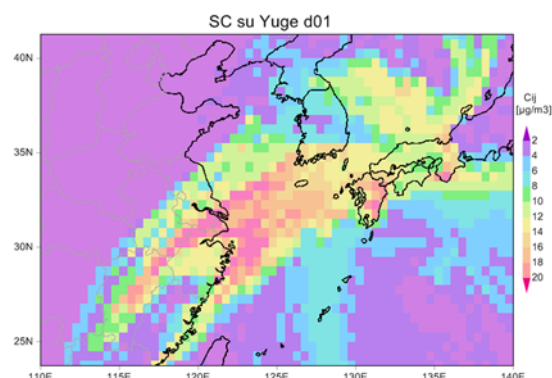


図15 硫酸塩(石炭系)のCWT解析結果(Cij値が高い(赤い)ほど発生源が存在する可能性の高い位置を表す)

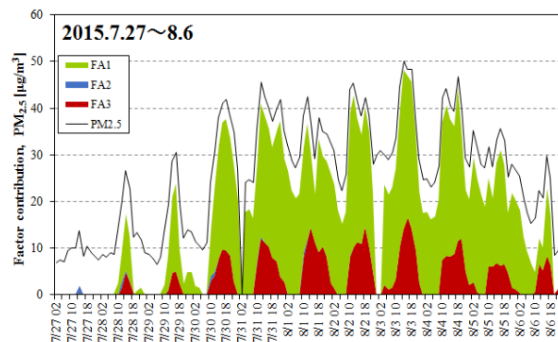


図16 因子寄与濃度の時間変化(2015年7月27日～8月6日)

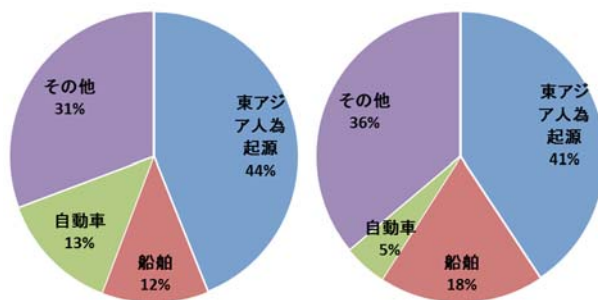


図17 感度解析による発生源寄与割合(左:姫路、右:弓削)

5. 本研究により得られた主な成果

(1) 科学的意義

PM_{2.5}及びO₃が呼吸器系に与える影響に関する国内の知見は限られており、特にPM_{2.5}の成分濃度と健康影響との関連を評価した研究は乏しかった。また、近年は瀬戸内海海域におけるPM_{2.5}が高いことが指摘されているが、その健康影響についてはほとんど報告がない。本研究は、長期にわたって喘息発作に関するデータが集積されてきた兵庫県姫路市と、周辺に主要な大気汚染の発生源がない瀬戸内海の離島である愛媛県弓削島で大気中PM_{2.5}の質量及び成分濃度の測定を行い、健康影響との関連を疫学的に解析した。

姫路市においては、大気中PM_{2.5}の質量濃度だけでなく、PM_{2.5}中の硝酸イオン、水素イオン、水溶性有機炭素等の濃度が上昇し、酸性度が高くなると喘息発作が増加することが示された。大気中PM_{2.5}濃度と喘息発作の関連は年齢が高くなるとともに大きく、10歳以上では有意であった。こうした関連は週平均10 µg/m³、1日平均濃度15 µg/m³という、比較的低い濃度でも認められ、諸外国における知見と同様であった。1日単位の喘息による受診については、PM_{2.5}中の水素イオン濃度の上昇により増加することが明らかとなり、PM_{2.5}の酸性度が関係していることが示された。大気中O₃については、わが国で環境基準が設定されている1時間値などの指標だけでなく、国際的に用いられることの多い8時間の最大値が上昇すると喘息発作が有意に増加することが明らかとなった。

弓削島においては、学生が毎日測定した肺機能値は、検査前のPM_{2.5}をはじめとする大気汚染物質濃度が上昇すると有意に低下し、PM_{2.5}中の硫酸イオン、アンモニウムイオン、カリウムイオン等の多くの成分との関連が示された。発生源解析では、半揮発性粒子、バイオマス・工業系、硫酸塩（石炭系）、道路交通に由来するPM_{2.5}が肺機能の低下に関連していた。また、アレルギー疾患の既往を有する者は大気汚染物質に対する感受性が高いことが明らかとなった。このように、近隣に主要な大気汚染の発生源がない瀬戸内海の離島においてもPM_{2.5}をはじめとする大気汚染物質が呼吸器系に影響を与えることが示された。

本研究では瀬戸内海の離島と周辺の都市部において大気環境を同時に評価したことから、両地点におけるPM_{2.5}の成分データとそれを用いた発生源解析の結果より、瀬戸内海の大気環境の特徴と発生源の相違を明らかにすることができた。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

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>

わが国では2009年にPM_{2.5}に係る環境基準が設定され、中国での大気汚染の深刻化を契機にPM_{2.5}に対する国民の関心が高まっているが、国内における疫学研究の知見は十分ではなく、特に成分組成との関係はほとんどわかっていない。また、大気中O₃濃度も増加傾向にあり、その健康影響が懸念されているが、国内における知見は乏しい。

本研究では、大気中PM_{2.5}及びO₃濃度が上昇すると喘息発作が増加することが明らかとなった。いずれも環境基準よりも低い濃度であっても影響が認められたことから、喘息患者は大気汚染に対する感受性が高いと考えられる。また、PM_{2.5}の質量及びその成分濃度は季節によって異なり、春から夏にPM_{2.5}の酸性度が高まると喘息発作への影響が大きいことが示された。近隣に主要な発生源がない離島における研究でも、学生が毎日測定した肺機能は、大気中のPM_{2.5}等の質量濃度、PM_{2.5}中の多くの成分濃度の増加によって有意に低下し、アレルギー疾患の既往を有する者でその影響が大きかったことから、大気汚染の影響を受けやすいと考えられた。

こうした成果は、PM_{2.5}濃度が上昇した際には、喘息やアレルギー疾患の既往がある者に外出を控えるように注意喚起を行うなど、よりきめ細かく、実効性のある予防対策の検討に貢献しうると考える。また、PM_{2.5}中の成分や推定された発生源因子と喘息発作や肺機能との関連についての知見は、PM_{2.5}を削減するための発生源対策を進める上で、健康影響の観点から優先度を検討するなど、貴重な情報を提供するものである。

瀬戸内海沿岸部ではPM_{2.5}が高濃度になりやすいことが知られており、本研究で得られたPM_{2.5}成分データや発生源解析の結果は、瀬戸内海海域の離島及び都市部における地域特有の高濃度現象を理解するために有用な情報である。時間単位で測定したPM_{2.5}の成分測定データによる発生源解析や、PMFによる発生源解析結果と化学輸送モデルによる発生源感度解析結果とを比較した研究は国内ではほとんどなく、今後の大気環境研究にとって非常に貴重な知見となる。

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) R. NAKATSUBO, D. TSUNETOMO, Y. HORIE, T. HIRAKI, K. SAITOH, Y. YODA, and M. SHIMA: Asian

Journal of Atmospheric Environment, 8, 126-139 (2014) “Estimate of regional and broad-based sources for PM_{2.5} collected in an industrial area of Japan”

- 2) 余田佳子、高木 洋、若松純子、大谷成人、島 正之: アレルギー、64, 2, 128-135 (2015)「大気汚染物質が喘息およびアレルギー症状を有する者の肺機能に与える影響」
- 3) S. YAMAZAKI, M. SHIMA, Y. YODA, K. OKA, F. KUROSAKA, S. SHIMIZU, H. TAKAHASHI, Y. NAKATANI, J. NISHIKAWA, K. FUJIWARA, Y. MIZUMORI, A. MOGAMI, T. YAMADA, and N. YAMAMOTO: BMJ open 5, e005736, (2015) “Exposure to air pollution and meteorological factors associated with children’s primary care visits at night due to asthma attack: case-crossover design for 3-year pooled patients”
- 4) Y. YODA, H. TAKAGI, J. WAKAMATSU, T. ITO, R. NAKATSUBO, Y. HORIE, T. HIRAKI, and M. SHIMA: Environ. Health Prev. Med. 22, 33 (2017) “Acute effects of air pollutants on pulmonary function among students: a panel study in an isolated island”

(2) 主な口頭発表(学会等)

- 1) 島 正之、山崎 新、余田佳子、岡 勝巳、黒坂文武、清水滋太、高橋宏暢、中谷裕司、西川実徳、藤原克彦、水守康之、最上 朗、山田 琢、山本信玄: 第55回大気環境学会 (2014)「姫路市における小児の喘息による夜間受診と気象・大気汚染との関連」
- 2) 島 正之: 第56回大気環境学会 (2015)「大気中粒子状物質の成分組成と気管支喘息発作の関連: 姫路市における疫学研究」
- 3) 余田佳子、高木洋、伊藤武志、若松純子、中坪良平、堀江洋佑、平木隆年、島正之: 第56回大気環境学会(2015)「瀬戸内海の離島における大気中粒子状物質が学生の肺機能に及ぼす影響」
- 4) 堀江洋佑、中坪良平、藤原亘、平木隆年、嶋寺光、近藤明、高木洋、伊藤武志、若松純子、余田佳子、島正之: 第56回大気環境学会(2015)「兵庫県の沿岸部と瀬戸内海の離島におけるPM_{2.5}濃度解析-化学輸送モデルによる濃度予測-」
- 5) 中坪良平、堀江洋佑、藤原亘、平木隆年、高木洋、伊藤武志、若松純子、余田佳子、島正之: 第56回大気環境学会(2015)「瀬戸内海の離島及び沿岸の都市部で採取したPM_{2.5}の発生源解析」
- 6) 島 正之、余田佳子: 第86回日本衛生学会学術総会(2016)「大気中光化学オキシダント濃度と喘息発作の関連」
- 7) 余田佳子、高木洋、伊藤武志、若松純子、中坪良平、堀江洋祐、平木隆年、島正之: 第86回日本衛生学会学術総会(2016)「PM_{2.5}中の元素成分濃度と学生の肺機能との関連」
- 8) Y. Yoda, H. Takagi, T. Ito, J. Wakamatsu, R. Nakatsubo, Y. Horie, T. Hiraki, M. Shima: Conference of International Society for Environmental Epidemiology and International Society of Exposure Science – Asia Chapter (2016) “Association of ambient particulate matter and its ionic composition with pulmonary function among healthy students in a remote island of Japan”
- 9) 島 正之、余田佳子、山崎新、中坪良平、堀江洋祐、平木隆年: 第57回大気環境学会(2016)「姫路市における大気中粒状物質の化学成分と喘息発作との関連」
- 10) 余田佳子、高木洋、伊藤武志、若松純子、中坪良平、堀江洋祐、平木隆年、島正之: 第57回大気環境学会(2016)「瀬戸内海の離島における大気環境が呼吸器系に及ぼす影響の季節差について」
- 11) 堀江洋佑、中坪良平、平木隆年、嶋寺光、近藤明、高木洋、伊藤武志、若松純子、余田佳子、島正之: 第57回大気環境学会(2016)「化学輸送モデルと観測による兵庫県の沿岸部瀬戸内海離島におけるPM_{2.5}発生源解析」

7. 研究者略歴

課題代表者: 島 正之

千葉大学医学部卒業、医学博士、千葉大学医学部公衆衛生学助教授、
現在、兵庫医科大学公衆衛生学主任教授

研究分担者

1) 高木 洋

東京商船大学大学院商船学研究科修了、現在、弓削商船高等専門学校情報工学科教授

2) 平木隆年

関西学院大学理学部卒業、兵庫県立健康環境科学研究センター大気環境部長、
現在、(公財)ひょうご環境創造協会兵庫県環境研究センター大気環境科長

5-1456 大気環境の異なる地域におけるPM_{2.5}及びオゾンの呼吸器系への影響に関する疫学研究

(1) 都市域におけるPM_{2.5}及びオゾンの喘息発作への影響に関する疫学研究

兵庫医科大学

医学部 公衆衛生学

島 正之

<研究協力者>

国立研究開発法人国立環境研究所

環境リスク・健康研究センター 環境疫学研究室

山崎 新

平成26～28年度累計予算額：41,072千円（うち平成28年度：12,550千円）

予算額は、間接経費を含む。

[要旨]

大気中のPM_{2.5}及びオゾン（O₃）が気管支喘息発作やそれによる救急受診に影響を与えることが報告されているが、PM_{2.5}の成分との関連を評価した研究は少ない。本研究では兵庫県姫路市において、長期にわたり集積されてきた1週間単位の喘息発作及び1日単位の喘息による救急受診のデータを活用して、PM_{2.5}の成分及びO₃が喘息発作に及ぼす影響を評価した。市中心部でPM_{2.5}の質量濃度と主要化学成分を連続して測定し、市内の大気環境常時監視結果も用いた。

週単位の喘息発作データを用いた解析では、気温、湿度、気圧等を調整した喘息発作のリスク比は、週平均PM_{2.5}の四分位範囲濃度（IQR: 5.2μg/m³）上昇当たり15～64歳で1.05 [95%信頼区間(CI): 1.01, 1.09]と有意な増大がみられた。特に、PM_{2.5}中の水溶性有機炭素及び水素イオン濃度が上昇すると喘息発作リスク比はそれぞれIQR増加当たり1.07 [95%CI: 1.02, 1.12]、1.04 [95%CI: 1.01, 1.07]と有意に増加した。季節別にみると、3～5月には硝酸イオンと水溶性有機炭素、6～8月には水素イオン濃度が上昇すると喘息発作の有意な増加が認められた。地区別の大気汚染濃度と週単位の喘息発作数との関連では、PM_{2.5}の週平均値及び1日平均値が高くなると翌週の喘息発作数は有意に増加した（それぞれ10 μg/m³増加当たり1.18 [95%CI: 1.01, 1.31]、1.07 [95%CI: 1.01, 1.13]）。こうした関連はPM_{2.5}の週平均濃度が10.0 μg/m³、1日平均濃度が15.0 μg/m³を超えると認められた。年齢が高くなるとともに関連は大きくなり、10歳以上で有意であった。大気中O₃は、地区別の週平均値、昼間1時間値、8時間値が上昇すると喘息発作の増加が認められた。季節別には春季と秋季における関連が強かった。1日単位の喘息発作による受診は、前日のPM_{2.5}中の水素イオン濃度が上昇すると1.23 [95%CI: 1.00, 1.50]と有意に増加し、大気中O₃濃度の上昇によっても増加が示された。

以上より、大気中PM_{2.5}及びO₃濃度の上昇により喘息発作が起こりやすくなることが明らかとなった。特に、PM_{2.5}中の硝酸イオン、水素イオン、水溶性有機炭素濃度との関連が示唆された。

[キーワード]

微小粒子状物質（PM_{2.5}）、成分組成、オゾン（O₃）、気管支喘息、疫学研究

1. はじめに

大気環境中の粒子状物質、特に粒径 $2.5\text{ }\mu\text{m}$ 以下の微小粒子状物質（ $\text{PM}_{2.5}$ ）は、呼吸器系、循環器系をはじめとする様々な健康影響を生じることが報告されており、気管支喘息の発作やそれによる救急受診との関連性が数多く報告されている¹⁻⁵⁾。

わが国では2009年に $\text{PM}_{2.5}$ に係る環境基準が設定され、その達成率は改善傾向にあるが、2015年度においても一般局で74.5%、自動車排出ガス測定局で58.4%にとどまっている⁶⁾。特に、近年は中国での大気汚染の深刻化を契機に $\text{PM}_{2.5}$ に対する国民の関心が高まっているが、 $\text{PM}_{2.5}$ の健康影響に関する国内の知見は欧米諸国に比して少なく⁷⁻¹⁰⁾、特に粒子状物質の成分濃度と健康影響との関連を評価した研究はほとんどない。 $\text{PM}_{2.5}$ は大気中での二次生成粒子の占める割合が大きく、越境汚染の影響も受けるなど、その発生源が多様であるため、成分測定を行うことによって粒子の発生源や二次生成メカニズムを解明し、健康影響を評価することが求められている¹¹⁾。

また、近年は光化学オキシダント（主にオゾン）濃度が増加傾向にあり、特に春～夏季に高濃度となり、越境汚染との関連が指摘されている¹²⁾が、その健康影響も十分に解明されていない。これらの大気汚染物質の分布や成分組成は国や地域によって異なること、健康影響は人種や生活習慣等の違いによる差が見られる可能性があることなどから、わが国において粒子状物質及びその成分組成と健康影響との関連を明らかにすることが必要である。

兵庫県姫路市医師会では、市内の46医療機関において喘息発作を起こした患者数を1週間毎に性・年齢、居住地区別に集計している^{13,14)}。そのデータを活用して $\text{PM}_{2.5}$ をはじめとする大気汚染物質の影響を評価するため、我々は同市内で粒径 $2.5\text{ }\mu\text{m}$ 以下の $\text{PM}_{2.5}$ 、粒径が $2.5\sim 10\text{ }\mu\text{m}$ の粗大粒子（ $\text{PM}_{10-2.5}$ ）、ディーゼル排ガス由来のブラックカーボン（Optical Black Carbon; OBC）濃度の連続測定を行い、大気汚染常時監視データも含めて、喘息発作との関連を検討してきた^{15,16)}。これまでに、 $\text{PM}_{2.5}$ 濃度が高くなると週単位の喘息発作が有意に増加し、 $\text{PM}_{2.5}$ の成分では硫酸イオン、アンモニウムイオン等との関連が認められた¹⁷⁾が、1日単位の喘息との関連は明らかではなかった。

そこで本課題では、従来から行ってきた粒子状物質の質量濃度に加えて、主要化学成分の連続測定を行い、1週単位及び1日単位の喘息発作との関連を評価することとした。

2. 研究開発目的

本研究では、わが国における大気中 $\text{PM}_{2.5}$ をはじめとする大気汚染物質が気管支喘息発作に与える短期影響の特性を疫学的に明らかにすることを目的とした。そのため、従来行われてきた粒子状物質の質量濃度だけでなく、 $\text{PM}_{2.5}$ 及び粒径 $2.5\sim 10\text{ }\mu\text{m}$ の粗大粒子（ $\text{PM}_{10-2.5}$ ）の主要化学成分と1日毎及び1週間毎の喘息発作との関連を疫学的に解析した。また、市内の大気環境常時監視局における $\text{PM}_{2.5}$ 、オゾン等の測定結果を用いて、居住地における大気汚染濃度の長期的及び短期的な変動との関連についても検討した。

健康影響指標として、(1) 兵庫県姫路市内の46医療機関において1995年より長期にわたって集積されている1週間毎の年齢別の喘息発作数、(2) 姫路市休日・夜間急病センターに2012年7月から2014年3月の21か月間に喘息のために受診した1日毎の患者数データを収集した。

大気環境データとしては、(1) 市中心部に大気エアロゾル化学成分自動分析装置を設置して連続測定を行った $\text{PM}_{2.5}$ 、 $\text{PM}_{10-2.5}$ 、OBCの質量濃度及び粒径別粒子中の主要化学成分濃度、(2) 市内9箇所の一般環境大気測定局における大気汚染物質の常時監視結果を用いた。

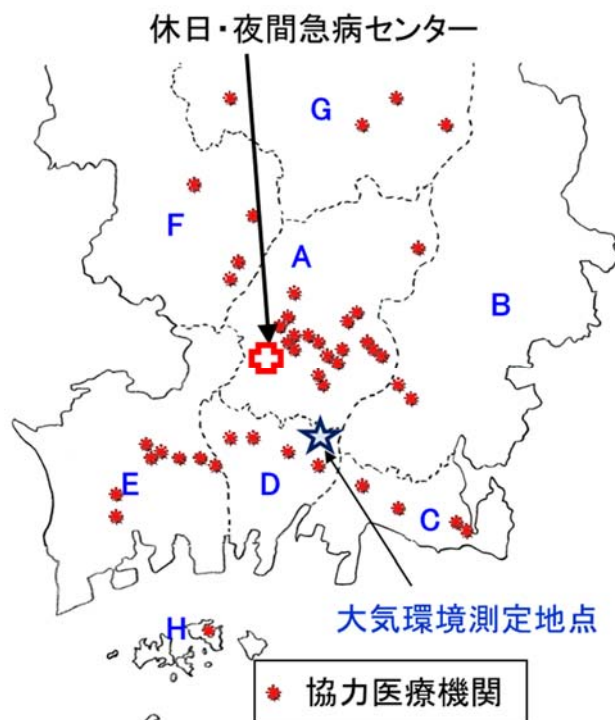
3. 研究開発方法

(1) 気管支喘息発作数調査

姫路市医師会公害調査委員会では、1995年度より市内にある約40の医療機関で把握された気管支喘息発作数を1週間（日曜日から土曜日）毎に性、年齢、居住地区（8地区）別に集計している。本研究を実施した2014～2016年度における協力医療機関数は46であり、図(1)-1に示したとおり、市全域に及んでいる。

喘息発作の定義は「笛性喘鳴を伴う呼吸困難」とし、医師が診察、問診、喘息日誌等で確認した上で、1週間毎に発作数を医師会に報告してもらった。ただし、1週間に2回以上の発作があった場合も1回とした。なお、喘息患者の定期的な受診は報告対象に含まれない。

また、1日単位の喘息発作数を把握するために、2014年7月～2016年3月の21か月間に姫路市休日・夜間急病センターに喘息で受診した患者の性、年齢、居住地等の情報を収集した。同センターは、年間を通して平日は午後9時から翌朝6時、休日は午前9時～午後6時と午後9時から翌朝6時に診療を行っている。



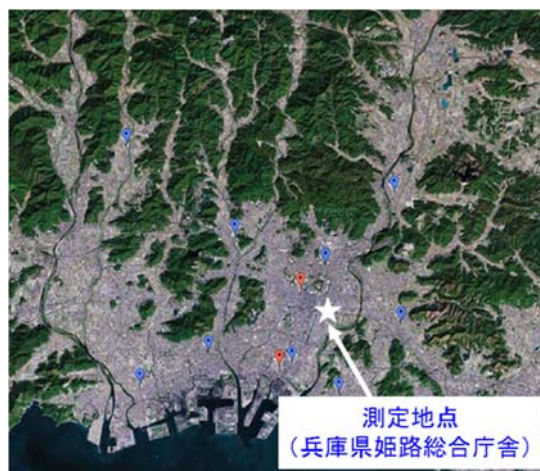
図(1)-1 喘息発作調査の協力医療機関と休日・夜間急病センター（A～Hは地区区分）

(2) 大気環境中粒子状物質濃度及びその成分の測定

兵庫県姫路市の兵庫県姫路総合庁舎（姫路市北条1-98、6階建て）の屋上に大気エアロゾル化学成分自動分析装置（ACSA-14、紀本電子工業）を設置し、年間を通してPM_{2.5}、PM_{10-2.5}の質量濃度（β線吸収法）、元素状炭素（OBC; Optical Black Carbon）濃度（近赤外散乱法）の連続測定を行った。また、粒径別主要化学成分として硝酸イオン（NO₃⁻）、硫酸イオン（SO₄²⁻）、水溶性有機化合物（WSOC）、水素イオン（ΔH⁺）の濃度を2時間間隔で連続測定を行った。各物質の質量及び成分濃度は、1日平均値及び1週間平均値を求めた。



図(1)-2 大気エアロゾル化学成分自動分析装置



図(1)-3 粒子状物質測定地点

さらに、姫路市により市内11か所（一般環境大気測定局9か所、自動車排出ガス測定局2か所）で測定されている大気常時監視データ（このうちPM_{2.5}、オゾン（O₃）はそれぞれ7か所、9か所で測定）、気象庁の姫路気象観測所における気象データを収集し、解析に用いた。

（３）解析方法

１）PM_{2.5}質量及び主要化学成分濃度と週単位の気管支喘息発作との関連

大気環境中の粒子状物質の質量及び主要成分濃度と週単位の喘息発作との関連を解析した。1週間毎の喘息発作数を従属変数とし、前週における大気中粒子状物質（PM_{2.5}、PM_{10-2.5}、OBC）及び主要成分の平均濃度、気温、湿度、気圧、日照時間、季節（3～5月、6～8月、9～11月、12～2月をカテゴリ化）、調査年度（カテゴリ化）を独立変数として、一般化線型モデル（GLM）による解析を行った。また、PM_{2.5}の環境基準は1日平均値について設定されているため、各濃度の1週間毎で最大となる日平均値との関連も検討した。全年齢についての解析とともに、年齢別（0～14歳、15～64歳、65歳以上）の解析を行った。また、主要成分濃度は季節による違いが見られたため、季節別の解析も行った。結果は、各汚染物質の四分位範囲（75パーセンタイル値－25パーセンタイル値）濃度増加したときに喘息発作が何倍になるのかをリスク比として示した。

大気中PM_{2.5}の質量及び成分濃度と喘息発作数の両者の有効なデータが得られたのは2014年7月～2017年1月の134週間であったが、このうち夏季休暇、長期間の連休（4～5月、9月）、年末・年始に相当する週は喘息発作数が正確に把握できていない可能性があるため、解析から除外した。そのため、解析に用いたデータは125週分である。

２）常時監視による大気中PM_{2.5}濃度と週単位の気管支喘息発作の関連

2012年度以降は市内4地区においてPM_{2.5}の常時監視が行われているため、これらの地区（B、C、E、F地区）におけるPM_{2.5}濃度と翌週1週間の地区別の喘息発作数との関連について解析を行った。

1週間毎の地区別の喘息発作数を従属変数とし、前週における各地区のPM_{2.5}濃度、気温、湿度、気圧、日照時間、季節（3～5月、6～8月、9～11月、12～2月をカテゴリ化）、調査年度（カテゴリ化）を独立変数として、一般化推定方式（GEE）による解析を行った。

PM_{2.5}濃度は1週間の平均値と1日平均の週内での最大値を用いて、それぞれ10 µg/m³増加当たりの喘息発作のリスク比で示した。また、PM_{2.5}濃度の週平均値及び1日平均の週内最大値をそれぞれ4つの濃度帯に分類し、最低濃度帯に対する各濃度帯の喘息発作リスク比も求めた。

大気中PM_{2.5}濃度と喘息発作数の両者の有効なデータが得られたのは2012年4月～2017年1月の256週間であったが、このうち年末・年始等に相当する週は除外したため、解析に用いたデータは240週分である。

３）常時監視による大気中O₃濃度と週単位の気管支喘息発作の関連

1995～2016年度の22年分のデータ（1,139週分）を用いて、この間に市内9か所の一般環境大気測定局において測定されたO₃濃度と翌週1週間の地区別の喘息発作数との関連を検討した。1週間毎の地区別の喘息発作数を従属変数とし、前週における各地区のO₃濃度、気温、湿度、気圧、日照時間、季節（3～5月、6～8月、9～11月、12～2月をカテゴリ化）、調査年度（カテゴリ化）を独立変数として、一般化推定方程式（GEE）による解析を行った。大気中でO₃濃度との関連が考え

られる二酸化窒素（ NO_2 ）及び浮遊粒子状物質（SPM）濃度の週平均値の影響も調整した。なお、H地区は離島であり、周辺に大気測定局がないために解析に含めなかった。

O_3 濃度は、1週間の平均値、1日平均の週内最大値、昼間1時間値の週内最大値、8時間値の週内最大値の4種の指標を用いた。各汚染指標の四分位範囲（75パーセンタイル値－25パーセンタイル値）濃度増加当たりの喘息発作のリスク比で示した。また、1週間毎の O_3 濃度を4～5のカテゴリに分類し、最低濃度帯に対する各濃度帯の喘息発作のリスク比も求めた。

年末・年始、4～5月の連休、夏季休暇に相当する週は解析から除外したため、解析に用いたデータは1,072週分である。

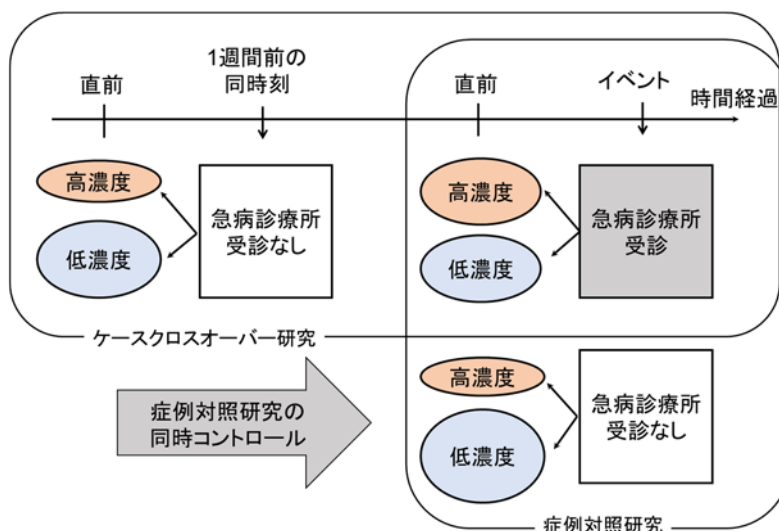
4）日単位の気管支喘息による受診との関連

姫路市休日・急病センターに2014年7月1日から2016年3月31日の平日の夜間21時～翌日6時に、喘息発作により受診した0歳から15歳未満の小児824例を対象とした。ケースクロスオーバー法を用いて、 $\text{PM}_{2.5}$ 等の大気汚染濃度及び気象条件と喘息発作による受診との関連性を検討した。

ケースクロスオーバー法は、現象が発生した症例のみを対象に、自分自身をコントロールとして解析する方法である。例えば、喘息発作による受診直前日の大気汚染

濃度（あるいは気象状況）を、コントロールとしての同月内同曜日の大気汚染濃度（あるいは気象条件）と比較してオッズ比（大気汚染濃度あるいは気象条件が変化したときに受診が何倍になるのかを示すリスク指標）を計算する（図(1)-4）。コントロールの決定方法は、例えば、2015年2月13日（金）に救急受診が発生した場合にはコントロールとする日は2月6日（金）、2月20日（金）、および2月27日（金）とする、というものである。ケースクロスオーバー法は、イベント発生日の曝露濃度と、コントロールとした日の曝露濃度を比較する研究デザインであり、曝露状況が異なる時点での自分自身をコントロールとすることから、時間により変化しない要因の影響（性別や、ごく短期間で同等とみなせる年齢、既往、生活習慣、社会経済階層等）を取り除くことができる。

この研究では、 $\text{PM}_{2.5}$ および $\text{PM}_{10-2.5}$ と、それらのそれぞれの成分として硫酸イオン、硝酸イオン、水溶性有機炭素、水素イオンの各一日平均値を主要曝露指標として解析した。このとき、 O_3 と NO_2 の各大気汚染物質濃度の一日常平均値、および、気象条件として気圧、気温、湿度、風速の一日常平均値と日照時間を共変量として解析した。曝露からイベント発生（救急受診の発生）までのタイムラグ、つまり、曝露評価期間は、当日および前日の場合を検討した。大気汚染物質濃度は姫路市内の一般環境大気測定局での測定データ、気象データは姫路気象観測所での測定データを用いた。条件付ロジスティック回帰分析を用いて解析を行った。

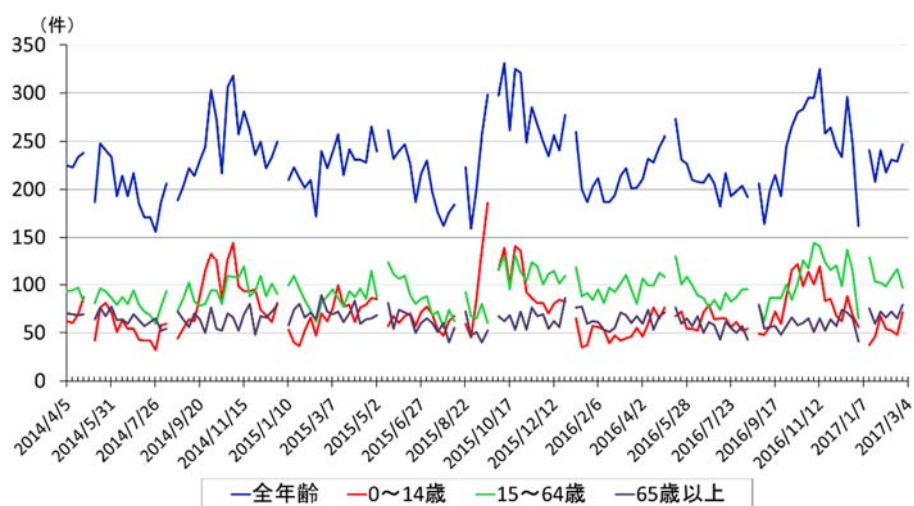


図(1)-4 症例対照研究とケースクロスオーバー研究

4. 結果及び考察

(1) 気管支喘息発作数調査

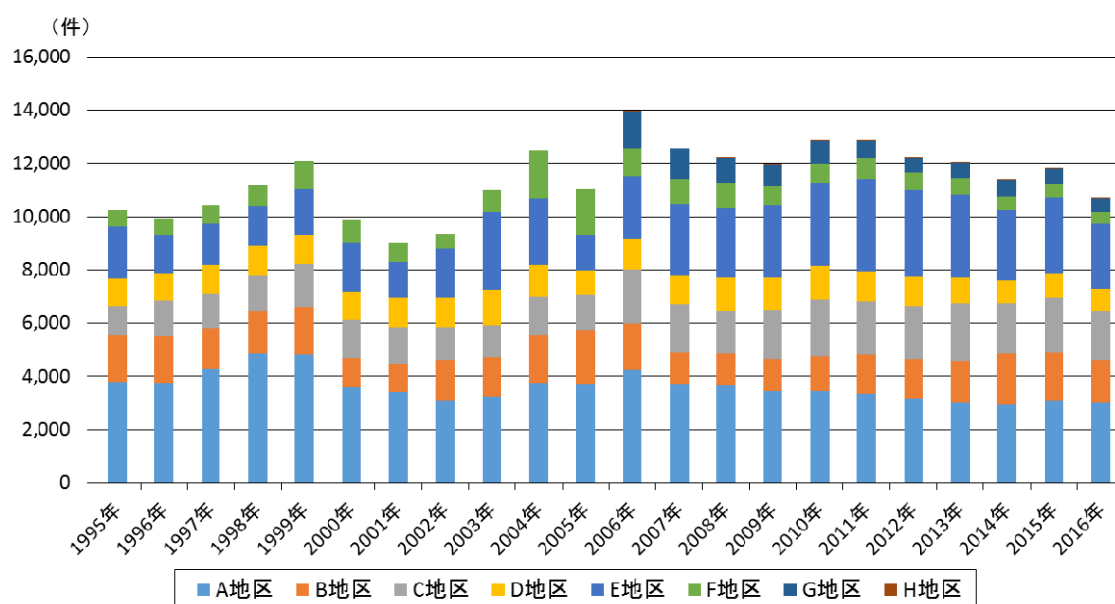
姫路市内の46医療機関より2014年4月から2017年2月までの1週間毎の喘息発作数を収集した結果を図(1)-5に示した。この間の喘息発作数は33,897件（週平均223.0件）であり、年齢別には0～14歳10,620件（週平均69.9件）、15～64歳13,952件（91.8件）、65歳以上9,325件（61.3件）であった。



図(1)-5 姫路市における1週間毎の気管支喘息発作数の推移（年齢別）

喘息発作数は毎年秋に多く、特に9月下旬から10月下旬にかけて大きな増加が認められた。年齢別には、0～14歳及び15～64歳の喘息発作数は秋に増加する傾向であったが、65歳以上の喘息発作数については季節的に大きな変化はみられなかった。

一方、長期的な大気汚染との関連を評価するために収集した1995～2016年度の22年間の喘息発作数は合計251,280件（0-14歳：120,048件、15-64歳：83,098件、65歳以上：48,134件）であった（図(1)-6）。



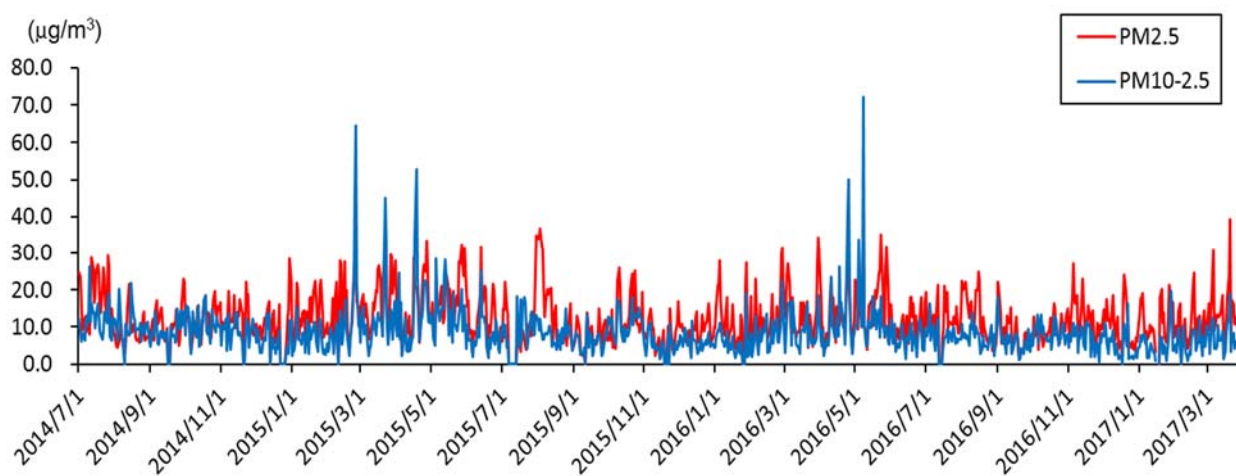
図(1)-6 姫路市における年度別・地区別喘息発作数（A～Hは地区区分、G、H地区は2006年に編入）

(2) 大気環境中粒子状物質濃度の測定結果

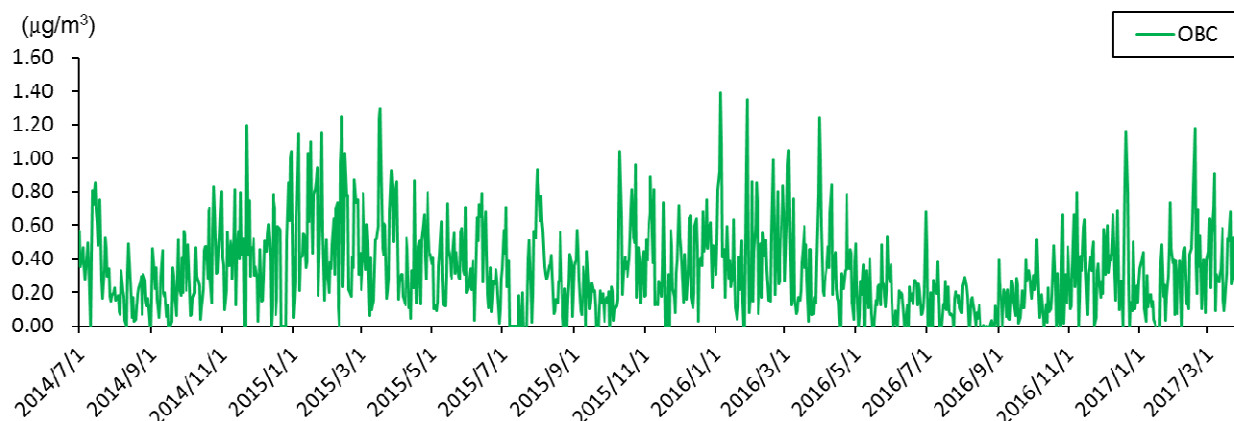
2014年7月から2017年3月の大気中粒子状物質の粒径別質量の日平均値の推移を図(1)-7及び図(1)-8に示した。また、各項目の日平均値の概要を表(1)-1に示した。

PM_{2.5}、PM_{10-2.5}、OBCの期間中の平均濃度はそれぞれ12.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、8.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、0.34 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、日平均の最大値はそれぞれ39.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、72.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、1.39 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。

PM_{2.5}の年度別の平均濃度は、2014年度(7～3月)13.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、2015年度12.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、2016年度12.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と漸減傾向であった。1日平均値は年間を通して変動がみられたが、3～5月と7～8月に高濃度となる日が多く、環境基準の短期基準である1日平均値が35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えた日は4日間のみであった。PM_{10-2.5}の1日平均値は3～5月に高濃度となることが多く、40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えた日は7日間あったが、いずれも黄砂の飛来が観測された日であった¹⁸⁾。OBC濃度は例年11月～3月の寒冷期に高かった。



図(1)-7 姫路市におけるPM_{2.5}、PM_{10-2.5}濃度（日平均値）の推移

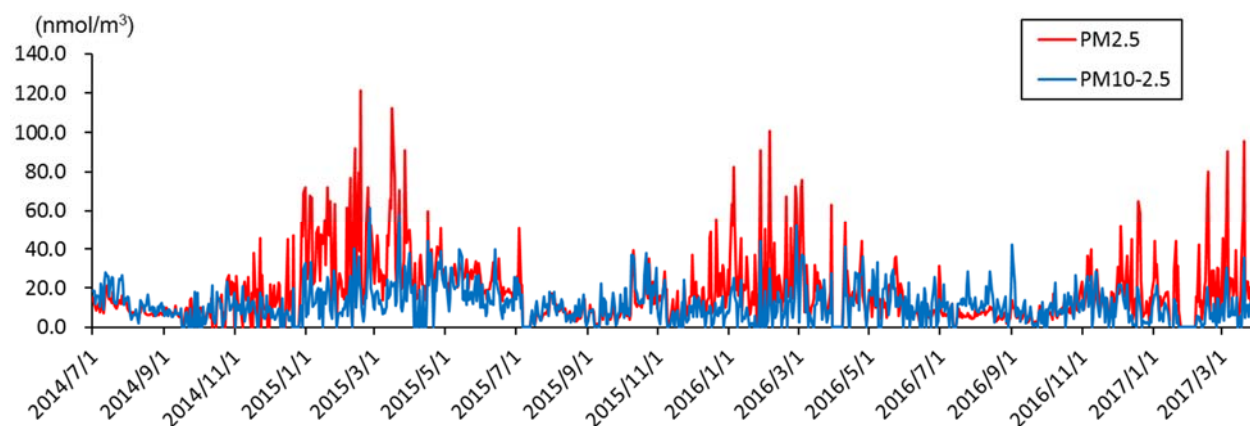


図(1)-8 姫路市におけるOBC濃度（日平均値）の推移

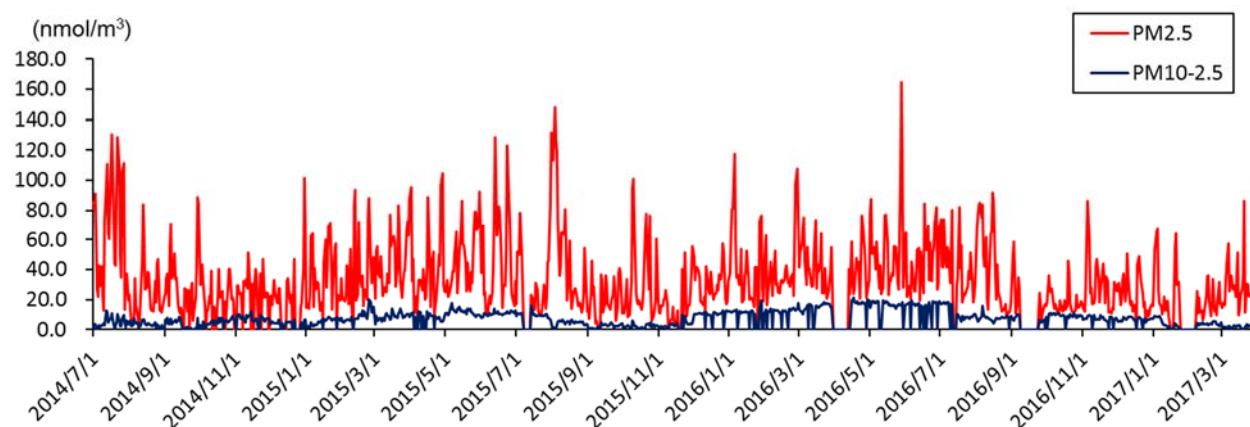
粒径別主要化学成分濃度の日平均の推移を図(1)-9～図(1)-12に示した。

NO₃⁻の一日平均濃度の平均値は、PM_{2.5}中19.2 nmol/m³、PM_{10-2.5}中13.2 nmol/m³であり、いずれも毎年1～3月に高濃度となることが多かった。SO₄²⁻の一日平均濃度の平均値は、PM_{2.5}中36.3 nmol/m³、PM_{10-2.5}中8.1 nmol/m³であり、PM_{2.5}中の濃度が高かった。濃度は年間を通して変動がみられたが、3～8月に高濃度となることが多かった。WSOCの一日平均濃度の平均値は、PM_{2.5}中0.86 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、

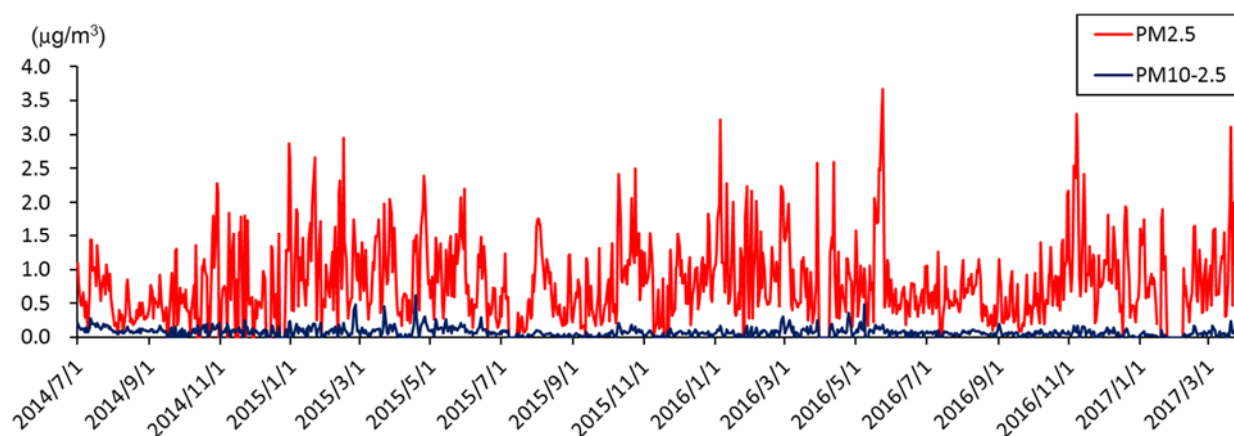
PM_{10-2.5}中0.09 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。PM_{2.5}中の濃度は3～5月と11月に高濃度となることが多かったが、PM_{10-2.5}中の濃度は年間を通して低かった。 ΔH^+ の一日平均濃度の平均値は、PM_{2.5}中7.5 nmol/m^3 、であり、3～5月に高濃度となるが多かった。PM_{10-2.5}中では-2.2 nmol/m^3 であり、年間を通してほとんどマイナスの値であった。



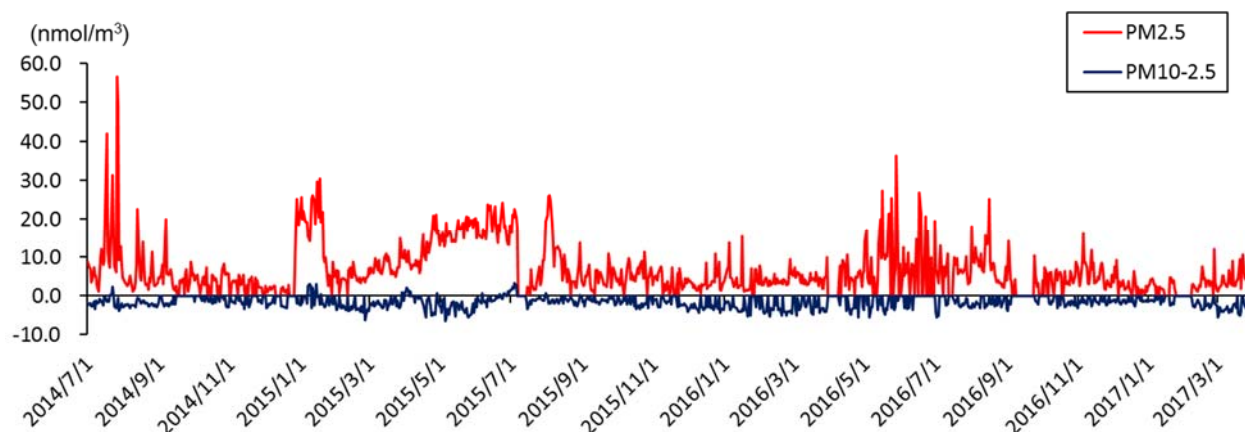
図(1)-9 姫路市におけるPM_{2.5}及びPM_{10-2.5}中の硝酸イオン濃度（日平均値）の推移



図(1)-10 姫路市におけるPM_{2.5}及びPM_{10-2.5}中の硫酸イオン濃度（日平均値）の推移



図(1)-11 姫路市におけるPM_{2.5}及びPM_{10-2.5}中の水溶性有機化合物濃度（日平均値）の推移



図(1)-12 姫路市におけるPM_{2.5}及びPM_{10-2.5}中の水素イオン濃度（日平均値）の推移

表(1)-1 大気中粒子状物質の粒径別質量及び成分濃度の日平均値

	N	平均	標準偏差	最大	最小
PM _{2.5} (μg/m ³)	972	12.6	6.6	39.2	1.5
PM _{10-2.5} (μg/m ³)	972	8.9	6.1	72.2	0
OBC (μg/m ³)	972	0.34	0.26	1.39	0
PM _{2.5} 中化学成分					
NO ₃ ⁻ (nmol/m ³)	929	19.2	17.1	121.0	1.0
SO ₄ ²⁻ (nmol/m ³)	909	36.3	24.4	164.6	0.3
WSOC (μg/m ³)	929	0.86	0.56	3.67	0.05
ΔH ⁺ (nmol/m ³)	872	7.5	6.4	56.7	0.3
PM _{10-2.5} 中化学成分					
NO ₃ ⁻ (nmol/m ³)	881	13.2	8.8	61.4	0
SO ₄ ²⁻ (nmol/m ³)	862	8.1	4.7	21.0	0
WSOC (μg/m ³)	881	0.09	0.06	0.63	0
ΔH ⁺ (nmol/m ³)	692	-2.2	1.4	3.3	-6.4

（３）解析結果

１）PM_{2.5}質量及び主要化学成分濃度と週単位の気管支喘息発作との関連

大気中PM_{2.5}、PM_{10-2.5}、OBC及び粒径別主要化学成分の発作前1週間の平均値及び1日平均値の前週内の最大値と喘息発作数との関連について、気温、湿度等の影響を調整した喘息発作リスク比（全期間、全年齢）を表(1)-2に示した。

PM_{2.5}濃度についての前週平均値の四分位範囲（5.2μg/m³）増加当たり喘息発作リスク比は1.02 [95%信頼区間：0.98, 1.05]、1日平均値の前週内最大値の四分位範囲（10.3μg/m³）増加当たりのリスク比は1.00 [95%信頼区間：0.97, 1.03]であり、いずれも統計学的に有意ではなかった。PM_{10-2.5}、OBC及び粒径別の主要化学成分のいずれについても、前週の平均値または1日平均値の前週内最大値が増加すると喘息発作が有意に増加するという関連性は認められなかった。

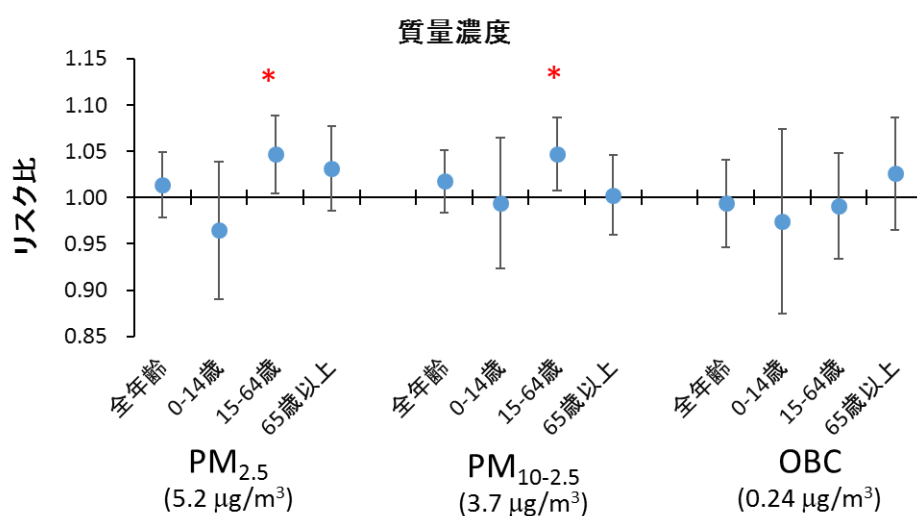
表(1)-2 大気中粒子状物質及び粒径別主要成分と喘息発作との関連（全期間、全年齢）

	前週の平均値				p値	1日平均値の前週内最大値				p値
	IQR	リスク比	95%信頼区間			IQR	リスク比	95%信頼区間		
PM _{2.5} (μg/m ³)	5.2	1.02	0.98	1.05	0.343	8.7	1.00	0.97	1.03	0.995
PM _{10-2.5} (μg/m ³)	3.7	1.02	0.99	1.05	0.147	6.7	1.01	0.99	1.03	0.336
OBC (μg/m ³)	0.24	0.99	0.95	1.04	0.715	0.37	0.99	0.95	1.02	0.488
PM _{2.5} 中の成分										
NO ₃ ⁻ (nmol/m ³)	18.1	0.99	0.94	1.04	0.801	31.2	0.99	0.94	1.03	0.481
SO ₄ ²⁻ (nmol/m ³)	22.1	1.00	0.96	1.05	0.827	42.0	1.00	0.96	1.04	0.965
WSOC (μg/m ³)	0.54	1.02	0.98	1.05	0.399	0.76	1.01	0.98	1.04	0.665
ΔH ⁺ (nmol/m ³)	4.5	1.02	1.00	1.04	0.106	9.2	1.01	0.98	1.03	0.582
PM _{10-2.5} 中の成分										
NO ₃ ⁻ (nmol/m ³)	7.9	1.02	0.99	1.06	0.203	12.9	1.02	0.98	1.05	0.359
SO ₄ ²⁻ (nmol/m ³)	6.1	0.97	0.92	1.01	0.165	5.5	0.98	0.94	1.02	0.263
WSOC (μg/m ³)	0.05	1.02	0.99	1.05	0.308	0.10	1.02	0.99	1.05	0.265
ΔH ⁺ (nmol/m ³)	1.2	1.01	0.98	1.04	0.476	1.3	1.01	0.98	1.04	0.364

各汚染物質濃度の四分位範囲（IQR）増加当たりの喘息発作リスク比

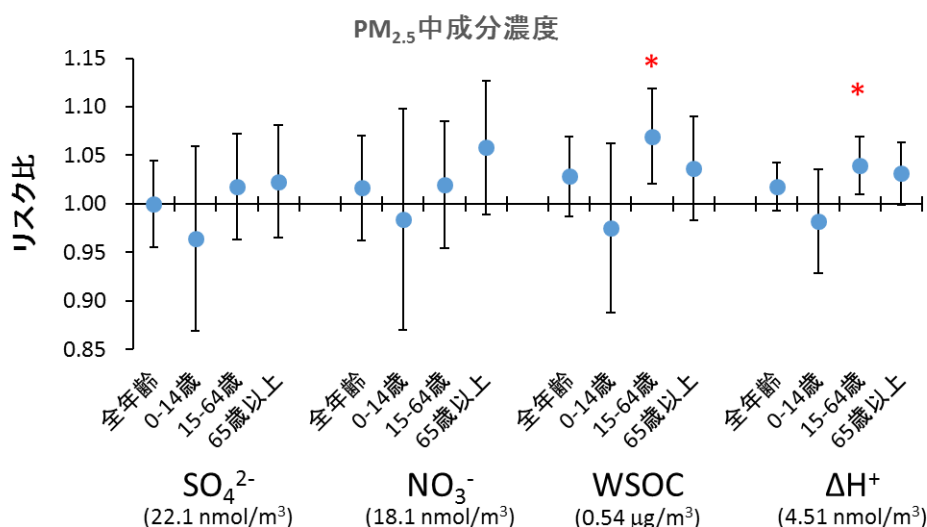
大気中PM_{2.5}、PM_{10-2.5}、OBC濃度の週平均値と喘息発作との関連を年齢別に図(1)-13に示した。全年齢ではいずれも有意な関連は認められなかった。年齢別にみると、PM_{2.5}についてのリスク比は0～14歳では1よりも小さかったが、15～64歳、65歳以上では1よりも大きかった。15～64歳におけるリスク比は、PM_{2.5}の四分位範囲濃度（5.2μg/m³）増加当たり1.05 [95%信頼区間：1.01, 1.09]と有意に大きく、PM_{2.5}濃度が上昇すると喘息発作が増加するという関連性が示された。PM_{10-2.5}についても結果はほぼ同様であり、15～64歳においてはリスク比が1.05 [95%信頼区間：1.01, 1.09]

（PM_{10-2.5}濃度の四分位範囲濃度（3.7μg/m³）増加当たり）と有意であった。OBCについては、全年齢層で有意な関連はみられなかった。



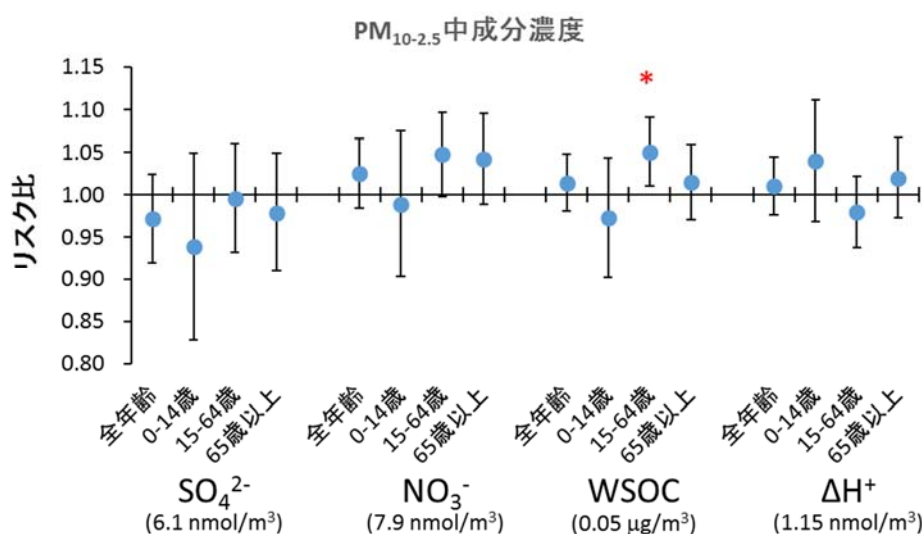
図(1)-13 粒子状物質濃度の週平均値の四分位範囲増加による喘息発作リスク比と95%信頼区間（年齢別；気温、湿度、気圧、日照時間、季節、年度の影響を調整。*は有意(p<0.05)に高いことを示す。）

PM_{2.5}中の主要化学成分濃度と喘息発作との関連を年齢別に図(1)-14に示した。全年齢ではいずれも有意な関連は認められなかった。年齢別にみると、いずれの成分についても0～14歳でのリスク比は1よりも小さかったが、15～64歳、65歳以上では1よりも大きかった。15～64歳では、WSOC及び ΔH^+ についてのリスク比がそれぞれ四分位範囲濃度増加当たり1.07 [95%信頼区間: 1.02, 1.12]、1.04 [95%信頼区間: 1.01, 1.07]と1よりも有意に大きく、PM_{2.5}中のこれらの化学成分濃度が上昇すると15～64歳の喘息発作が増加することが示唆された。



図(1)-14 PM_{2.5}中成分濃度の週平均値の四分位範囲増加による喘息発作リスク比と95%信頼区間 (年齢別; 気温、湿度、気圧、日照時間、季節、年度の影響を調整。*は有意(p<0.05)に高いことを示す。)

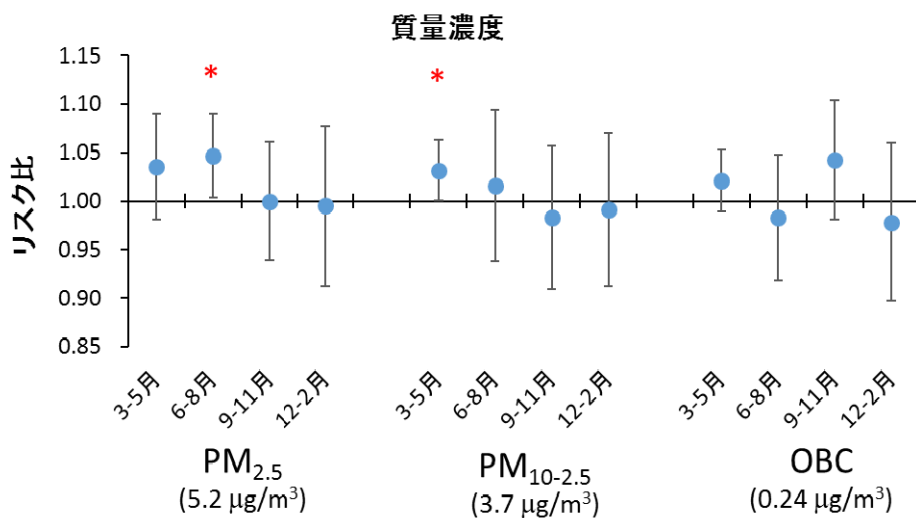
同様に、PM_{10-2.5}中の主要化学成分濃度と喘息発作との関連を年齢別に図(1)-15に示した。SO₄²⁻、NO₃⁻、 ΔH^+ との関連はすべての年齢層で有意ではなかった。しかし、PM_{10-2.5}中のWSOCについてのリスク比は、15～64歳では四分位範囲濃度増加当たり1.05 [95%信頼区間: 1.01, 1.09]と有意であり、PM_{2.5}中のWSOCについての結果と一致していた。



図(1)-15 PM_{10-2.5}中成分濃度の週平均値の四分位範囲増加による喘息発作リスク比と95%信頼区間 (年齢別; 気温、湿度、気圧、日照時間、季節、年度の影響を調整。*は有意(p<0.05)に高いことを示す。)

季節別の大気中PM_{2.5}、PM_{10-2.5}、OBC濃度の週平均値と喘息発作との関連を図(1)-16に示した。また、各濃度の増加による年齢・季節別の喘息発作リスク比は資料編の追加表(1)-1に示した。

すべての物質について、3～5月におけるリスク比は1よりも大きく、PM_{10-2.5}については四分位範囲濃度（3.7μg/m³）増加当たり1.03 [95%信頼区間：1.00-1.06]と有意であった。6～8月におけるリスク比もPM_{2.5}及びPM_{10-2.5}では1よりも大きく、PM_{2.5}については四分位範囲濃度（5.2μg/m³）増加当たり1.05 [95%信頼区間：1.00-1.09]と有意であった。一方、9～11月、12～2月においてはすべての物質について喘息発作との有意な関連はみられなかった。これらの結果は春～夏にPM_{2.5}及びPM_{10-2.5}濃度が上昇すると喘息発作が増加することを示唆している。



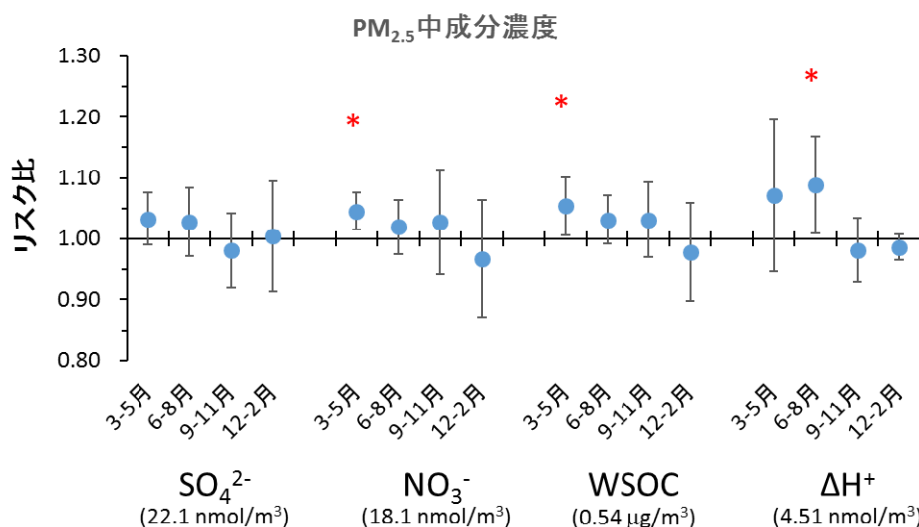
図(1)-16 粒子状物質濃度の週平均値の四分位範囲増加による喘息発作リスク比と95%信頼区間(季節別、全年齢;気温、湿度、気圧、日照時間、年度の影響を調整。*は有意(p<0.05)に高いことを示す。)

同様に、季節別のPM_{2.5}及びPM_{10-2.5}中の主要化学成分濃度と喘息発作との関連をそれぞれ図(1)-17、図(1)-18に示した。また、各化学成分濃度の増加による年齢・季節別の喘息発作リスク比は資料編の追加表(1)-2、(1)-3に示した。

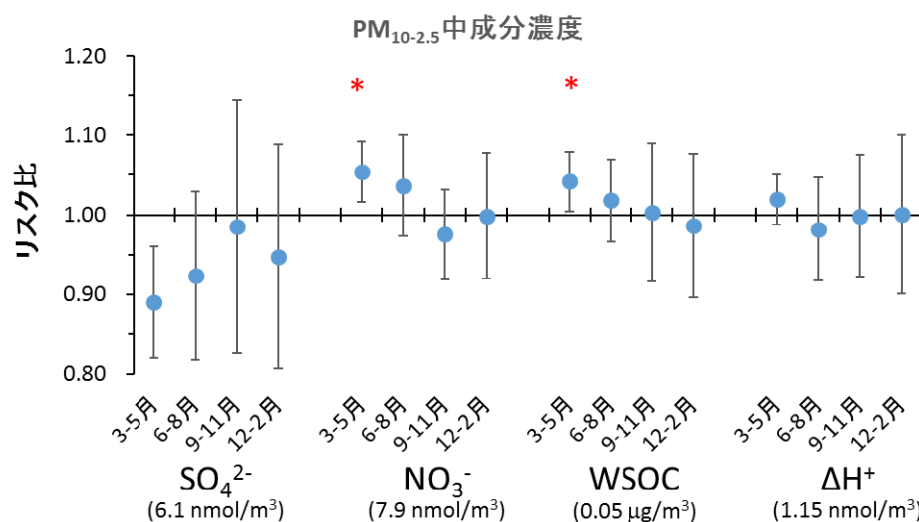
PM_{2.5}中のNO₃⁻及びWSOCについてのリスク比は、3～5月にそれぞれの四分位範囲濃度増加当たり1.05 [95%信頼区間：1.02, 1.08]、1.05 [95%信頼区間：1.01, 1.10]と1よりも有意に大きかった。また、ΔH⁺についてのリスク比は、6～8月に1.09 [95%信頼区間：1.01, 1.17]と有意に大きく、粒子の酸性度が高くなると喘息発作が増加することが示唆された。一方、9～11月、12～2月においてはすべての化学成分について有意な関連はみられなかった。

PM_{10-2.5}中の化学成分についても、3～5月にはNO₃⁻及びWSOCについてのリスク比がそれぞれの四分位範囲濃度増加当たり1.05 [95%信頼区間：1.02, 1.09]、1.04 [95%信頼区間：1.01, 1.08]と有意に大きかった。一方、SO₄²⁻についてのリスク比は、3～5月に0.89 [95%信頼区間：0.82, 0.96]と1よりも有意に小さかった。

以上の通り、粒子状物質の質量及び主要化学成分濃度と喘息発作との関連は、年齢や季節によって異なり、PM_{2.5}及びPM_{10-2.5}の質量濃度だけでなく、粒子中のNO₃⁻、WBOC、ΔH⁺等の化学成分濃度が高くなり、酸性度が増すと喘息発作が起りやすくなることが示唆された。年齢別には15～64歳で統計学的に有意な関連性が示され、季節別には3～5月及び6～8月に顕著であった。



図(1)-17 PM_{2.5}中成分濃度の週平均値の四分位範囲増加による喘息発作リスク比と95%信頼区間(季節別、全年齢; 気温、湿度、気圧、日照時間、年度の影響を調整。*は有意($p < 0.05$)に高いことを示す。)



図(1)-18 PM_{10-2.5}中成分濃度の週平均値の四分位範囲増加による喘息発作リスク比と95%信頼区間(季節別、全年齢; 気温、湿度、気圧、日照時間、年度の影響を調整。*は有意($p < 0.05$)に高いことを示す。)

2) 常時監視による大気中PM_{2.5}質量濃度と週単位の気管支喘息発作の関連

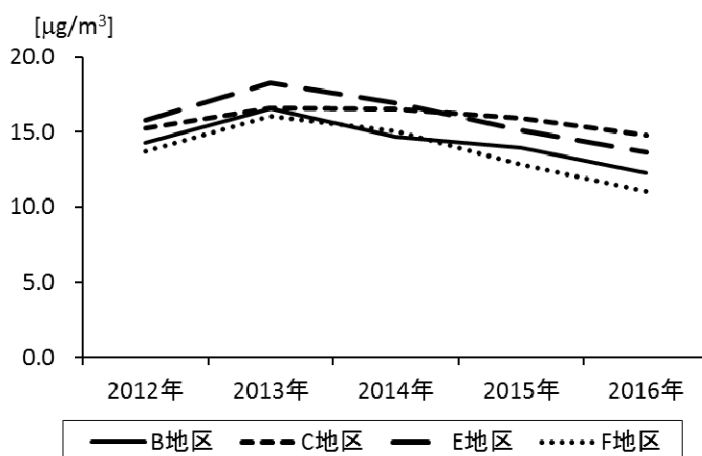
姫路市では、2012年度から市内の7か所（一般環境大気測定局5か所、自動車排出ガス測定局2か所）においてPM_{2.5}濃度の常時監視が行われている。このうち、地区別の喘息発作数との関連の解析に用いた一般局4か所における年平均値の推移を図(1)-19に示した。2012年度における全局の平均濃度は14.1 µg/m³であり、2013年度は16.6 µg/m³と上昇したが、2014年度には15.5 µg/m³とやや低下し、その後は徐々に低減傾向となっている。

2012年4月～2017年1月にこれらの4地区で報告された喘息発作数は合計30,845件（0～4歳：4,814件、5～9歳：3,548件、10～14歳：1,343件、15～64歳：12,466件、65歳以上：8,674件）であった。各地区における大気中PM_{2.5}濃度の前週の平均値及び1日平均値の前週内の最大値と喘息発作数との関連を年齢別に図(1)-20に示した。

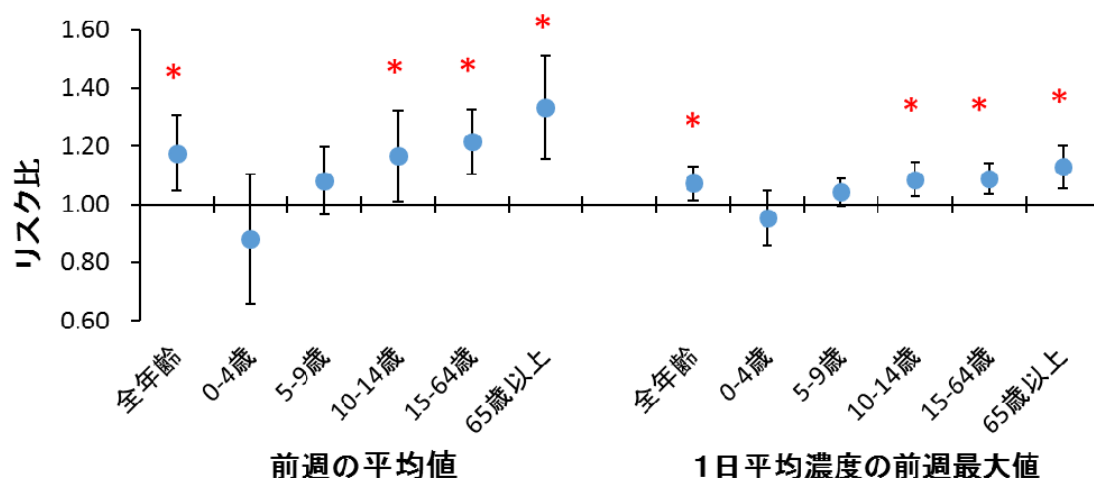
全年齢についての喘息発作リスク比は、PM_{2.5}濃度の前週の平均値が10 µg/m³増加当たり1.18 [95%信頼区間：1.01, 1.31]、1日平均値の前週内の最大値が10 µg/m³増加当たり1.07 [95%信頼区間：1.01, 1.13]であり、いずれも1よりも有意に大きく、居住地区におけるPM_{2.5}濃度が上昇すれば、喘息発作数が増加するという関連性が示された。

年齢別のリスク比は、0～4歳では1よりも小さく、5～9歳では1よりも大きい、いずれも有意ではなかった。その後

も加齢とともにリスク比が大きくなり、10歳以上では統計学的に有意であった（前週の平均値が10 µg/m³増加当たりのリスク比は、10～14歳1.17 [95%信頼区間：1.01, 1.32]、15～64歳1.21 [95%信頼区間：1.11, 1.32]、65歳以上1.33 [95%信頼区間：1.15, 1.51]）。1日平均値の前週内の最大値と喘息発作数との関連についても結果はほぼ同様であり、10歳以上では大気中PM_{2.5}濃度と喘息発作との有意な関連性が認められた。10歳未満の低年齢の小児は屋内で生活する時間が長いために、屋外で大気中PM_{2.5}に曝露する機会が少なく、その影響を受けにくいことを反映しているのかもしれない。

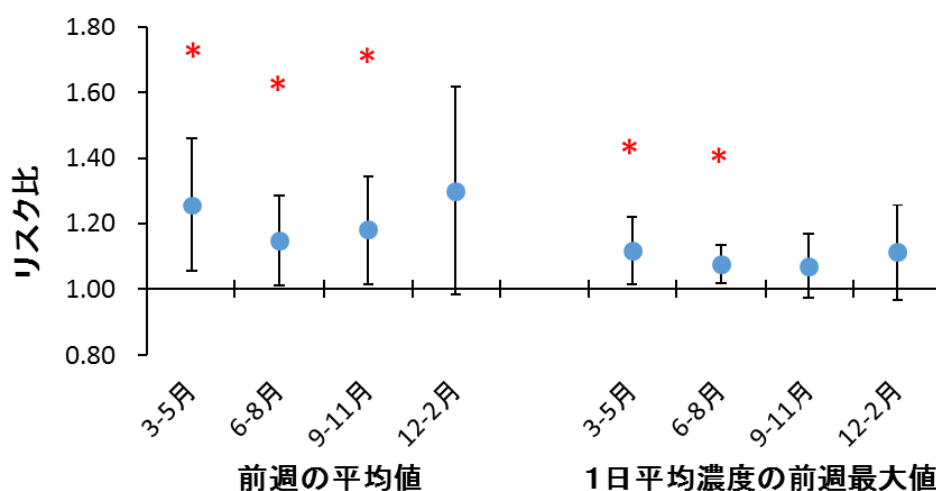


図(1)-19 姫路市における地区別PM_{2.5}濃度（年平均値）の推移



図(1)-20 各地区のPM_{2.5}濃度の増加による喘息発作リスク比と95%信頼区間（年齢別；気温、湿度、気圧、日照時間、季節、年度の影響を調整、それぞれ10 µg/m³増加当たり。
*は有意(p<0.05)に高いことを示す。）

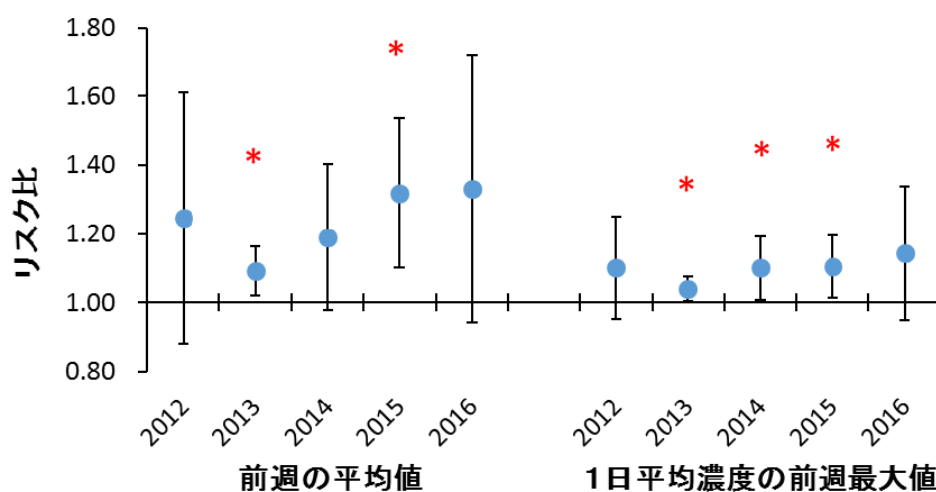
季節別の喘息発作リスク比は図(1)-21に示した。前週の平均値、1日平均値の前週内の最大値とともに、喘息発作リスク比はいずれの季節においても1よりも大きかった。前週の平均値が10 µg/m³増加当たりのリスク比は、3～5月1.26 [95%信頼区間：1.05, 1.46]、6～8月1.15 [95%信頼区間：1.01, 1.29]、9～11月1.18 [95%信頼区間：1.01, 1.35]と有意であった。12～2月のリスク比も1.30 [95%信頼区間：0.99, 1.62]と大きい、有意ではなかった。1日平均値の前週内の最大値と喘息発作数との関連についても、結果はほぼ同様であった。



図(1)-21 各地区のPM_{2.5}濃度の増加による喘息発作リスク比と95%信頼区間
(季節別；気温、湿度、気圧、日照時間、年度の影響を調整、それぞれ10 µg/m³増加当たり。
*は有意(p<0.05)に高いことを示す。)

年度別の喘息発作リスク比は図(1)-22に示した。前週の平均値、1日平均値の前週内の最大値ともに、喘息発作リスク比はいずれの年度においても1よりも大きかった。前週の平均値が10 µg/m³増加当たりのリスク比は、2013年度1.09 [95%信頼区間：1.02, 1.16]と2015年度1.32 [95%信頼区間：1.10-1.54]は有意であった。1日平均値の前週内の最大値が10 µg/m³増加当たりのリスク比は、2013年度1.04 [95%信頼区間：1.00-1.08]、2014年度1.10 [95%信頼区間：1.01, 1.19]、2015年度1.11 [95%信頼区間：1.02, 1.20]が有意であった。

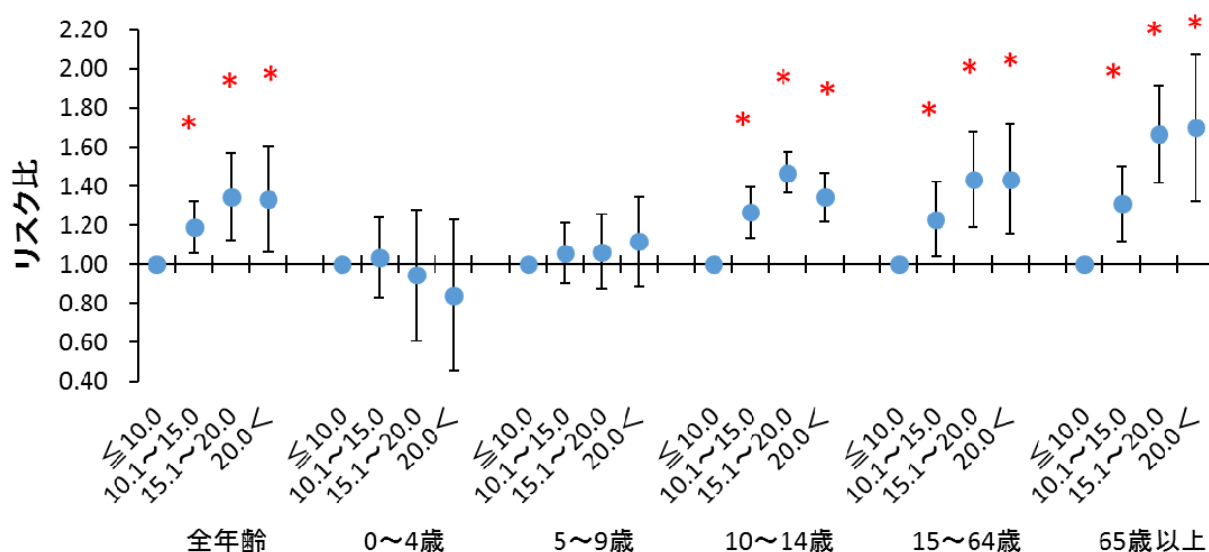
前週の平均値、1日平均値の前週内の最大値ともに、2012年度と2016年度においてもリスク比は1よりも大きかったが、信頼区間が大きく、統計学的に有意ではなかった。2012年度は、一部の地区では年度の途中からPM_{2.5}測定が開始されたため、解析対象数が限られていたことによると考えられる。2016年度についても、解析に用いたデータが2016年4月～2017年1月の10か月分に限定されていたために信頼区間が比較的大きくなったものと考えられた。



図(1)-22 各地区のPM_{2.5}濃度の増加による喘息発作リスク比と95%信頼区間
(年度別；気温、湿度、気圧、日照時間、年度の影響を調整、それぞれ10 µg/m³増加当たり。
*は有意(p<0.05)に高いことを示す。)

次に、各地区のPM_{2.5}濃度の前週の平均値を4つの濃度帯（10.0 µg/m³以下／10.1～15.0 µg/m³／15.1～20.0 µg/m³／15.0 µg/m³超）に分類し、最低濃度帯（10.0 µg/m³以下）の週に対する各濃度帯の喘息発作リスク比を図(1)-23に示した。

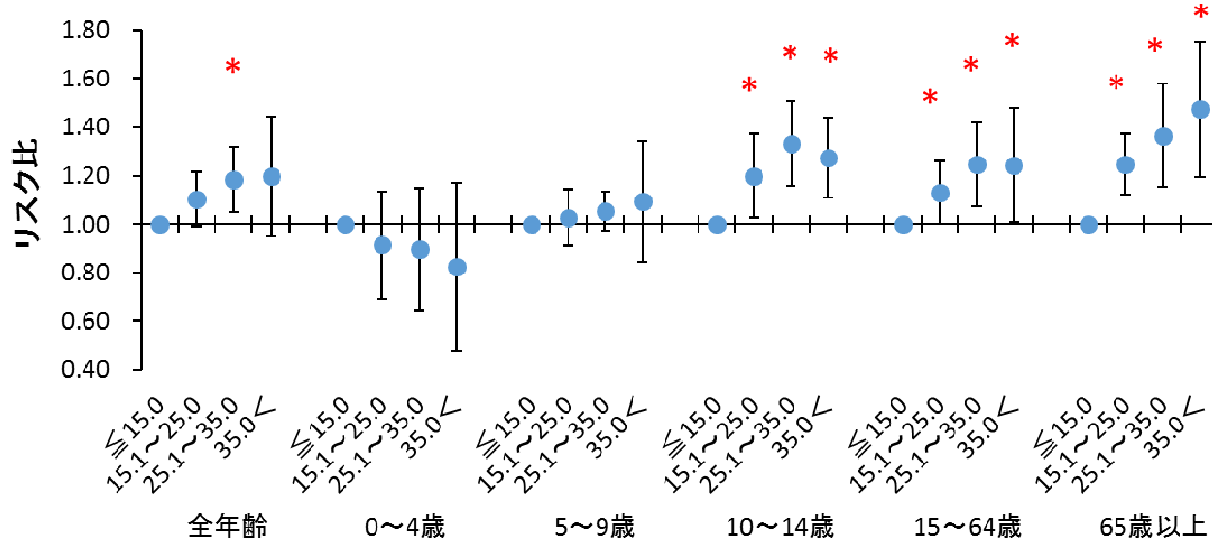
全年齢では、PM_{2.5}の前週の平均値が高くなると喘息発作のリスクは大きくなり、10.1～15.0 µg/m³では1.19 [95%信頼区間：1.06, 1.32]、15.1～20.0 µg/m³では1.34 [95%信頼区間：1.12, 1.57]、15.0 µg/m³を超えると1.34 [95%信頼区間：1.06, 1.61]といずれも有意であった。年齢別にみると、0～4歳および5～9歳ではいずれの濃度帯でも喘息発作の増大は認められなかったが、10歳以上ではPM_{2.5}の濃度の上昇とともに喘息発作リスクの有意な増大が認められた。わが国におけるPM_{2.5}の環境基準の長期基準では年平均値が15 µg/m³以下とされているが、それよりも低い10.1～15.0 µg/m³の濃度帯においても10歳以上では喘息発作が起こりやすくなることが示された。



図(1)-23 各地区のPM_{2.5}濃度（前週の平均値）別の喘息発作リスク比と95%信頼区間
前週の平均値が10 µg/m³以下の週を1とする各濃度帯のリスク比を示した。
(年齢別；気温、湿度、気圧、日照時間、地区、季節、年度の影響を調整。
*は有意(p<0.05)に高いことを示す。)

同様に、各地区のPM_{2.5}濃度の1日平均濃度の前週最大値を4つの濃度帯（15.0 µg/m³以下／15.1～25.0 µg/m³／25.1～35.0 µg/m³／35.0 µg/m³超）に分類し、最低濃度帯（15.0 µg/m³以下）の週に対する各濃度帯の喘息発作リスク比を図(1)-24に示した。

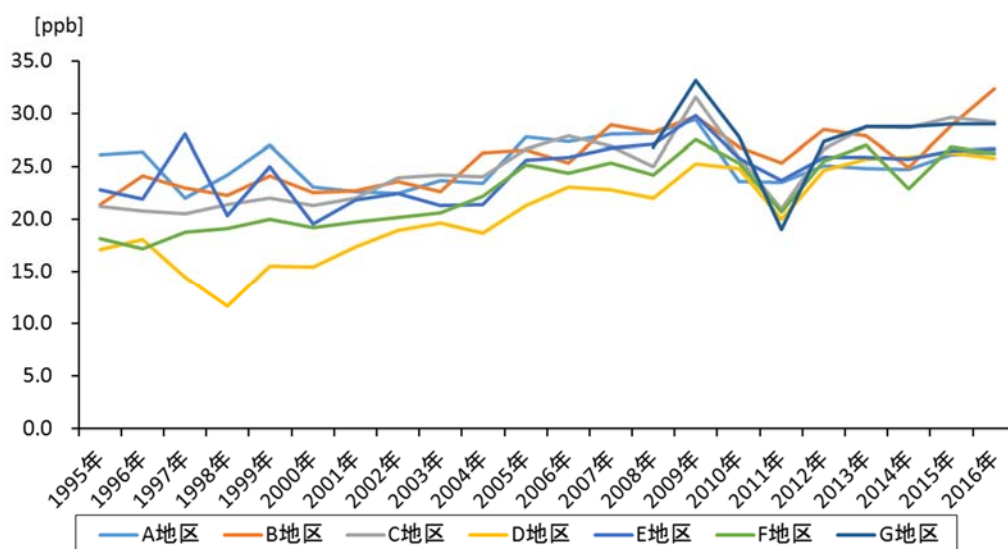
全年齢では、PM_{2.5}の1日平均濃度の前週最大値が高くなると喘息発作のリスクは大きくなり、25.1～35.0 µg/m³では1.18 [95%信頼区間：1.05, 1.32]と有意であった。35.0 µg/m³を超えたときのリスク比は1.20 [95%信頼区間：0.95, 1.45]と大きかったが、有意ではなかった。1日平均濃度が35.0 µg/m³を超えた日が非常に少なかったために、統計学的には有意にならなかったと考えられる。年齢別にみると、0～4歳および5～9歳ではいずれの濃度帯でも喘息発作の増大は認められなかったが、10歳以上ではPM_{2.5}の濃度の上昇とともに喘息発作リスクが有意に増大し、いずれの濃度帯におけるリスク比も有意であった。わが国におけるPM_{2.5}の環境基準の短期基準では日平均値が35 µg/m³以下とされているが、それよりも低い15.1～35.0 µg/m³の濃度帯においても10歳以上では喘息発作が起こりやすくなることが示唆された。



図(1)-24 各地区のPM_{2.5}濃度（1日平均濃度の前週最大値）別の喘息発作リスク比と95%信頼区間
 1日平均濃度の前週最大値が15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下の週を1とする各濃度帯のリスク比を示した。
 （年齢別；気温、湿度、気圧、日照時間、地区、季節、年度の影響を調整。
 *は有意($p<0.05$)に高いことを示す。）

3) 常時監視による大気中O₃濃度と週単位の気管支喘息発作の関連

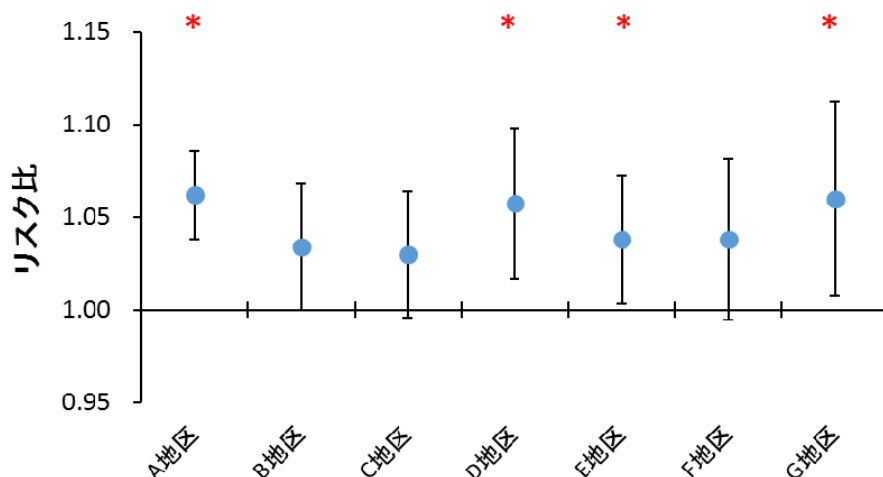
1995～2016年度の22年間における姫路市内における一般環境大気測定局における光化学オキシダント（Ox）濃度の年平均値の推移を図(1)-25に示した（姫路市内におけるOxの測定には紫外線吸収法が用いられており、実際に測定されているのはO₃であるため、以下はO₃と表す）。年度により多少の変動はみられ、2011年度、2014年度にはやや低下していたが、全体としては経年的に増大傾向であった。また、1990年代は地区間の濃度に差があり、D地区がやや低かったが、2000年度以降には地区間の差が小さくなっている。



図(1)-25 姫路市における地区別O₃濃度（年平均値）の推移

1995～2016度の22年間に姫路市内の医療機関より報告された喘息発作数は合計251,280件（0-14歳：120,048件、15-64歳：83,098件、65歳以上：48,134件）であった（図(1)-6）。

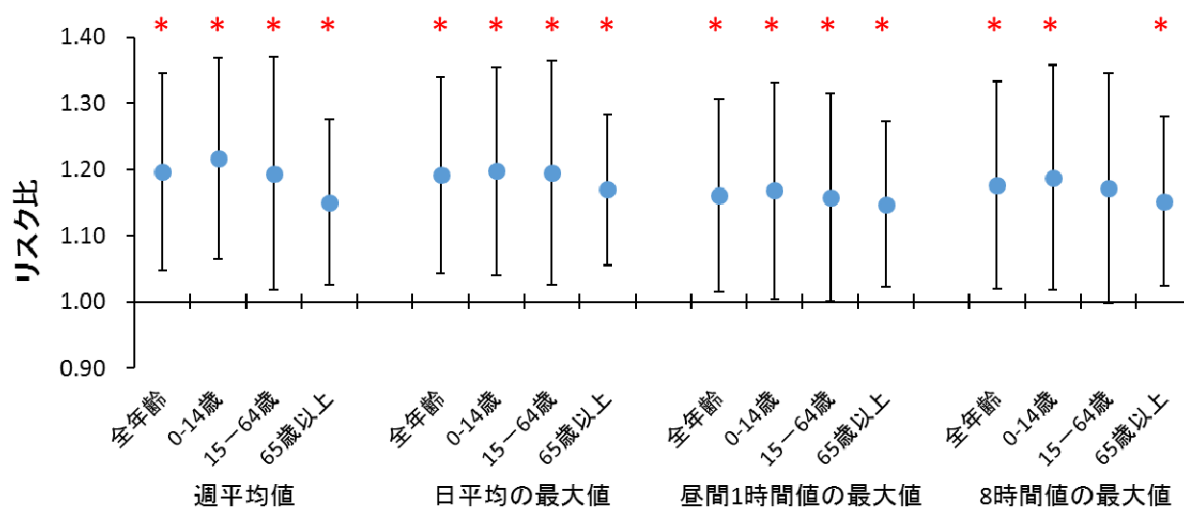
地区別のO₃濃度（前週の週平均値）と喘息発作との関連を図(1)-26に示した。大気中O₃濃度の前週の平均値が四分位範囲濃度（12.0 ppb）増加したときの各地区における喘息発作リスク比は1.03～1.06であり、すべての地区で1より大きく、A、D、E、G地区では有意であった。リスク比が最も大きいのはA地区の1.06 [95%信頼区間：1.04, 1.09]であったが、いずれの地区においてもO₃濃度が上昇すると喘息発作は増加する傾向にあることが示された。



図(1)-26 地区別のO₃濃度（前週の平均値）と喘息発作との関連
四分位範囲濃度（12.0 ppb）増加当たりのリスク比と95%信頼区間
（気温、湿度、気圧、日照時間、NO₂、SPM濃度、季節、年度の影響を調整。
*は有意(p<0.05)に高いことを示す。）

O₃の評価指標として、1週間の平均値、1日平均の週内最大値、昼間1時間値の週内最大値、8時間値の週内最大値の4種を用いて、翌週における年齢別の喘息発作との関連を図(1)-27に示した。結果はそれぞれの指標についての四分位範囲濃度（週平均値: 12.0 ppb、日平均の最大値: 14.6ppb、昼間1時間値の最大値: 30.0 ppb、8時間値の最大値: 23.6 ppb）増加当たりの喘息発作リスク比とその95%信頼区間を示した。

全年齢では、いずれの指標についてのリスク比も1よりも大きく、統計学的に有意であった（それぞれの四分位範囲濃度増加当たりのリスク比は、1週間の平均値1.20 [95%信頼区間：1.05, 1.35]、1日平均の週内最大値1.19 [95%信頼区間：1.04, 1.34]、昼間1時間値の週内最大値1.16 [95%信頼区間：1.02, 1.31]、8時間値の週内最大値1.18 [95%信頼区間：1.02, 1.33]）。年齢別にみると、3種の指標のいずれにおいても0～14歳におけるリスク比が最も大きく、加齢とともにやや小さくなる傾向が見られたが、いずれも1.15を超えており、15～64歳の8時間値の週内最大値についてのリスク比以外はすべて統計学的に有意であった。以上より、O₃濃度の上昇と喘息発作との関連は年齢による差がほとんどないと考えられた。

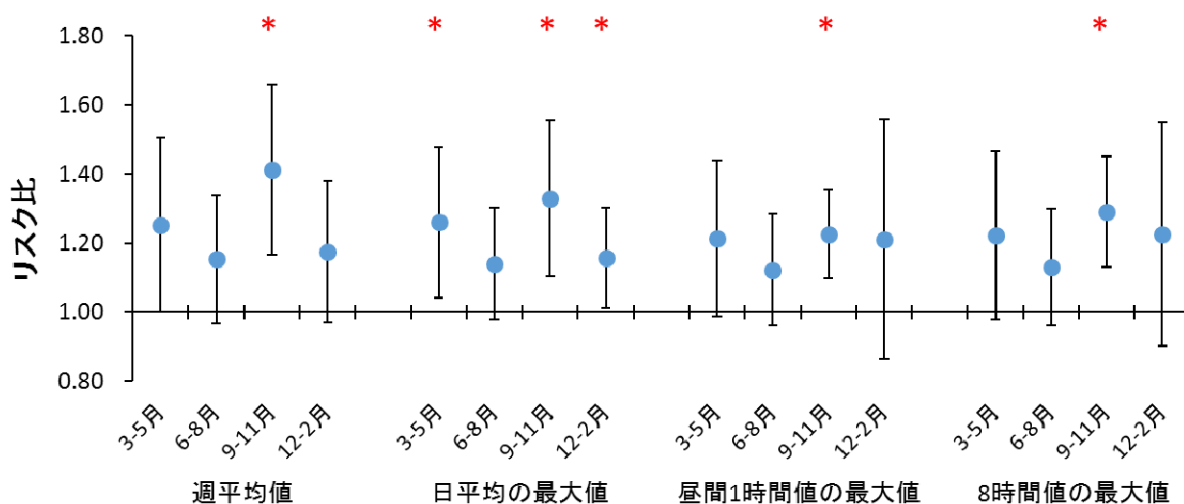


図(1)-27 O₃濃度の各種指標と喘息発作との関連（年齢別）

各指標の四分位範囲濃度（週平均値: 12.0 ppb、日平均の最大値: 14.6ppb、昼間1時間値の最大値: 30.0 ppb、8時間値の最大値: 23.6 ppb）増加当たりのリスク比と95%信頼区間（気温、湿度、気圧、日照時間、NO₂、SPM濃度、季節、年度の影響を調整。

*は有意(p<0.05)に高いことを示す。）

4種のO₃の評価指標と季節別の喘息発作との関連を図(1)-28に示した。いずれの指標についてのリスク比も、すべての季節に1よりも大きかったが、9～11月のリスク比が最も大きく、次いで3～5月であった。6～8月と12～2月のリスク比はやや小さかった。9～11月におけるリスク比は、すべての指標について有意であり、最も大きかったのは週平均値の四分位範囲濃度（12.0 ppb）増加当たり1.41 [95%信頼区間：1.17, 1.66]であった。日平均の最大値については3～5月と12～2月のリスク比もそれぞれ1.26 [95%信頼区間：1.04, 1.48]で、1.16 [95%信頼区間：1.01, 1.30]と有意であった。



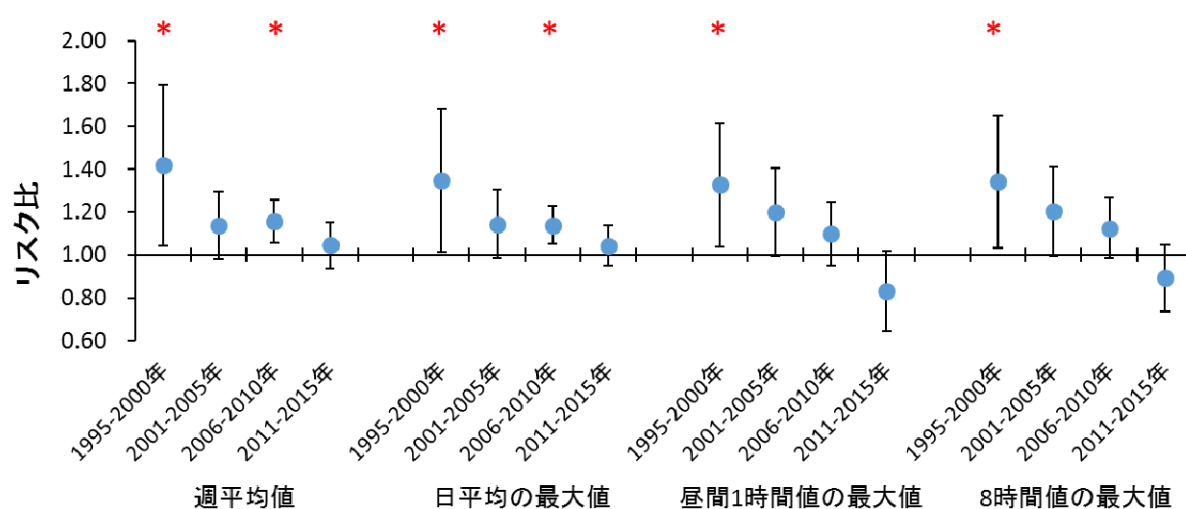
図(1)-28 O₃濃度の各種指標と喘息発作との関連（季節別）

各指標の四分位範囲濃度（週平均値: 12.0 ppb、日平均の最大値: 14.6ppb、昼間1時間値の最大値: 30.0 ppb、8時間値の最大値: 23.6 ppb）増加当たりのリスク比と95%信頼区間（気温、湿度、気圧、日照時間、NO₂、SPM濃度、年度の影響を調整。

*は有意(p<0.05)に高いことを示す。）

対象期間を4期（1995～2000年／2001～2005年／2006～2010年／2011～2015年）に分けて、4種のO₃の評価指標と喘息発作との関連を図(1)-29に示した。いずれの指標についてのリスク比も、1995～2000年には四分位範囲濃度増加当たり1.33～1.42と有意に大きかったが、その後はすべての指標について経年的に低下傾向となっていた。週平均値、日平均値の最大値についてのリスク比は2006～2010年にもそれぞれ1.16 [95%信頼区間：1.06, 1.26]、1.14 [95%信頼区間：1.05, 1.23]と有意に1よりも大きかったが、その他には有意なリスク比は認められなかった。

この結果は、大気中O₃濃度が喘息発作に与える影響が徐々に小さくなっていることを示唆している。喘息に対する発作予防のための治療の効果などにより、影響が小さくなっているのかもしれないが、近年でも大気中PM_{2.5}の喘息への影響は認められていることから、複数の大気汚染物質の相互作用について検討する必要があると考えられる。



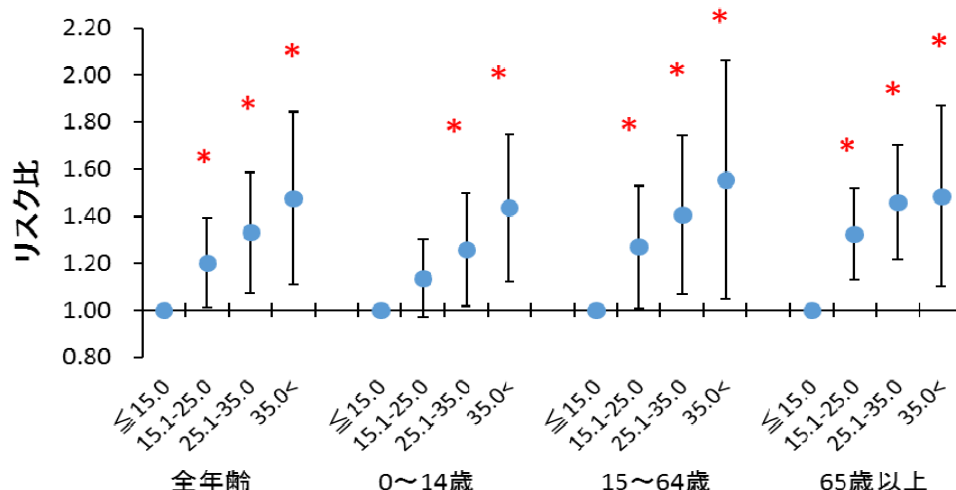
図(1)-29 O₃濃度の各種指標と喘息発作との関連（時期別）

各指標の四分位範囲濃度（週平均値: 12.0 ppb、日平均の最大値: 14.6ppb、昼間1時間値の最大値: 30.0 ppb、8時間値の最大値: 23.6 ppb）増加当たりのリスク比と95%信頼区間（気温、湿度、気圧、日照時間、NO₂、SPM濃度、季節、年度の影響を調整。

*は有意(p<0.05)に高いことを示す。）

次に、各地区のO₃濃度の前週の平均値を4つの濃度帯（15.0 ppb以下／15.1～25.0 ppb／25.1～35.0 ppb／35.0 ppb超）に分類し、最低濃度帯（15.0 ppb以下）の週に対する各濃度帯の喘息発作リスク比を図(1)-30に示した。

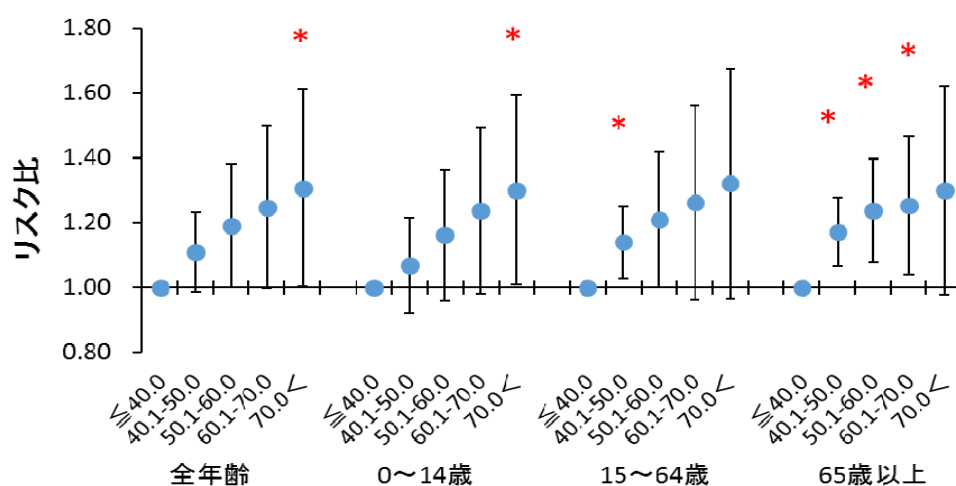
全年齢では、O₃の前週の平均値が高くなるとともに喘息発作のリスクは大きくなり、15.1～25.0 ppbでは1.20 [95%信頼区間：1.01, 1.39]、25.1～35.0 ppbでは1.33 [95%信頼区間：1.08, 1.58]、35.0 ppbを超えると1.48 [95%信頼区間：1.11, 1.85]であり、いずれも有意であった。年齢別にみると、15～64歳、65歳以上ではO₃濃度が15.1 ppb以上で喘息発作の有意な増大が認められた。0～14歳では15.1～25.0 ppbでは有意ではなかったが、25.1 ppb以上になると喘息発作リスクは有意に1よりも大きかった。



図(1)-30 各地区のO₃濃度（前週の平均値）別の喘息発作リスク比と95%信頼区間
前週平均値が15 ppb以下の週を1とする各濃度帯のリスク比を示した。
（年齢別：気温、湿度、気圧、日照時間、NO₂、SPM濃度、地区、季節、年度の影響を調整。
*は有意(p<0.05)に高いことを示す。）

同様に、O₃濃度の週内の8時間最大値により5区分（40.0 ppb以下／40.1～50.0 ppb／50.1～60.0 ppb／60.1～70.0 ppb／70.0 ppb超）に分類し、濃度が最も低い40.0 ppb以下の週に対する各濃度帯の喘息発作リスク比を図(1)-31に示した。

全年齢では、O₃の前週の8時間最大値の上昇に伴って喘息発作のリスクは大きくなり、70.0 ppbを超えると1.31 [95%信頼区間：1.00, 1.61]と有意であった。年齢別には、いずれの年齢層でもO₃濃度の上昇に伴って喘息発作リスク比は大きくなる傾向が認められ、0～14歳では70.0 ppb超、15～64歳では40.1～50.0 ppb、65歳以上では40.1～70.0 ppbで有意であった。米国のO₃に係る環境基準である8時間最大値が70 ppbを超えると喘息発作が増加することが示されたが、観察期間内に70 ppbを超えることは少なかったため、15歳以上では統計学的には有意にならなかったと考えられる。



図(1)-31 各地区のO₃濃度（前週の8時間最大値）別の喘息発作リスク比と95%信頼区間
前週の8時間最大値が40 ppb以下の週を1とする各濃度帯のリスク比を示した。
（年齢別：気温、湿度、気圧、日照時間、NO₂、SPM濃度、地区、季節、年度の影響を調整。
*は有意(p<0.05)に高いことを示す。）

4) 日単位の気管支喘息による受診との関連

大気環境中粒子状物質の質量及び主要化学成分濃度の測定を実施した2014年7月～2016年3月の間の解析対象（年末年始・土日祝を除いた平日夜間（21～6時）の受診者数）は824例であった。年・月別の対象者数を表(1)-3に示した。このうち、538名が男子であった。年齢別には、0～1歳が80名、2～5歳が439名、6～14歳が305名であった（表(1)-4）。

表(1)-3 解析対象者数（年・月別の受診者数）

	2014年	2015年	2016年	合計
1月	-	12	24	36
2月	-	19	13	32
3月	-	29	22	51
4月	-	35	-	35
5月	-	50	-	50
6月	-	27	-	27
7月	22	41	-	63
8月	44	44	-	88
9月	45	99	-	144
10月	75	83	-	158
11月	51	36	-	87
12月	17	36	-	53
合計	254	511	59	824

表(1)-4 解析対象者数（性・年齢別）

	0～1歳	2～5歳	6～14歳	合計
性別				
男性	54	275	209	538
女性	26	164	96	286
合計	80	439	305	824

（平日夜間受診者数、年末年始、土日祝除く）

（平日夜間受診者数、年末年始、土日祝除く）

表(1)-5 対象期間中の大気汚染物質曝露量（2014年7月～2016年3月）

	単位	平均	標準偏差	最小	最大
PM _{2.5}	μg/m ³	18.7	9.5	3.2	49.5
硫酸イオン	nmol/m ³	38.8	26.1	0.3	147.9
硝酸イオン	nmol/m ³	22.1	18.8	1.4	121.0
水溶性有機炭素	μgC/m ³	0.9	0.6	0.1	3.2
水素イオン	nmol/m ³	8.5	7.1	0.3	56.7
PM _{10-2.5}	μg/m ³	9.8	6.1	-0.2	64.2
硫酸イオン	nmol/m ³	7.5	4.3	-0.4	20.3
硝酸イオン	nmol/m ³	14.3	9.4	-0.1	61.5
水溶性有機炭素	μgC/m ³	0.1	0.1	0.0	0.6
水素イオン	nmol/m ³	-2.0	1.5	-6.4	3.3
NO ₂	ppb	11.0	5.6	2.0	34.0
O ₃	ppb	28.4	10.2	3.0	65.0

2014年7月1日から2016年3月31日までのPM_{2.5}とPM_{10-2.5}の成分濃度、共存大気汚染物質である二酸化窒素（NO₂）及びオゾン（O₃）の平均値、最大値、最小値を表(1)-5に示した。

また、粒子状物質（質量濃度及び主要化学成分濃度）間の相関を表(1)-6に示した。PM_{2.5}の成分に関しては、PM_{2.5}質量濃度と硫酸イオン濃度、PM_{2.5}質量濃度と水溶性有機炭素濃度、水溶性有機炭素濃度と硝酸イオン濃度の相関係数が、それぞれ0.87、0.73、0.72であり、相互に相関が高かった。PM_{10-2.5}の成分に関しては、PM_{10-2.5}質量濃度と硝酸イオン濃度、PM_{10-2.5}質量濃度と水溶性有機炭素、水溶性有機炭素濃度と硝酸イオン濃度の相関係数が、それぞれ0.71、0.74、0.76であり、相互に相関が高かった。

表(1)-6 大気汚染物質間（成分間）の相関（ピアソンの相関係数）

	PM _{2.5}				質量	PM _{10-2.5}				NO ₂ (測定局)	O ₃ (測定局)
	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	WSOC	ΔH ⁺		SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	WSOC	ΔH ⁺		
PM _{2.5} （質量）	0.87	0.63	0.73	0.50	0.48	0.17	0.70	0.63	0.04	0.57	0.06
SO ₄ ²⁻		0.39	0.58	0.52	0.31	0.22	0.55	0.45	0.12	0.34	0.24
NO ₃ ⁻			0.72	0.25	0.29	0.34	0.62	0.47	-0.19	0.68	-0.19
WSOC				0.28	0.35	0.20	0.64	0.63	-0.25	0.59	0.05
ΔH ⁺					0.12	0.10	0.32	0.25	0.29	0.14	0.29
PM _{10-2.5} （質量）						0.26	0.71	0.74	-0.23	0.31	0.02
SO ₄ ²⁻							0.27	0.24	-0.28	0.30	0.06
NO ₃ ⁻								0.76	-0.13	0.55	0.10
WSOC									-0.28	0.46	0.09
ΔH ⁺										-0.26	0.00
NO ₂ （測定局）											-0.33

PM_{2.5}とその成分と喘息による受診との関連性の解析の結果を表(1)-7に示した（気温、湿度、気圧、風速、日照時間、NO₂およびO₃で調整）。PM_{2.5}濃度と喘息発作による救急受診との有意な関連性は認められなかった。ただし、PM_{2.5}の硫酸イオン濃度成分（3日平均）が10nmol/m³増加ごとの喘息による救急受診のオッズ比は0.94 [95%信頼区間: 0.89, 0.99]と有意な関連性が認められた。また、PM_{2.5}の水素イオン濃度成分（前日）が10nmol/m³増加ごとの喘息による救急受診のオッズ比は1.23 [95%信頼区間: 1.00, 1.50]と有意な関連性が認められた。

NO₂およびO₃と喘息による受診との関連性の解析の結果を表(1)-8に示した（気温、湿度、気圧、風速、日照時間、および、PM_{2.5}質量濃度及び成分濃度で調整）。NO₂、O₃とも、一貫して点推定値はプラスの方向にあり（濃度が高いと受診が増加する方向）、複数のモデルで統計学的に有意な関連性が検出された。

今回の解析は2014年7月～2016年3月までの21ヶ月間に得られたデータにより実施したものであった。NO₂やO₃との関連性においては、既存知見を支持する形で一貫して喘息による受診リスクの増加がみられたが、PM_{2.5}やその成分との関連性については点推定値がプラス、マイナス双方にあり、検討の余地が残される結果となった。これには検定の多重性を考慮する必要性も含まれており、今回検出された結果に対しては偶然による検出の可能性を否定できない。

表(1)-7 受診当日及び前日のPM_{2.5}質量及び主要化学成分濃度との関連

項目	単位量	時期	相対危険度	95%信頼区間	
PM _{2.5}	10 µg/m ³	当日	0.96	0.84	1.10
		前日	1.01	0.88	1.15
		3日平均	0.91	0.76	1.09
硫酸イオン	10 nmol/m ³	当日	0.98	0.94	1.02
		前日	0.98	0.94	1.02
		3日平均	0.94	0.89	0.99
硝酸イオン	10 nmol/m ³	当日	1.04	0.95	1.14
		前日	1.04	0.95	1.14
		3日平均	0.99	0.88	1.12
水溶性有機炭素	1 µg/m ³	当日	0.88	0.70	1.11
		前日	1.27	0.99	1.63
		3日平均	1.08	0.81	1.43
水素イオン	10 nmol/m ³	当日	1.00	0.81	1.22
		前日	1.23	1.00	1.50
		3日平均	1.05	0.82	1.34

研究デザイン上の問題としては、喘息発作は薬剤の予防的服用等によりコントロールされていることもあり、大気汚染との関連性を検討する上では薬剤服用の影響を取り除くことが望ましいと考えられる。しかし、今回の研究においては、休日・夜間急病センターに受診した患者を対象としたため、それらのデータを収集することは困難であった。そのため、救急受診をアウトカムとした本研究においては、たまたま薬剤を飲み忘れたときに喘息発作による救急受診が観測された可能性も否定できない。また、対象者選択の問題（救急受診をする患者は、喘息のコントロールが不良である者が多いと考えられる）、曝露評価の問題（1か所の一般環境大気測定局で測定された大気汚染物質濃度や気象要因をすべての対象者の曝露値としていること）などがある。さらに、ケースクロスオーバー法の限界として、晴れの日と雨の日による屋外活動状況の違い等の行動様式の変化等については、それらの要因を測定していない限り勘案して解析することができないという問題もある。

統計解析上さらに検討が必要な事項としては、PM_{2.5}成分の酸性・アルカリ性を考慮した解析を行うなど、共変量の影響についてもさらに検討するとともに、季節別の解析を行う必要性（例数を十分に得た上で）があげられた。

上記のとおり課題は多いが、同様の先行研究で示されるように、今後はさらに蓄積されたデータを用いて解析を行なっていくことによりPM_{2.5}の成分と健康影響の関連性の解明につながるものとする。

表(1)-8 NO₂およびO₃濃度と喘息による受診との関連性

回帰モデルの説明変数	NO ₂		O ₃	
	相対危険度	95%CI	相対危険度	95%CI
受診当日				
単一汚染物質（NO ₂ またはO ₃ ）+気象	1.12	0.91, 1.37	1.10	0.98, 1.24
NO ₂ +O ₃ +PM _{2.5} +気象	1.21	0.92, 1.59	1.16*	1.00, 1.34
NO ₂ +O ₃ +硫酸イオン+気象	1.27	0.99, 1.62	1.20*	1.03, 1.38
NO ₂ +O ₃ +硝酸イオン+気象	1.12	0.84, 1.49	1.15*	1.01, 1.31
NO ₂ +O ₃ +水溶性有機炭素+気象	1.34	1.00, 1.80	1.19*	1.03, 1.37
NO ₂ +O ₃ +水素イオン+気象	1.24	0.98, 1.57	1.15	1.00, 1.31
受診前日				
単一汚染物質（NO ₂ またはO ₃ ）+気象	1.16	0.93, 1.44	1.13*	1.00, 1.28
NO ₂ +O ₃ +PM _{2.5} +気象	1.37*	1.02, 1.82	1.19*	1.03, 1.38
NO ₂ +O ₃ +硫酸イオン+気象	1.52*	1.16, 1.99	1.24*	1.07, 1.44
NO ₂ +O ₃ +硝酸イオン+気象	1.34	0.99, 1.82	1.19*	1.04, 1.37
NO ₂ +O ₃ +水溶性有機炭素+気象	1.19	0.87, 1.64	1.15	1.00, 1.33
NO ₂ +O ₃ +水素イオン+気象	1.33*	1.02, 1.73	1.15	1.00, 1.33
受診前3日平均				
単一汚染物質（NO ₂ またはO ₃ ）+気象	1.21	0.89, 1.63	1.11	0.95, 1.31
NO ₂ +O ₃ +PM _{2.5} +気象	1.46*	1.00, 2.13	1.19	0.98, 1.43
NO ₂ +O ₃ +硫酸イオン+気象	1.49*	1.07, 2.07	1.24*	1.03, 1.49
NO ₂ +O ₃ +硝酸イオン+気象	1.33	0.90, 1.98	1.14	0.96, 1.34
NO ₂ +O ₃ +水溶性有機炭素+気象	1.24	0.85, 1.82	1.12	0.94, 1.33
NO ₂ +O ₃ +水素イオン+気象	1.30	0.95, 1.78	1.12	0.94, 1.34

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

欧米諸国では、微小粒子状物質（PM_{2.5}）と気管支喘息発作やそれによる救急受診との関連が数多く報告されているが、わが国における知見は十分ではなく、特に粒子状物質の成分濃度と健康影響との関連を評価した研究は乏しかった。

本研究では、兵庫県姫路市で長期にわたって集積されてきた気管支喘息発作のデータを活用した検討により、大気中PM_{2.5}の質量濃度だけでなく、PM_{2.5}中の硝酸イオン、水素イオン、水溶性有機炭素等の濃度が上昇し、酸性度が高くなると喘息発作が増加することが明らかとなった。大気中PM_{2.5}の質量濃度については、わが国における環境基準の短期基準である日平均値が35 µg/m³よりも低い濃度でも、10歳以上では喘息発作の増加との関連が認められ、諸外国における知見と同様であった。

近年濃度が上昇傾向にある大気中オゾン (O_3) については、週平均値、1日平均値だけでなく、昼間1時間の最大値、8時間の最大値が上昇すると喘息発作が有意に増加し、季節別には春季と秋季における関連が強かった。 O_3 による影響は、年齢による差がほとんどみられなかった。

大気汚染の短期影響として諸外国で報告されている1日単位の喘息発作による受診については、 $PM_{2.5}$ の質量濃度との関連は有意ではなかったが、 $PM_{2.5}$ 中の水素イオン濃度が上昇すると増加することが明らかとなり、週単位の喘息発作数と同様の知見であった。また、大気中の O_3 及び二酸化窒素濃度の上昇によっても喘息による受診は増加す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>

わが国では2009年に $PM_{2.5}$ に係る環境基準が設定され、近年は中国での大気汚染の深刻化を契機に $PM_{2.5}$ に対する国民の関心が高まっているが、国内における疫学研究の知見は十分ではなく、特に成分組成との関係はほとんどわかっていない。また、大気中 O_3 濃度も増加傾向にあり、その健康影響が懸念されているが、国内における知見は乏しい。

本研究では、大気中 $PM_{2.5}$ 及び O_3 濃度が上昇すると喘息発作が増加することが明らかとなったが、その影響は年齢や季節によって異なっていた。特に、 $PM_{2.5}$ の質量及びその成分濃度は季節によって異なり、喘息への影響にも差があることが示された。こうした成果は、 $PM_{2.5}$ 濃度上昇時には喘息患者に対して外出を控えるように注意喚起を行うなど、今後はきめ細かく、実効性のある予防対策を進める上で重要な知見となる。また、 $PM_{2.5}$ 濃度を削減するための発生源対策においても、健康影響を予防する観点から優先度を検討することが期待される。

O_3 濃度は近年上昇傾向にあることから、本研究で得られた O_3 と喘息との関連についての成果は、今後のわが国における O_3 による大気汚染やその健康影響の予防対策に貢献しうる重要な知見である。

6. 国際共同研究等の状況

2012～2016年度に日本学術振興会科学研究費助成事業として実施した「中国大都市における大気汚染の特性と健康影響に関する疫学研究」の国際共同研究の枠組みをベースとして、本5-1456課題の内容も中国の郭新彪教授、鄧芙蓉教授（北京大学公共衛生学院）、馬露副教授（武漢大学公共衛生学院）、薫麗君主任（遼寧省瀋陽市疾病予防対策センター）らと共同研究を行った。中国の都市部における $PM_{2.5}$ をはじめとする大気汚染物質の濃度は日本よりもかなり高く、粒子状物質の粒径別分布や成分組成等は大きく異なっている。近年は中国から $PM_{2.5}$ 等の大気汚染物質がわが国にも飛来していることが指摘され、国民の関心が高い。そのため、本課題で得られた成果を中国側に紹介するとともに、両国において $PM_{2.5}$ 等の大気汚染物質の特性と人の健康への影響を評価するための疫学研究を実施した。2014年12月には、これらの共同研究者を日本に招聘して、一般公開シンポジウムで中国の3都市における大気汚染の特徴とその健康影響について講演していただき、一般参加者を交えて意見交換を行った。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文(査読あり)>

- 1) K. SAITOH K, M. SHIMA, Y. YODA, R. NAKATSUBO, D. TSUNETOMO, T. HIRAKI, and K. SERA: International Journal of PIXE, 24, 1&2, 1-15 (2014), “Physicochemical characterization and size-resolved source apportionment of airborne particles in Himeji City, Japan”
- 2) S. YAMAZAKI, M. SHIMA, Y. YODA, K. OKA, F. KUROSAKA, S. SHIMIZU, H. TAKAHASHI, Y. NAKATANI, J. NISHIKAWA, K. FUJIWARA, Y. MIZUMORI, A. MOGAMI, T. YAMADA, and N. YAMAMOTO: BMJ open 5, e005736, (2015), “Exposure to air pollution and meteorological factors associated with children’s primary care visits at night due to asthma attack: case-crossover design for 3-year pooled patients”
- 3) 島 正之: 日本衛生学会誌、(2017), 「大気汚染による健康影響—歴史的変遷と現状—」(印刷中)

<その他誌上発表(査読なし)>

- 1) 島 正之: 産業医学ジャーナル、37, 5, 55-59 (2014)
「大気汚染の健康影響に関する研究」
- 2) 島 正之: 日中医学、29, 3, 36-40 (2014)
「日本における微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の健康影響に関する疫学研究」
- 3) 島 正之: 最新医学、70, 7, 1233-1239 (2015)
「微小粒子状物質(PM_{2.5})および黄砂の呼吸器系への影響」
- 4) 島 正之: 日本医事新報、4766, 24-29 (2015)
「大気汚染と呼吸器・アレルギー疾患」
- 5) 島 正之: THE LUNG perspectives、23, 4, 333-338 (2015)
「大気汚染による健康影響—歴史的変遷と将来展望—」
- 6) 島 正之、余田佳子: 大気環境学会誌、51, 1, 25-28 (2016)
「中国における大気汚染の健康影響に関する共同研究」
- 7) 島 正之: 保健の科学、58, 9, 591-595 (2016)
「PM_{2.5}の呼吸器系への影響」
- 8) 島 正之: 内科、118, 6, 1103-1106 (2016)
「大気汚染とアレルギー」

(2) 口頭発表(学会等)

- 1) 島 正之、山崎 新、余田佳子、岡 勝巳、黒坂文武、清水滋太、高橋宏暢、中谷裕司、西川実徳、藤原克彦、水守康之、最上 朗、山田 琢、山本信玄: 第55回大気環境学会年会 (2014)
「姫路市における小児の喘息による夜間受診と気象・大気汚染との関連」
- 2) 齊藤勝美、世良耕一郎、伏見暁洋、藤谷雄二、田邊 潔、佐藤 圭、高見昭憲、中坪良平、常友大資、平木隆年、余田佳子、島 正之: 第30回PIXEシンポジウム (2014)
「大気エアロゾル試料のPIXE法による元素定量値の評価」

- 3) 島 正之：第85回日本衛生学会総会（2015）
「微小粒子状物質の呼吸器系への影響に関する疫学研究」
- 4) 島 正之、余田佳子、中坪良平、堀江洋佑、平木隆年：第56回大気環境学会年会（2015）
「喘息発作に対する大気汚染物質の短期的影響：姫路市における長期的疫学研究」
- 5) 島 正之：第56回大気環境学会年会（2015）
「大気中粒子状物質の成分組成と気管支喘息発作の関連：姫路市における疫学研究」
- 6) 余田佳子、島 正之：第74回日本公衆衛生学会総会（2015）
「瀬戸内海の離島における大気汚染物質が学生の肺機能に及ぼす短期的影響」
- 7) 島 正之、余田佳子：第86回日本衛生学会学術総会（2016）
「大気中光化学オキシダント濃度と喘息発作の関連」
- 8) 島 正之：第86回日本衛生学会学術総会（2016）
「大気汚染による健康影響：歴史的変遷と現状」
- 9) 島 正之：大気環境学会近畿支部人体影響部会2016年度セミナー（2016）
「PMの成分組成と健康影響に関する疫学知見と今後の課題」
- 10) 島 正之、余田佳子、山崎新、中坪良平、堀江洋祐、平木隆年：第57回大気環境学会年会（2016）
「姫路市における大気中粒状物質の化学成分と喘息発作との関連」
- 11) 島 正之：第49回日本小児呼吸器学会（2016）
「小児の呼吸器系に対する大気汚染の影響」
- 12) 島 正之：第87回日本衛生学会学術総会（2017）
「微小粒子状物質（PM_{2.5}）の健康影響に関する疫学研究」

（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) 一般公開シンポジウム「日本と中国における PM_{2.5} 及びオゾンの呼吸器系への影響」（主催：兵庫医科大学、平成 26 年 12 月 6 日、グランフロント大阪 ナレッジキャピタル・カンファレンスルームタワーC Room C03、参加者約 50 名）にて研究成果の紹介
- 2) 中国在留邦人を対象とした大気汚染に関する講演相談会（主催：外務省、平成 27 年 1 月 25～28 日、中国済南市、上海市、無錫市、杭州市、参加者合計約 200 名）にて研究成果の一部を紹介
- 3) 社会人を対象とした環境学習講座「都内の大気汚染状況と PM_{2.5}」（主催：東京都環境局、平成 27 年 2 月 3 日、東京深川江戸資料館、参加者約 100 名）にて研究成果の一部を紹介
- 4) 平成 26 年度大気環境対策セミナー「PM_{2.5}の現状と今後の課題について」（主催：独立行政法人環境再生保全機構、平成 27 年 2 月 6 日、大阪国際会議場、参加者約 100 名）にて研究成果の一部を紹介
- 5) 一般公開講座「PM_{2.5}及びオゾンによる大気汚染とその健康影響」（主催：兵庫医科大学、平成28年2月27日、大阪・梅田 阪急グランドビル会議室、聴衆約60名）にて研究成果の紹介

- 6) 平成28年度大気環境対策セミナー「PM_{2.5}の現状と今後の展望について」（主催：独立行政法人環境再生保全機構、平成29年2月16日、御茶ノ水ソラシティカンファレンスセンター（東京都）、参加者約170名）にて研究成果の一部を紹介
- 7) 兵庫県シニアカレッジにおける講義「PM_{2.5}及びオゾンにをはじめとする大気汚染の健康影響」（平成29年2月21、22日、兵庫県西宮市、参加者約100名）にて研究成果の一部を紹介
- 8) 一般公開講座「PM_{2.5}及びオゾンによる大気汚染とその健康影響」（主催：兵庫医科大学、平成29年3月24日、大阪・梅田 阪急グランドビル会議室、聴衆約50名）にて研究成果の紹介

（５）マスコミ等への公表・報道等

- 1) 神戸新聞（2015年1月25日、1頁、「PM_{2.5}に含有 硫酸イオン ぜんそくとの関連特定」）

（６）その他

特に記載すべき事項はない。

8. 引用文献

- 1) U.S. EPA. (2004): Air quality criteria for particulate matter [EPA Report]. (EPA/600/P-99/002aF-bF). Research Triangle Park, NC.
- 2) World Health Organization (2006): Air quality guidelines, global update 2005, WHO Press, Geneva.
- 3) U.S. EPA. (2009): Integrated science assessment for particulate matter. (EPA/600/R-08/139F). Research Triangle Park, NC.
- 4) U.S. EPA. (2012): Provisional assessment of recent studies on health effects of particulate matter exposure. (EPA/600/R-12/056). Research Triangle Park, NC.
- 5) 環境省 (2008): 微小粒子状物質健康影響評価検討会報告書, 環境省, 東京.
- 6) 環境省 (2017): 平成27年度 大気汚染状況について（一般環境大気測定局、自動車排出ガス測定局の測定結果報告）, 環境省, 東京. <http://www.env.go.jp/press/103858.html>
- 7) 環境省 (2007): 微小粒子状物質曝露影響調査報告書, 環境省, 東京.
- 8) Yamazaki S, Shima M, Ando M, Nitta H, Watanabe H, Nishimuta T. (2011): Effect of hourly concentration of particulate matter on peak expiratory flow in hospitalized children: a panel study, Environ Health, 10, 15.
- 9) Yamazaki S, Shima M, Ando M, Nitta H. (2009): Modifying effect of age on the association between ambient ozone and nighttime primary care visits due to asthma attack, J Epidemiol, 19:143-151.
- 10) Ma L, Shima M, Yoda Y, Yamamoto H, Nakai S, Tamura K, Nitta H, Watanabe H, Nishimuta T. (2008): Airborne particulate matter and respiratory morbidity in asthmatic children, J Epidemiol, 18, 3, 97-110.
- 11) 微小粒子状物質（PM_{2.5}）に関する専門家会合 (2013): 最近の微小粒子状物質（PM_{2.5}）による大気汚染への対応, 環境省, 東京.
- 12) 環境省 (2017): 光化学オキシダント調査検討会報告書の公表について, 環境省, 東京. <http://www.env.go.jp/press/103870.html>

- 13) 黒坂文武、松永剛典、東 漸、本郷寛美、牛田伸一、段 武夫、岡藤輝夫、寺田忠之、木花厚生、三好麻里、望月吉郎、大田研治 (2000) : 喘息発作における気温、気圧の影響 姫路市のデータを中心に. 喘息, 13, 3, 67-74.
- 14) 黒坂文武、清水一太、高橋宏暢、中谷裕司、西川実徳、藤原克彦、水守康之、最上 朗、山田 琢、山本信玄、島 正之 (2014) : アレルギー疾患の疫学調査—アトピー性皮膚炎は減少している・姫路市の小学新入生調査から—. 日本小児アレルギー学会誌、28, 1, 50-57.
- 15) Yamazaki S, Shima M, Yoda Y, Oka K, Kurosaka F, Shimizu S, Takahashi H, Nakatani Y, Nishikawa J, Fujiwara K, Mizumori Y, Mogami A, Yamada T, Yamamoto N. (2013): Association of ambient air pollution and meteorological factors with primary care visits at night due to asthma attack. *Environ Health Prev Med*, 18, 5, 401-406.
- 16) Yamazaki S, Shima M, Yoda Y, Oka K, Kurosaka F, Shimizu S, Takahashi H, Nakatani Y, Nishikawa J, Fujiwara K, Mizumori Y, Mogami A, Yamada T, Yamamoto N. (2014): Association between PM2.5 and primary care visits due to asthma attack in Japan: relation to Beijing's air pollution episode in January 2013. *Environ Health Prev Med.*; 19, 2, 172-176.
- 17) Saitoh K, Shima M, Yoda Y, Nakatsubo R, Tsunetomo D, Hiraki T, Sera K. (2012): Year-round behavior for inorganic composition of size-resolved airborne particles in Himeji City, Japan. *International Journal of PIXE*, 22, 1&2, 179-84.
- 18) 気象庁 (2017) : [地球環境のデータバンク] 黄砂、
http://www.data.jma.go.jp/gmd/env/kosahp/kosa_data_index.html

（２）大気清浄地区における越境大気汚染の呼吸器への影響に関する研究

国立弓削商船高等専門学校

高木 洋、伊藤武志

平成26～28年度累計予算額：26,252千円（うち平成28年度：8,000千円）

予算額は、間接経費を含む。

〔要旨〕

これまで大気汚染の健康影響に関する疫学研究は、工場地帯や自動車交通量の多い都市部など、大気汚染の主要な発生源がある地域において行われたものが多い。近年、大気汚染の発生源がない地域においても、大陸からの越境移流等によって微小粒子状物質（PM_{2.5}）が高濃度となることが報告されているが、その健康影響はほとんど知られていない。本研究では、近隣に大気汚染の主要な発生源のない瀬戸内海の離島である弓削島において、学生48名（男子32名、女子16名、15～20歳）を対象に、3年間にわたって年2回、それぞれ約1か月間、毎朝最大呼気流量（PEF）と1秒量（FEV₁）を測定し、大気汚染物質への曝露の影響を評価した。

弓削島における大気中PM_{2.5}濃度の2014～2016年度の平均値は18.2 μg/m³と比較的高かった。学生が毎日測定した肺機能と大気汚染との関連は、検査前24時間の屋外におけるPM_{2.5}濃度が四分位範囲濃度（15.8 μg/m³）増加すると、PEFは-1.37% [95%信頼区間：-1.98, -0.76]、FEV₁は-1.50% [95%信頼区間：-2.27, -0.74]の有意な低下が認められた。教室内のPM_{2.5}及びオゾン（O₃）濃度が増加したときにも肺機能は有意に低下した。PM_{2.5}の成分については、炭素、硫酸イオン、アンモニウムイオン、カリウムイオン等の多くの成分濃度が上昇するとPEF、FEV₁はともに有意に低下した。発生源との関係では、半揮発性粒子、バイオマス・工業系、硫酸塩（石炭系）、道路交通に由来するPM_{2.5}が肺機能の低下と関連していることが示唆された。また、アレルギー疾患の既往を有する者は、大気汚染物質のFEV₁に対する影響を受けやすいことが明らかとなった。気道炎症の指標である呼気一酸化窒素濃度と大気汚染物質への曝露との関連は明らかではなかった。

以上より、近隣に大気汚染の主要な発生源がない瀬戸内海の離島においても、PM_{2.5}をはじめとする大気汚染物質が呼吸器系に影響を与えることが明らかとなった。アレルギー疾患の既往を有する者は大気汚染物質に対する感受性が高いことが示唆された。

〔キーワード〕

微小粒子状物質（PM_{2.5}）、成分組成、肺機能、アレルギー、疫学研究

1. はじめに

大気汚染物質が呼吸器系に及ぼす影響については国内外で数多く報告されている¹⁻³⁾。大気汚染物質の中でも粒径が2.5 μm以下の微小粒子状物質（PM_{2.5}）は、吸入すると気道に炎症反応を生じ、呼吸器疾患の増悪や肺機能の低下をもたらすことが知られている⁴⁻⁷⁾。これまで大気汚染の健康影響に関する研究の多くは、主に工場地帯や自動車排出ガスによる大気汚染が問題となっている都市部において行われてきた⁸⁻⁹⁾。一方、近隣に大気汚染の人為的な発生源がない地域においてもPM_{2.5}をはじめとする大気汚染物質が高濃度となることがあり、特に近年は西日本において中国大陸か

らの越境移流の影響が指摘されており、その健康影響が懸念される。しかし、近隣に大気汚染の人為的な発生源がない地域における疫学研究はほとんど行われていない。

また、これまではPM_{2.5}をはじめとする大気汚染物質の急性影響を評価するために、喘息¹⁰⁻¹²⁾や慢性閉塞性肺疾患（COPD）^{13,14)}などの呼吸器疾患の患者を対象とした研究が数多く行われてきたが、高濃度の大気汚染が健常者に与える短期的な影響を評価した研究は少ない。さらに、大気汚染物質への曝露は近隣の測定局における濃度を用いて解析したものが多く、曝露量を正確に評価できていない可能性も指摘されている。

そこで本課題では、近隣に大気汚染の主要な発生源がない瀬戸内海の弓削島において、大気環境測定を行うとともに、島内で生活している健常学生を対象とした疫学研究を実施して、大気汚染物質への曝露と呼吸器系への影響を評価した。弓削島は瀬戸内海のほぼ中央にある離島であり、交通量が少ないため自動車排気ガスの影響はほとんどないと考えられる。また、島内に大きな工場等はなく、船舶以外に大気汚染の人為的な発生源がみられないことから、越境移流等による大気汚染の影響を評価することが期待できる。

2. 研究開発目的

瀬戸内海のほぼ中央に位置する弓削島において、PM_{2.5}をはじめとする大気汚染の実態を評価し、島内の学校に通う学生の呼吸器系への影響を明らかにすることを目的とした。

そのため、島内において粒子状及びガス状の大気汚染物質を連続して測定するとともに、島内の学校に通う学生を対象に、呼吸器症状調査と肺機能検査を毎年実施した。一部の学生（48名、15～20歳）には3年間にわたって年2回、それぞれ約1か月間、毎日肺機能検査を行うとともに、気道炎症の指標である呼気一酸化窒素濃度の測定を週1回実施した。肺機能の検査期間中は24時間毎にPM_{2.5}を捕集して成分分析を行い、発生源因子を推定して、これらの大気汚染への曝露が学生の呼吸器系に与える短期的影響を評価した。

3. 研究開発方法

（1）大気環境評価

弓削島は図(2)-1に示したとおり、瀬戸内海のほぼ中央に位置している。主産業は漁業であり、島内に大気汚染源となる工場等はない。また、離島であるために島内に自動車を持ち入れるためには、図(2)-2のようなフェリーを利用するしか方法がないため、自動車交通量も少なく、大気環境は良好と考えられる。

しかし、近隣には大気環境測定局がないため、同島における大気環境を評価するために、国立弓削商船高等専門学校の校舎（愛媛県越智郡上島町弓削下弓削1000番地、4階建て）屋上に粒子状物質自動測定装置（SPM-613D、紀本電子工業製）（図(2)-3）を設置し、PM_{2.5}、粗大粒子（PM_{10-2.5}）、元素状炭素（OBC）濃度の連続測定を行なった。



図(2)-1 弓削島の位置



図(2)-2 町内への自動車の乗り入れ



図(2)-3 粒子状物質自動測定装置

また、オゾン・窒素酸化物自動計測器（OAN-700、紀本電子工業製）と大気中二酸化硫黄測定装置（GFS-252、東亜ディーケーケー製）を校舎内4階に設置して外気を導入し、大気中のオゾン（O₃）と窒素酸化物（NO_x）、二酸化硫黄（SO₂）濃度の連続測定を行った。

さらに、（3）で実施した最大呼気流量と1秒量の測定期間中には、学生が長時間過ごす教室内のPM_{2.5}濃度を測定するため、デジタル粉じん計（LD-5、柴田科学製）を教室内に設置した。設置に際して、騒音の漏れを少なくするように発泡スチロールのケースに入れ、採気口のみを露出するようにした。また、教室内のO₃とNO₂の濃度をオゾンサンプラー（OGAWAサンプラー、小川商会）とNO₂サンプラー（フィルターバッジNO₂、アドバンテック）を用いて、24時間毎に測定した。

（2）呼吸器症状調査と肺機能検査

国立弓削商船高等専門学校の全学生（15～23歳、平均17.0±1.6歳）を対象として、毎年4月にATS-DLD標準化呼吸器症状質問票（米国胸部疾患学会作成の質問票に準拠した日本語版）を用いて呼吸器・アレルギー症状の調査を実施した。また、電子スパイロメーター（CHESTGRAPH HI-105、チェスト株式会社製）を用いて肺機能検査を行った。検査は立位でノーズクリップを使用し、再現性のある2回以上の努力性呼出曲線が得られるまで実施した。各年度における対象学生数と質問票の回収数、肺機能検査を実施した学生数を表(2)-1に示した。

表(2)-1 呼吸器症状質問票の回収数と肺機能検査実施人数

	学生数	質問票の回収数（回収率）	肺機能検査の実施数（実施率）
2014年度	577名	568名（98.4%）	556名（96.3%）
2015年度	608名	594名（97.7%）	602名（99.0%）
2016年度	628名	616名（98.1%）	605名（96.3%）

（3）最大呼気流量と1秒量の連日自己測定

2014年5月に国立弓削商船高等専門学校の情報工学科、1クラスの学生に調査への協力を依頼し、同意が得られた学生43名（男子29名、女子14名、15～16歳）を対象として、2016年度までの3年間にわたって毎年5～6月と10～11月にそれぞれ約1か月間、登校日（月曜日～金曜日）の朝、授業開始前に電子式ピークフローメーター（PEF/FEV1 Diary、Vitalograph社製）を用いて最大呼気流量（PEF）と1秒量（FEV₁）の自己測定を行ってもらった。この間にさまざまな事情による協力のと

りやめや、途中から協力を開始した学生もあり、3年間で6回すべての調査に参加した学生は36名（男子23名、女子13名）であった。なお、調査に協力した学生の約70%は島内にある学生寮で生活しており、その他の学生は近隣地区から船で通学している。

電子式ピークフローメーターは対象学生一人に一台ずつ渡して、各時期の検査開始前に使用方法を十分に説明したうえで練習を行った。それぞれの検査期間中は学生自身で管理してもらい、検査期間終了後に回収し、測定データをダウンロードした。

対象者毎に全期間を通じたPEFとFEV₁の平均値を求めて、毎日の測定結果は平均値に対する割合（%）で表した。毎日の測定結果（%）を従属変数とし、検査前日の気温、湿度、対象者の年齢、性別を調整した混合効果モデルを用いて、肺機能検査前24時間の大気汚染物質濃度との関連を解析した。大気汚染物質は連続測定を行った粒子状及びガス状物質の他に、サブテーマ（3）で粒子状物質を1週間毎に粒径別に捕集し、イオン及び主要元素成分の分析を行った結果を用いた。さらに、粒径別成分濃度にPositive Matrix Factorization（正値行列因子分解；PMF）解析を適用して推定された発生源因子別の寄与濃度も用いた。

検査時期別の解析を行った後、全検査期間を統合した解析を行った。全期間を統合した解析では、調整因子に検査実施時期（カテゴリ）を加えた。結果は、検査期間中の各物質の四分位範囲濃度増加あたりの肺機能値の変化量（%）で示した。

（4）呼気一酸化窒素（FeNO）濃度の測定

5～6月と10～11月のPEFとFEV₁の測定期間中に、概ね週に一度の頻度で対象学生の気道炎症の指標である呼気一酸化窒素（FeNO）濃度の測定と肺機能検査を行った。FeNO濃度の測定はオフライン法¹⁵⁾により、アルミバックに呼気を採取し、高速応答NO計（NA-623N、紀本電子工業製）により分析した。肺機能値と同様に、各回のFeNO値を従属変数、検査前日の気温、湿度、対象者の年齢、性別、検査実施時期を調整した混合効果モデルを用いて、測定前24時間の大気汚染物質濃度との関連を解析した。肺機能検査は電子スパイロメーター（CHESTGRAPH HI-105、チェスト株式会社製）を用いて行った。

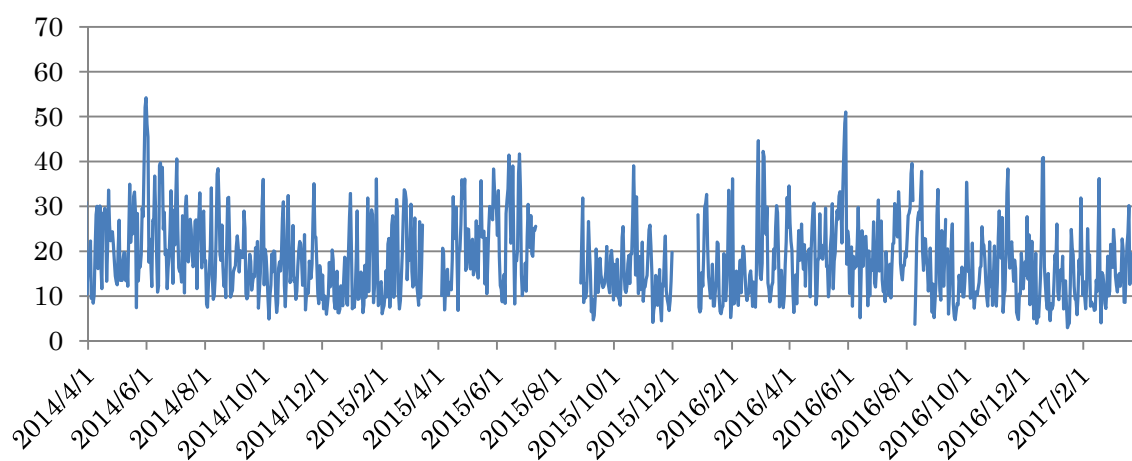
解析は全検査期間で得られた結果を統合して、（3）と同様の方法で実施した。対象者毎にFeNO濃度の平均値を求めて、各回の測定結果は平均値に対する割合（%）を従属変数とし、検査前日の気温、湿度、対象者の年齢、性別、検査実施時期（カテゴリ）を調整した混合効果モデルを用いて、測定前24時間の大気汚染物質濃度との関連を解析した。結果は、検査期間中の各物質の四分位範囲濃度増加あたりのFeNOの変化量（%）で示した。

4．結果及び考察

（1）弓削島における大気環境

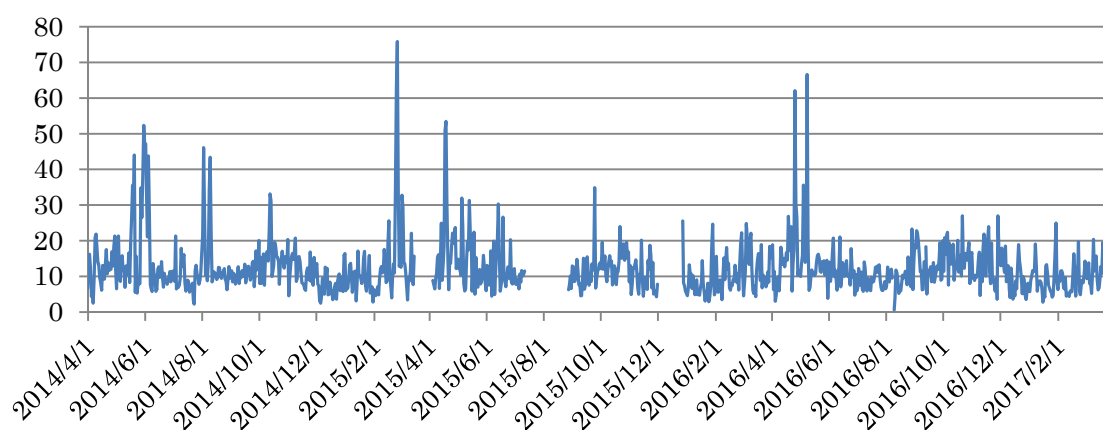
弓削島にある弓削商船高等専門学校屋上にて、微小粒子（PM_{2.5}）、粗大粒子（PM_{10-2.5}）、元素状炭素（OBC）濃度の連続測定を行った。

微小粒子（PM_{2.5}）濃度の日平均値の推移を図(2)-4に示した。環境基準の短期基準である1日平均値35μg/m³を超えた日は53日あったが、「注意喚起のための暫定的な指針」¹⁶⁾とされている70μg/m³を超えた日はなかった。年毎のPM_{2.5}濃度の測定日数と平均濃度、最大濃度、35μg/m³を超えた日数を表(2)-2に示した。

図(2)-4 PM_{2.5}濃度(μg/m³)の日平均値の推移表(2)-2 PM_{2.5}濃度の日平均値

	測定日数	平均(μg/m ³)	最大(μg/m ³)	35μg/m ³ を超えた日数
2014年	365日	19.4	64.3	27日
2015年	274日	18.0	41.7	10日
2016年	364日	17.8	51.0	14日
2017年	90日	15.0	36.2	2日

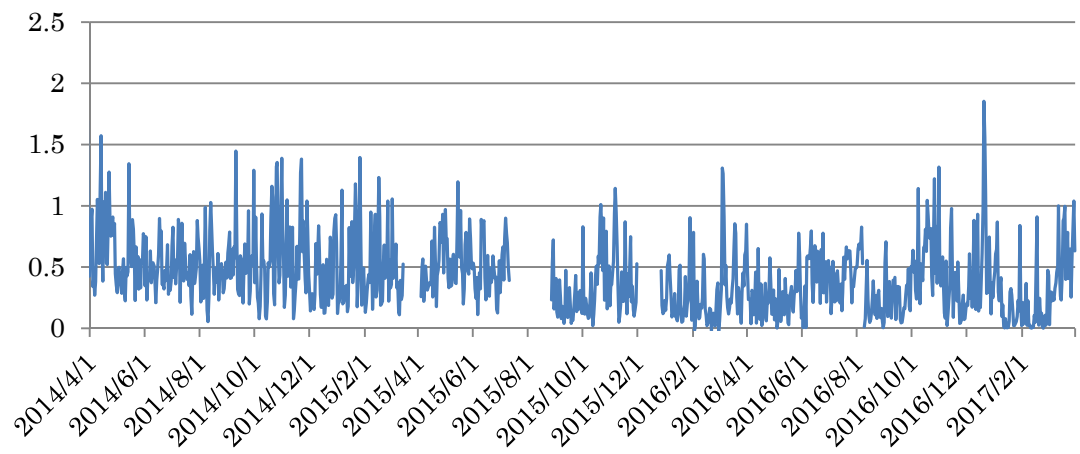
同様に、粗大粒子（PM_{10-2.5}）濃度の日平均値を図(2)-5、年毎の測定日数と平均濃度、最大濃度を表(2)-3に示す。毎年、春ごろに濃度の高い日があったが、黄砂の飛来によるものと考えられる。

図(2)-5 粗大粒子（PM_{10-2.5}）濃度（μg/m³）の日平均値の推移

表(2)-3 粗大粒子濃度日平均値

	測定日数	平均(μg/m ³)	最大(μg/m ³)
2014年	365日	32.0	104
2015年	274日	30.7	109
2016年	364日	29.7	96.2
2017年	90日	24.7	56.8

元素状炭素（OBC）濃度の日平均値の推移を図(2)-6、年毎の測定日数と平均濃度、最大濃度を表(2)-4に示した。

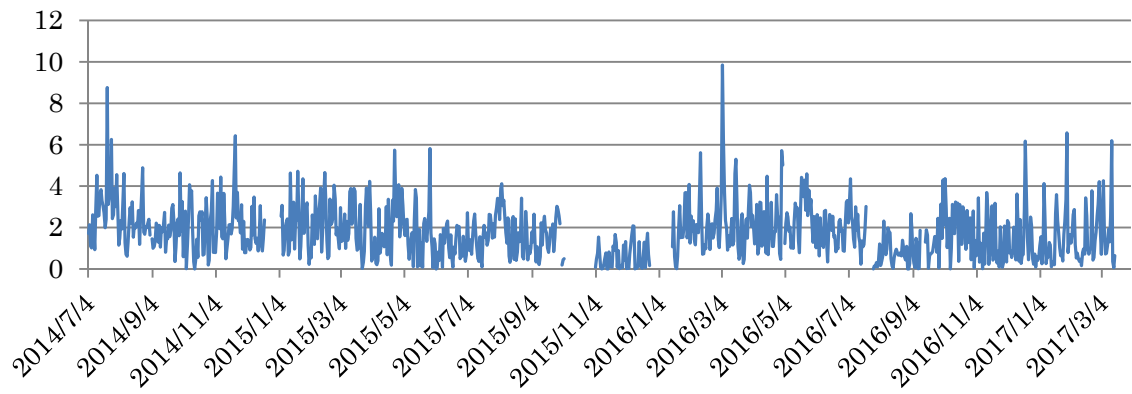


図(2)-6 元素状炭素（OBC）濃度（ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）の日平均値の推移

表(2)-4 OBC濃度の日平均値

	測定日数	平均($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	最大($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
2014年	365日	0.557	2.05
2015年	274日	0.439	1.39
2016年	364日	0.351	1.85
2017年	90日	0.291	1.04

SO₂の濃度は2014年7月4日から、O₃、NO₂、NO、NO_xの濃度は2014年7月24日から測定を行った。SO₂濃度の日平均値の推移を図(2)-7、年毎の測定日数と平均濃度、最大濃度を表(2)-5に示した。

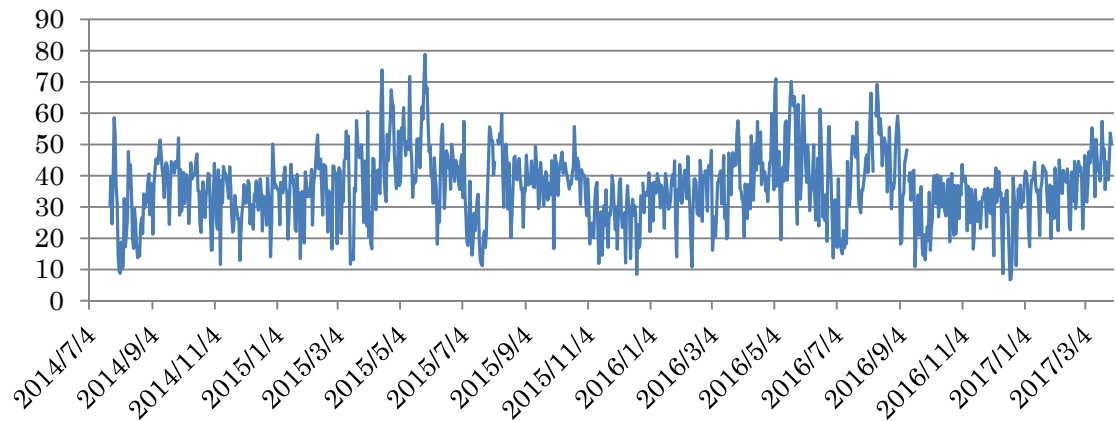


図(2)-7 SO₂濃度（ppb）の日平均値の推移

表(2)-5 SO₂濃度の日平均値

	測定日数	平均(ppb)	最大値(ppb)
2014年	169日	2.20	8.76
2015年	325日	1.60	5.81
2016年	340日	1.78	9.85
2017年	75日	1.55	6.57

O₃濃度の日平均値の推移を図(2)-8、年毎の測定日数と平均濃度、最大濃度を表(2)-6に示した。

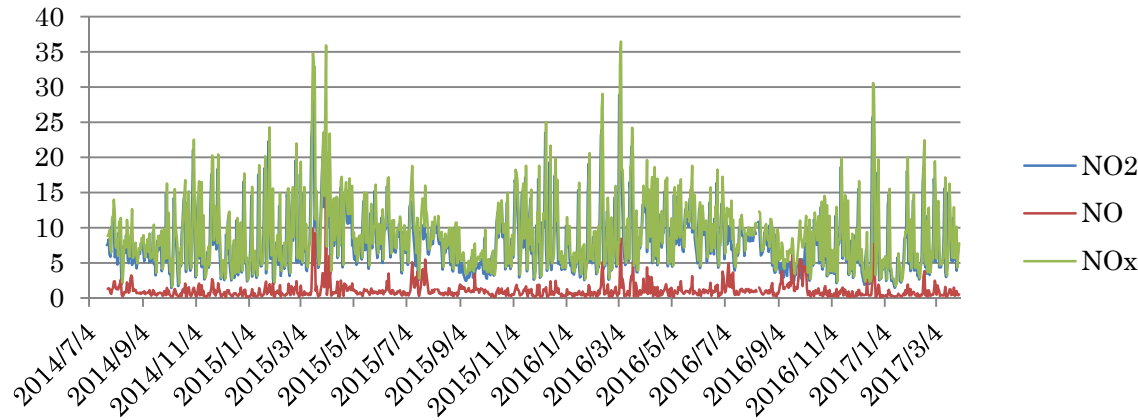


図(2)-8 O₃濃度 (ppb) の日平均値の推移

表(2)-6 O₃濃度の日平均値

	測定日数	平均(ppb)	最大値(ppb)
2014年	161日	32.9	58.5
2015年	362日	37.4	78.8
2016年	363日	36.4	71.0
2017年	88日	38.3	57.4

NO₂、NO、NO_xの濃度の日平均値の推移を図(2)-9、年毎のNO₂の測定日数と平均濃度、最大濃度を表(2)-7に示した。



図(2)-9 NO₂、NO、NO_x濃度 (ppb) の日平均値の推移

表(2)-7 NO₂濃度の日平均値

	測定日数	平均(ppb)	最大値(ppb)
2014年	161日	7.23	21.1
2015年	362日	8.40	28.2
2016年	363日	8.07	28.9
2017年	88日	6.61	18.6

(2) 呼吸器症状調査及び肺機能検査

呼吸器症状質問票による調査の結果を表(2)-8に示した。調査は毎年4月に実施し、回収率はいずれも97%以上と高かった。

喘息様症状（現在）の有症率は、2014年度1.9%、2015年度2.0%、2016年度2.1%であり、3年間を通してほとんど差が見られなかった。また、喘息様症状（寛解）の有症率は、それぞれ3.5%、2.5%、3.7%、ぜん鳴の有症率は3.3%、2.4%、3.2%であった。持続性せき、持続性たん、持続性せき・たんの症状を有する者はいずれの年も少数であった。一方、アレルギー性鼻炎、花粉症の既往は3年間を通して、それぞれ30%以上と高率であった。

2006年に質問票を用いて全国で実施された疫学調査¹⁷⁾では、20～29歳の喘息有症率は男性5.5%、女性4.3%、喘鳴はそれぞれ10.0%、8.1%とされている。対象年齢や質問票の内容、調査方法が異なるため、単純に比較することはできないが、今回得られた喘息、ぜん鳴の有症率は、この調査に比べてかなり低かった。一方、文部科学省が毎年実施している学校保健統計調査¹⁸⁾によると、平成28年度の高等学校における喘息有病率は1.91%であり、今回の結果とほぼ同様であった。

表(2)-8 呼吸器症状調査の結果

	2014年度 (568名)	2015年度 (594名)	2016年度 (616名)
喘息様症状（現在）	11名（1.9%）	12名（2.0%）	13名（2.1%）
喘息様症状（寛解）	20名（3.5%）	15名（2.5%）	23名（3.7%）
ぜん鳴	19名（3.3%）	14名（2.4%）	20名（3.2%）
持続性せき	2名（0.4%）	7名（1.2%）	3名（0.5%）
持続性たん	7名（1.2%）	3名（0.5%）	7名（1.1%）
持続性せき・たん	2名（0.4%）	0名（0.0%）	1名（0.2%）
アレルギー性鼻炎	203名（35.7%）	203名（34.2%）	247名（40.1%）
花粉症	194名（34.2%）	189名（31.8%）	226名（36.7%）

全校学生を対象に毎年4月に実施した肺機能検査の結果を表(2)-9に示した。検査実施率は毎年96%以上と良好であった。

拘束性障害（%肺活量<80%）のある者は、男女合計で2014年度3.1%、2015年度2.3%、2016年度2.5%であり、閉塞性障害（1秒率<70%）のある者は、それぞれ1.4%、0.8%、0.8%といずれも少数であった。2014年度には混合性障害のある者が3名（0.5%、全員が女子）いたが、2015年度、2016年度には男女ともに一人もいなかった。

表(2)-9 肺機能検査の結果

	2014年度 (556名)	2015年度 (602名)	2016年度 (605名)
年齢（平均±標準偏差）	17.0±1.6	17.1±1.7	17.1±1.6
拘束性障害（%肺活量<80%）	17名（3.1%）	14名（2.3%）	15名（2.5%）
閉塞性障害（1秒率<70%）	8名（1.4%）	5名（0.8%）	5名（0.8%）
混合性障害	3名（0.5%）	0名（0.0%）	0名（0.0%）

(3) 肺機能の自己測定と大気汚染濃度との関連

1) 肺機能自己測定の実施状況

2014年5～6月の調査には43名（男子29名、女子14名、15～16歳）の同意が得られた。その後、3年間で6回実施した検査の実施状況を表(2)-10に示した。各検査の参加者は42～43名であり、1回でも調査に参加した者は48名（男子32名、女子16名）、6回通して参加した者は36名（男子23名、女子13名）であった。

期間中の肺機能検査の実施回数は、男子ではのべ3,194回であり、PEFおよびFEV₁の平均±標準偏差は、それぞれ443.3±114.5 L/min、2.52±0.64 Lであった。女子ではのべ1,829回の検査が実施され、PEFおよびFEV₁の平均±標準偏差は、それぞれ338.2±59.2 L/min、1.86±0.43 Lであった。対象者のうち、アレルギーの既往がある者は17名(35.4%)であり、性別には男子11名(34.3%)、女子6名(37.5%)であった。

表(2)-10 肺機能検査実施状況（検査時期別）

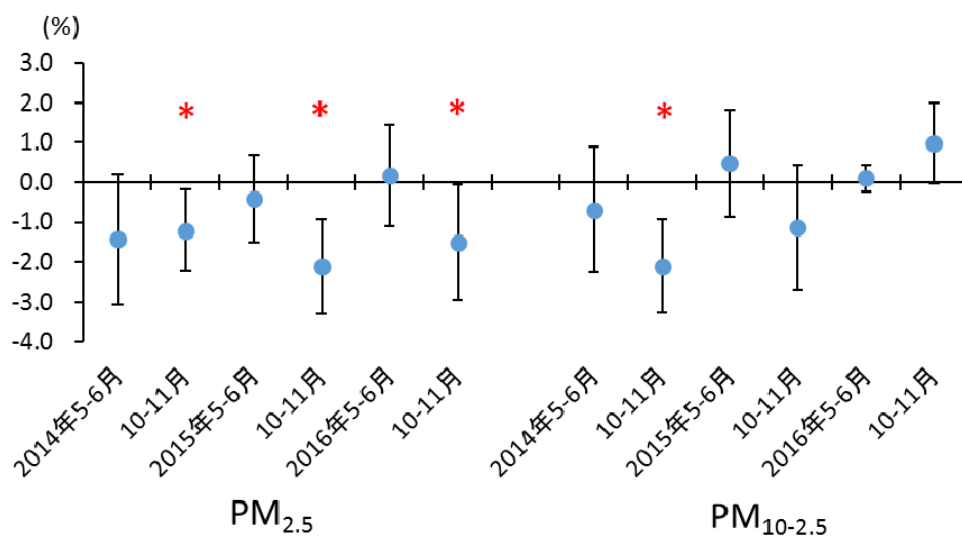
	N	検査回数	PEF (L/min) 平均 ± SD	FEV ₁ (L) 平均 ± SD
男子				
2014年5月9日～6月9日	29	594	420.6±111.1	2.66±0.75
2014年10月3日～11月6日	27	558	419.1±102.9	2.57±0.61
2015年5月7日～6月8日	27	570	445.0±118.1	2.49±0.71
2015年10月5日～11月5日	27	499	440.3±112.8	2.43±0.57
2016年5月9日～6月6日	27	496	474.4±118.5	2.48±0.59
2016年10月4日～11月2日	27	477	468.8±112.1	2.44±0.47
全期間	32	3,194	443.3±114.5	2.52±0.64
女子				
2014年5月9日～6月9日	14	274	323.9±73.3	2.10±0.55
2014年10月3日～11月6日	15	338	328.0±56.5	1.94±0.43
2015年5月7日～6月8日	14	314	350.0±61.7	1.92±0.40
2015年10月5日～11月5日	14	297	341.3±56.4	1.81±0.34
2016年5月9日～6月6日	15	305	343.9±54.4	1.76±0.36
2016年10月4日～11月2日	15	301	341.6±47.6	1.64±0.32
全期間	16	1,829	338.2±59.2	1.86±0.43
合計				
2014年5月9日～6月9日	43	868	390.1±110.2	2.48±0.74
2014年10月3日～11月6日	42	896	384.7±98.7	2.32±0.63
2015年5月7日～6月8日	41	884	411.3±111.4	2.28±0.67
2015年10月5日～11月5日	41	796	403.3±107.0	2.19±0.58
2016年5月9日～6月6日	42	801	424.7±117.6	2.21±0.62
2016年10月4日～11月2日	42	778	419.6±111.4	2.12±0.57
全期間	48	5,023	405.0±110.3	2.27±0.65

SD: 標準偏差

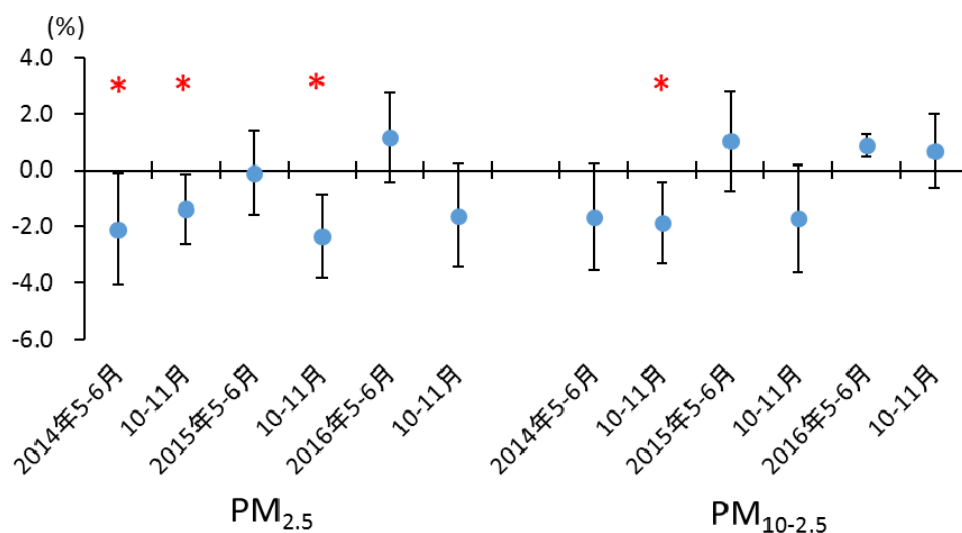
2) 検査時期別の解析

学生が毎日測定した肺機能値と大気中のPM_{2.5}及びPM_{10-2.5}濃度との関係を検査実施時期別に図(2)-10、図(2)-11に示した。結果は、検査前24時間のPM_{2.5}及びPM_{10-2.5}濃度が四分位範囲濃度（PM_{2.5}: 15.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、PM_{10-2.5}: 6.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）増加したときのPEF及びFEV₁の変化率（%）で示した。

肺機能検査前24時間のPM_{2.5}濃度が増加すると、毎年10～11月の検査ではPEFの有意な低下が認められ、最も変化率が大きいのは2015年10～11月の-2.34% [95%信頼区間：-3.81, -0.87]であった。しかし、5～6月の検査ではいずれの年も有意な関連はみられなかった。PM_{10-2.5}濃度の増加との関連は、2014年10～11月においてのみPEFの有意な低下が認められた。



図(2)-10 PEFの変化とPM_{2.5}及びPM_{10-2.5}濃度との関連（検査実施時期別）
検査前24時間の四分位範囲濃度（PM_{2.5}: 15.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、PM_{10-2.5}: 6.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）増加当たりの変化率（%）。
*は有意(p<0.05)に低くなったことを示す。



図(2)-11 FEV₁の変化とPM_{2.5}及びPM_{10-2.5}濃度との関連（検査実施時期別）
検査前24時間の四分位範囲濃度（PM_{2.5}: 15.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、PM_{10-2.5}: 6.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）増加当たりの変化率（%）。
*は有意(p<0.05)に低くなったことを示す。

FEV₁については、検査前24時間のPM_{2.5}濃度が増加すると、2014年5～6月、10～11月、2015年10～11月に有意な低下が認められた。また、2014年10～11月にはPM_{10-2.5}濃度の増加に伴ってFEV₁の有意な低下が認められたが、2016年5～6月はPM_{10-2.5}濃度の増加によりFEV₁は有意に上昇した。

このように、肺機能と大気汚染との関連は、検査時期や汚染物質の種類によって異なることが示された。なお、検査時期別にみた各汚染物質と肺機能値との関連は、資料編の追加表(2)-1、(2)-2に示した。

3) 全検査期間を統合した解析

全検査期間（屋外のPM_{2.5}、PM_{10-2.5}濃度、OBCについては2014年5月～2016年11月の6期、その他の物質については2014年10月～2016年11月の5期）を統合して、毎日測定した肺機能と検査前24時間の大気汚染物質濃度との関連を検討した。

屋内外における粒子状及びガス状物質濃度との関係を表(2)-11に示した。屋外におけるPM_{2.5}濃度が四分位範囲濃度(15.8μg/m³)増加すると、PEFは-1.37% [95%信頼区間：-1.98, -0.76]、FEV₁は-1.50% [95%信頼区間：-2.27, -0.74]の有意な低下が認められた。また、対象学生が長時間過ごしている教室内のPM_{2.5}濃度の増加によっても、PEF、FEV₁はともに有意に低下することが示された。さらに、屋外の大気汚染物質ではOBC、NO₂、SO₂濃度の増加によってPEF、FEV₁はいずれも有意な低下が認められた。屋外のO₃濃度が増加するとFEV₁が有意に低下したが、PEFとの関連は有意ではなかった。一方、教室内のO₃濃度が高くなるとPEF、FEV₁はともに有意に低下した。教室NO₂濃度はPEF、FEV₁ともに関連が認められなかった。

表(2)-11 肺機能値と検査前24時間の大気汚染物質濃度との関連（全期間）

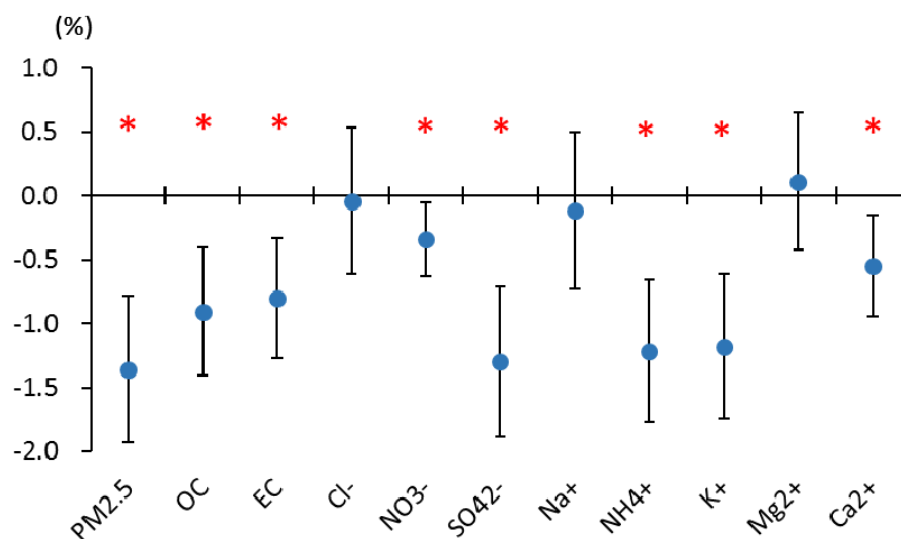
	IQR	最大呼気流量（PEF）			1秒量（FEV ₁ ）		
		変化率	95%CI	p値	変化率	95%CI	p値
屋外濃度							
PM _{2.5} (μg/m ³)	15.8	-1.37	[-1.98, -0.76]	<0.001	-1.50	[-2.27, -0.74]	<0.001
PM _{10-2.5} (μg/m ³)	6.4	-0.03	[-0.31, 0.25]	0.835	0.19	[-0.16, 0.54]	0.292
OBC (μg/m ³)	0.379	-0.85	[-1.36, -0.34]	0.001	-0.71	[-1.35, -0.07]	0.029
O ₃ (ppb)	13.1	-0.21	[-0.73, 0.31]	0.429	-0.70	[-1.35, -0.05]	0.035
NO ₂ (ppb)	5.08	-0.84	[-1.38, -0.29]	0.003	-1.14	[-1.83, -0.45]	0.001
SO ₂ (ppb)	0.004	-0.32	[-0.53, -0.11]	0.004	-0.34	[-0.61, -0.07]	0.015
屋内濃度							
PM _{2.5} (μg/m ³)	18.9	-1.21	[-1.91, -0.52]	0.001	-1.26	[-2.13, -0.39]	0.005
O ₃ (ppb)	10.4	-0.67	[-1.15, -0.19]	0.007	-1.12	[-1.72, -0.52]	<0.001
NO ₂ (ppb)	2.0	-0.06	[-0.50, 0.38]	0.787	-0.37	[-0.92, 0.17]	0.179

検査前24時間の各汚染物質の四分位範囲（IQR）増加当たりの肺機能値の変化率（%）

PEFと、サブテーマ（3）において1日毎に捕集、分析したPM_{2.5}の質量濃度、PM_{2.5}中の炭素、イオン成分濃度との関連を図(2)-12、元素成分濃度との関連を図(2)-13に示した。なお、各成分の四分位範囲濃度、各成分とPEFとの関連は、資料編の追加表(2)-3に示した。

検査前24時間の大気中PM_{2.5}の質量濃度だけでなく、PM_{2.5}中の有機炭素(OC)、元素炭素(EC)、硝酸イオン(NO₃⁻)、硫酸イオン(SO₄²⁻)、アンモニウムイオン(NH₄⁺)、カリウムイオン(K⁺)、カルシウムイオン(Ca²⁺)濃度の増加に伴って、PEFの有意な低下が認められた。各成分の四分位範囲濃度増加当たりの低下率が最も大きかったのは、SO₄²⁻の-1.29% [95%信頼区間：-1.88, -0.71]であった。塩化物イオン(Cl⁻)、ナトリウムイオン(Na⁺)、マグネシウムイオン(Mg²⁺)との関連は有意ではなかった。

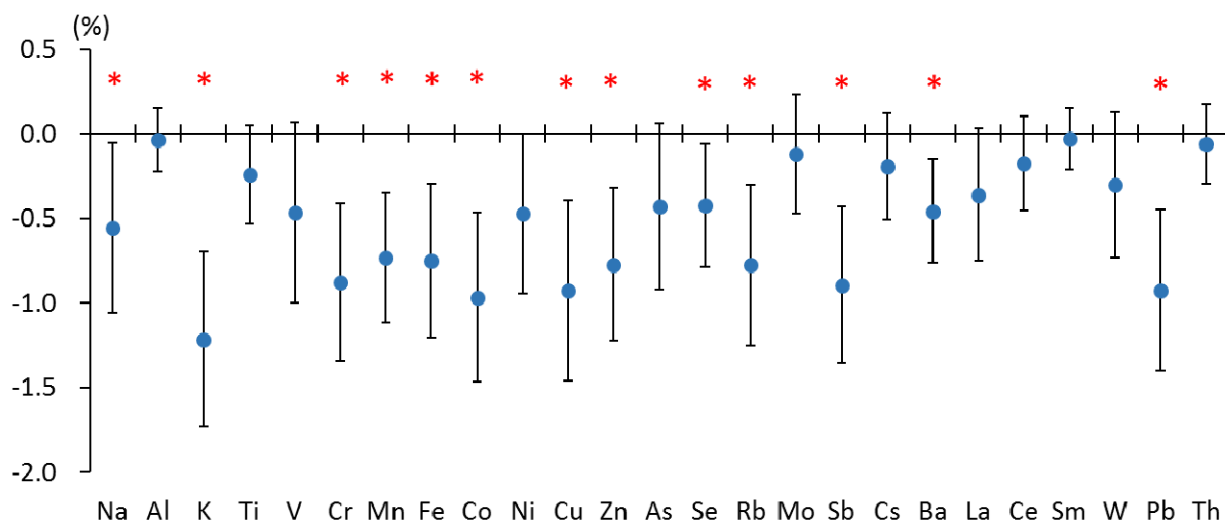
PM_{2.5}中の元素成分についても、すべての成分の濃度増加に伴ってPEFの低下がみられ、ナトリウム(Na)、カリウム(K)、クロム(Cr)、マンガン(Mn)、鉄(Fe)などの多くの元素との関連が有意であった。各成分の四分位範囲濃度増加当たりの低下率が最も大きかったのは、Kの-1.21% [95%信頼区間：-1.73, -0.70]であった。



図(2)-12 PEFの変化とPM_{2.5}及びPM_{2.5}中の炭素、イオン成分濃度との関連（全期間）

検査前24時間の各物質の四分位範囲濃度増加当たりの変化率 (%)

*は有意(p<0.05)に低くなったことを示す。



図(2)-13 PEFの変化とPM_{2.5}中の元素成分濃度との関連（全期間）

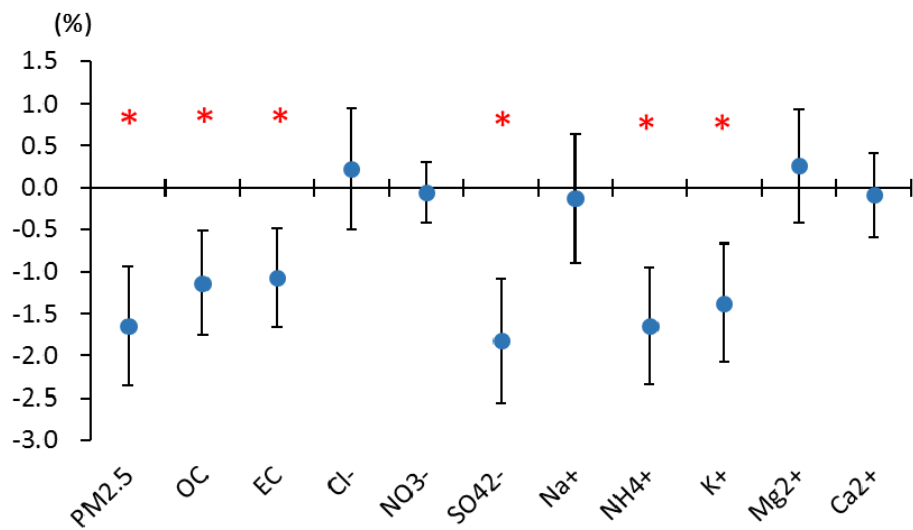
検査前24時間の各物質の四分位範囲濃度増加当たりの変化率 (%)

*は有意(p<0.05)に低くなったことを示す。

FEV₁と検査前24時間の大気中PM_{2.5}及びPM_{2.5}中の炭素、イオン成分濃度との関連を図(2)-14、元素成分濃度との関連を図(2)-15に示した。なお、各成分の四分位範囲濃度、各成分とFEV₁との関連は、資料編の追加表(2)-3に示した。

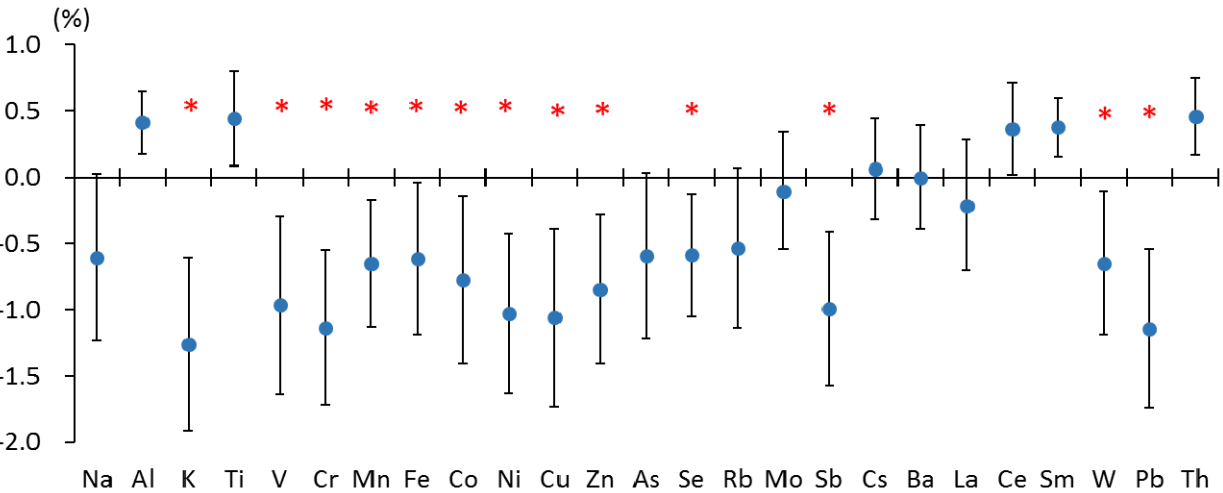
PEFの場合と同様に、PM_{2.5}の質量濃度、PM_{2.5}中のOC、ECの他にイオン成分ではSO₄²⁻、NH₄⁺、K⁺濃度の増加に伴って、FEV₁の有意な低下が認められた。また、PEFと同様にCl⁻及びMg²⁺とFEV₁の関連は有意ではなく、PEFとは異なり、NO₃⁻及びCa²⁺との関連も有意ではなかった。

元素成分についてもPEFの場合と同様に、多くの元素成分の濃度増加に伴ってFEV₁の有意な低下が認められた。一方、PM_{2.5}中のアルミニウム（Al）、チタン（Ti）、セリウム（Ce）、サマリウム（Sm）、トリウム（Th）については、濃度が増加すると逆にFEV₁の有意な上昇が示された。このように、元素成分によってFEV₁への影響が異なることが示された。理由は明らかではないが、PEFとFEV₁では大気汚染物質の影響が異なっていることが示唆された。



図(2)-14 FEV₁の変化とPM_{2.5}及びPM_{2.5}中の炭素、イオン成分濃度との関連（全期間）
検査前24時間の各物質の四分位範囲濃度増加当たりの変化率（%）

*は有意(p<0.05)に低くなったことを示す。



図(2)-15 FEV₁の変化とPM_{2.5}中の元素成分濃度との関連（全期間）
検査前24時間の各物質の四分位範囲濃度増加当たりの変化率（%）

*は有意(p<0.05)に低くなったことを示す。

4) 発生源因子との関連

サブテーマ（3）において得られたPM_{2.5}の成分濃度にPMF解析を適用したところ、6つの発生源因子が推定された。検査前24時間の各発生源因子の寄与濃度と肺機能との関連を解析した結果を表(2)-12及び図(2)-16、図(2)-17に示した。

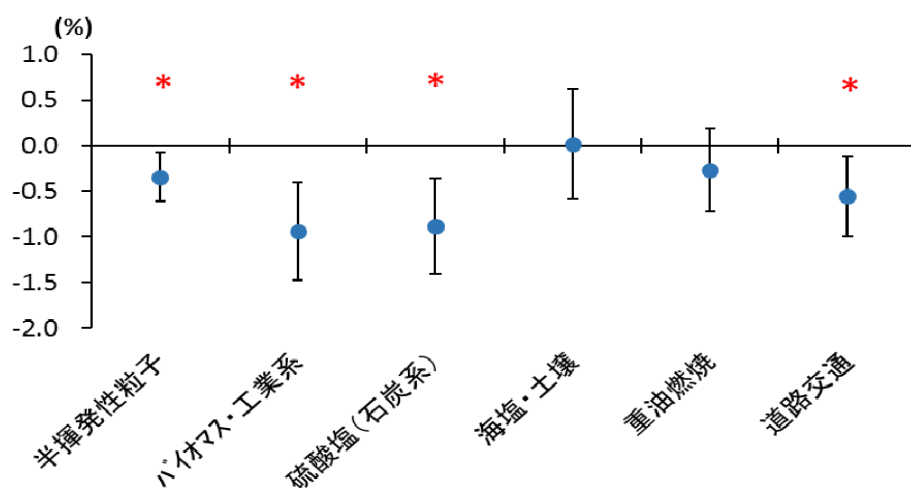
PEFについては、検査前24時間の半揮発性粒子、バイオマス・工業系、硫酸塩（石炭系）、道路交通の4つの因子の寄与濃度が増加すると有意な低下が認められた。四分位範囲濃度増加当たりの低下率が最も大きいのはバイオマス・工業系因子の-0.94% [95%信頼区間：-1.47, -0.40]であった。海塩・土壌及び重油燃焼因子との関連は有意ではなかった。

FEV₁については、検査前24時間のバイオマス・工業系、硫酸塩（石炭系）、重油燃焼、道路交通の4つの寄与因子濃度が増加すると有意な低下が認められた。四分位範囲濃度増加当たりの低下率が最も大きいのは硫酸塩（石炭系）因子の-1.38% [95%信頼区間：-2.04, -0.72]であった。半揮発性粒子及び海塩・土壌因子との関連は有意ではなかった。

表(2)-12 PMF解析により推定されたPM_{2.5}発生源因子の寄与濃度と肺機能値の関連（全期間）

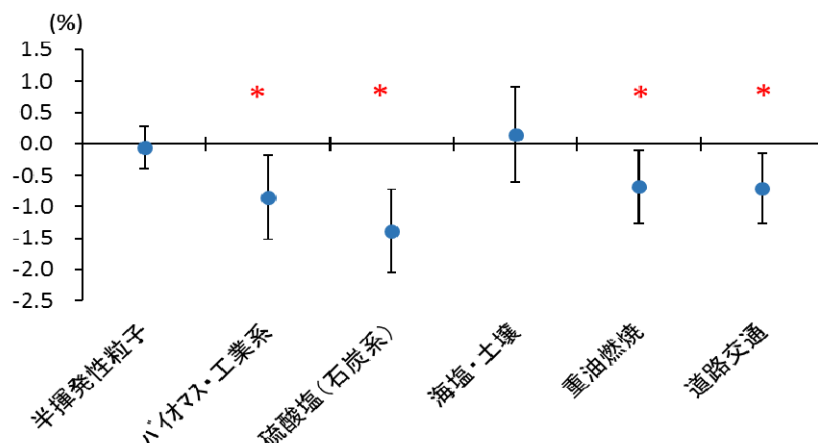
発生源因子	IQR	最大呼気流量（PEF）			1秒量（FEV ₁ ）		
		変化率	95%CI	p値	変化率	95%CI	p値
半揮発性粒子	0.57	-0.34	[-0.61, -0.08]	0.012	-0.05	[-0.39, 0.28]	0.747
バイオマス・工業系	3.98	-0.94	[-1.47, -0.40]	0.001	-0.85	[-1.52, -0.18]	0.013
硫酸塩（石炭系）	6.01	-0.88	[-1.40, -0.36]	0.001	-1.38	[-2.04, -0.72]	<0.001
海塩・土壌	1.42	0.02	[-0.58, 0.62]	0.958	0.16	[-0.60, 0.92]	0.687
重油燃焼	1.46	-0.27	[-0.72, 0.19]	0.248	-0.68	[-1.26, -0.10]	0.021
道路交通	1.24	-0.56	[-1.00, -0.12]	0.013	-0.71	[-1.26, -0.15]	0.012

検査前24時間の各発生源因子の寄与濃度の四分位範囲（IQR）増加当たりの肺機能値の変化率（%）



図(2)-16 PEFの変化とPM_{2.5}の発生源因子の寄与濃度との関連（全期間）
検査前24時間の各発生源因子の寄与濃度の四分位範囲増加当たりの変化率（%）

*は有意(p<0.05)に低くなったことを示す。



図(2)-17 FEV₁の変化とPM_{2.5}の発生源因子の寄与濃度との関連（全期間）
 検査前24時間の各発生源因子の寄与濃度の四分位範囲増加当たりの変化率（%）
 *は有意(p<0.05)に低くなったことを示す。

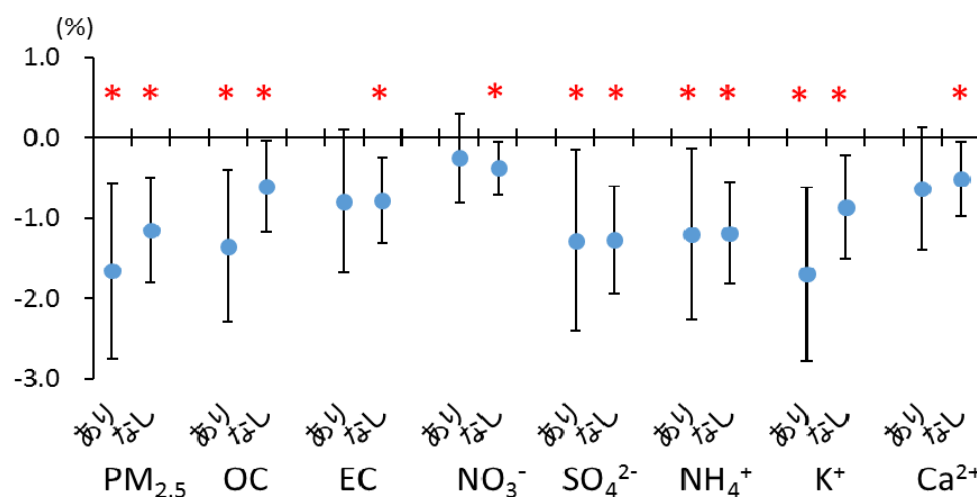
このように、バイオマス・工業系、硫酸塩（石炭系）、道路交通についてはPEFとFEV₁の両者との関連が有意であったが、半揮発性粒子はPEFのみ、重油燃焼はFEV₁のみとの関連が認められたことから、PEFとFEV₁に影響を与える大気汚染の特性は異なっているのかもしれない。

検査時期別の各発生源因子の寄与濃度と肺機能値との関連は、資料編の追加表(2)-4に示した。

5) アレルギー疾患既往の有無別

アレルギー疾患の既往の有無別に、PM_{2.5}の質量濃度及びPM_{2.5}中の炭素、イオン成分濃度とPEFとの関連を図(2)-18に示した。

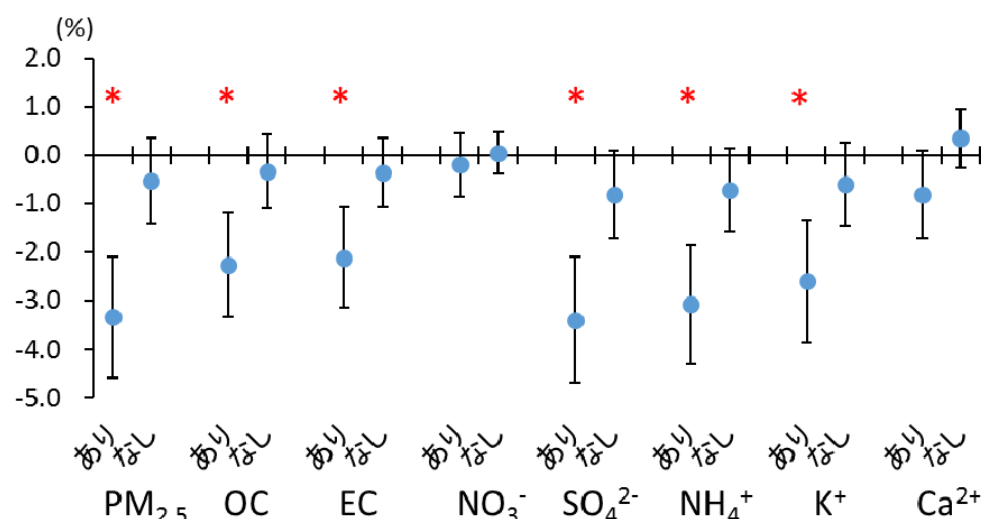
PM_{2.5}の質量濃度、成分ではOC、SO₄²⁻、NH₄⁺、K⁺の濃度が増加すると、アレルギー疾患の既往の有無にかかわらず、PEFの有意な低下が認められた。EC、NO₃⁻、Ca²⁺についても、アレルギー疾患の既往の有無に関わらずPEFの低下がみられ、既往がない者では有意であった。アレルギー疾患の既往の既往がある者では有意でなかったが、対象者数が限られていたためであると考えられた。



図(2)-18 PEFの変化とPM_{2.5}及びPM_{2.5}中の炭素、イオン成分濃度との関連（アレルギーの有無別）
 検査前24時間の各物質の四分位範囲濃度増加当たりの変化率（%）
 *は有意(p<0.05)に低くなったことを示す。

同様に、アレルギー疾患の既往の有無別に、PM_{2.5}の質量濃度及びPM_{2.5}中の炭素、イオン成分濃度とFEV₁との関連を図(2)-19に示した。

FEV₁については、アレルギー疾患の既往がある者においてのみ、PM_{2.5}、OC、EC、SO₄²⁻、NH₄⁺、K⁺の濃度が増加すると有意な低下が認められたが、アレルギーの既往がない者ではいずれの物質との関連も認められなかった。NO₃⁻とCa²⁺については、アレルギー疾患の既往の有無に関わらずFEV₁との関連は有意ではなかった。



図(2)-19 FEV₁の変化とPM_{2.5}及びPM_{2.5}中の炭素、イオン成分濃度との関連(アレルギーの有無別)
検査前24時間の各物質の四分位範囲濃度増加当たりの変化率 (%)

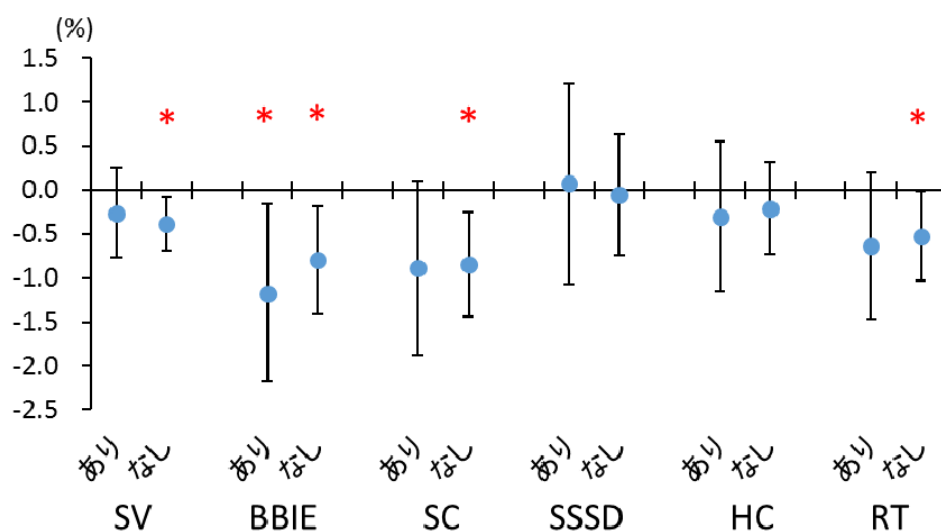
*は有意(p<0.05)に低くなったことを示す。

なお、その他の大気汚染物質、PM_{2.5}中のイオン成分、元素成分と肺機能値との関連は、資料編の追加表(2)-5、(2)-6に示した。

次に、アレルギー疾患の既往の有無別に、PMF解析で推定された発生源因子の寄与濃度とPEFとの関連を図(2)-20、FEV₁との関連を図(2)-21に示した。

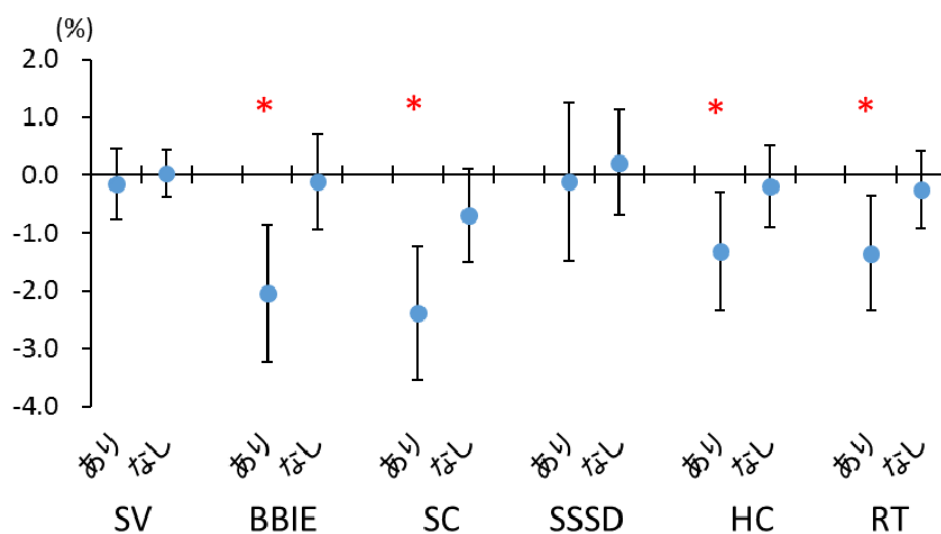
アレルギー疾患の既往の有無にかかわらず、バイオマス・工業系因子の寄与濃度が増加すると、PEFの有意な低下が認められた。半揮発性粒子、硫酸塩(石炭系)、道路交通の寄与因子濃度については、アレルギー疾患の既往がない者では有意な低下がみられたが、アレルギーの既往がある者では有意ではなかった。海塩・土壌と重油燃焼の2つの因子については、アレルギー疾患の既往の有無にかかわらず、有意な関連は認められなかった。

一方、FEV₁については、アレルギー疾患の既往がある者においてのみ、バイオマス・工業系、硫酸塩(石炭系)、重油燃焼、道路交通の4つの因子の寄与濃度が増加すると有意な低下が認められたが、アレルギーの既往がない者ではいずれの物質との関連も認められなかった。半揮発性粒子と海塩・土壌の2つの因子については、アレルギー疾患の既往の有無にかかわらず、有意な関連は認められなかった。



図(2)-20 PEFの変化とPM_{2.5}の発生源因子の寄与濃度との関連（全期間）

SV: 半揮発性粒子、BBIE: バイオマス・工業系、SC: 硫酸塩（石炭系）、SSSD: 海塩・土壌、HC: 重油燃焼、RT: 道路交通。検査前24時間の各発生源因子の寄与濃度の四分位範囲増加当たりの変化率（%）。*は有意(p<0.05)に低くなったことを示す。



図(2)-21 FEV₁の変化とPM_{2.5}の発生源因子の寄与濃度との関連（全期間）

SV: 半揮発性粒子、BBIE: バイオマス・工業系、SC: 硫酸塩（石炭系）、SSSD: 海塩・土壌、HC: 重油燃焼、RT: 道路交通。検査前24時間の各発生源因子の寄与濃度の四分位範囲増加当たりの変化率（%）。*は有意(p<0.05)に低くなったことを示す。

これらのことから、PEFに対する大気汚染の影響はアレルギー疾患の既往の有無による差はないが、アレルギー疾患の既往のある者はFEV₁に対する影響を受けやすいと考えられた。なお、各因子の寄与濃度の増加に伴う肺機能値の変化量は、資料編の追加表(2)-7に示した。

(4) 呼気一酸化窒素 (FeNO) 濃度の測定

1) FeNO 濃度測定の実施状況

FeNO濃度の検査実施状況は表(2)-13に示したとおり、(3)の肺機能測定期間中に各4～5回ずつ、のべ820回実施した。平均±標準偏差は男子33.9±28.7 ppb、女子22.3±19.3 ppbと男子のほうが高かった。検査期間別にみると、2016年10-11月においては、他の時期に比べて男女ともに低い値となっており、測定器の校正が正しく行われていない可能性が考えられた。そのため、この期間に行われた検査結果は解析から除外した。

表(2)-13 呼気一酸化窒素濃度 (FeNO) 検査実施状況 (2014年10月～2016年11月)

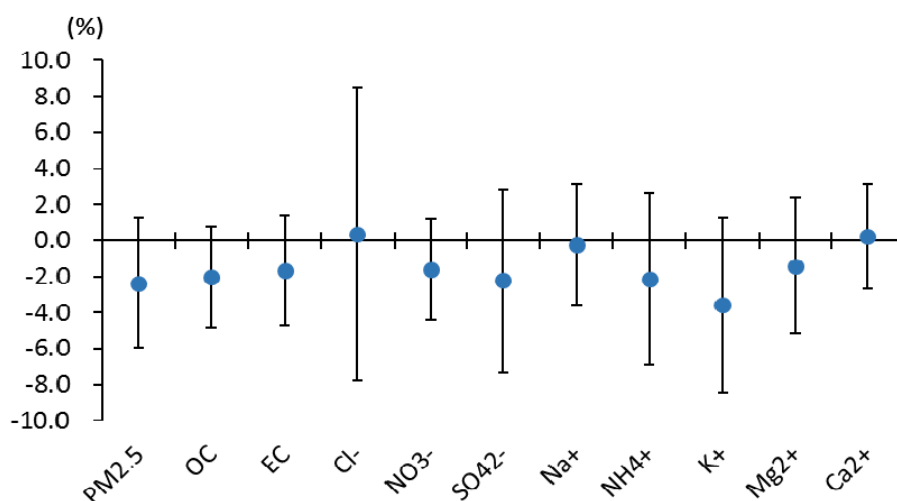
	N	検査回数	平均 ± SD	幾何平均	(95%信頼区間)
男子					
2014年10～11月	27	86	44.4±42.2	33.4	(28.7, 39.0)
2015年5～6月	27	127	36.3±25.5	30.8	(27.9, 33.9)
2015年10～11月	27	128	36.1±25.5	30.0	(27.1, 33.2)
2016年5～6月	27	92	32.6±25.2	27.0	(24.0, 30.3)
2016年10～11月	27	78	16.5±12.3	13.7	(12.1, 15.5)
全期間	32	511	33.9±28.7	26.8	(25.3, 28.4)
女子					
2014年10～11月	15	52	30.5±26.5	22.9	(18.8, 27.8)
2015年5～6月	14	68	22.3±14.3	18.9	(16.5, 21.6)
2015年10～11月	14	66	27.5±22.4	20.8	(17.5, 24.7)
2016年5～6月	15	60	21.0±15.9	16.7	(14.1, 19.8)
2016年10～11月	15	63	11.6±8.7	9.4	(8.1, 11.0)
全期間	16	309	22.3±19.3	16.9	(15.6, 18.3)
合計					
2014年10～11月	42	138	39.2±37.6	29.0	(25.6, 32.8)
2015年5～6月	41	195	31.4±23.2	26.0	(23.9, 28.3)
2015年10～11月	41	194	33.1±24.8	26.5	(24.1, 29.1)
2016年5～6月	42	152	28.0±22.7	22.3	(20.1, 24.8)
2016年10～11月	42	141	14.3±11.1	11.6	(10.5, 12.8)
全期間	48	820	29.5±26.1	22.5	(21.4, 23.6)

単位 : ppb、SD: 標準偏差

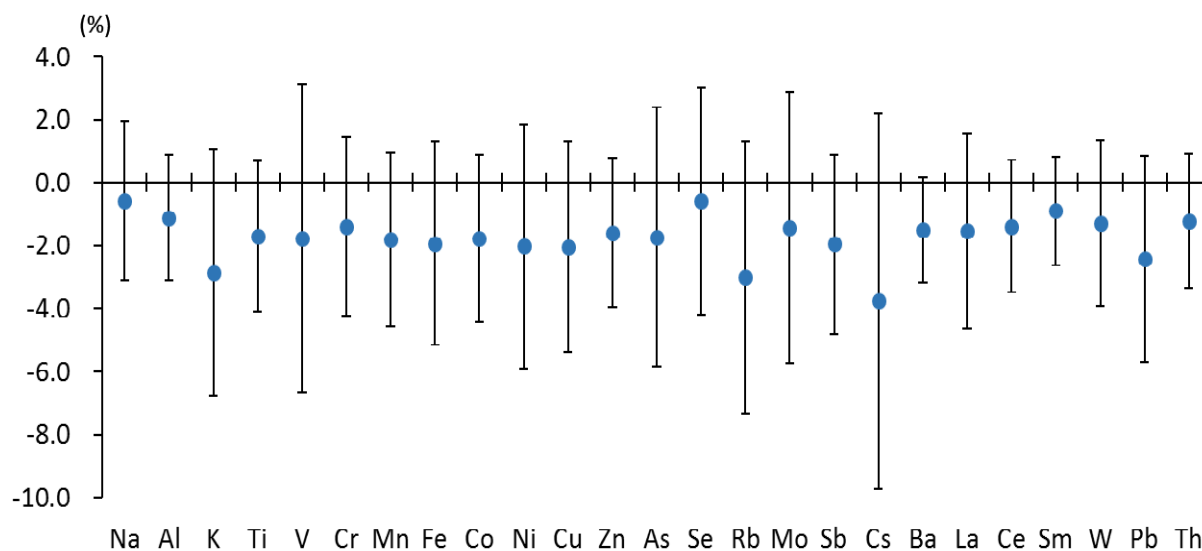
2) 大気汚染濃度との関係の解析

FeNOと検査前24時間のPM_{2.5}の質量濃度、PM_{2.5}中の炭素、イオン成分濃度との関連を図(2)-22、元素成分濃度との関連を図(2)-23に示した。多くの成分濃度が増加するとFeNOは低下する傾向にあるが、いずれの項目についても有意な関連性は認められなかった。

なお、各成分の四分位範囲濃度、各成分とFeNOとの関連は、資料編の追加表(2)-8に示した。

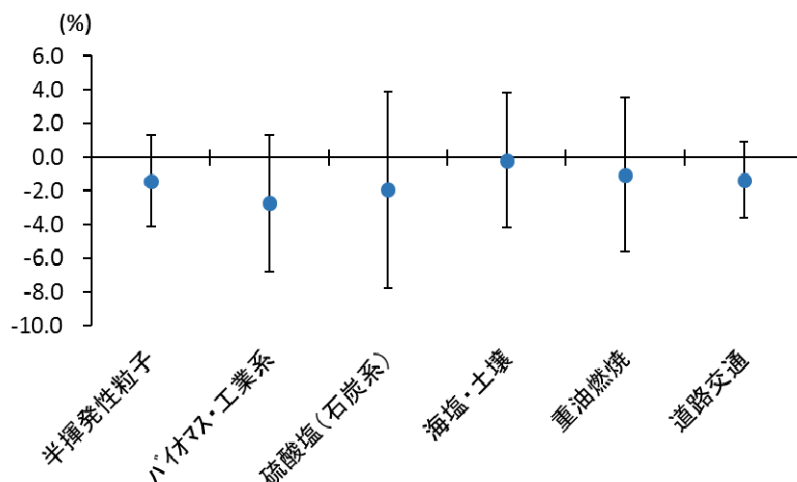


図(2)-22 FeNOの変化とPM_{2.5}及びPM_{2.5}中の炭素、イオン成分濃度との関連（全期間）
検査前24時間の各物質の四分位範囲濃度増加当たりの変化率（%）



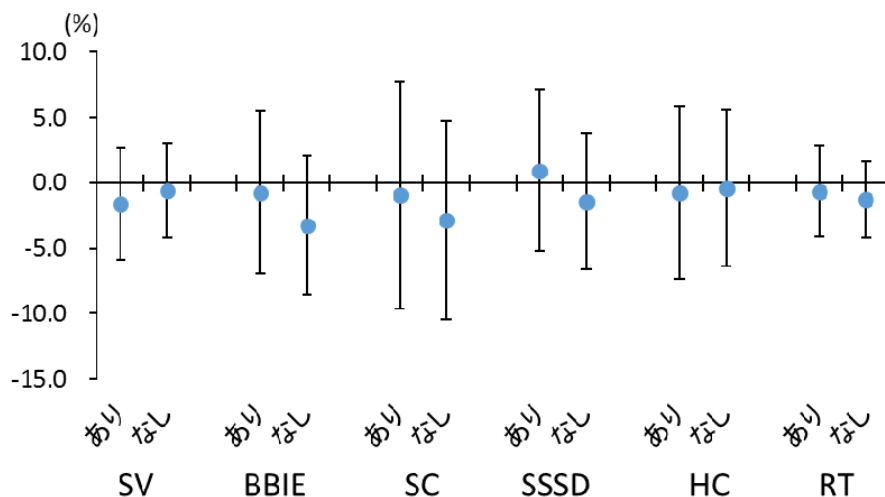
図(2)-23 FeNOの変化とPM_{2.5}及びPM_{2.5}中の元素成分濃度との関連（全期間）
検査前24時間の各物質の四分位範囲濃度増加当たりの変化率（%）

PMF解析により推定された6つの発生源寄与因子の寄与濃度との関連は図(2)-24に示した。成分濃度の場合と同様に、各因子の寄与濃度が増加するとFeNOはやや低下する傾向であったが、いずれの因子についても有意ではなかった。



図(2)-24 FeNOの変化とPM_{2.5}の発生源因子の寄与濃度との関連（全期間）
検査前24時間の各発生源因子の寄与濃度の四分位範囲増加当たりの変化率（%）

また、アレルギー疾患の既往の有無別に、FeNOと発生源寄与因子濃度とPEFとの関連を図(2)-25に示した。アレルギー疾患の既往の有無にかかわらず、いずれの発生源寄与因子濃度もFeNOとの関連は有意ではなかった。



図(2)-25 FeNOの変化とPM_{2.5}の発生源因子の寄与濃度との関連（全期間）

SV: 半揮発性粒子、BBIE: バイオマス・工業系、SC: 硫酸塩（石炭系）、SSSD: 海塩・土壌、HC: 重油燃焼、RT: 道路交通。検査前24時間の各発生源因子の寄与濃度の四分位範囲増加当たりの変化率（%）

これらの結果より、今回の研究では、気道炎症の指標であるFeNOに対する大気汚染の影響を明らかにすることはできなかった。対象者の多くが健常者であったこと、測定した回数が限られていたことなどによると考えられた。

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

瀬戸内海の海域はPM_{2.5}が高濃度となりやすいことが知られているが、その健康影響についてはほとんど報告がない。本研究では、近隣に主要な大気汚染発生源のない瀬戸内海の離島である弓削島において、学生が毎日測定したPEF及びFEV₁は、検査前のPM_{2.5}をはじめとする大気汚染物質の濃度の上昇に伴って低下し、PM_{2.5}中の硫酸イオン、アンモニウムイオン、カリウムイオン等の多くの成分濃度と肺機能低下との関連が明らかとなった。発生源については、半揮発性粒子、バイオマス・工業系、硫酸塩（石炭系）、道路交通に由来するPM_{2.5}が肺機能の低下に関連していることが示唆された。また、アレルギー疾患の既往を有する者は大気汚染物質に対する感受性が高いことが示された。このように、瀬戸内海の離島においてもPM_{2.5}をはじめとする大気汚染物質が学生の呼吸器系に影響を与え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>

わが国では2009年にPM_{2.5}に係る環境基準が設定され、近年は中国での大気汚染の深刻化を契機にPM_{2.5}に対する国民の関心が高まっているが、国内における疫学研究の知見は十分ではなく、特に成分組成との関係はほとんどわかっていない。

本研究では、周囲に大気汚染の主要発生源のない瀬戸内海の離島において、学生が毎日測定した肺機能は、大気中のPM_{2.5}等の質量濃度、PM_{2.5}中の元素状炭素、硫酸イオン、アンモニウムイオン等の多くの成分濃度の増加によって有意な低下することを明らかにした。また、アレルギー疾患の既往を有する者は大気汚染に対する感受性が高いことが示された。こうした成果は、PM_{2.5}濃度が上昇した際にはアレルギー疾患の既往を有する者に外出を控えるように注意喚起を行うなど、効果的な予防対策の検討に貢献しうる重要な知見である。また、PM_{2.5}中の成分及び発生原因と健康影響の関連についての成果は、PM_{2.5}を削減するための発生源対策を進める上で健康影響の観点から優先度を検討するなど、貴重な情報を提供するものである。

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）>

- 1) 余田佳子、高木 洋、若松純子、大谷成人、島 正之. アレルギー、64, 128-135 (2015), 大気汚染物質が喘息およびアレルギー症状を有する者の肺機能に与える急性影響
- 2) Y. YODA, H. TAKAGI, J. WAKAMATSU, T. ITO, R. NAKATSUBO, Y. HORIE, T. HIRAKI, M. SHIMA: Environ. Health Prev. Med. 22, 33 (2017), Acute effects of air pollutants on pulmonary

function among students: a panel study in an isolated island.

<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) 余田佳子、高木 洋、若松純子、大谷成人、島 正之：第26回 アレルギー学会春季臨床大会（2014）
「大気汚染物質が喘息およびアレルギー症状を有する者の肺機能に与える急性影響」
- 2) 余田佳子、高木 洋、伊藤武志、若松純子、中坪良平、堀江洋佑、平木隆年、島 正之：第56回大気環境学会年会（2015）
「瀬戸内海の離島における大気中粒子状物質が学生の肺機能に及ぼす影響」
- 3) 余田佳子、高木 洋、伊藤武志、若松純子、中坪良平、堀江洋祐、平木隆年、島 正之：第86回日本衛生学会学術総会（2016）
「PM_{2.5}中の元素成分濃度と学生の肺機能との関連」
- 4) Y. YODA, H. TAKAGI, T. ITO, J. WAKAMATSU, R. NAKATSUBO, Y. HORIE, T. HIRAKI, M. SHIMA: Conference of International Society for Environmental Epidemiology and International Society of Exposure Science - Asia Chapter 2016 (2016)
“Association of ambient particulate matter and its ionic composition with pulmonary function among healthy students in a remote island of Japan”
- 5) 余田佳子、高木 洋、伊藤武志、若松純子、中坪良平、堀江洋祐、平木隆年、島 正之：第57回大気環境学会年会（2016）
「瀬戸内海の離島における大気環境が呼吸器系に及ぼす影響の季節差について」

（３）出願特許

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) 一般公開シンポジウム「日本と中国における PM_{2.5} 及びオゾンの呼吸器系への影響」（主催：兵庫医科大学、平成 26 年 12 月 6 日、グランフロント大阪 ナレッジキャピタル・カンファレンスルームタワーC Room C03、参加者約 50 名）にて研究成果の紹介
- 2) 一般公開講座「PM_{2.5}及びオゾンによる大気汚染とその健康影響」（主催：兵庫医科大学、平成28年2月27日、大阪・梅田 阪急グランドビル会議室、聴衆約60名）にて研究成果の紹介
- 3) 一般公開講座「PM_{2.5}及びオゾンによる大気汚染とその健康影響」（主催：兵庫医科大学、平成29年3月24日、大阪・梅田 阪急グランドビル会議室、聴衆約50名）にて研究成果の紹介

（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

- 1) Brunekreef B, Holgate ST. Air pollution and health. *Lancet*. 2002;360:1233-1242.
- 2) Rice MB, Ljungman PL, Wilker EH, Gold DR, Schwartz JD, Koutrakis P, et al. Short-term exposure to air pollution and lung function in the Framingham Heart Study. *Am J Respir Crit Care Med*. 2013;188:1351-1357.
- 3) Yoda Y, Otani N, Sakurai S, Shima M. Acute effects of summer air pollution on pulmonary function and airway inflammation in healthy young women. *J Epidemiol*. 2014;24:312-320.
- 4) Churg A, Brauer M, del Carmen Avila-Casado M, Fortoul TI, Wright JL. Chronic exposure to high levels of particulate air pollution and small airway remodeling. *Environ Health Perspect*. 2003;111:714-718.
- 5) Xing YF, Xu YH, Shi MH, Lian YX. The impact of PM_{2.5} on the human respiratory system. *J Thorac Dis*. 2016;8:E69-74.
- 6) Barraza-Villarreal A, Sunyer J, Hernandez-Cadena L, Escamilla-Nunez MC, Sienra-Monge JJ, Ramirez-Aguilar M, et al. Air pollution, airway inflammation, and lung function in a cohort study of Mexico City schoolchildren. *Environ Health Perspect*. 2008;116:832-838.
- 7) Koenig JQ, Jansen K, Mar TF, Lumley T, Kaufman J, Trenga CA, et al. Measurement of offline exhaled nitric oxide in a study of community exposure to air pollution. *Environ Health Perspect*. 2003;111:1625-1629.
- 8) Lagorio S, Forastiere F, Pistelli R, Iavarone I, Michelozzi P, Fano V, et al. Air pollution and lung function among susceptible adult subjects: a panel study. *Environ Health*. 2006;5:11.
- 9) Holguin F, Flores S, Ross Z, Cortez M, Molina M, Molina L, et al. Traffic-related exposures, airway function, inflammation, and respiratory symptoms in children. *Am J Respir Crit Care Med*. 2007;176:1236-1242.
- 10) Kulkarni N, Pierse N, Rushton L, Grigg J. Carbon in airway macrophages and lung function in children. *N Engl J Med*. 2006; 355: 21-30.
- 11) Sarnat SE, Raysoni AU, Li WW, Holguin F, Johnson BA, Flores Luevano S, et al. Air pollution and acute respiratory response in a panel of asthmatic children along the U.S.-Mexico border. *Environ Health Perspect*. 2012;120:437-444.
- 12) Ma L, Shima M, Yoda Y, Yamamoto H, Nakai S, Tamura K, et al. Airborne particulate matter and respiratory morbidity in asthmatic children, *J Epidemiol*, 2008;18:97-110.
- 13) Mann JK, Balmes JR, Bruckner TA, Mortimer KM, Margolis HG, Pratt B, et al. Short-term effects of air pollution on wheeze in asthmatic children in Fresno, California. *Environ Health Perspect*. 2010;118:1497-1502.
- 14) Wu S, Ni Y, Li H, Pan L, Yang D, Baccarelli AA, et al. Short-term exposure to high ambient air pollution increases airway inflammation and respiratory symptoms in chronic obstructive pulmonary disease patients in Beijing, China. *Environ Int*. 2016;94:76-82.

- 15) Yoda Y, Otani N, Hasunuma H, Kanegae H, Shima M. Storage conditions for stability of offline measurement of fractional exhaled nitric oxide after collection for epidemiologic research. BMC Pulmonary Medicine.2012, 12:68.
- 16) 環境省微小粒子状物質 (PM_{2.5}) に関する専門家会合：最近の微小粒子状物質 (PM_{2.5}) による大気汚染への対応、2013. <http://www.env.go.jp/air/osen/pm/info/attach/report20130227.pdf>
- 17) Fukutomi Y, Nakamura H, Kobayashi F, Taniguchi M, Konno S, Nishimura M, et al. Nationwide cross-sectional population-based study on the prevalences of asthma and asthma symptoms among Japanese adults. Int Arch Allergy Immunol. 2010;153(3):280-7.
- 18) 文部科学省：平成28年度学校保健統計調査報告書、2017.
http://www.mext.go.jp/b_menu/toukei/chousa05/hoken/1268826.htm

（３）大気中PM_{2.5}の成分測定による環境挙動の解明に関する研究

（公財）ひょうご環境創造協会兵庫県環境研究センター 平木 隆年・中坪 良平・堀江 洋佑

平成26～28年度累計予算額：31,215千円（うち平成28年度：9,544千円）

予算額は、間接経費を含む。

〔要旨〕

瀬戸内海沿岸部の工業地帯（兵庫県姫路市）及び瀬戸内海の離島（愛媛県弓削島）において、2014年7月から2016年11月の間に、各季節14日間ずつ24時間単位でPM_{2.5}の成分濃度を測定し、Positive Matrix Factorization（PMF）解析によりPM_{2.5}の発生源とその寄与濃度を推定した。また、後方流跡線を用いたConcentration Weighted Trajectory（CWT）解析により発生源の位置を推定した。その結果、PM_{2.5}に寄与する発生源として、越境移流の影響が示唆される硫酸塩（石炭系）や、国内発生源の影響が示唆される道路交通、バイオマス燃焼・工業系粉じん、重油燃焼、半揮発性粒子などが推定された。両地点で硫酸塩（石炭系）の寄与濃度が最も高かったが、姫路では次いで道路交通の寄与濃度が、弓削ではバイオマス燃焼・工業系粉じんの寄与濃度が高かった。

大気エアロゾル化学成分連続自動分析装置（ACSA-14）により得られた時間単位のPM_{2.5}成分測定データ及びガス成分の測定結果を用いた因子分析を行い、汚染要因を推定した。その結果、越境移流の影響が示唆される因子、一次排出粒子の影響を表す因子、光化学二次生成の影響を表す因子が推測され、これらの因子がPM_{2.5}の濃度増加に及ぼす影響の程度は季節により異なっていた。

化学輸送モデル（WRF/CMAQ）を用いて2014年7月から2016年11月までのPM_{2.5}濃度を推計するとともに、二次生成粒子の発生源解析を行い、姫路市と弓削島における二次生成粒子に対する国内発生源及び越境移流の影響を定量的に評価した。その結果、東アジア人為起源の寄与割合は、姫路市と弓削島で40%と同程度だったが、船舶の寄与割合は姫路市よりも弓削島で大きく、また、自動車の寄与割合は弓削島よりも姫路市で大きかった。

〔キーワード〕

PM_{2.5}、成分測定、PMF、化学輸送モデル、発生源解析

1. はじめに

人への健康影響が明らかとなった大気中微小粒子状物質（PM_{2.5}）は、我が国では2009年9月に大気環境基準が告示された。環境省の報告では、2014年度のPM_{2.5}の大気環境基準達成率が、一般大気測定局で37.8%、自動車排ガス測定局で25.8%と低い状況であり、早期の低減対策が課題となっている。一方、観測網の整備が進む中で、瀬戸内海沿岸部のPM_{2.5}濃度が全国の他地点と比較して特徴的に高濃度となりやすいことが見いだされた。実際に、2014年度の環境基準非達成局（一般大気局）の上位11局中8局を瀬戸内海沿岸部に位置する測定局が占め、この傾向は2013年度も同様であった。

PM_{2.5}による大気汚染は、これまで西日本では中国大陆からの越境移流の影響が強いと推測されていたが、化学輸送モデルによる最近の研究では、西日本の都市部や瀬戸内海周辺の環境基準非

達成局では、国内汚染の寄与が支配的であることが報告されている^り。また、瀬戸内海沿岸部は、越境移流や工場排ガス等の各種汚染源に加えて船舶排ガスの影響が大きいと予想され、さらに沿岸部特有の海陸風や南北を山地に挟まれた閉鎖的な地形がもたらす局地的な大気循環の効果により、汚染機構が複雑になっていると考えられる。当該地域のPM_{2.5}対策を進めるためには、発生源の集積する沿岸の都市部に加え、瀬戸内海の離島など、人為起源の影響が小さい地点を対象とした大気環境調査を行い、両地点の成分組成や発生源の相違等を評価する必要がある。また、PM_{2.5}の低減対策を検討するためには、瀬戸内海等の狭小領域の大気環境を精度よく再現できる化学輸送モデルを用いた発生源感度解析等の手法により、PM_{2.5}の高濃度化に寄与する越境移流や国内発生源の影響の程度を定量的に把握する必要がある。

2. 研究開発目的

本研究では、瀬戸内海沿岸部の工業地帯（兵庫県姫路市）及び離島（愛媛県弓削島）においてPM_{2.5}の成分測定を実施し、成分測定データにPositive Matrix Factorization（PMF）解析を適用して両地点に寄与する発生源とその寄与濃度の相違を評価するとともに、化学輸送モデルを用いた発生源感度解析により、越境移流と国内発生源の影響を定量的に把握することを目的とする。

3. 研究開発方法

（1）PM_{2.5}試料の採取

PM_{2.5}試料は、兵庫県姫路市の兵庫県姫路総合庁舎（姫路市北条1-98、6階建て屋上）及び愛媛県弓削島の国立弓削商船高等専門学校（愛媛県越智郡上島町弓削下弓削1000、4階建て屋上）において、24時間単位（午前10時～翌午前10時）で採取した。試料採取時の様子を図(3)-1及び図(3)-2、採取期間を表(3)-1に示した。



図(3)-1 姫路市における試料採取の様子



図(3)-2 弓削島における試料採取の様子

表(3)-1 試料採取期間

年度	季節	採取期間	データ数
2014	夏季	平成26年7月23日（水）～平成26年8月6日（水）	14
	秋季	姫路：平成26年10月22日（水）～平成26年11月5日（水）	14
		弓削：平成26年10月2日（木）～平成26年11月5日（水）	34
	冬季	平成27年1月21日（水）～平成27年2月4日（水）	14
2015	春季	姫路：平成27年5月7日（木）～平成27年5月25日（月）	16
		弓削：平成27年5月6日（水）～平成27年6月8日（月）	33
	夏季	平成27年7月22日（水）～平成27年8月6日（水）	14
	秋季	姫路：平成27年10月21日（水）～平成27年11月4日（水）	14
		弓削：平成27年10月2日（金）～平成27年11月6日（金）	34
	冬季	平成28年1月20日（水）～平成28年2月3日（水）※弓削は2/5まで	14
2016	春季	姫路：平成28年5月6日（金）～平成28年5月23日（月）	15
		弓削：平成28年5月6日（金）～平成28年6月6日（月）	31
	夏季	平成28年7月21日（木）～平成28年8月4日（木）	14
	秋季	姫路：平成28年10月20日（木）～平成28年11月3日（木）	14
		弓削：平成28年10月4日（火）～平成28年11月3日（木）	30

試料採取は、米国の標準測定法（Federal Reference Method）に準拠したPM_{2.5}ローボリュームエアースAMPLER（Thermo Fisher SCIENTIFIC社製 PM_{2.5}シーケンシャルエアースAMPLER Model2025（姫路）及びModel2025i（弓削））を各地点2台設置し、毎分16.7Lの流量で大気を連続吸引した。試料採取用ろ紙は、ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）ろ紙（Whatman社7592-104、47mmφ）と、石英繊維ろ紙（Pall社2500QAT-UP、47mmφ）を使用した。石英繊維ろ紙は、使用前に電気炉により350℃で1時間加熱したものをを用いた。

（2）PM_{2.5}質量濃度及び主要成分の分析

1）質量濃度

質量濃度の測定は、Sartorius社の電子ウルトラマイクロ天秤（SE-2F）を用いて秤量法により行った。試料採取前後のPTFEろ紙を、気温21.5±1.5℃、相対湿度35±5%の条件下で24時間程度恒量し、同一条件下の室内で0.1μg単位まで秤量した。試料採取前後の質量差から差し引いた値をPM_{2.5}質量とし、採気量により大気中PM_{2.5}濃度（μg/m³）を算出した。

2）イオン成分

イオン成分の測定は、イオンクロマトグラフィー（Thermo Fisher SCIENTIFIC社ICS-2100）により行った。試料を採取した石英繊維ろ紙の1/4または1/2を裁断してポリプロピレン製容器に入れ、超純水2mlまたは3mlを加えて10分間超音波抽出し、攪拌機で攪拌した。抽出溶液をディスポーザブルフィルター（ADVANTEC社DISMIC-13HP、孔径0.2μm）でろ過し、8項目（Cl⁻、NO₃⁻、SO₄²⁻、Na⁺、NH₄⁺、K⁺、Mg²⁺、Ca²⁺）を測定した。

3）元素成分

元素成分の測定は、誘導結合プラズマ質量分析（ICP-MS）法（Thermo Fisher SCIENTIFIC社X

SERIES II) により行った。試料採取後のPTFEろ紙の1/2を切り取ってサポートリングを取り除き、PTFE製分解容器に移した。硝酸（70%）5ml、フッ化水素酸（49%）3mlまたは1ml、過酸化水素水（31%）1ml（すべて関東化学社の超高純度試薬）を加えて密閉し、マイクロウェーブ分解装置（Anton Paar社、Multiwave PRO）を用いて加圧分解処理及び試料溶液の濃縮を行った。その後、硝酸（2+98）で5mlに定容して試料溶液とし、29項目（Na、Al、K、Ca、Sc、Ti、V、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、As、Se、Rb、Mo、Sb、Cs、Ba、La、Ce、Sm、Hf、W、Ta、Th、Pb）を測定した。

4）炭素成分

炭素成分の測定は、熱分離光学補正法（Sunset Laboratory社OCEC Lab analyzer）により行った。試料採取後の石英繊維ろ紙をポンチで1cm²くりぬき、IMPROVE_Aプロトコルで2項目（有機炭素（Organic Carbon; OC）及び元素状炭素（Elemental Carbon; EC、あるいはOptical Black Carbon; OBC））を測定した。

（3）レセプターモデルによるPM_{2.5}の発生源解析

1）PMFによる発生源因子とその寄与濃度の推定

PM_{2.5}の発生源情報を得るため、本サブテーマで得られた成分測定結果を用いて、成分測定データから発生源因子を推定するレセプターモデルの一種であるPositive Matrix Factorization（PMF）解析を行った。解析ソフトは米国環境保護庁（Environmental Protection Agency; EPA）が開発したEPA-PMF5.0を用いた。PMFにより抽出された因子プロファイルから発生源を推測するとともに発生源因子の寄与濃度を求めた。PMF解析は、基本的にはユーザーガイド²⁾に従い、各成分についてシグナル/ノイズ比（S/N比）及び予備解析（因子数3～12）における計算値と実測値の再現性等を参考に重み付けを行った。各成分の不確実性は個々のデータ毎に付与する方法を採用し、エラーフラクションは15%、総合的な不確実性（Extra Modeling Uncertainty）は5%とした。解析結果の妥当性は、Bootstrap、DISP、BS-DISP等のPMF5.0に内挿されているエラー評価ツールにより確認した。

2）CWTによる発生源位置の推定

発生源位置に関する情報を得るため、気塊の後方流跡線を用いたConcentration Weighted Trajectory（CWT）解析を行った。本解析では、越境移流の影響を評価するためのアジア域を対象としたCWT解析と、国内発生源の影響を評価するための西日本を対象としたCWT解析の2パターンを実施した。後方流跡線は、表(3)-2に示した条件で、米国海洋大気庁（NOAA）のHYSPLITモデルを利用して作成した。気象データの詳細は後述する。

表(3)-2 後方流跡線の作成条件

	アジア域対象の解析	西日本対象の解析
気象データ	WRF計算結果（64km×64km）	WRF計算結果（4km×4km）
起点高度	500m、1000m、1500m	100m、300m、500m
遡及時間	72時間	36時間
計算範囲	緯度:i~i+0.5° 経度:j~j+0.5°	緯度:i~i+0.05° 経度:j~j+0.05°

CWT解析では、任意の計算範囲 (i, j) について、下式で定義される C_{ij} 値を求めて地図上に示した。ここで C_l は因子 l の寄与濃度、 τ_{ijl} は任意の範囲に存在する因子 l における後方流跡線のエンドポイント数、 m はサンプル数を表す。

$$C_{ij} = \frac{1}{\sum_{l=1}^m \tau_{ijl}} \sum_{l=1}^m C_l \tau_{ijl}$$

なお、解析対象期間における後方流跡線のエンドポイント数(n_{ij})に応じ、 C_{ij} 値に下記の係数を乗じて補正した³⁾。 C_{ij} 値の計算及び地図上への描画には、Wangらによって開発されたTrajStat ver1.2⁴⁾を用いた。

$$\begin{cases} 1.00 : n_{ij} > 3 \times Avg \\ 0.70 : Avg < n_{ij} \leq 3 \times Avg \\ 0.42 : 0.5 \times Avg < n_{ij} \leq Avg \\ 0.17 : 0 < n_{ij} \leq 0.5 \times Avg \end{cases}$$

(4) 化学成分連続自動分析データによる汚染要因推定

1) 自動測定法と標準測定法の比較

PM_{2.5}の成分測定は24時間単位の測定（FRM法）が基本であるため、サブテーマ(1)で実施された大気エアロゾル化学成分連続自動分析装置（紀本電子工業(株)ACSA-14）による2時間単位のPM_{2.5}濃度及び成分濃度の自動測定データと、本サブテーマで得られたFRM法による24時間単位の成分測定データを比較した。ACSA-14による測定結果は、本サブテーマにおける測定期間の2時間データを24時間単位に平均化して用いた。比較結果として、各項目の散布図を示した。

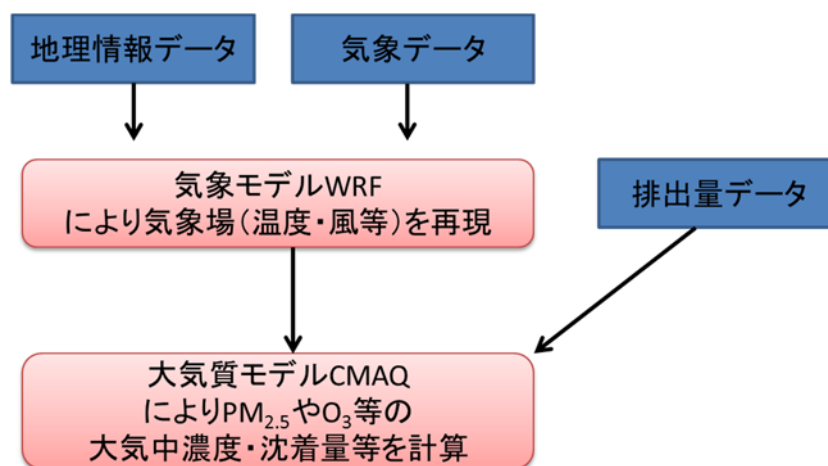
2) ACSA-14の成分測定データを用いた因子分析と因子寄与濃度の推定

大気中のPM_{2.5}濃度は、日内変化が大きいため、日単位の成分測定データによる発生源解析では、二次生成等の日内変化に影響する発生源の情報が埋もれている可能性がある。そこで、既報を参考に⁵⁾、サブテーマ(1)により実施された姫路市におけるACSA-14の化学成分連続自動分析データを用いた汚染要因の推定を試みた。解析には、ACSA-14によるPM_{2.5}、OBC（光学的ブラックカーボン）、PM_{2.5}中のNO₃⁻、SO₄²⁻、水溶性有機炭素（WSOC）、水素イオン（H⁺）の2時間単位の測定データ、及び近傍の大気汚染常時監視測定局（飾磨一般局）のSO₂、NO_x、ポテンシャルオゾン（PO）の1時間単位の測定データを2時間平均したものを用いた。測定データに因子分析を適用して因子を抽出し、因子負荷量及び因子得点を求めた。なお、POの算出については、O₃のNOによる消失の補正をした後に、発生源付近におけるNO_x中のNO₂を考慮して、 $[PO]=[O_x]+[NO_2]-0.1 \times [NO_x]$ と定義した⁶⁾。PM_{2.5}質量濃度を目的変数、因子分析による因子得点を説明変数として重回帰分析を行い、因子寄与濃度を算出した。

(5) 化学輸送モデルによるPM_{2.5}濃度推計と発生源感度解析

1) 計算の流れ

モデル計算には、気象モデルであるWRF(Weather Research and Forecast)と大気質モデルであるCMAQ (Community Multiscale Air Quality modeling system) を使用した。WRFにより気象場を再現し、WRFの計算結果及び各種大気汚染物質の排出量をCMAQにインプットすることにより大気中PM_{2.5}濃度を計算した。計算の流れを図(3)-3に示した。



図(3)-3 計算の流れ

2) 計算モデル

気象予測には、アメリカ大気研究センター（NCAR）によって管理されている気象モデルWRFv3.6.1を使用した。WRFはLinux系OS上で運用可能なオープンソースの数値モデルであり、世界中で広く使用されている。非静水圧のメソスケールモデルであり、広い領域を粗く計算し、その結果を細かい領域に与えながら計算するネスティング手法により、東アジアを含む広い範囲での気象場を再現することができる。

大気質予測には、EPAによって開発された大気質モデルCMAQ^{7),8)}のバージョン5.0.2を使用した。CMAQはオイラー型のモデルであり、WRF同様ネスティング手法により東アジアを含む広い範囲で計算が可能で、目的に応じてスキームを選択・追加することが可能となっている。WRFで得られた計算結果及び発生源データを与えることにより、PM_{2.5}等様々な大気汚染物質の濃度や乾性・湿性沈着量を予測計算することができる。

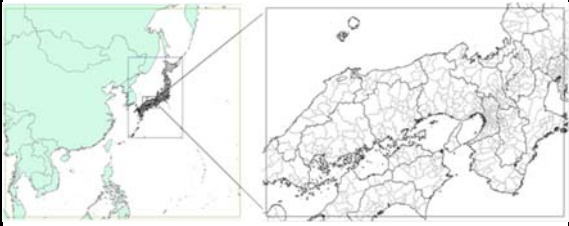
3) 計算方法

本研究における計算領域を表(3)-3に示した。計算領域は、D1：東アジア、D2：日本域、D3：西日本の3つの領域とした。また、本研究における計算期間を表(3)-4に示した。計算期間は試料採取期間と同様とし、それぞれ助走期間を10日間設けた。気象データには全球の約100kmメッシュデータ（米国環境予測センター（NCEP）の最終解析値（NCEP.FNL））及び日本周辺の約5kmメッシュデータ（気象庁メソ数値予報モデルの客観解析値（GPV-MSM））を使用し、海表面温度データにはNCEPのRTG_SST_HRを使用した。

排出量データには、国内はEAGrid2010-JAPAN（人為起源）、JATOP（道路）、OPRF（船舶）、気象庁の火山によるSO₂排出量等を使用し、東アジアはREASv2.1（東アジア人為起源）、FINN（バイオマス燃焼）等の排出量を使用した。詳細な計算条件を表(3)-5に示した。

なお、計算結果は、PM_{2.5}質量濃度や各イオン成分、炭素成分濃度が1時間単位の結果として得られる。

表(3)-3 計算領域

領域	計算領域	鉛直方向	領域図
D1	東アジア (64km)	地表～100hPa (約16,500m) WRF及びCMAQ：24 層	
D2	日本域(16km)		
D3	西日本(4km)		

表(3)-4 計算期間

年度	季節	計算期間
2014	夏季	平成26年7月23日（水）～平成26年8月6日（水）
	秋季	平成26年10月2日（木）～平成26年11月5日（水）
	冬季	平成27年1月21日（水）～平成27年2月4日（水）
2015	春季	平成27年5月6日（水）～平成27年6月8日（月）
	夏季	平成27年7月22日（水）～平成27年8月6日（水）
	秋季	平成27年10月2日（金）～平成27年11月6日（金）
	冬季	平成28年1月20日（水）～平成28年2月5日（金）
2016	春季	平成28年5月6日（金）～平成28年6月6日（月）
	夏季	平成28年7月21日（木）～平成28年8月4日（木）
	秋季	平成28年10月4日（火）～平成28年11月3日（木）

表(3)-5 排出量データ

区分	データ	対象年	解像度 (メッシュ)	時間解像度
国内	JATOP (道路)	2010	1km	時刻・月別 平・休日別
	OPRF (船舶)	2005	1km(全般) 10km(遠洋)	時刻・月別
	EAGrid2010-JAPAN (上記以外)	2010	1km	時刻・月別 平・休日別
	気象庁火山(SO ₂)	対象年		
国外	REASv2.1(人為起源)	2008	0.25°	年
	ARCTAS(アジア外人為起源)	2008	1°	月別
	FINN(野焼き)	対象年	1km	日別
	AEROCOM(火山)	2009	1.25°	日別
	MEGAN(植物起源)	対象年	1km	時刻別

4) モデルの計算精度向上

モデルの計算精度向上のため、詳細な土地利用データや高解像度海水面データの使用およびダスト計算モジュールの導入を行った。

5) 感度解析手法

排出量に関する感度解析手法を用いて、アジア、船舶、自動車の影響を評価した。感度解析手法は、通常の計算（ALL）、大陸の東アジア人為起源排出量を80%にした場合の計算（Asia80）、船舶起源排出量を80%にした場合の計算（Ship80）、自動車起源排出量を80%にした場合の計算（Road80）の4パターンの計算を行い、（ALL-Asia80）×5＝東アジア寄与、（ALL-Ship80）×5＝船舶寄与、（ALL-Road80）×5＝自動車寄与として、姫路および弓削島における東アジア人為起源、船舶および自動車の寄与を算出した。

4. 結果及び考察

(1) レセプターモデルによるPM_{2.5}の発生源解析

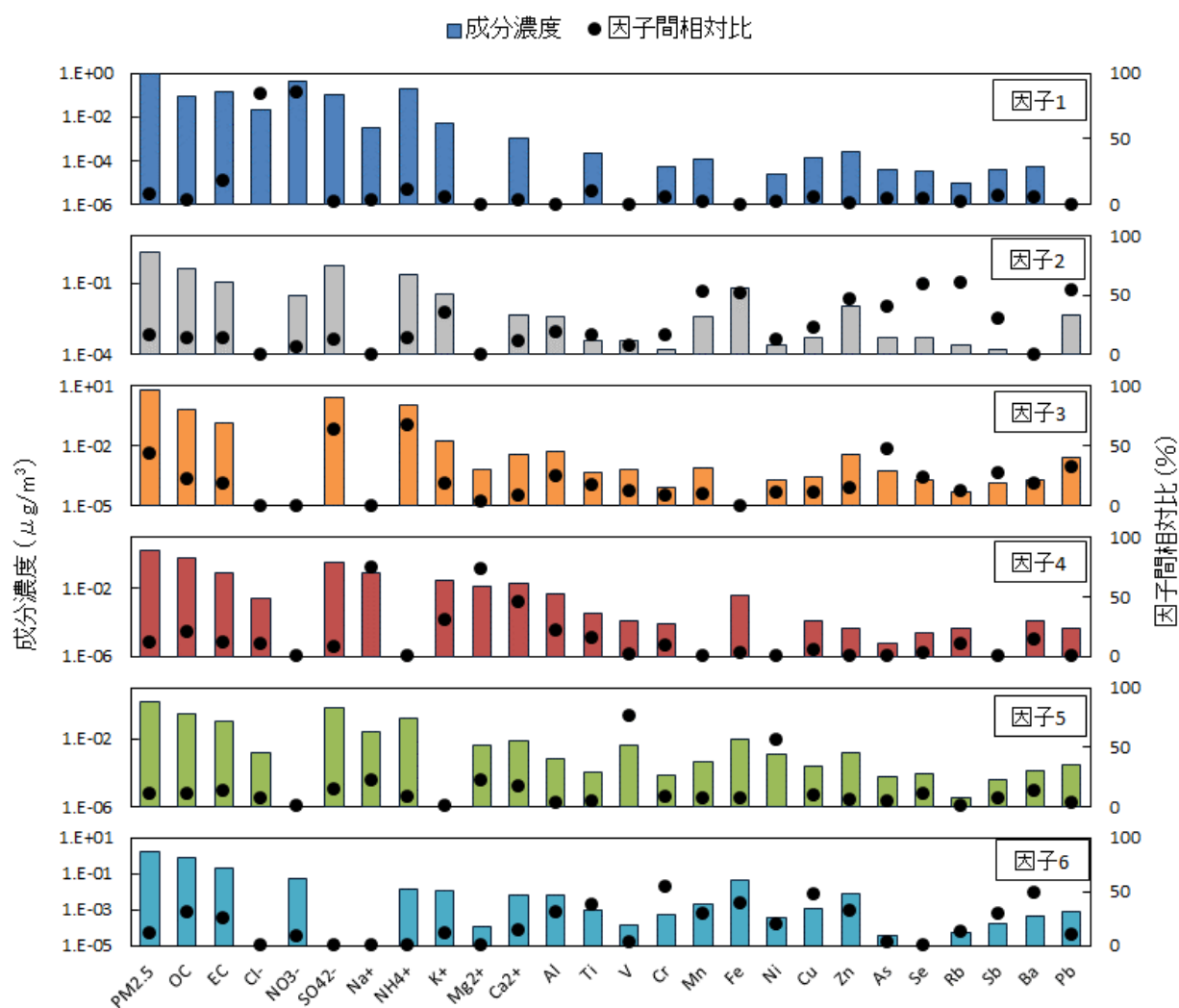
1) PMFによる発生源因子とその寄与濃度の推定

表(3)-6に、PMF解析に用いた姫路と弓削におけるPM_{2.5}質量濃度及び成分濃度の、共通観測期間における平均値、最大値、最小値を示した。PM_{2.5}、SO₄²⁻、NH₄⁺濃度は、季節に関わらず都市部の姫路よりも離島の弓削で高かったが、地域的な発生源の影響が強いと考えられるOCとNO₃⁻濃度は、弓削よりも姫路で高く、周辺の発生源の影響を受けていると考えられる。微量元素成分では、重油燃焼の指標とされるバナジウム（V）や、鉄鋼業等の指標とされるマンガン（Mn）、鉄（Fe）などが姫路よりも弓削で高かった。

表(3)-6 PM_{2.5} 質量濃度及び成分濃度の期間平均値、最大値、最小値（共通観測期間）

項目		姫路			弓削		
		平均値	最大値	最小値	平均値	最大値	最小値
質量濃度(μg/m ³)		13.4	39	2.8	14.6	37.6	2.5
イオン成分 (μg/m ³)	Cl ⁻	0.090	0.68	N.D.	0.046	0.45	N.D.
	NO ₃ ⁻	0.68	7.2	N.D.	0.53	7.1	N.D.
	SO ₄ ²⁻	4.1	20	0.74	5.0	17	0.74
	Na ⁺	0.11	0.42	N.D.	0.12	0.47	N.D.
	NH ₄ ⁺	1.6	6.5	0.063	1.9	6.4	0.13
	K ⁺	0.11	0.54	N.D.	0.14	0.52	N.D.
	Mg ²⁺	0.017	0.056	N.D.	0.018	0.062	N.D.
	Ca ²⁺	0.047	0.27	N.D.	0.048	0.16	N.D.
元素成分 (ng/m ³)	Na	104	390	21	107	400	30
	Al	37	520	N.D.	34	430	N.D.
	K	104	340	19	126	410	N.D.
	Ca	24	160	N.D.	24	150	N.D.
	Sc	0.041	0.19	N.D.	0.033	0.18	N.D.
	Ti	3.5	31	N.D.	3.0	24	N.D.
	V	3.2	14	0.18	5.6	22	0.23
	Cr	1.8	14	N.D.	0.81	3.8	N.D.
	Mn	5.8	18	0.40	12	50	0.54
	Fe	107	590	N.D.	157	660	N.D.
	Co	0.061	0.41	N.D.	0.052	0.16	N.D.
	Ni	1.8	12	N.D.	1.9	6.2	N.D.
	Cu	3.1	12	N.D.	2.3	7.3	N.D.
	Zn	40	240	N.D.	31	93	0.90
	As	1.2	7.5	0.14	1.9	6.2	0.19
	Se	0.70	4.4	0.081	1.2	3.7	0.14
	Rb	0.33	1.4	0.019	0.60	2.0	N.D.
	Mo	1.6	11	0.035	0.65	2.8	0.037
	Sb	0.63	2.9	0.032	0.98	5.5	0.095
	Cs	0.072	0.37	N.D.	0.20	3.1	N.D.
	Ba	1.5	9.1	0.22	1.1	15	N.D.
	La	0.044	0.34	N.D.	0.055	0.25	N.D.
	Ce	0.069	0.58	0.0073	0.052	0.43	N.D.
	Sm	0.0030	0.042	N.D.	0.0027	0.032	N.D.
	Hf	0.034	0.30	N.D.	0.038	0.29	N.D.
	W	0.019	0.055	N.D.	0.019	0.055	N.D.
	Ta	0.32	3.6	N.D.	0.18	1.3	N.D.
	Pb	8.1	71	N.D.	12	46	N.D.
	Th	0.012	0.091	N.D.	0.0056	0.070	N.D.
炭素成分 (μg/m ³)	OC	3.6	8.3	0.96	2.9	7.2	0.52
	EC	0.77	2.0	0.16	0.78	2.2	0.22

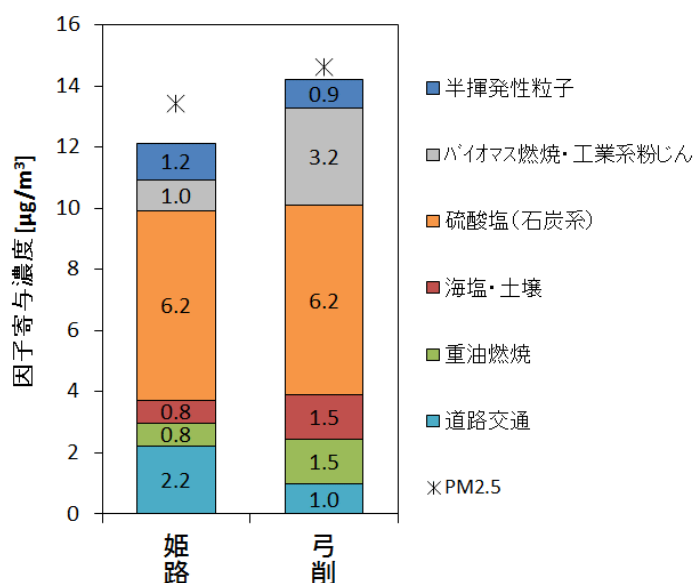
成分濃度データにPMFを適用し、発生源因子と因子寄与濃度を推定した。図(3)-4に、抽出された6因子の因子プロファイルを示した。指標となる元素等を参考に、それぞれの因子を、因子1；半揮発性粒子（指標元素： NO_3^- 、 Cl^- ）、因子2；バイオマス燃烧・工業系粉じん（指標元素：OC、EC、 K^+ 、Rb、Mn、Fe、Zn、As、Se、Pb）、因子3；硫酸塩（石炭系）（指標元素： SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 、As、Pb）、因子4；海塩・土壌（指標元素： Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} ）、因子5；重油燃烧（V、Ni、 SO_4^{2-} ）、因子6；道路交通（OC、EC、Cu、Zn、Sb、Ba）と推定した。なお、本研究で抽出された因子2は、OC、EC、 K^+ を指標とするバイオマス燃烧を表す因子と、Mn、Fe等の重金属を指標とする工業系粉じんを表す因子が混在しているため、これらの分離が今後の課題である。



図(3)-4 PMFにより得られた6因子の因子プロファイル
(成分濃度は対数目盛)

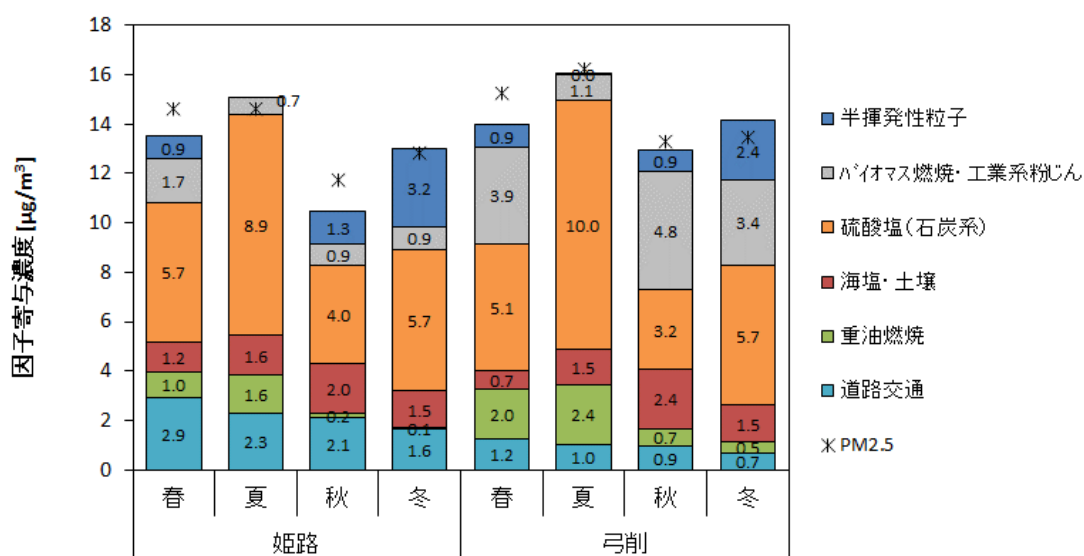
図(3)-5に、姫路及び弓削における発生源因子の共通観測期間における平均寄与濃度を示した。両地点とも、硫酸塩（石炭系）の寄与濃度が最も高く、姫路、弓削ともに $6.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、 $\text{PM}_{2.5}$ の40%程度を占めた。一方、姫路では次いで道路交通の寄与濃度が高く $2.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、弓削ではバイオマス燃烧・工業系粉じんの寄与が高く $3.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。地点間で比較した場合、硫酸塩（石炭系）

の寄与濃度は同程度だったが、道路交通と半揮発性粒子の寄与濃度は姫路で高く、重油燃焼、海塩・土壌、バイオマス燃焼・工業系粉じんの寄与濃度は弓削で高かった。



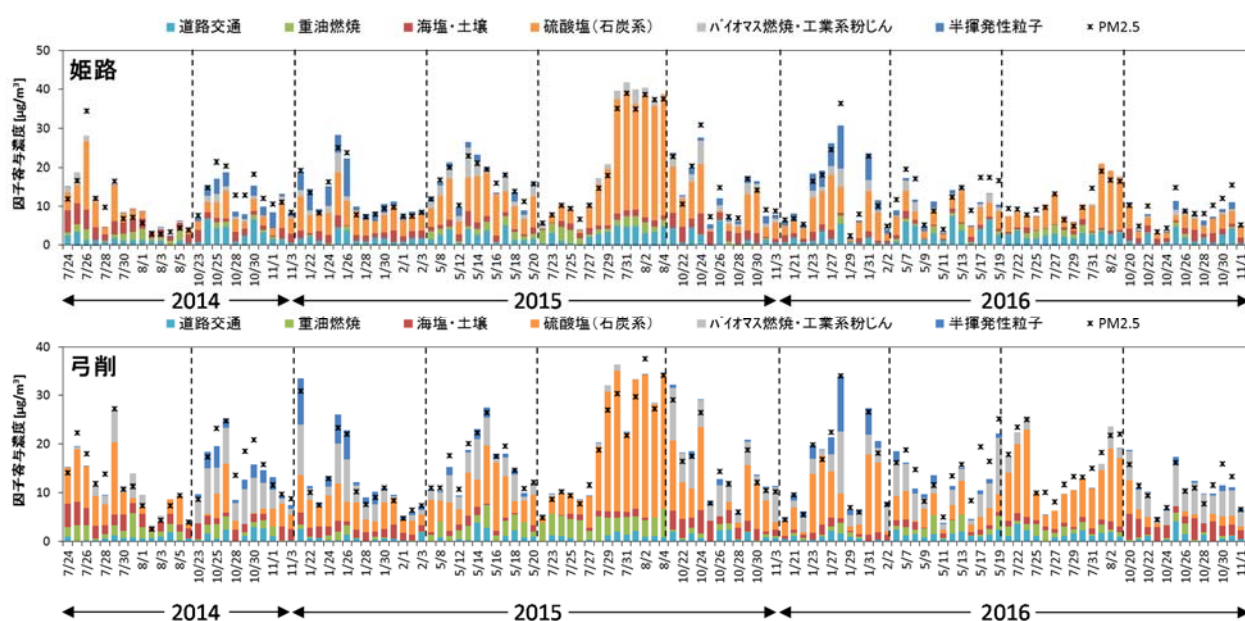
図(3)-5 PMFにより得られた6因子の平均寄与濃度

図(3)-6に、姫路及び弓削における発生源因子の共通観測期間における季節別平均寄与濃度を示した。硫酸塩（石炭系）は両地点とも夏季に最も高く、秋季に最も低かった。バイオマス燃焼・工業系粉じんの寄与濃度は、弓削では秋季に最も高く、秋季に頻繁に行われる農作物残差の野焼きの影響が示唆された。重油燃焼の寄与濃度は、両地点とも春季と夏季に高く、光化学二次生成の影響が示唆された。半揮発性粒子の寄与濃度は、気温の低い冬季に最も高くなる傾向があった。



図(3)-6 PMFにより得られた6因子の季節別平均寄与濃度

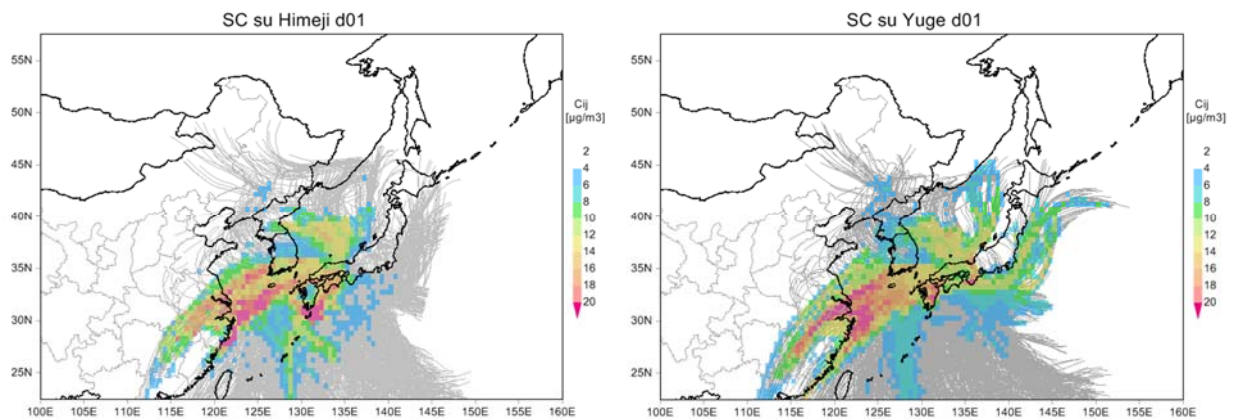
図(3)-7に、姫路及び弓削における発生源因子寄与濃度の日平均値の推移を示した。PM_{2.5}濃度が特に高かった2015年7月下旬から8月上旬にかけては、両地点において硫酸塩（石炭系）の寄与濃度が高く、硫酸塩（石炭系）はPM_{2.5}濃度の高濃度化に寄与していると考えられる。地点別の特徴としては、姫路では概ね全期間を通して道路交通の寄与がみられたが、弓削では道路交通の寄与は小さかった。一方、弓削ではバイオマス燃焼・工業系粉じんの寄与濃度が、姫路よりも高濃度となる期間がみられた。また、弓削におけるバイオマス燃焼・工業系粉じんの寄与濃度は秋季～春季にかけて高くなる傾向を示した。



図(3)-7 発生源因子寄与濃度の日平均値の推移（上：姫路、下：弓削）

2) CWTによる発生源位置の推定

PMFにより得られた発生源因子の寄与濃度と、観測期間における後方流跡線を用いたCWT解析により、発生源の存在する可能性が高い位置を推定した。図(3)-8に、弓削と姫路において最大の寄与濃度を示した硫酸塩（石炭系）の、アジア域を対象とした夏季におけるCWTプロットと後方流跡線を示した。CWTプロットは、中国南東部の長江デルタ周辺及び東シナ海海上からの影響を示唆しており、硫酸塩（石炭系）は越境移流の影響を受けていると考えられる。一般的に、夏季には太平洋高気圧の影響が強まるため、日本では太平洋方面からの清浄な気塊の流入が多いことが知られているが、本研究の観測期間中（特に2015年7月末～8月初旬）には、中国南東部付近から気塊の流入がみられており、 C_{ij} 値も中国南東部付近で高かったことから、夏季観測期間にも越境移流の影響を受けたと推測される。



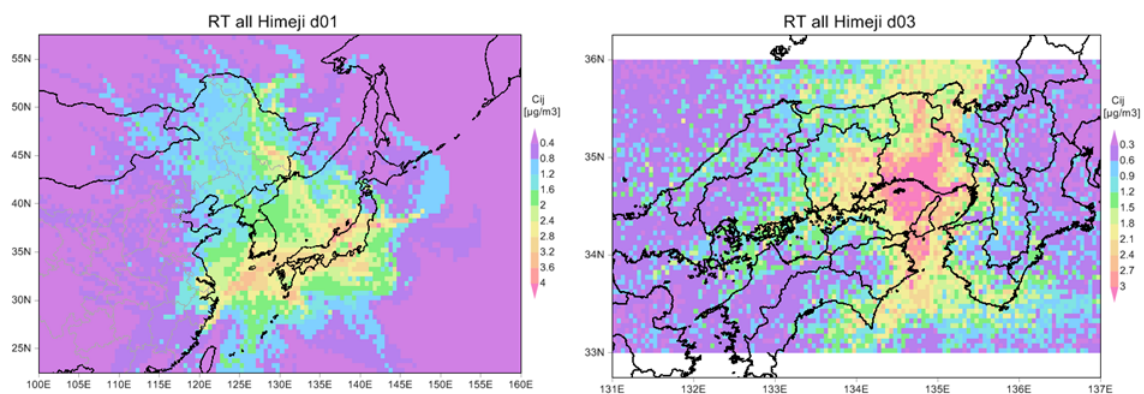
図(3)-8 夏季における硫酸塩（石炭系）のCWTプロット（左：姫路、右：弓削）
（図中グレーの線は解析に用いた後方流後線）

図(3)-9～図(3)-12に、アジア大陸からの越境移流よりも国内の影響を強く受けていると考えられる4因子（道路交通、半揮発性粒子、バイオマス燃焼・工業系粉じん、重油燃焼）のCWTプロットを示した。なお、道路交通と半揮発性粒子は弓削よりも姫路で高かったことから姫路のCWTプロットを、バイオマス燃焼・工業系粉じんと重油燃焼は姫路よりも弓削で高かったことから弓削のCWTプロットを示した。

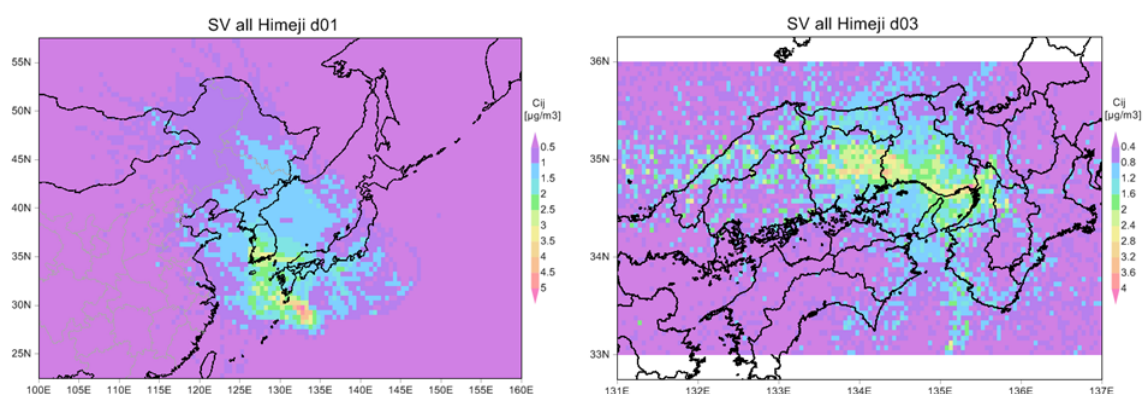
道路交通の西日本域を対象としたCWTプロット（図(3)-9）では、 C_{ij} 値の高濃度域が観測地点周辺に広く分布しており、観測地点から離れるほど C_{ij} 値が低くなる傾向がみられた。そのため道路交通は、特定の発生源の影響よりも観測地点周辺に広く存在する道路からの影響を受けていると考えられる。また、半揮発性粒子の西日本域を対象としたCWTプロット（図(3)-10）では、観測地点周辺の沿岸部や阪神圏の都市部、また、岡山県東部で C_{ij} 値が高かった。半揮発性粒子は気温の影響を強く受けており、今回の解析結果のみで具体的な発生源を推定することは出来ないが、半揮発性粒子の主成分は NO_3 であることを考慮すれば、観測地点周辺の都市的な大気汚染の影響を受けていると推測できる。

一方、バイオマス燃焼・工業系粉じんの西日本域を対象としたCWTプロット（図(3)-11）では、岡山県南部の沿岸地域で C_{ij} 値が高くなっており、岡山県の臨海部に存在する重工業地帯の影響が示唆された。また、重油燃焼のCWTプロット（図(3)-12）では、陸域よりも瀬戸内海海上、特にしまなみ海道や燧灘など船舶の交通量が集中する海域で C_{ij} 値が高かったことから、周辺海域を航行する船舶排ガスの影響を受けていると考えられた。

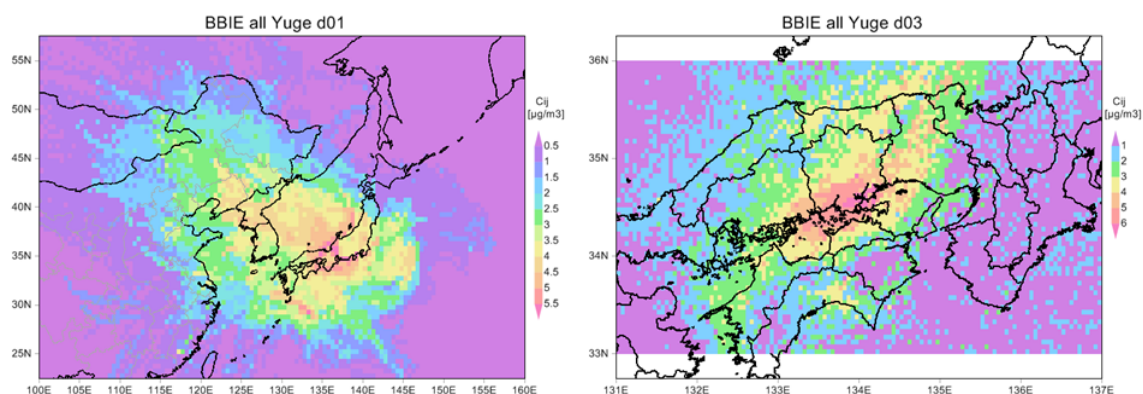
CWT解析の結果から、硫酸塩（石炭系）は越境移流を表す因子と推測され、PMF解析による因子寄与濃度が姫路と弓削で同程度であったことも矛盾がない。また、道路交通と半揮発性粒子は国内発生を主とする都市的な大気汚染を表す因子であるため、離島の弓削よりも都市部に位置する姫路で高く、一方のバイオマス燃焼・工業系粉じんと重油燃焼は、国内でも瀬戸内海周辺で影響が強いと予想される大規模固定発生源や船舶を表す因子であることから、瀬戸内海地域の大気環境をより反映していると考えられる弓削で高くなったと考えられた。



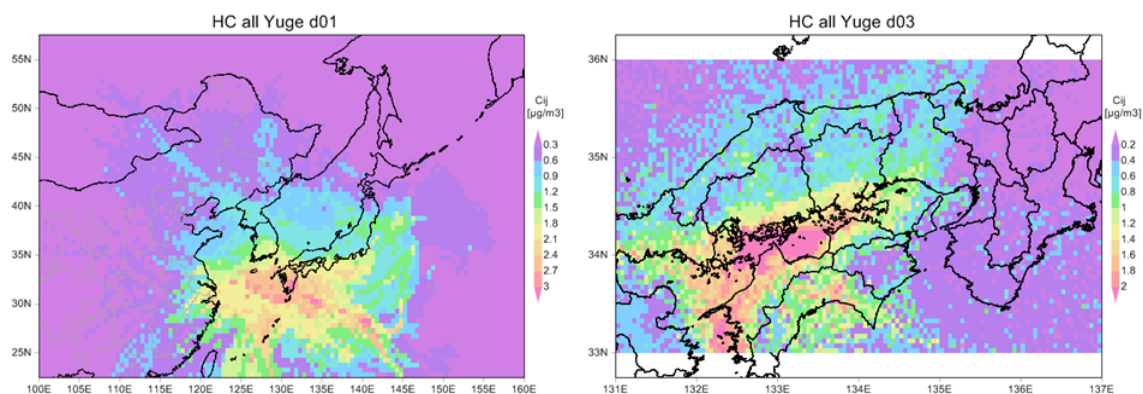
図(3)-9 姫路における道路交通のCWTプロット (左：アジア域、右：西日本域)



図(3)-10 姫路における半揮発性粒子のCWTプロット (左：アジア域、右：西日本域)



図(3)-11 弓削におけるバイオマス燃焼・工業系粉じんのCWTプロット (左：アジア域、右：西日本域)



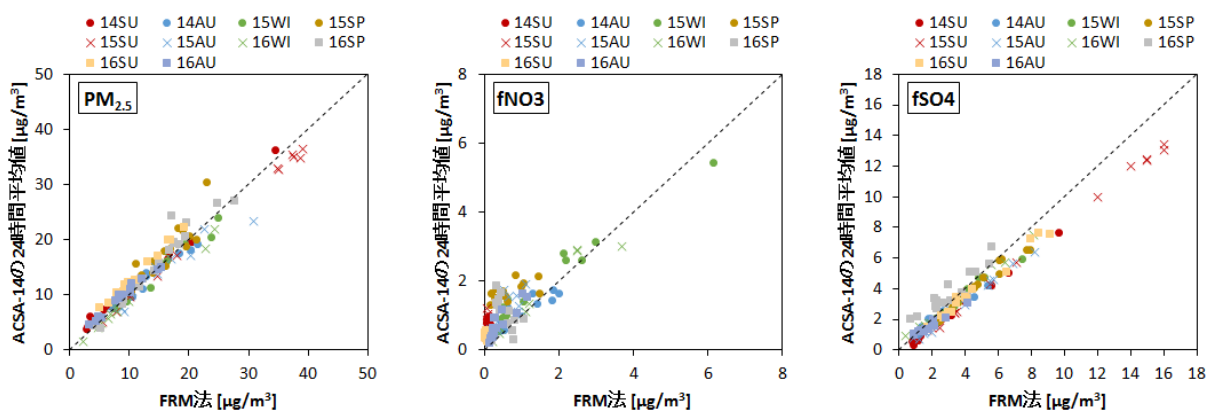
図(3)-12 弓削における重油燃焼のCWTプロット (左：アジア域、右：西日本域)

(2) 化学成分連続自動分析データによる汚染要因推定

サブテーマ(1)により実施された姫路市におけるACSA-14の化学成分連続自動分析データを用いた発生源解析を試みた。本研究では、ACSA-14の2時間単位の成分測定結果と、直近の一般大気常時監視測定局における SO_2 、 NO_x 、 O_3 （本解析ではポテンシャルオゾン(PO)として使用）の測定結果を用いて因子分析を行い、因子負荷量による汚染要因の推定と、 $\text{PM}_{2.5}$ 濃度を目的変数、因子分析による因子得点を説明変数として重回帰分析を行い、因子寄与濃度の算出を試みた。

1) 自動測定法と標準測定法の比較

$\text{PM}_{2.5}$ の成分測定は24時間単位の測定（FRM法）が基本であるため、サブテーマ(1)で実施されたACSA-14による2時間単位の $\text{PM}_{2.5}$ 濃度及び成分濃度の自動測定データと、本サブテーマで得られたFRM法による24時間単位の成分測定データを比較した。図(3)-13に、 $\text{PM}_{2.5}$ 質量濃度（ $\text{PM}_{2.5}$ ）、 NO_3^- 濃度（fNO3）、 SO_4^{2-} 濃度（fSO4）の測定結果の散布図（Y軸：ACSA-14の24時間平均値、X軸：FRM法）を示した。 $\text{PM}_{2.5}$ 質量濃度は、両者の決定係数は0.94（ $p<0.01$ ）であり、平均値にも有意差（ $p<0.01$ ）はなかった。 NO_3^- 濃度は、両者の決定係数は0.73（ $p<0.01$ ）であり、平均値には有意差（ $p<0.01$ ）がみられ、FRM法が低かった。 $\text{PM}_{2.5}$ 中の NO_3^- 粒子は半揮発性を有し、気温の影響を受けて容易にガス態へ変化する。ACSA-14は2時間単位で測定しているのに対し、FRM法は24時間連続して $\text{PM}_{2.5}$ を捕集していることから、特に気温の高くなりやすい夏季には、 NO_3^- 等の半揮発性を有する物質は捕集中にガス態へと変換し、再揮散したと考えられる。 SO_4^{2-} 濃度は、両者の決定係数は0.97（ $p<0.01$ ）であったが、平均値には有意差（ $p<0.01$ ）がみられ、ACSA-14が低かった。特に、 SO_4^{2-} が高濃度となった期間（15SU：2015年夏季）にFRM法が高くなる傾向があり、 SO_4^{2-} の高濃度化が濃度差の増加に影響している可能性があった。



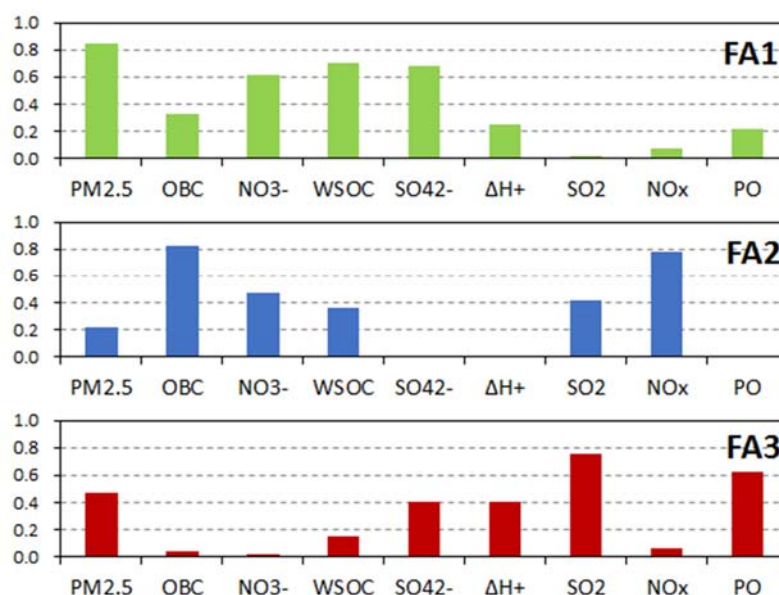
図(3)-13 ACSA-14の24時間平均値とFRM法による測定結果の散布図

（Y軸：ACSA-14の24時間平均値、X軸：FRM法）

2) ACSA-14の成分測定データを用いた因子分析と因子寄与濃度の推定

図(3)-14に、因子分析により抽出された3つの因子の、各成分の因子負荷量を示した。第一因子（FA1）は、 $\text{PM}_{2.5}$ 濃度に最も大きな影響を与えており、 $\text{PM}_{2.5}$ と NO_3^- 、WSOC、 SO_4^{2-} の負荷が高いことから、長距離輸送や気塊の滞留などで生じた二次生成粒子の寄与を表す因子と解釈した。第

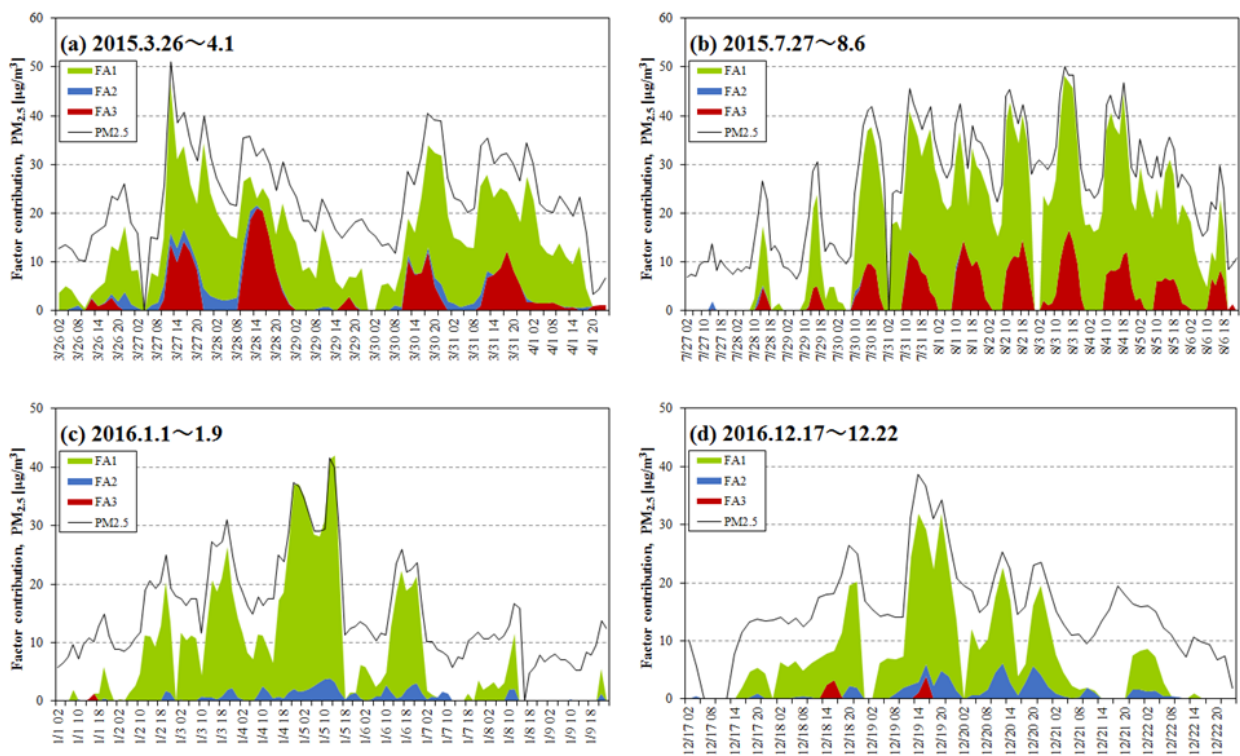
二因子 (FA2) は、OBCとNO_xの負荷が高いことから、一次排出粒子の寄与を表す因子と解釈した。第三因子 (FA3) は、SO₂とPOの負荷が高いことから、SO₂発生源から排出される汚染物質の光化学二次生成の寄与を表す因子と解釈した。また、FA3については ΔH^+ の負荷量が3因子の中で最も高く、PM_{2.5}の酸性化に寄与していると考えられる。



図(3)-14 抽出された因子の各成分の因子負荷量

図(3)-15に、観測期間（2014年7月～2017年3月）においてPM_{2.5}が高濃度となった期間の因子寄与濃度の時系列変化を示した。(a)2015年3月26日～4月1日は、期間をとおしてFA1の寄与濃度が高かったが、3月28日の日中にはFA3の寄与が支配的となった。FA2の寄与もみられたが、他の因子に比べて寄与濃度は小さかった。(b)2015年7月27日～8月6日は、FA1の寄与が支配的であったが、FA3の寄与が昼間に増加し、夜間に低下する周期的な変化を示したことから、この期間は光化学二次生成の影響によりPM_{2.5}の高濃度化が生じた可能性が高い。(c)2016年1月1日～1月9日は、FA1の寄与が支配的であり、FA3の寄与はほとんどみられなかった。その代わりに、1月4日～5日にかけてはFA2の寄与もわずかではあるが増加しており、一次排出粒子の影響を受けていた。(d)2016年12月17日～12月22日は、PM_{2.5}濃度の増加に伴いFA1の寄与濃度が高くなったが、この期間にも、わずかではあるがFA2の寄与濃度が増加した。

(a)は春季、(b)は夏季の高濃度期間であり、PM_{2.5}濃度増加に伴ってFA3（光化学二次生成）の寄与濃度が増加したことから、暖候期には光化学二次生成の影響によりPM_{2.5}濃度が増加していると考えられる。一方、(c)及び(d)は冬季の高濃度期間であり、FA2（一次排出粒子）の寄与もわずかにみられたが、PM_{2.5}濃度の増加に伴ってFA1（越境移流や汚染物質の滞留）の寄与濃度が増加した。そのため、寒候期のPM_{2.5}濃度増加には、越境移流や汚染物質の滞留が関与しているものと考えられる。



図(3)-15 因子寄与濃度の時系列変化

((a)2015年3月26日～4月1日、(b)2015年7月27日～8月6日、(c)2016年1月1日～1月9日、
(d)2016年12月17日～12月22日)

3) 因子分析による寄与濃度とPMFによる寄与濃度との関係

表(3)-7に、因子分析により得られた3因子の寄与濃度と、前述のPMF解析により得られた6因子の寄与濃度との相関係数を示した。なお、因子分析による寄与濃度は、PMF解析の観測期間における2時間単位の寄与濃度を24時間単位に平均化して相関分析に用いた。FA1は、硫酸塩（石炭系）との相関が強いことから越境移流の影響が示唆される（ $R=0.80$ ）。また、FA2は、半揮発性粒子との相関が強いことから周辺の発生源の影響が示唆される（ $R=0.82$ ）。この結果から、ACSA-14及び大気汚染常時監視局のガス成分の自動測定結果を用いた因子分析により、越境移流や周辺の発生源の影響をある程度推測できることが分かった。

表(3)-7 因子分析による3因子の寄与濃度とPMFによる6因子の寄与濃度の相関係数

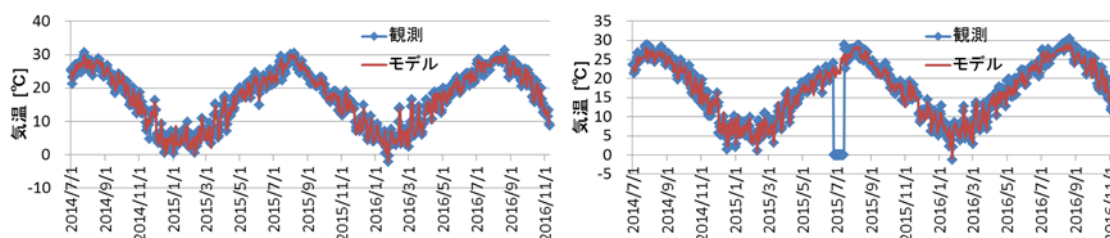
	道路交通	重油燃焼	海塩・土壌	硫酸塩 (石炭系)	バイオマス燃焼・ 工業系粉じん	半揮発性粒子
FA1	0.57	0.22	0.11	0.80	0.59	0.22
FA2	0.31	-0.05	-0.09	-0.05	0.34	0.82
FA3	0.34	0.49	0.13	0.63	0.37	-0.25

(3) 大気質モデルによるPM_{2.5}濃度推計

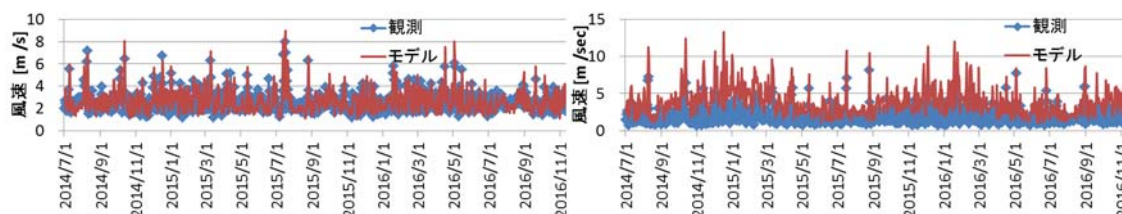
1) 気象モデル計算結果

気象モデルによる気温、風速、降水量の計算値と、気象庁のアメダスにおける同項目の観測値の日平均値の推移を、図(3)-16～図(3)-18に示した。日平均値は1時から24時までの平均値である。また、表(3)-8に、気象モデルの計算値とアメダス観測値の平均値及びそれらの相関係数を示した。姫路における計算値は、姫路特別地域気象観測所の結果と比較し、弓削における計算値は、弓削島には気象測定地点が存在しないため、近隣のアメダス生口島観測所の結果と比較した。

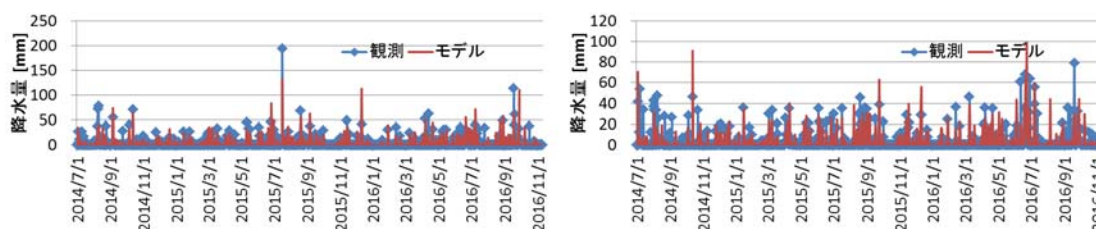
気温及び降水量については、姫路、弓削（生口島）ともに良好に観測値を再現した。風速については、弓削（生口島）においてモデルが過大評価であったが、姫路は風速の観測値を良好に再現した。弓削（生口島）の風速の過大評価については、生口島の存在するメッシュが陸地と海域にまたがっていることから、過大になったものと考えられる。



図(3)-16 気温の日平均値の推移（左：姫路、右：弓削（生口島））



図(3)-17 風速の日平均値の推移（左：姫路、右：弓削（生口島））



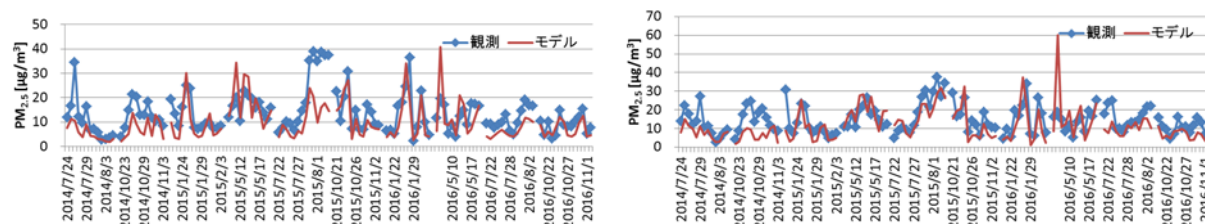
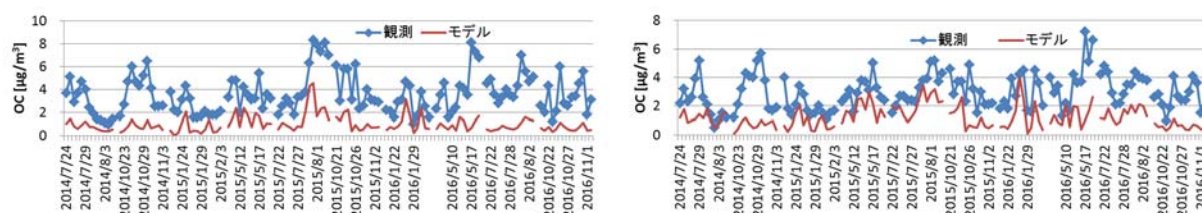
図(3)-18 降水量の日平均値の推移（左：姫路、右：弓削（生口島））

表(3)-8 気象モデルの計算値とアメダス観測値の平均値及び相関係数

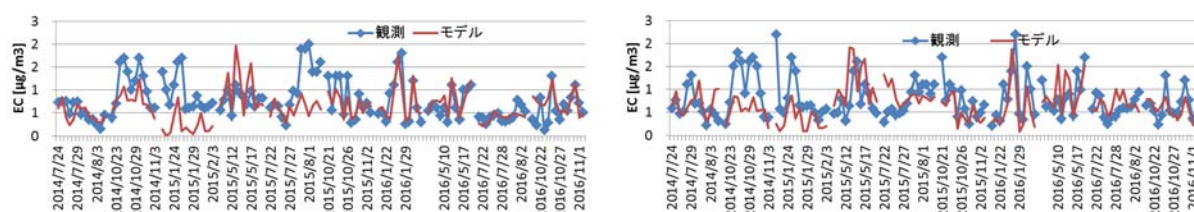
		気温 [°C]	気温 相関係数	風速 [m/s]	風速 相関係数	降水量 [mm/y]	降水量 相関係数
姫路	観測	17.0		2.6		1620	
	モデル	16.4	0.998	2.7	0.91	1733	0.79
弓削 (生口島)	観測	17.2		2.0		1462	
	モデル	16.6	0.996	3.9	0.84	1279	0.72

2) 大気質モデルによる PM_{2.5} 計算結果と観測結果との比較

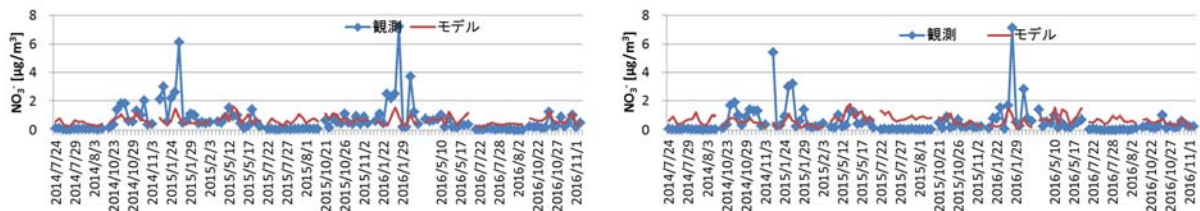
図(3)-19～図(3)-24に、大気質モデルによるPM_{2.5}各成分の計算値と、姫路と弓削におけるPM_{2.5}各成分観測結果の日平均値の推移を示した。また、表(3)-9に、モデルによる計算値と観測値の期間平均値及び濃度差、相関係数を示した。なお、大気質モデルの日平均値は10時から翌10時までの平均値である。PM_{2.5}質量濃度、SO₄²⁻、NH₄⁺およびECについては変動を概ね再現したが、OCはモデルが過小評価であり、NO₃は再現性が良好ではなかった。

図(3)-19 PM_{2.5}質量濃度の日変化 (左：姫路、右：弓削)

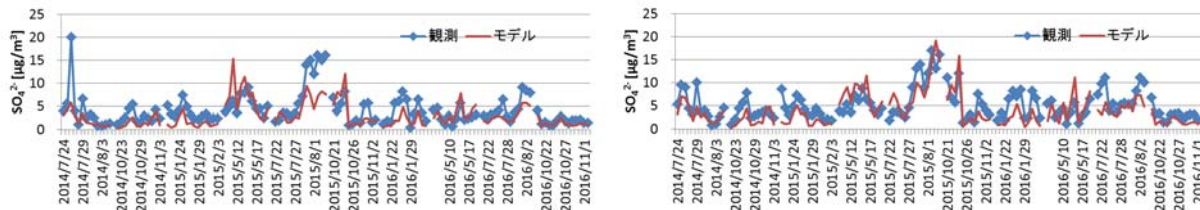
図(3)-20 OC濃度の日変化 (左：姫路、右：弓削)



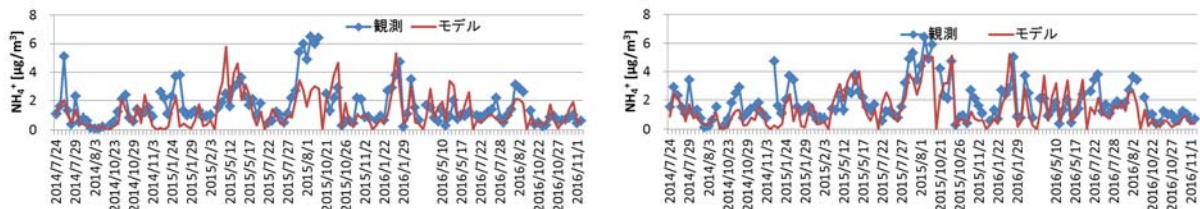
図(3)-21 EC濃度の日変化 (左：姫路、右：弓削)



図(3)-22 NO₃⁻濃度の日変化（左：姫路、右：弓削）



図(3)-23 SO₄²⁻濃度の日変化（左：姫路、右：弓削）



図(3)-24 NH₄⁺濃度の日変化（左：姫路、右：弓削）

表(3)-9 モデルによる計算値と観測値の期間平均値及び濃度差、相関係数

	質量濃度		OC		EC		NO ₃ ⁻		SO ₄ ²⁻		NH ₄ ⁺	
	姫路	弓削	姫路	弓削	姫路	弓削	姫路	弓削	姫路	弓削	姫路	弓削
観測 (μg/m ³)	13.41	14.61	3.58	0.78	0.77	0.78	0.68	0.53	4.11	5.02	1.62	1.86
モデル(μg/m ³)	9.84	11.57	0.98	0.68	0.63	0.68	0.66	0.67	2.98	4.04	1.33	1.49
観測 - モデル	3.57	3.04	2.59	0.09	0.14	0.09	0.02	-0.14	1.13	0.98	0.28	0.37
相関係数	0.66	0.61	0.63	0.36	0.45	0.36	0.38	0.13	0.68	0.75	0.60	0.74

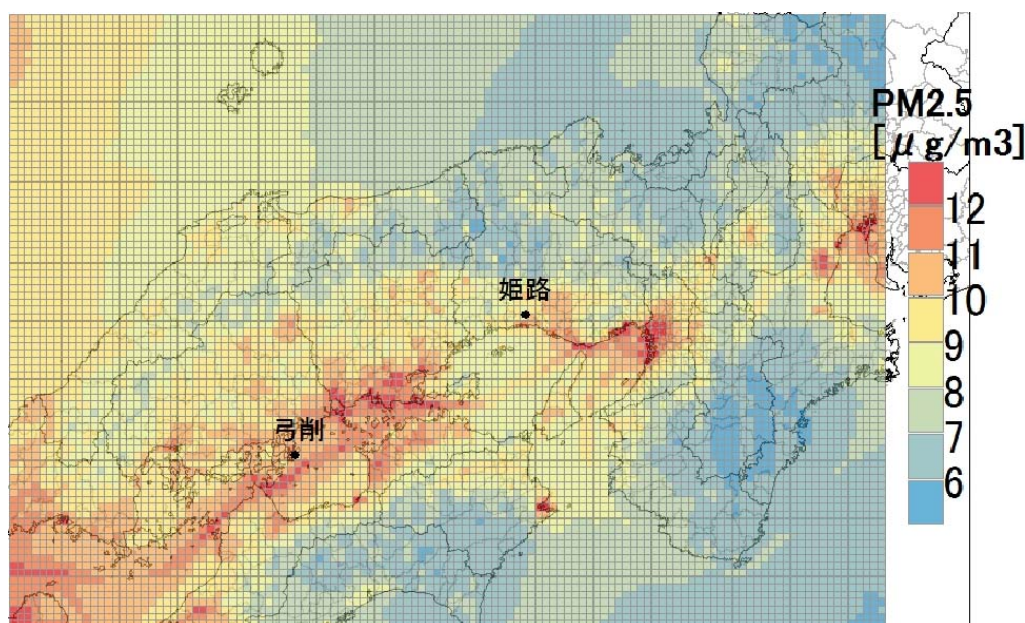
3) 大気質モデルによる PM_{2.5} 計算結果

表(3)-10に、大気質モデルによる主要成分濃度の期間平均値を示した。PM_{2.5}、SO₄²⁻、OC、NH₄⁺濃度は、都市部の姫路よりも離島の弓削で高かった。一方、地域的な発生源の影響が強いと考えられるNO₃⁻濃度は、全期間では姫路と弓削で同程度だったが、気温の低い冬季には弓削よりも姫路で高く、周辺の発生源の影響を受けていると考えられる。

図(3)-25に、大気質モデルによるPM_{2.5}の全期間平均質量濃度分布図を示した。大阪や愛知周辺といった都市域で高濃度となるとともに、瀬戸内海沿岸で高濃度となる結果となっており、弓削では姫路よりも高濃度となった。

表(3)-10 大気質モデルによる PM_{2.5}及び成分濃度の計算結果 (μg/m³)

季節	地点	PM _{2.5}	OC	EC	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	NH ₄ ⁺
春季	姫路	15.6	1.2	0.9	0.8	5.1	2.2
	弓削	18.0	1.5	1.0	0.9	5.7	2.2
夏季	姫路	7.7	1.1	0.5	0.5	3.4	1.2
	弓削	12.1	1.6	0.8	0.8	5.6	1.8
秋季	姫路	8.5	0.8	0.7	0.7	2.2	1.1
	弓削	8.1	0.8	0.5	0.6	2.7	0.9
冬季	姫路	9.7	0.8	0.5	0.7	1.6	1.1
	弓削	9.9	1.0	0.5	0.4	2.0	1.2
全期間	姫路	9.8	1.0	0.6	0.7	3.0	1.3
	弓削	11.6	1.2	0.7	0.7	4.0	1.5

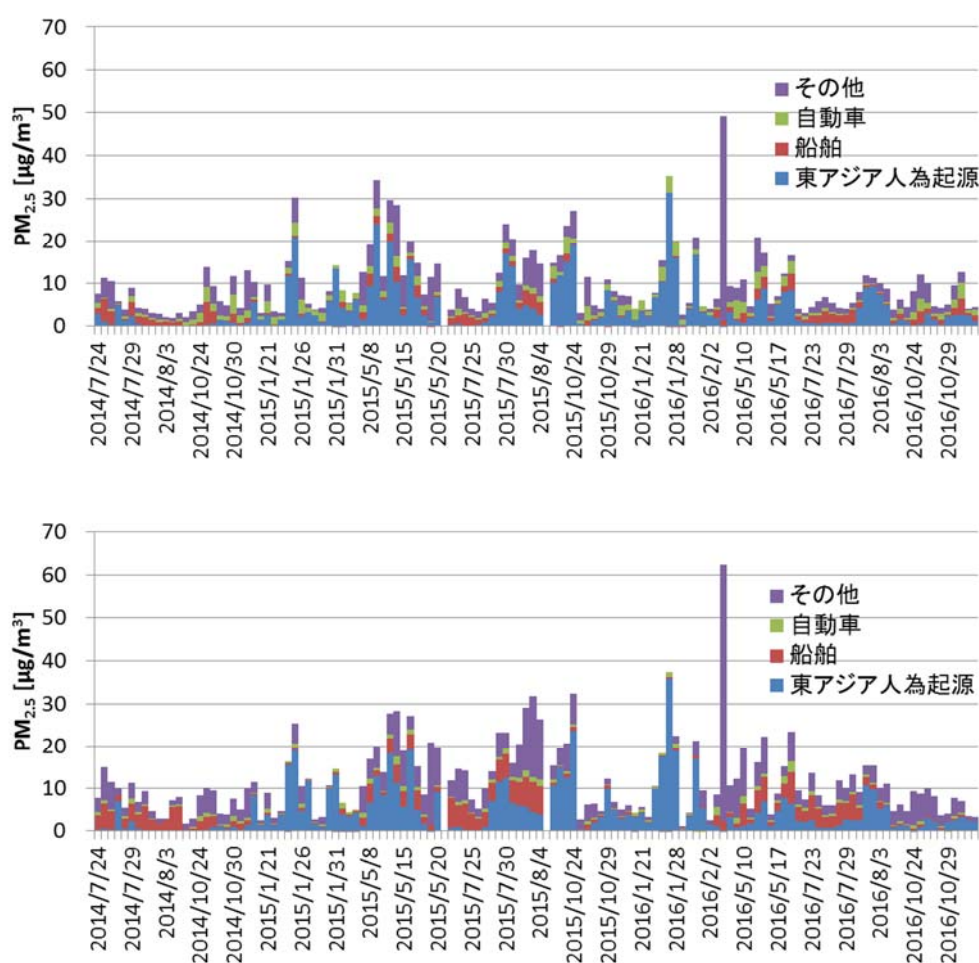


図(3)-25 PM_{2.5}全期間平均質量濃度分布図

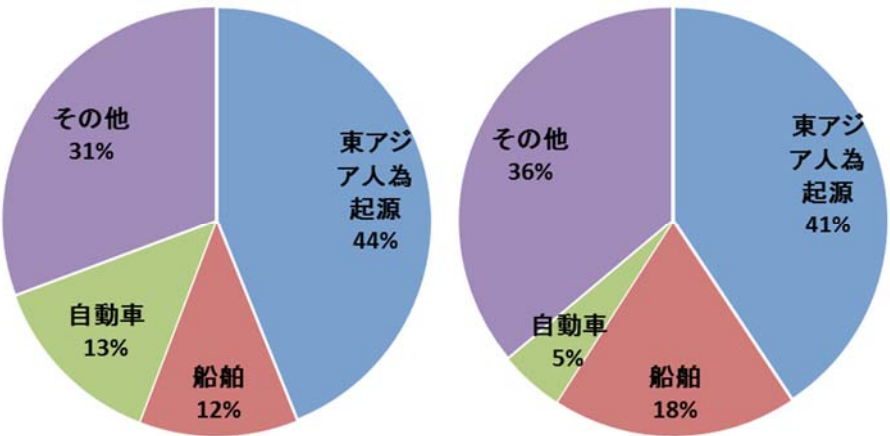
4) 大気質モデルによる PM_{2.5} 感度解析結果

図(3)-26に、モデルによる感度解析で得られた各発生源の寄与濃度の日変化を示した。姫路では、期間を通して自動車の寄与が見られた。弓削では、姫路と比較して船舶の寄与が高い結果となった。また、両地点ともに高濃度時に東アジア人為起源の寄与濃度が高くなる傾向があった。なお、2016年5月7日に「その他」の寄与濃度が高くなったのは、この期間に全国的に観測された黄砂の影響を受けたと考えられる⁹⁾。

図(3)-27に、感度解析手法によるPM_{2.5}質量濃度の発生源寄与割合を、表(3)-11に、感度解析手法による発生源寄与濃度示した。両地点ともに東アジア人為起源の寄与割合が最も大きく、越境移流の影響を強く受けており、東アジア人為起源の寄与割合は、姫路と弓削で同程度であった（姫路：44%、弓削：41%）。また、自動車の寄与割合は弓削よりも姫路で大きく（姫路：13%、弓削：5%）、船舶の寄与割合は姫路よりも弓削で大きかった（弓削：18%、姫路：12%）。そのため、姫路では周辺を走行する自動車の影響を強く受け、弓削では周辺の海域を航行する船舶排ガスの影響を強く受けていることが明らかとなった。この結果は、前述のPMF解析結果や観測地点の周辺環境と矛盾がないことから、本研究で用いた化学輸送モデルは周辺の大気環境を良好に再現していると考えられる。



図(3)-26 PM_{2.5}感度解析結果（上：姫路、下：弓削）

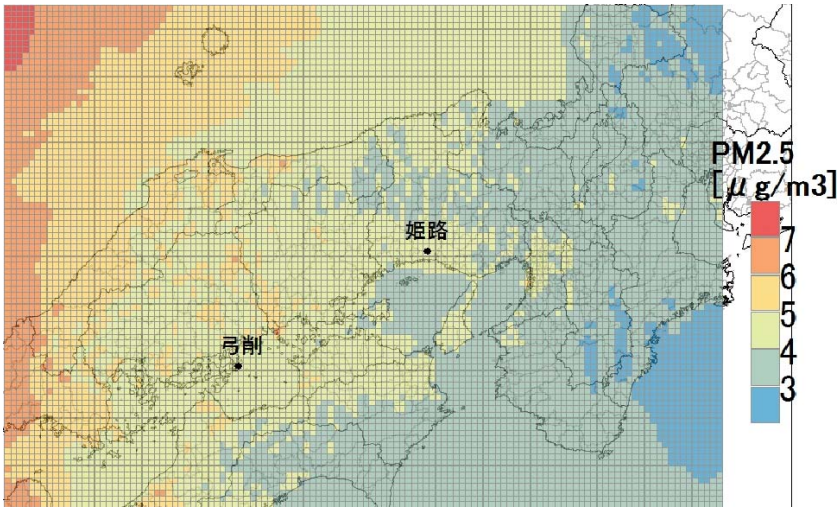


図(3)-27 感度解析手法によるPM_{2.5}質量濃度の発生源寄与割合（左：姫路、右：弓削）

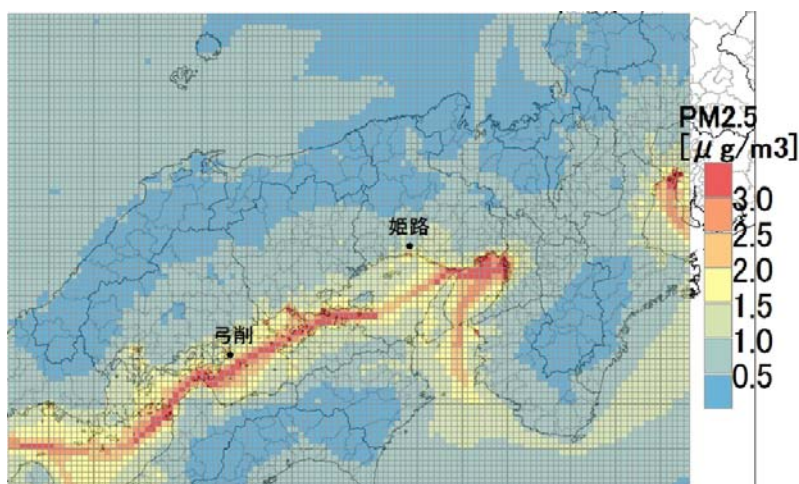
表(3)-11 感度解析手法による発生源寄与濃度（ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）

地点	東アジア 人為起源	船舶	自動車	その他
姫路	4.3	1.2	1.3	3.0
弓削	4.7	2.1	0.6	4.2

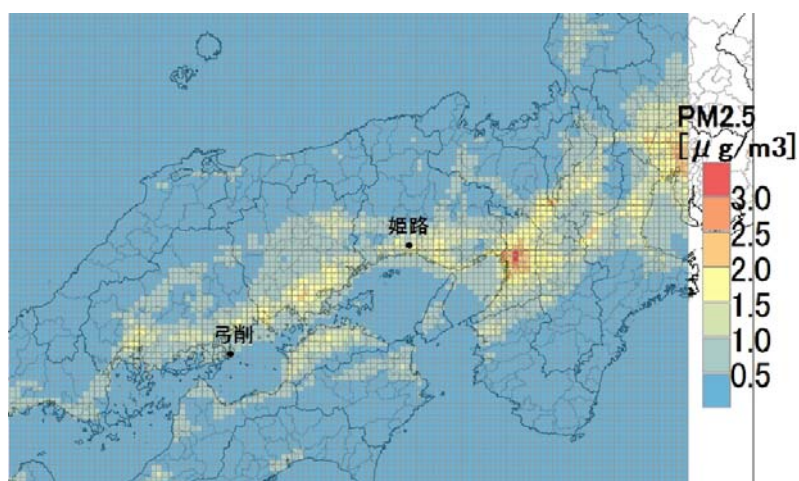
図(3)-28～図(3)-30に、感度解析手法によるPM_{2.5}質量濃度の発生源寄与濃度分布図を示した。東アジア人為起源の寄与は西に位置するほど影響が大きく、弓削にて姫路よりも大きい結果となった。船舶の寄与は瀬戸内海沿岸で大きく、弓削にて姫路よりも大きい結果となった。自動車の寄与は大阪や愛知、岡山南部で高濃度となっており、姫路で弓削よりも大きい結果となった。



図(3)-28 東アジア人為起源寄与PM_{2.5}全期間平均質量濃度分布図



図(3)-29 船舶寄与PM_{2.5}全期間平均質量濃度分布図



図(3)-30 自動車寄与PM_{2.5}全期間平均質量濃度分布図

5) PMF による因子寄与濃度との比較

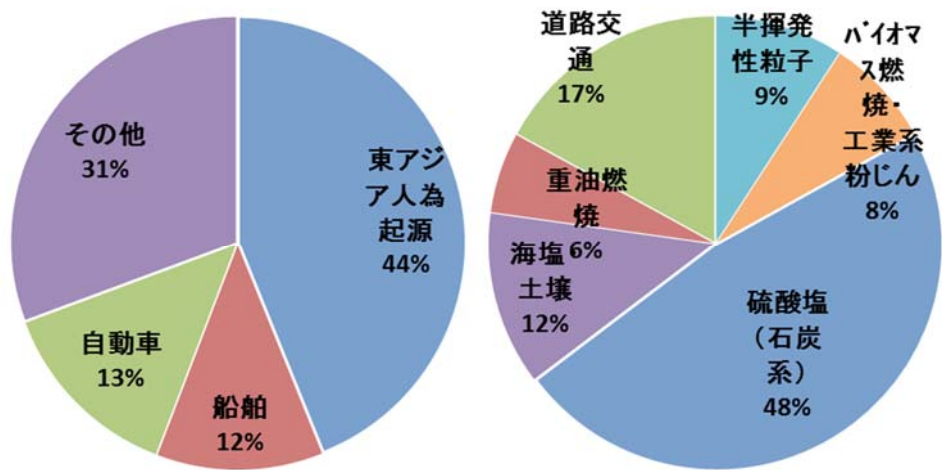
モデルによる感度解析結果と、前述のPMFによる発生源解析結果とを比較した。表(3)-12に、モデル感度解析による寄与濃度とPMFによる因子寄与濃度の平均値を、図(3)-31及び図(3)-32に、モデル感度解析による寄与割合とPMFによる因子寄与割合の平均値を、図(3)-33及び図(3)-34、図(3)-35に、モデル感度解析による寄与濃度とPMFによる因子寄与濃度の日平均値の推移を示した。また、表(3)-13に、PMFによる因子寄与濃度と感度解析による寄与濃度の相関を示した。

感度解析による東アジア人為起源の寄与は、姫路で $4.3\mu\text{g}/\text{m}^3$ (44%)、弓削で $4.7\mu\text{g}/\text{m}^3$ (41%)、PMFによる硫酸塩（石炭系）の寄与は、姫路で $6.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ (48%)、弓削で $6.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ (43%)となり、両地点とも同程度の寄与を示した。東アジア人為起源は、姫路では硫酸塩（石炭系）とバイオマス燃焼・工業系粉じんとの間に相関がみられ、弓削では硫酸塩（石炭系）との間に弱い相関がみられた。PMFによる硫酸塩（石炭系）は、後方流跡線を用いたCWT解析から越境移流の影響が示唆されたが、モデルによる感度解析結果との比較により、越境移流の影響を表す因子であることがより明確に示された。また、姫路、弓削ともに船舶と重油燃焼との間に相関が見られ、CWT解

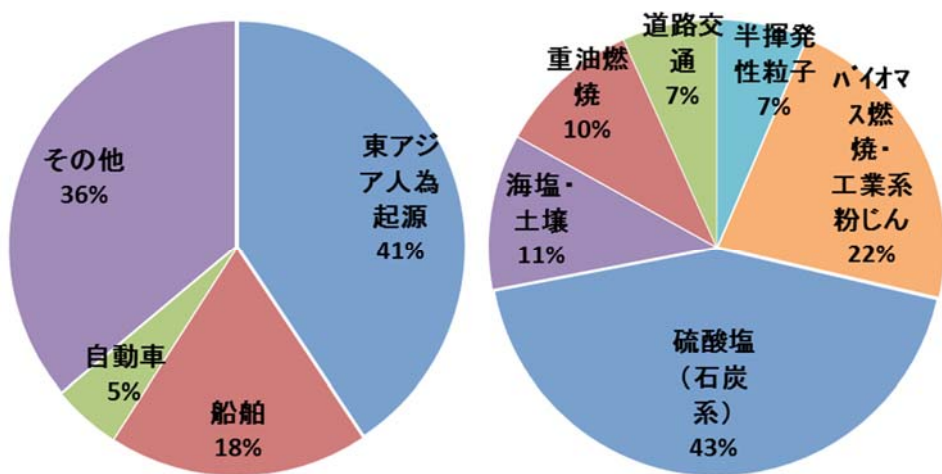
析結果でも周辺海域の影響が強かったことから、PMFによる重油燃焼は船舶を表す因子であることがより明確となった。自動車については、姫路、弓削ともに道路交通との一定の相関がみられた。

表(3)-12 モデル感度解析による寄与濃度とPMFによる因子寄与濃度の平均値 (μg/m³)

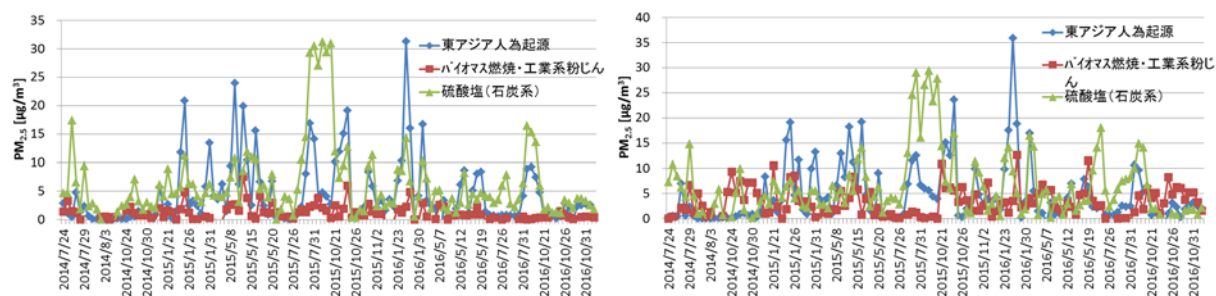
	モデル感度解析				PMF					
	東アジア 人為起源	船舶	自動車	その他	半揮発 性粒子	バイオマ ス燃焼・ 工業系粉 じん	硫酸塩 (石炭 系)	海塩・土 壌	重油 燃焼	道路交 通
姫路	4.3	1.2	1.3	3.0	1.2	1.0	6.2	1.6	0.8	2.2
弓削	4.7	2.1	0.6	4.2	0.9	3.2	6.2	1.6	1.5	1.0



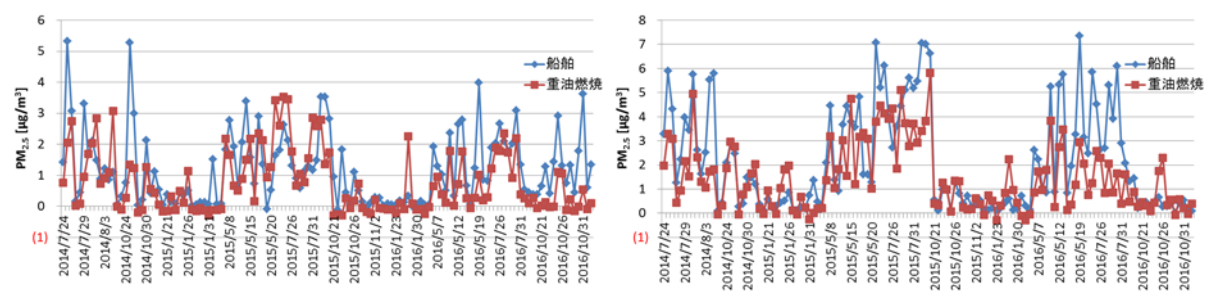
図(3)-31 姫路における発生源の寄与割合 (左：モデル感度解析、右：PMF)



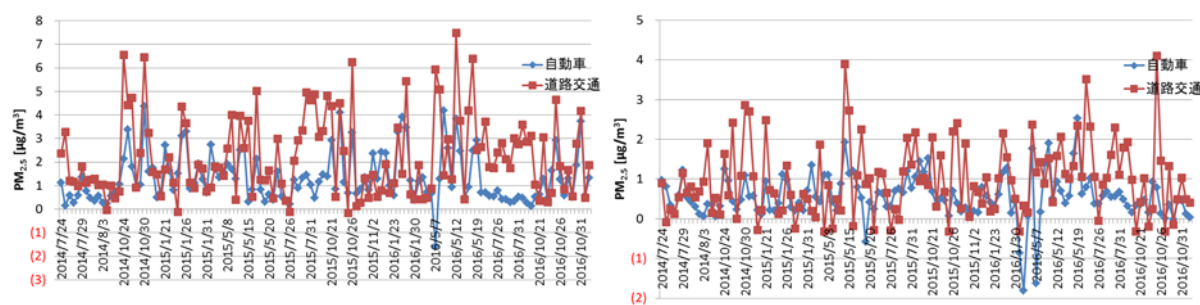
図(3)-32 弓削における発生源の寄与割合 (左：モデル感度解析、右：PMF)



図(3)-33 東アジア人為起源とバイオマス燃焼・工業系粉じん及び硫酸塩（石炭系）の寄与濃度の日平均値の推移（左：姫路、右、弓削）



図(3)-34 船舶と重油燃焼の寄与濃度の日平均値の推移（左：姫路、右、弓削）



図(3)-35 自動車と道路交通の寄与濃度の日平均値の推移（左：姫路、右：弓削）

表(3)-13 PMFと感度解析の相関係数

PMF 解析	感度 解析	姫路			弓削		
		東アジア 人為起源	船舶	自動車	東アジア 人為起源	船舶	自動車
半揮発性粒子		0.30	-0.19	0.53	0.29	-0.24	0.17
バイオマス燃焼・工業系 粉じん		0.58	0.17	0.29	0.19	-0.28	0.18
硫酸塩（石炭系）		0.46	0.20	0.03	0.42	0.45	0.21
海塩・土壌		0.23	-0.02	-0.13	0.12	-0.33	-0.21
重油燃焼		-0.15	0.62	-0.13	-0.09	0.78	0.37
道路交通		0.20	0.40	0.47	0.02	0.24	0.39

※0.4以上を背景色付け

5. 本研究により得られた成果

（１）科学的意義

PM_{2.5}の環境基準達成率は西日本において低い傾向が顕著であり、特に瀬戸内海沿岸地域における高濃度要因の究明は喫緊の課題となっている。本研究で設定した調査地点（弓削島）は瀬戸内海の離島に位置し、周辺20km以内には発電所等の大規模発生源は無いため、同地点におけるPM_{2.5}の成分データや発生源解析結果は、瀬戸内海の大気環境を評価する上で重要な情報となる。また、播磨臨海工業地帯に近く、都市部に位置する姫路市において並行観測を実施したことで、瀬戸内海の離島と瀬戸内海周辺の都市部の大気環境を同時に評価することが出来た。

（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>

瀬戸内海沿岸部はPM_{2.5}が高濃度になりやすいことが知られており、本研究で得られたPM_{2.5}成分データや発生源解析結果は、瀬戸内海の離島及び周辺の都市部における地域特有の高濃度現象を理解するために貴重な情報となる。また、時間単位で測定したPM_{2.5}の成分測定データによる発生源解析や、PMFによる発生源解析結果と化学輸送モデルによる発生源感度解析結果とを比較した研究は国内で少なく、今後の大気環境研究にとって非常に貴重な知見となる。

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)>

- 1) R. NAKATSUBO, D. TSUNETOMO, Y. HORIE, T. HIRAKI, K. SAITOH, Y. YODA, M. SHIMA:
Asian Journal of Atmospheric Environment, Vol. 8-3, 126-139 (2014) “Estimate of regional and
broad-based sources for PM_{2.5} collected in an industrial area of Japan”

<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) 中坪良平、堀江洋佑、藤原亘、嶋寺光、近藤明、松村千里、平木隆年、齊藤勝美、余田佳子、
島正之：第55回大気環境学会 (2014)
「兵庫県におけるPM_{2.5}濃度解析(1)-WRF/HYSPLITモデルによる輸送経路解析-」
- 2) 堀江洋佑、中坪良平、藤原亘、平木隆年、嶋寺光、近藤明、高木洋、伊藤武志、若松
純子、余田佳子、島正之：第56回大気環境学会 (2015)
「兵庫県の沿岸部と瀬戸内海の離島におけるPM_{2.5}濃度解析 -化学輸送モデルによる濃度予測-」
- 3) 中坪良平、堀江洋佑、藤原亘、平木隆年、高木洋、伊藤武志、若松純子、余田佳子、島
正之：第56回大気環境学会 (2015)
「瀬戸内海の離島及び沿岸の都市部で採取したPM_{2.5}の発生源解析」
- 4) 平木隆年、中坪良平、堀江洋佑、高木洋、伊藤武志、若松純子、余田佳子、島正之：
第57回大気環境学会 (2016)
「瀬戸内海のPM_{2.5}濃度について」
- 5) 堀江洋佑、中坪良平、平木隆年、嶋寺光、近藤明、高木洋、伊藤武志、若松純子、余
田佳子、島正之：第57回大気環境学会 (2016)
「化学輸送モデルと観測による兵庫県の沿岸部瀬戸内海離島におけるPM_{2.5}発生源解析」
- 6) 中坪良平、堀江洋佑、平木隆年、余田佳子、島正之：第57回大気環境学会 (2016)
「PM_{2.5}の高時間分解能成分測定データを用いた汚染要因解析」

(3) 出願特許

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) 一般公開シンポジウム「日本と中国におけるPM_{2.5}及びオゾンの呼吸器系への影響」（主催：兵
庫医科大学、平成26年12月6日、グランフロント大阪 ナレッジキャピタル・カンファレンスル
ームタワーC Room C03、参加者約50名）にて研究成果の紹介

- 2) 一般公開講座「PM_{2.5}及びオゾンによる大気汚染とその健康影響」（主催：兵庫医科大学、平成28年2月27日、大阪・梅田 阪急グランドビル会議室、聴衆約60名）にて研究成果の紹介
- 3) 一般公開講座「PM_{2.5}及びオゾンによる大気汚染とその健康影響」（主催：兵庫医科大学、平成29年3月24日、大阪・梅田 阪急グランドビル会議室、聴衆約50名）にて研究成果の紹介

（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

- 1) 板橋秀一、速水洋、大気環境学会誌, 51(5), 197-217(2016), 2010年度を対象としたトレーサー法によるわが国の微小粒子状物質（PM_{2.5}）の発生源寄与評価.
- 2) U.S.EPA., EPA Positive Matrix Factorization (PMF) 5.0 Fundamentals and User Guide 2014.
- 3) Polissar, A.V., Hopke, P.K., Harris, J.M., Environmental Science & Technology 35, 4214-4226(2001), Source regions for atmospheric aerosol measured at Barrow, Alaska.
- 4) Wang, Y.Q., Zhang, X.Y. and Draxler, R., Environmental Modelling & Software, 24: 938-939(2009), TrajStat: GIS-based software that uses various trajectory statistical analysis methods to identify potential sources from long-term air pollution measurement data.
- 5) 飯島明宏、環境省環境研究総合推進費5B-1101「全国的环境研究機関の有機的連携によるPM2.5汚染の実態解明と発生源寄与評価」終了成果報告書, 23-51(2013), 発生源プロファイルの刷新および複数のリセプターモデルの連携によるPM_{2.5}発生源寄与推計.
- 6) Itano Y, Bandow H, Takenaka N, Saitoh Y, Asayama A, Fukuyama J. Science of the Total Environment, 379, 46-55(2007), Impact of NOx reduction on long-term ozone trends in an urban atmosphere.
- 7) Byun D, Ching J, EPA/600/R-99/030 (1999), Science algorithms of the EPA Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) modeling system.
- 8) Byun D, Schere KL, Applied Mechanics Reviews, 59(1-6), 51-76(2006), Review of the governing equations, computational algorithms, and other components of the models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) modeling system.
- 9) 気象庁、[地球環境のデータバンク] 黄砂、http://www.data.jma.go.jp/gmd/env/kosahp/kosa_table_2016.html

【資料編】

追加表(1) -1 大気環境中の粒子状物質の四分位範囲濃度増加当たりの喘息発作リスク比(年齢・季節別)

	全年齡			0-14歲			15-64歲			65歲以上						
	RR	95%信賴區間	p值	RR	95%信賴區間	p值	RR	95%信賴區間	p值	RR	95%信賴區間	p值				
PM _{2.5} (IQR = 5.2µg/m ³)																
通年	1.01	0.98	1.05	0.430	0.96	0.89	1.04	0.353	1.05	1.00	1.09	0.029	1.03	0.99	1.08	0.172
3-5月	1.04	0.98	1.09	0.203	0.91	0.75	1.06	0.246	1.10	1.00	1.19	0.06	1.09	1.00	1.18	0.040
6-8月	1.05	1.00	1.09	0.035	1.06	1.00	1.12	0.067	1.05	0.98	1.12	0.14	1.02	0.95	1.10	0.525
9-11月	1.00	0.94	1.06	0.998	1.02	0.89	1.14	0.797	0.98	0.91	1.05	0.59	1.00	0.93	1.08	0.967
12-2月	0.99	0.91	1.08	0.905	0.91	0.76	1.07	0.264	1.00	0.92	1.08	0.98	1.08	0.95	1.20	0.228
PM _{10-2.5} (IQR = 3.7µg/m ³)																
通年	1.02	0.98	1.05	0.300	0.99	0.92	1.06	0.869	1.05	1.01	1.09	0.020	1.00	0.96	1.05	0.894
3-5月	1.03	1.00	1.06	0.048	1.00	0.90	1.10	0.974	1.07	1.01	1.13	0.02	1.01	0.96	1.07	0.636
6-8月	1.02	0.94	1.09	0.693	1.06	0.95	1.17	0.297	1.03	0.92	1.15	0.57	0.94	0.81	1.06	0.325
9-11月	0.98	0.91	1.06	0.656	0.98	0.83	1.13	0.826	0.98	0.90	1.07	0.73	0.98	0.89	1.07	0.672
12-2月	0.99	0.91	1.07	0.834	0.91	0.76	1.05	0.212	1.01	0.93	1.09	0.76	1.05	0.93	1.17	0.389
PM ₁₀ (IQR = 8.9µg/m ³)																
通年	1.02	0.98	1.05	0.394	0.98	0.90	1.06	0.615	1.05	1.00	1.09	0.043	1.02	0.97	1.07	0.421
3-5月	1.05	1.01	1.09	0.020	1.03	0.90	1.15	0.669	1.06	0.99	1.14	0.11	1.06	0.98	1.13	0.124
6-8月	1.04	0.99	1.08	0.116	1.04	0.96	1.11	0.318	1.04	0.98	1.11	0.20	1.03	0.95	1.10	0.502
9-11月	1.00	0.92	1.08	0.984	1.00	0.83	1.17	0.971	1.01	0.91	1.11	0.89	1.00	0.90	1.09	0.945
12-2月	0.98	0.91	1.06	0.658	0.91	0.78	1.04	0.182	0.99	0.90	1.08	0.85	1.04	0.95	1.13	0.428
OBC(IQR = 0.24µg/m ³)																
通年	0.99	0.95	1.04	0.802	0.97	0.87	1.07	0.613	0.99	0.93	1.05	0.769	1.03	0.97	1.09	0.400
3-5月	1.02	0.99	1.05	0.198	0.98	0.88	1.07	0.655	1.11	1.03	1.19	0.01	1.02	0.93	1.10	0.738
6-8月	0.98	0.92	1.05	0.611	1.04	0.94	1.13	0.452	1.01	0.93	1.09	0.79	1.02	0.93	1.12	0.631
9-11月	1.04	0.98	1.10	0.178	1.11	0.99	1.24	0.067	0.96	0.89	1.03	0.21	1.02	0.94	1.09	0.684
12-2月	0.98	0.90	1.06	0.603	0.85	0.71	1.00	0.051	1.01	0.92	1.10	0.83	1.11	0.97	1.24	0.128

週平均の気温、湿度、気圧、日照時間、季節(通年の解析のみ)、調査年度(カテゴリー化)の影響を調整

追加表(1) -2 微小粒子(PM_{2.5})中の主要化学成分の四分位範囲濃度増加当たりの喘息発作リスク比(年齢・季節別)

	全年齢				0-14歳				15-64歳				65歳以上			
	RR	95%信頼区間	p値		RR	95%信頼区間	p値		RR	95%信頼区間	p値		RR	95%信頼区間	p値	
SO ₄ ²⁻ (IQR = 22.1 nmol/m ³)																
通年	1.00	0.96	1.04	0.996	0.96	0.87	1.06	0.460	1.02	0.96	1.07	0.528	1.02	0.96	1.08	0.440
3-5月	1.03	0.99	1.08	0.130	0.95	0.81	1.08	0.428	1.08	1.01	1.16	0.033	1.05	0.97	1.12	0.238
6-8月	1.03	0.97	1.08	0.324	1.05	0.97	1.13	0.192	1.03	0.96	1.11	0.398	1.01	0.92	1.10	0.827
9-11月	0.98	0.92	1.04	0.555	0.99	0.86	1.11	0.862	0.98	0.88	1.08	0.687	1.00	0.89	1.10	0.957
12-2月	1.00	0.91	1.09	0.928	0.90	0.73	1.08	0.279	1.00	0.92	1.09	0.912	1.08	0.96	1.20	0.205
NO ₃ ⁻ (IQR = 18.1 nmol/m ³)																
通年	1.02	0.96	1.07	0.553	0.98	0.87	1.10	0.781	1.02	0.95	1.09	0.560	1.06	0.99	1.13	0.099
3-5月	1.05	1.02	1.08	0.003	0.99	0.89	1.10	0.920	1.00	0.91	1.08	0.920	1.08	1.01	1.14	0.017
6-8月	1.02	0.98	1.06	0.376	1.05	0.99	1.12	0.086	1.04	0.99	1.09	0.086	0.98	0.91	1.06	0.626
9-11月	1.03	0.94	1.11	0.514	1.07	0.90	1.24	0.430	1.08	0.88	1.28	0.430	1.01	0.91	1.11	0.863
12-2月	0.97	0.87	1.06	0.510	0.83	0.65	1.00	0.053	0.88	0.75	1.00	0.053	1.08	0.93	1.23	0.314
WSOC (IQR = 0.54µg/m ³)																
通年	1.03	0.99	1.07	0.181	0.98	0.89	1.06	0.578	1.07	1.02	1.12	0.005	1.04	0.98	1.09	0.177
3-5月	1.05	1.01	1.10	0.024	0.91	0.76	1.06	0.246	1.11	1.02	1.21	0.020	1.13	1.05	1.22	0.003
6-8月	1.03	0.99	1.07	0.111	1.04	0.98	1.09	0.219	1.04	0.98	1.10	0.190	1.02	0.95	1.08	0.661
9-11月	1.03	0.97	1.09	0.312	1.08	0.96	1.21	0.193	1.00	0.93	1.07	0.957	0.99	0.91	1.06	0.736
12-2月	0.98	0.90	1.06	0.600	0.87	0.72	1.02	0.094	1.01	0.92	1.09	0.893	1.05	0.93	1.18	0.400
ΔH ⁺ (IQR = 4.51 nmol/m ³)																
通年	1.02	0.99	1.04	0.172	0.98	0.93	1.04	0.507	1.04	1.01	1.07	0.009	1.03	1.00	1.06	0.057
3-5月	1.07	0.95	1.20	0.258	1.01	0.63	1.39	0.959	1.10	0.84	1.35	0.46	1.11	0.86	1.35	0.398
6-8月	1.09	1.01	1.17	0.029	1.18	1.08	1.29	0.001	1.05	0.92	1.17	0.46	1.04	0.89	1.18	0.634
9-11月	0.98	0.93	1.03	0.496	0.95	0.85	1.06	0.366	0.99	0.93	1.05	0.71	1.03	0.97	1.10	0.268
12-2月	0.99	0.97	1.01	0.219	0.93	0.90	0.97	0.000	1.01	0.99	1.03	0.36	1.01	0.97	1.04	0.630

過平均の気温、湿度、気圧、日照時間、季節(通年の解析のみ)、調査年度(カテゴリ化)の影響を調整

追加表(1) -3 粗大粒子(PM_{10-2.5})中の主要化学成分の四分位範囲濃度増加当たりの喘息発作リスク比(年齢・季節別)

	全年齢				0-14歳				15-64歳				65歳以上			
	RR	95%信頼区間	p値		RR	95%信頼区間	p値		RR	95%信頼区間	p値		RR	95%信頼区間	p値	
SO ₄ ²⁻ (IQR = 6.1 nmol/m ³)																
通年	0.97	0.92	1.02	0.290	0.94	0.83	1.05	0.277	1.00	0.93	1.06	0.905	0.98	0.91	1.05	0.560
3-5月	0.89	0.82	0.96	0.002	0.55	0.37	0.73	0.000	1.10	0.96	1.24	0.161	0.97	0.79	1.14	0.714
6-8月	0.92	0.82	1.03	0.153	1.08	0.93	1.24	0.291	0.86	0.70	1.01	0.071	0.83	0.66	1.00	0.049
9-11月	0.98	0.83	1.14	0.853	1.00	0.67	1.33	0.992	0.93	0.74	1.13	0.510	1.04	0.85	1.23	0.658
12-2月	0.95	0.81	1.09	0.466	1.00	0.73	1.27	0.995	0.88	0.75	1.01	0.080	0.99	0.77	1.22	0.962
NO ₃ ⁻ (IQR = 7.9 nmol/m ³)																
通年	1.03	0.98	1.07	0.220	0.99	0.90	1.08	0.805	1.05	1.00	1.10	0.060	1.04	0.99	1.10	0.124
3-5月	1.05	1.02	1.09	0.005	1.07	0.94	1.21	0.290	1.07	1.00	1.14	0.066	1.01	0.91	1.10	0.897
6-8月	1.04	0.97	1.10	0.258	1.09	1.00	1.18	0.050	1.02	0.92	1.12	0.696	1.00	0.89	1.11	0.991
9-11月	0.98	0.92	1.03	0.394	0.94	0.83	1.06	0.349	0.98	0.91	1.05	0.627	1.03	0.96	1.10	0.444
12-2月	1.00	0.92	1.08	0.976	0.89	0.75	1.04	0.142	1.02	0.94	1.10	0.630	1.09	0.97	1.20	0.156
WSOC (IQR = 0.05µg/m ³)																
通年	1.01	0.98	1.05	0.400	0.97	0.90	1.04	0.449	1.05	1.01	1.09	0.014	1.02	0.97	1.06	0.499
3-5月	1.04	1.00	1.08	0.027	1.08	0.96	1.21	0.200	1.04	0.97	1.11	0.271	1.00	0.91	1.08	0.936
6-8月	1.02	0.97	1.07	0.492	1.06	0.98	1.13	0.135	1.00	0.93	1.08	0.918	0.99	0.91	1.08	0.900
9-11月	1.00	0.92	1.09	0.941	1.02	0.84	1.20	0.809	0.98	0.87	1.08	0.677	1.01	0.91	1.12	0.831
12-2月	0.99	0.90	1.08	0.763	0.86	0.70	1.03	0.104	1.03	0.94	1.12	0.462	1.05	0.91	1.19	0.503
ΔH ⁺ (IQR = 1.15 nmol/m ³)																
通年	1.01	0.98	1.04	0.537	1.04	0.97	1.11	0.276	0.98	0.94	1.02	0.343	1.02	0.97	1.07	0.396
3-5月	1.02	0.99	1.05	0.228	1.15	1.07	1.22	0.000	0.95	0.91	0.99	0.02	0.97	0.91	1.03	0.388
6-8月	0.98	0.92	1.05	0.593	1.02	0.93	1.11	0.634	0.92	0.83	1.02	0.12	1.02	0.91	1.14	0.674
9-11月	1.00	0.92	1.08	0.977	1.02	0.85	1.19	0.812	1.00	0.89	1.10	0.93	0.96	0.85	1.07	0.476
12-2月	1.00	0.90	1.10	0.998	0.77	0.60	0.95	0.010	1.08	0.99	1.17	0.10	1.13	0.98	1.28	0.095

過平均の気温、湿度、気圧、日照時間、季節(通年の解析のみ)、調査年度(カテゴリー化)の影響を調整

追加表(2)-1a 大気汚染物質濃度(質量、炭素、イオン成分)の増加に伴う最大呼気流量(P EF)の変化(%):検査時期別

	2014年10-11月				2015年5-6月				2015年10-11月				2016年5-6月				2016年10-11月				
	IQR	変化量	95%信頼区間	p値	変化量	95%信頼区間	p値	変化量	95%信頼区間	p値	変化量	95%信頼区間	p値	変化量	95%信頼区間	p値	変化量	95%信頼区間	p値		
学校屋上での連続測定																					
PM _{2.5}	15.8	-1.20	-2.24	-0.16	0.023	-0.41	-1.51	0.68	0.459	-2.11	-3.30	-0.92	0.001	0.18	-1.09	1.44	0.784	-1.50	-2.95	-0.05	0.043
PM _{10-2.5}	6.4	-2.09	-3.26	-0.93	0.000	0.48	-0.86	1.82	0.481	-1.12	-2.68	0.43	0.156	0.10	-0.23	0.43	0.543	0.97	-0.04	1.99	0.060
PM ₁₀	18.9	-1.70	-2.78	-0.63	0.002	-0.07	-0.93	0.79	0.870	-1.53	-2.50	-0.57	0.002	0.35	-0.90	1.60	0.585	-0.57	-2.17	1.03	0.483
OBC	0.379	-1.50	-2.92	-0.09	0.037	0.61	-0.45	1.66	0.257	-1.94	-3.36	-0.51	0.008	-0.62	-1.57	0.33	0.199	-2.05	-3.47	-0.64	0.005
O ₃	13.1	0.55	-0.55	1.66	0.326	0.62	-0.73	1.97	0.365	-1.90	-3.05	-0.75	0.001	-1.30	-3.42	0.82	0.230	-0.67	-1.84	0.51	0.264
NO ₂	5.08	-2.03	-3.62	-0.43	0.013	0.20	-0.66	1.07	0.647	-1.35	-3.36	0.65	0.185	0.14	-0.96	1.24	0.801	-0.95	-1.85	-0.05	0.039
NO	0.57	-1.74	-3.09	-0.40	0.011	-0.03	-0.85	0.79	0.945	0.87	-0.52	2.26	0.219	0.43	-0.26	1.12	0.222	1.33	0.57	2.09	0.001
SO ₂	0.004	-1.72	-2.99	-0.45	0.008	0.55	-0.27	1.38	0.189	-0.82	-1.82	0.18	0.109	0.52	-0.95	1.98	0.489	0.45	-0.30	1.20	0.241
教室内での簡易測定																					
PM _{2.5}	18.9	-0.48	-1.58	0.62	0.389	—				-1.03	-1.47	-0.58	0.000	0.24	-0.89	1.38	0.672	-1.72	-3.67	0.23	0.084
O ₃	10.4	0.54	-0.67	1.76	0.380	0.63	-0.53	1.80	0.287	-1.67	-2.68	-0.66	0.001	-1.97	-3.62	-0.31	0.020	-0.34	-1.43	0.76	0.544
NO ₂	2.0	-1.90	-3.26	-0.54	0.006	0.33	-0.48	1.14	0.425	-1.29	-2.18	-0.39	0.005	0.75	-0.44	1.94	0.219	0.90	0.06	1.74	0.036
24時間毎の捕集																					
PM _{2.5}	10.0	-1.54	-2.89	-0.18	0.026	-0.54	-1.99	0.91	0.465	-1.81	-2.83	-0.79	0.001	-0.28	-2.16	1.59	0.766	-0.90	-2.35	0.56	0.228
OC	1.9	-1.35	-2.68	-0.03	0.045	-0.23	-1.64	1.18	0.751	-1.12	-2.58	0.35	0.135	-0.34	-1.73	1.04	0.625	-0.49	-1.20	0.23	0.182
EC	0.58	-1.39	-2.64	-0.14	0.029	0.18	-0.77	1.13	0.715	-1.44	-2.45	-0.43	0.005	-0.69	-2.27	0.89	0.391	-0.50	-1.50	0.51	0.331
イオン成分																					
Cl ⁻	0.060	0.05	-0.91	1.02	0.914	-0.59	-1.27	0.09	0.092	-0.30	-0.95	0.35	0.365	0.07	-0.82	0.96	0.876	0.66	-0.20	1.52	0.133
NO ₃ ⁻	0.355	-1.01	-1.79	-0.23	0.012	-0.65	-1.32	0.02	0.058	0.26	-1.11	1.63	0.707	-0.15	-0.66	0.36	0.558	-0.18	-0.65	0.28	0.441
SO ₄ ²⁻	3.9	-0.62	-1.44	0.19	0.134	-0.42	-1.73	0.90	0.533	-1.37	-2.04	-0.70	0.000	0.05	-1.42	1.52	0.944	-0.56	-1.93	0.80	0.419
Na ⁺	0.078	-0.68	-1.79	0.43	0.230	0.12	-1.03	1.28	0.834	-1.18	-2.21	-0.16	0.024	0.06	-0.78	0.90	0.890	0.69	-0.24	1.61	0.146
NH ₄ ⁺	1.5	-0.79	-1.68	0.10	0.080	-0.47	-1.75	0.82	0.475	-1.39	-2.11	-0.66	0.000	0.04	-1.24	1.31	0.955	-0.64	-1.89	0.62	0.320
K ⁺	0.117	-1.69	-3.21	-0.17	0.030	0.17	-0.50	0.84	0.622	-1.70	-2.74	-0.66	0.001	-1.22	-2.71	0.26	0.105	-0.06	-0.99	0.87	0.892
Mg ²⁺	0.010	-0.75	-1.66	0.17	0.111	0.44	-0.67	1.54	0.438	-0.36	-2.21	1.49	0.702	-0.01	-2.03	2.01	0.994	0.09	-0.35	0.53	0.687
Ca ²⁺	0.026	-0.39	-1.52	0.73	0.491	-0.85	-2.46	0.76	0.299	-2.17	-3.29	-1.05	0.000	-0.17	-1.30	0.95	0.763	0.04	-1.03	1.10	0.943

追加表(2)-1b 大気汚染物質濃度(元素成分)の増加に伴う最大呼気流量(PEF)の変化(%):検査時期別

	2014年10-11月				2015年5-6月				2015年10-11月				2016年5-6月				2016年10-11月			
	IQR	変化量	95%信頼区間	p値	変化量	95%信頼区間	p値	変化量	95%信頼区間	p値	変化量	95%信頼区間	変化量	95%信頼区間	p値	変化量	95%信頼区間	p値	変化量	95%信頼区間
元素成分																				
Na	59	-1.53	-2.75	-0.32	0.013	-0.54	-1.63	0.54	0.327	-1.03	-2.03	-0.03	0.044	-0.25	-1.47	0.97	0.683	0.09	-0.80	0.97
Al	24	-0.65	-1.65	0.36	0.208	-0.36	-1.32	0.59	0.454	-0.92	-1.66	-0.18	0.015	0.11	-0.11	0.34	0.334	-0.20	-1.31	0.90
K	98	-1.72	-3.26	-0.17	0.030	-0.03	-0.91	0.85	0.950	-1.24	-1.96	-0.52	0.001	-0.58	-1.61	0.45	0.267	-0.76	-2.28	0.76
Ca	25	—				-0.02	-1.27	1.24	0.978	—				—				0.16	-0.36	0.68
Ti	2.3	-1.45	-2.47	-0.44	0.005	-0.48	-1.40	0.45	0.311	-0.29	-0.94	0.36	0.378	0.20	-0.22	0.61	0.351	-0.94	-2.07	0.19
V	5.3	-0.58	-1.40	0.25	0.169	-0.64	-1.72	0.45	0.250	-0.13	-1.82	1.57	0.884	0.99	-0.34	2.32	0.145	-1.15	-2.84	0.55
Cr	0.78	-1.84	-3.34	-0.34	0.016	-0.21	-0.92	0.51	0.574	-0.77	-1.94	0.39	0.192	-0.79	-1.99	0.42	0.200	-1.12	-2.51	0.28
Mn	9.9	-1.28	-2.35	-0.21	0.019	-0.27	-0.98	0.44	0.460	-0.40	-1.51	0.70	0.472	-0.04	-0.93	0.85	0.932	-0.62	-1.23	-0.01
Fe	162	-1.84	-3.13	-0.54	0.006	0.16	-0.83	1.15	0.753	-1.53	-3.16	0.10	0.066	-0.20	-0.98	0.57	0.606	-0.52	-1.34	0.29
Co	0.043	-1.45	-2.62	-0.28	0.015	-0.48	-1.60	0.63	0.395	-1.10	-2.26	0.07	0.065	0.24	-1.02	1.49	0.712	-1.00	-2.27	0.28
Ni	1.9	-0.71	-1.58	0.16	0.111	-0.32	-1.49	0.85	0.590	-0.31	-1.75	1.12	0.667	0.51	-0.39	1.41	0.267	-1.39	-2.64	-0.13
Cu	2.2	-1.74	-2.86	-0.62	0.002	0.17	-0.90	1.25	0.749	-1.55	-3.12	0.03	0.054	0.34	-0.60	1.28	0.481	-0.64	-1.79	0.51
Zn	29	-1.20	-2.21	-0.18	0.021	-0.09	-1.05	0.87	0.852	-0.68	-2.42	1.06	0.441	-0.56	-1.71	0.60	0.344	-0.75	-1.54	0.05
As	1.9	0.06	-0.98	1.09	0.916	-0.75	-1.82	0.32	0.171	0.25	-1.18	1.69	0.729	0.53	-0.34	1.39	0.231	-0.33	-1.06	0.40
Se	0.98	-0.74	-1.67	0.18	0.115	0.70	-0.26	1.65	0.153	-1.35	-2.60	-0.10	0.035	-0.01	-0.86	0.84	0.982	-0.27	-0.62	0.08
Rb	0.58	-0.88	-1.98	0.21	0.114	0.05	-0.61	0.71	0.879	-1.75	-3.01	-0.48	0.007	-0.92	-2.24	0.41	0.176	-0.01	-0.80	0.78
Mo	0.67	-1.66	-3.05	-0.27	0.019	0.62	-0.18	1.41	0.128	0.48	-0.48	1.43	0.326	-0.39	-1.51	0.73	0.495	0.45	-0.20	1.11
Sb	0.60	-0.85	-1.95	0.25	0.131	-1.51	-2.89	-0.12	0.034	-0.79	-1.68	0.10	0.083	-0.07	-0.96	0.83	0.880	-0.95	-1.79	-0.11
Cs	0.28	-1.31	-2.86	0.23	0.096	0.32	-0.55	1.18	0.472	0.11	-0.40	0.62	0.662	-0.65	-1.42	0.13	0.101	-0.25	-1.17	0.67
Ba	0.56	-0.77	-1.45	-0.09	0.026	-0.36	-1.30	0.59	0.460	-0.96	-1.54	-0.38	0.001	0.21	-0.44	0.87	0.527	-0.80	-1.83	0.23
La	0.050	-1.48	-2.90	-0.06	0.041	0.45	-0.68	1.59	0.435	-0.89	-1.56	-0.23	0.008	0.01	-0.49	0.50	0.981	-0.10	-0.95	0.74
Ce	0.041	-1.18	-2.52	0.16	0.084	-0.35	-1.43	0.73	0.527	-0.78	-1.51	-0.06	0.035	0.16	-0.28	0.61	0.472	-0.53	-1.47	0.41
Sm	0.002	-0.59	-1.60	0.43	0.257	-0.47	-1.58	0.63	0.401	-0.60	-1.49	0.29	0.165	0.10	-0.12	0.32	0.375	-0.35	-1.40	0.71
Hf	0.019	-0.02	-0.15	0.11	0.808	—				—				—				—		
W	0.18	-1.00	-2.52	0.53	0.200	-0.28	-1.45	0.89	0.641	0.18	-0.32	0.67	0.484	-0.52	-1.49	0.44	0.288	-1.45	-2.81	-0.10
Pb	8.7	-1.23	-2.53	0.06	0.063	-0.61	-1.86	0.63	0.332	-1.32	-2.09	-0.55	0.001	-0.28	-1.71	1.14	0.698	-0.60	-1.82	0.63
Th	0.005	-0.21	-1.04	0.63	0.625	-0.50	-1.59	0.58	0.361	-1.15	-2.13	-0.16	0.023	0.10	-0.11	0.30	0.353	-0.15	-1.32	1.01

追加表(2)-2a 大気汚染物質濃度(質量、炭素、イオン成分)の増加に伴う1秒量(FEV1)の変化(%):検査時期別

	2014年10-11月				2015年5-6月				2015年10-11月				2016年5-6月				2016年10-11月				
	IQR	変化量	95%信頼区間	p値	変化量	95%信頼区間	p値	変化量	95%信頼区間	p値	変化量	95%信頼区間	p値	変化量	95%信頼区間	p値	変化量	95%信頼区間	p値		
学校屋上での連続測定																					
PM _{2.5}	15.8	-1.38	-2.63	-0.13	0.030	-0.08	-1.57	1.41	0.918	-2.34	-3.81	-0.87	0.002	1.19	-0.42	2.80	0.147	-1.60	-3.41	0.21	0.084
PM _{10-2.5}	6.4	-1.85	-3.28	-0.42	0.011	1.05	-0.74	2.83	0.250	-1.70	-3.61	0.21	0.080	0.89	0.48	1.30	0.000	0.68	-0.62	1.98	0.305
PM ₁₀	18.9	-1.81	-3.11	-0.51	0.006	0.29	-0.88	1.45	0.630	-1.82	-3.01	-0.63	0.003	2.80	1.24	4.37	0.000	-0.91	-2.91	1.10	0.375
OBC	0.379	-1.49	-3.20	0.23	0.089	0.12	-1.29	1.53	0.868	-2.66	-4.42	-0.90	0.003	-0.81	-2.01	0.39	0.183	-1.33	-3.11	0.44	0.140
O ₃	13.1	0.20	-1.12	1.52	0.767	1.67	-0.09	3.44	0.063	-2.46	-3.85	-1.07	0.001	-3.33	-5.99	-0.66	0.014	-1.98	-3.46	-0.50	0.009
NO ₂	5.08	-2.23	-4.16	-0.30	0.024	-0.75	-1.91	0.42	0.208	-1.10	-3.60	1.41	0.390	0.16	-1.25	1.56	0.829	-0.35	-1.49	0.78	0.539
NO	0.57	-2.29	-3.93	-0.65	0.006	0.00	-1.10	1.10	0.998	1.97	0.28	3.67	0.023	0.09	-0.78	0.95	0.845	1.87	0.92	2.83	0.000
SO ₂	0.004	-1.54	-3.11	0.02	0.052	0.87	-0.25	1.98	0.129	-0.18	-1.44	1.08	0.780	-0.77	-2.64	1.10	0.420	0.50	-0.46	1.46	0.308
教室内での簡易測定																					
PM _{2.5}	18.9	-0.58	-1.83	0.67	0.364	—				-1.33	-1.87	-0.79	0.000	0.44	-1.02	1.90	0.556	-2.68	-5.13	-0.24	0.032
O ₃	10.4	0.36	-1.14	1.86	0.639	0.94	-0.51	2.39	0.204	-2.27	-3.51	-1.03	0.000	-5.35	-7.40	-3.30	0.000	-1.19	-2.61	0.22	0.098
NO ₂	2.0	-2.28	-3.92	-0.65	0.006	-0.50	-1.55	0.56	0.359	-1.16	-2.29	-0.04	0.043	0.07	-1.45	1.59	0.927	0.61	-0.47	1.68	0.267
24時間毎の捕集																					
PM _{2.5}	10.0	-1.72	-3.35	-0.10	0.037	-0.51	-2.44	1.42	0.605	-2.04	-3.30	-0.77	0.002	-0.18	-2.63	2.27	0.884	-0.78	-2.62	1.06	0.405
OC	1.9	-1.81	-3.41	-0.21	0.027	-0.65	-2.49	1.19	0.487	-0.01	-1.82	1.80	0.991	-1.04	-2.89	0.81	0.268	0.02	-0.88	0.92	0.961
EC	0.58	-1.46	-2.97	0.04	0.057	-0.21	-1.47	1.06	0.748	-1.30	-2.55	-0.04	0.043	-1.64	-3.70	0.43	0.120	0.09	-1.19	1.36	0.892
イオン成分																					
Cl ⁻	0.060	0.04	-1.15	1.22	0.951	-0.40	-1.35	0.54	0.401	0.14	-0.66	0.94	0.730	1.43	0.33	2.52	0.011	1.04	-0.06	2.13	0.063
NO ₃ ⁻	0.355	-0.58	-1.52	0.35	0.219	-0.80	-1.71	0.11	0.084	1.03	-0.61	2.67	0.218	0.21	-0.42	0.83	0.515	0.40	-0.19	1.00	0.185
SO ₄ ²⁻	3.9	-0.62	-1.59	0.36	0.213	-0.34	-2.08	1.40	0.702	-1.78	-2.61	-0.95	0.000	-0.01	-1.86	1.84	0.992	-1.54	-3.27	0.20	0.083
Na ⁺	0.078	-0.68	-2.02	0.67	0.323	-0.54	-2.07	0.98	0.485	-1.37	-2.64	-0.09	0.035	-0.60	-1.66	0.45	0.263	1.31	0.12	2.49	0.031
NH ₄ ⁺	1.5	-0.77	-1.82	0.29	0.154	-0.39	-2.10	1.32	0.653	-1.75	-2.64	-0.85	0.000	0.24	-1.36	1.85	0.767	-1.48	-3.07	0.11	0.069
K ⁺	0.117	-1.45	-3.28	0.38	0.121	0.05	-0.84	0.95	0.905	-1.67	-2.96	-0.38	0.011	-1.00	-2.90	0.91	0.304	-0.06	-1.25	1.12	0.915
Mg ²⁺	0.010	-0.68	-1.80	0.44	0.236	1.11	-0.35	2.58	0.136	-1.76	-4.02	0.50	0.127	2.90	0.32	5.49	0.028	0.35	-0.22	0.92	0.233
Ca ²⁺	0.026	-0.05	-1.42	1.32	0.945	0.74	-1.45	2.93	0.507	-3.00	-4.37	-1.63	0.000	1.60	0.18	3.02	0.027	0.65	-0.72	2.01	0.353

追加表(2)-2b 大気汚染物質濃度(元素成分)の増加に伴う1秒量(FEV1)の変化(%):検査時期別

元素成分	2014年10-11月				2015年5-6月				2015年10-11月				2016年5-6月				2016年10-11月				
	IQR	変化量	95%信頼区間	p値	変化量	95%信頼区間	p値	変化量	95%信頼区間	p値	変化量	95%信頼区間	p値	変化量	95%信頼区間	p値	変化量	95%信頼区間	p値		
Na	59	-2.09	-3.52	-0.66	0.004	-0.85	-2.27	0.57	0.239	-1.12	-2.37	0.12	0.077	-1.26	-2.80	0.28	0.108	0.95	-0.18	2.09	0.100
Al	24	-0.37	-1.56	0.82	0.541	-0.27	-1.55	1.00	0.673	-1.47	-2.35	-0.58	0.001	0.71	0.43	0.98	0.000	0.89	-0.52	2.29	0.217
K	98	-1.96	-3.82	-0.09	0.040	0.01	-1.17	1.19	0.992	-1.24	-2.14	-0.34	0.007	0.40	-0.91	1.71	0.546	-0.18	-2.11	1.74	0.851
Ca	25	—				0.10	-1.57	1.77	0.908	—				—				-0.05	-0.71	0.62	0.887
Ti	2.3	-1.14	-2.32	0.04	0.059	-0.21	-1.43	1.01	0.735	-0.38	-1.15	0.39	0.329	1.24	0.73	1.75	0.000	0.44	-1.01	1.89	0.548
V	5.3	-1.40	-2.41	-0.39	0.007	-1.10	-2.57	0.37	0.144	0.65	-1.43	2.73	0.542	0.44	-1.24	2.12	0.606	-1.00	-3.15	1.14	0.357
Cr	0.78	-1.78	-3.60	0.04	0.056	-0.70	-1.65	0.25	0.146	-0.65	-2.06	0.76	0.364	-1.64	-3.17	-0.11	0.035	-0.49	-2.26	1.28	0.588
Mn	9.9	-1.20	-2.47	0.08	0.066	-0.70	-1.67	0.26	0.151	-0.06	-1.36	1.24	0.929	-0.45	-1.58	0.68	0.430	0.22	-0.57	1.00	0.590
Fe	162	-1.34	-2.92	0.24	0.096	-0.14	-1.45	1.17	0.834	-1.00	-3.05	1.06	0.341	-0.55	-1.52	0.42	0.265	0.20	-0.84	1.24	0.702
Co	0.043	-1.57	-3.01	-0.13	0.033	-0.46	-1.94	1.02	0.542	-1.52	-2.95	-0.10	0.036	1.43	-0.15	3.02	0.076	0.08	-1.53	1.69	0.923
Ni	1.9	-1.53	-2.59	-0.47	0.005	-1.11	-2.67	0.45	0.163	-0.72	-2.47	1.03	0.420	-0.07	-1.21	1.07	0.905	-0.55	-2.14	1.05	0.500
Cu	2.2	-2.10	-3.44	-0.76	0.002	-0.73	-2.16	0.70	0.318	-1.23	-3.17	0.72	0.215	0.04	-1.16	1.24	0.950	0.67	-0.80	2.14	0.374
Zn	29	-0.95	-2.17	0.27	0.127	-0.62	-1.88	0.65	0.338	-0.33	-2.45	1.80	0.763	-1.67	-3.13	-0.22	0.025	0.26	-0.76	1.28	0.617
As	1.9	0.09	-1.17	1.34	0.894	-0.78	-2.26	0.69	0.297	0.46	-1.27	2.19	0.603	0.46	-0.62	1.55	0.401	-0.48	-1.43	0.46	0.318
Se	0.98	-0.74	-1.87	0.39	0.199	0.22	-1.10	1.54	0.743	-1.29	-2.86	0.29	0.108	-0.16	-1.25	0.94	0.781	-0.36	-0.80	0.09	0.116
Rb	0.58	-0.04	-1.39	1.31	0.952	0.08	-0.81	0.97	0.854	-1.67	-3.26	-0.09	0.039	-0.36	-2.02	1.30	0.671	0.30	-0.71	1.31	0.555
Mo	0.67	-1.39	-3.08	0.31	0.108	0.16	-0.92	1.23	0.771	0.66	-0.47	1.80	0.253	0.03	-1.35	1.41	0.964	0.40	-0.44	1.24	0.350
Sb	0.60	-0.61	-1.96	0.75	0.380	-2.07	-3.91	-0.24	0.027	-1.17	-2.24	-0.10	0.032	-0.11	-1.22	1.01	0.853	-0.13	-1.22	0.95	0.809
Cs	0.28	-0.05	-1.95	1.84	0.955	0.79	-0.38	1.97	0.184	0.47	-0.12	1.07	0.118	-0.96	-1.92	0.00	0.049	-0.27	-1.45	0.90	0.648
Ba	0.56	-0.85	-1.68	-0.02	0.046	-0.31	-1.54	0.92	0.619	-0.95	-1.66	-0.24	0.009	1.87	1.05	2.68	0.000	0.33	-0.98	1.63	0.622
La	0.050	-1.35	-3.07	0.37	0.124	-0.20	-1.73	1.33	0.797	-1.43	-2.21	-0.64	0.000	0.91	0.28	1.53	0.004	-0.08	-1.15	1.00	0.891
Ce	0.041	-1.07	-2.69	0.55	0.197	-0.36	-1.79	1.07	0.622	-1.33	-2.20	-0.46	0.003	1.30	0.75	1.85	0.000	0.44	-0.76	1.63	0.472
Sm	0.002	-0.57	-1.79	0.65	0.360	-0.21	-1.68	1.25	0.775	-1.18	-2.25	-0.11	0.031	0.68	0.40	0.95	0.000	-0.24	-1.57	1.09	0.720
Hf	0.019	-0.15	-0.31	0.01	0.071	—				—				—				—			
W	0.18	-2.15	-3.98	-0.32	0.021	-0.98	-2.46	0.50	0.194	-0.03	-0.63	0.58	0.931	-0.43	-1.67	0.81	0.495	-0.20	-1.92	1.52	0.816
Pb	8.7	-0.12	-1.73	1.50	0.885	-1.75	-3.38	-0.12	0.036	-1.47	-2.43	-0.51	0.003	-1.09	-2.92	0.74	0.241	0.08	-1.48	1.64	0.921
Th	0.005	-0.11	-1.10	0.88	0.822	-0.35	-1.80	1.09	0.632	-1.79	-2.97	-0.60	0.003	0.65	0.39	0.90	0.000	0.33	-1.15	1.82	0.658

追加表(2)-3 大気汚染物質濃度の増加に伴う肺機能の変化(%) : 全期間統合

	IQR	最大呼気流量(PEF)(%)				1秒量(FEV1)(%)			
		変化量	95%CI		p値	変化量	95%CI		p値
質量濃度									
PM _{2.5}	10.0	-1.36	-1.93	-0.78	0.000	-1.64	-2.36	-0.93	0.000
OC	1.9	-0.90	-1.40	-0.40	0.000	-1.14	-1.76	-0.52	0.000
EC	0.58	-0.80	-1.27	-0.33	0.001	-1.07	-1.65	-0.49	0.000
イオン成分									
Cl ⁻	0.060	-0.04	-0.61	0.53	0.892	0.22	-0.50	0.95	0.542
NO ₃ ⁻	0.355	-0.34	-0.63	-0.05	0.021	-0.06	-0.42	0.30	0.743
SO ₄ ²⁻	3.9	-1.29	-1.88	-0.71	0.000	-1.82	-2.56	-1.09	0.000
Na ⁺	0.078	-0.12	-0.73	0.49	0.704	-0.13	-0.90	0.64	0.746
NH ₄ ⁺	1.5	-1.21	-1.77	-0.66	0.000	-1.65	-2.35	-0.95	0.000
K ⁺	0.117	-1.18	-1.74	-0.61	0.000	-1.37	-2.08	-0.67	0.000
Mg ²⁺	0.010	0.11	-0.42	0.65	0.682	0.26	-0.42	0.94	0.452
Ca ²⁺	0.026	-0.55	-0.95	-0.15	0.007	-0.09	-0.59	0.41	0.722
元素成分									
Na	59	-0.56	-1.06	-0.06	0.029	-0.60	-1.23	0.03	0.060
Al	24	-0.04	-0.23	0.15	0.693	0.41	0.18	0.64	0.001
K	98	-1.21	-1.73	-0.70	0.000	-1.26	-1.91	-0.61	0.000
Ca	25	0.32	-0.21	0.84	0.236	0.23	-0.46	0.93	0.507
Ti	2.3	-0.24	-0.53	0.05	0.102	0.44	0.08	0.80	0.016
V	5.3	-0.47	-1.00	0.06	0.085	-0.96	-1.64	-0.29	0.005
Cr	0.78	-0.88	-1.34	-0.41	0.000	-1.14	-1.72	-0.55	0.000
Mn	9.9	-0.73	-1.11	-0.35	0.000	-0.65	-1.13	-0.17	0.008
Fe	162	-0.75	-1.21	-0.29	0.001	-0.61	-1.19	-0.04	0.036
Co	0.043	-0.97	-1.47	-0.47	0.000	-0.77	-1.40	-0.14	0.016
Ni	1.9	-0.47	-0.95	0.00	0.051	-1.03	-1.63	-0.42	0.001
Cu	2.2	-0.93	-1.46	-0.40	0.001	-1.06	-1.73	-0.39	0.002
Zn	29	-0.77	-1.23	-0.32	0.001	-0.84	-1.41	-0.28	0.003
As	1.9	-0.43	-0.92	0.06	0.085	-0.59	-1.22	0.03	0.063
Se	0.98	-0.42	-0.79	-0.06	0.023	-0.59	-1.05	-0.13	0.013
Rb	0.58	-0.78	-1.26	-0.30	0.001	-0.53	-1.14	0.07	0.083
Mo	0.67	-0.12	-0.47	0.23	0.496	-0.10	-0.54	0.34	0.651
Sb	0.60	-0.89	-1.36	-0.43	0.000	-0.99	-1.58	-0.41	0.001
Cs	0.28	-0.20	-0.51	0.12	0.223	0.06	-0.31	0.44	0.740
Ba	0.56	-0.46	-0.77	-0.15	0.004	0.00	-0.39	0.39	0.995
La	0.050	-0.36	-0.75	0.03	0.071	-0.21	-0.70	0.28	0.405
Ce	0.041	-0.17	-0.45	0.11	0.225	0.36	0.02	0.71	0.040
Sm	0.002	-0.03	-0.21	0.15	0.742	0.37	0.15	0.59	0.001
Hf	0.019	-0.02	-0.15	0.11	0.808	-0.15	-0.31	0.01	0.071
W	0.18	-0.30	-0.73	0.13	0.170	-0.65	-1.19	-0.10	0.019
Pb	8.7	-0.92	-1.40	-0.45	0.000	-1.14	-1.74	-0.54	0.000
Th	0.005	-0.06	-0.29	0.17	0.615	0.46	0.17	0.75	0.002

追加表(2)-4 PMF解析により推定されたPM2.5の発生源因子の寄与濃度増加に伴う肺機能の変化(%):検査時期別

	2014年10-11月				2015年5-6月				2015年10-11月				2016年5-6月				2016年10-11月				
	IQR	変化量	95%信頼区間	p値	変化量	95%信頼区間	p値	変化量	95%信頼区間	p値	変化量	95%信頼区間	p値	変化量	95%信頼区間	p値	変化量	95%信頼区間	p値		
最大呼気流量(PEF)																					
半揮発性粒子	0.57	-1.00	-1.77	-0.22	0.012	-0.59	-1.10	-0.09	0.021	0.35	-0.75	1.45	0.531	-0.15	-0.69	0.39	0.589	-0.12	-0.63	0.39	0.650
ハイズ・工業系	3.98	-1.57	-3.03	-0.10	0.036	0.10	-0.64	0.84	0.793	-1.13	-2.45	0.18	0.092	-0.63	-1.68	0.42	0.241	-0.92	-1.95	0.12	0.082
硫酸塩(石炭系)	6.01	-0.27	-1.43	0.89	0.645	-0.71	-2.46	1.04	0.428	-1.07	-1.63	-0.52	0.000	0.33	-1.04	1.69	0.640	-0.17	-1.30	0.95	0.762
海塩・土壌	1.42	-0.89	-2.44	0.66	0.261	1.09	-0.17	2.34	0.089	-1.72	-2.92	-0.53	0.005	-1.39	-3.30	0.53	0.156	0.59	-0.21	1.39	0.146
重油燃焼	1.46	-0.48	-1.32	0.36	0.265	-0.51	-1.59	0.57	0.352	2.14	0.47	3.80	0.012	0.85	-0.57	2.27	0.242	-1.24	-2.83	0.35	0.125
道路交通	1.24	-1.70	-2.89	-0.51	0.005	0.24	-0.66	1.13	0.604	-0.57	-1.93	0.79	0.410	0.09	-0.83	1.00	0.854	-0.52	-1.27	0.24	0.179
1秒量(FEV1)																					
半揮発性粒子	0.57	-0.57	-1.49	0.35	0.227	-0.61	-1.31	0.08	0.084	1.05	-0.25	2.36	0.114	0.27	-0.40	0.95	0.424	0.46	-0.20	1.11	0.171
ハイズ・工業系	3.98	-0.86	-2.67	0.95	0.350	0.05	-0.94	1.05	0.914	-0.95	-2.60	0.69	0.255	-0.93	-2.25	0.40	0.169	-0.44	-1.75	0.87	0.512
硫酸塩(石炭系)	6.01	-0.25	-1.61	1.11	0.717	-0.09	-2.37	2.20	0.941	-1.38	-2.06	-0.71	0.000	0.41	-1.33	2.15	0.643	-1.59	-3.03	-0.14	0.032
海塩・土壌	1.42	-0.27	-2.15	1.61	0.778	1.39	-0.31	3.10	0.109	-2.17	-3.63	-0.71	0.004	0.21	-2.22	2.64	0.864	0.68	-0.36	1.71	0.200
重油燃焼	1.46	-1.46	-2.50	-0.43	0.006	-0.99	-2.46	0.47	0.184	2.98	0.99	4.97	0.003	0.27	-1.54	2.07	0.771	-0.83	-2.86	1.19	0.419
道路交通	1.24	-2.05	-3.46	-0.63	0.005	-0.86	-2.03	0.31	0.148	-0.17	-1.80	1.46	0.840	-0.87	-2.03	0.30	0.144	0.85	-0.12	1.82	0.085

追加表(2)-5 大気汚染物質濃度の増加に伴う最大呼気流量(PEF)の変化(%) : アレルギーの有無別

	IQR	アレルギーあり				アレルギーなし			
		変化量	95%信頼区間		p値	変化量	95%信頼区間		p値
連続測定									
PM _{2.5}	15.8	-1.63	-2.79	-0.48	0.006	-1.18	-1.87	-0.49	0.001
PM _{10-2.5}	6.4	-0.23	-0.76	0.30	0.394	0.08	-0.24	0.41	0.618
PM ₁₀	18.9	-1.02	-1.91	-0.14	0.023	-0.51	-1.05	0.02	0.060
OBC	0.379	-0.86	-1.82	0.11	0.082	-0.83	-1.40	-0.25	0.005
O ₃	13.1	-0.56	-1.54	0.41	0.257	-0.04	-0.64	0.56	0.895
NO ₂	5.08	-0.47	-1.50	0.56	0.375	-1.03	-1.65	-0.40	0.001
NO	0.57	0.16	-0.52	0.85	0.642	0.12	-0.29	0.54	0.556
SO ₂	0.004	0.00	-0.01	0.00	0.189	0.00	-0.01	0.00	0.006
24時間毎の捕集									
PM _{2.5}	10.0	-1.66	-2.75	-0.57	0.003	-1.15	-1.80	-0.50	0.001
OC	1.9	-1.35	-2.29	-0.41	0.005	-0.61	-1.18	-0.04	0.036
EC	0.58	-0.79	-1.68	0.10	0.081	-0.78	-1.32	-0.25	0.004
イオン成分									
Cl ⁻	0.060	0.25	-0.83	1.32	0.651	-0.17	-0.82	0.48	0.611
NO ₃ ⁻	0.355	-0.26	-0.81	0.29	0.354	-0.38	-0.71	-0.05	0.023
SO ₄ ²⁻	3.9	-1.28	-2.40	-0.16	0.025	-1.27	-1.94	-0.60	0.000
Na ⁺	0.078	0.27	-0.90	1.43	0.654	-0.35	-1.05	0.35	0.330
NH ₄ ⁺	1.5	-1.21	-2.27	-0.15	0.026	-1.19	-1.82	-0.55	0.000
K ⁺	0.117	-1.70	-2.78	-0.63	0.002	-0.87	-1.51	-0.22	0.008
Mg ²⁺	0.010	0.20	-0.82	1.22	0.701	0.07	-0.54	0.68	0.831
Ca ²⁺	0.026	-0.64	-1.40	0.12	0.098	-0.51	-0.97	-0.06	0.028
元素成分									
Na	59	-0.57	-1.52	0.39	0.244	-0.58	-1.15	0.00	0.049
Al	24	-0.26	-0.61	0.10	0.153	0.08	-0.13	0.30	0.453
K	98	-2.03	-3.02	-1.05	0.000	-0.75	-1.34	-0.15	0.014
Ca	25	0.09	-0.92	1.10	0.858	0.42	-0.17	1.02	0.160
Ti	2.3	-0.57	-1.11	-0.03	0.039	-0.06	-0.39	0.28	0.744
V	5.3	-0.44	-1.44	0.56	0.388	-0.43	-1.04	0.18	0.166
Cr	0.78	-1.26	-2.14	-0.37	0.006	-0.68	-1.21	-0.14	0.013
Mn	9.9	-0.95	-1.67	-0.24	0.009	-0.60	-1.04	-0.17	0.007
Fe	162	-0.70	-1.56	0.16	0.109	-0.77	-1.30	-0.25	0.004
Co	0.043	-1.34	-2.29	-0.39	0.006	-0.77	-1.34	-0.19	0.009
Ni	1.9	-0.43	-1.33	0.46	0.343	-0.47	-1.02	0.07	0.087
Cu	2.2	-1.01	-2.02	-0.01	0.048	-0.87	-1.48	-0.26	0.005
Zn	29	-0.81	-1.66	0.04	0.061	-0.75	-1.27	-0.23	0.005
As	1.9	-0.49	-1.42	0.44	0.298	-0.34	-0.90	0.22	0.235
Se	0.98	-0.36	-1.04	0.33	0.305	-0.45	-0.87	-0.04	0.033
Rb	0.58	-1.07	-1.98	-0.16	0.021	-0.61	-1.16	-0.06	0.028
Mo	0.67	-0.27	-0.93	0.39	0.422	-0.04	-0.44	0.36	0.861
Sb	0.60	-0.79	-1.67	0.09	0.077	-0.92	-1.45	-0.39	0.001
Cs	0.28	-0.33	-0.91	0.25	0.262	-0.17	-0.54	0.20	0.380
Ba	0.56	-0.84	-1.42	-0.26	0.005	-0.24	-0.59	0.11	0.183
La	0.050	-0.50	-1.24	0.24	0.185	-0.28	-0.73	0.17	0.220
Ce	0.041	-0.44	-0.96	0.09	0.102	-0.03	-0.35	0.29	0.861
Sm	0.002	-0.24	-0.58	0.09	0.158	0.09	-0.12	0.29	0.414
Hf	0.019	0.09	-0.16	0.33	0.486	-0.08	-0.23	0.07	0.295
W	0.18	-0.45	-1.26	0.36	0.279	-0.19	-0.68	0.31	0.456
Pb	8.7	-1.01	-1.90	-0.11	0.028	-0.87	-1.42	-0.33	0.002
Th	0.005	-0.32	-0.76	0.12	0.151	0.08	-0.19	0.35	0.543

追加表(2)-6 大気汚染物質濃度の増加に伴う1秒量(FEV1)の変化(%) : アレルギーの有無別

	IQR	アレルギーあり				アレルギーなし			
		変化量	95%信頼区間	p値		変化量	95%信頼区間	p値	
連続測定									
PM _{2.5}	15.8	-2.70	-4.06	-1.35	0.000	-0.68	-1.61	0.24	0.146
PM _{10-2.5}	6.4	0.13	-0.49	0.76	0.672	0.21	-0.21	0.63	0.326
PM ₁₀	18.9	-1.20	-2.24	-0.16	0.024	-0.13	-0.83	0.57	0.715
OBC	0.379	-1.44	-2.59	-0.30	0.014	-0.18	-0.95	0.58	0.638
O ₃	13.1	-1.09	-2.25	0.07	0.066	-0.51	-1.30	0.28	0.209
NO ₂	5.08	-2.08	-3.30	-0.86	0.001	-0.45	-1.29	0.38	0.285
NO	0.57	-0.29	-1.12	0.54	0.491	0.67	0.12	1.22	0.017
SO ₂	0.004	0.00	-0.01	0.00	0.152	0.00	-0.01	0.00	0.076
24時間毎の捕集									
PM _{2.5}	10.0	-3.34	-4.60	-2.09	0.000	-0.53	-1.41	0.35	0.238
OC	1.9	-2.26	-3.33	-1.19	0.000	-0.34	-1.10	0.42	0.380
EC	0.58	-2.11	-3.14	-1.08	0.000	-0.36	-1.07	0.35	0.320
イオン成分									
Cl ⁻	0.060	0.36	-0.92	1.65	0.582	0.15	-0.72	1.02	0.735
NO ₃ ⁻	0.355	-0.21	-0.86	0.45	0.536	0.05	-0.38	0.48	0.810
SO ₄ ²⁻	3.9	-3.39	-4.70	-2.09	0.000	-0.80	-1.71	0.10	0.081
Na ⁺	0.078	-0.62	-2.01	0.77	0.379	0.11	-0.81	1.04	0.813
NH ₄ ⁺	1.5	-3.08	-4.31	-1.85	0.000	-0.71	-1.56	0.15	0.104
K ⁺	0.117	-2.59	-3.85	-1.34	0.000	-0.61	-1.46	0.25	0.166
Mg ²⁺	0.010	-0.30	-1.52	0.93	0.635	0.58	-0.24	1.39	0.165
Ca ²⁺	0.026	-0.82	-1.71	0.08	0.074	0.34	-0.27	0.95	0.270
元素成分									
Na	59	-1.08	-2.21	0.06	0.064	-0.40	-1.16	0.36	0.303
Al	24	0.30	-0.13	0.73	0.166	0.46	0.18	0.74	0.001
K	98	-2.32	-3.47	-1.17	0.000	-0.60	-1.40	0.20	0.141
Ca	25	-0.50	-1.76	0.76	0.435	0.60	-0.22	1.42	0.152
Ti	2.3	0.23	-0.42	0.88	0.485	0.56	0.13	0.99	0.010
V	5.3	-1.97	-3.16	-0.79	0.001	-0.22	-1.04	0.60	0.604
Cr	0.78	-2.27	-3.32	-1.22	0.000	-0.39	-1.10	0.32	0.276
Mn	9.9	-1.32	-2.17	-0.47	0.002	-0.22	-0.79	0.36	0.466
Fe	162	-1.41	-2.43	-0.39	0.007	-0.11	-0.80	0.59	0.760
Co	0.043	-2.12	-3.26	-0.99	0.000	0.01	-0.75	0.77	0.975
Ni	1.9	-1.89	-2.95	-0.83	0.000	-0.39	-1.13	0.34	0.295
Cu	2.2	-2.38	-3.56	-1.19	0.000	-0.19	-1.00	0.63	0.654
Zn	29	-1.76	-2.77	-0.75	0.001	-0.25	-0.93	0.44	0.483
As	1.9	-1.54	-2.65	-0.43	0.006	0.04	-0.72	0.80	0.922
Se	0.98	-1.46	-2.26	-0.66	0.000	0.01	-0.56	0.58	0.972
Rb	0.58	-0.74	-1.82	0.34	0.179	-0.43	-1.16	0.30	0.246
Mo	0.67	-0.87	-1.67	-0.07	0.034	0.37	-0.15	0.90	0.163
Sb	0.60	-1.60	-2.65	-0.56	0.003	-0.55	-1.25	0.16	0.127
Cs	0.28	-0.06	-0.73	0.62	0.872	0.16	-0.31	0.62	0.503
Ba	0.56	-0.40	-1.09	0.28	0.250	0.25	-0.22	0.72	0.304
La	0.050	-0.99	-1.87	-0.11	0.028	0.31	-0.29	0.91	0.309
Ce	0.041	0.05	-0.58	0.68	0.875	0.55	0.13	0.96	0.010
Sm	0.002	0.26	-0.15	0.66	0.209	0.43	0.17	0.70	0.001
Hf	0.019	-0.09	-0.36	0.19	0.542	-0.19	-0.39	0.01	0.068
W	0.18	-1.18	-2.14	-0.23	0.015	-0.26	-0.93	0.41	0.443
Pb	8.7	-1.75	-2.81	-0.69	0.001	-0.76	-1.49	-0.03	0.042
Th	0.005	0.33	-0.20	0.86	0.223	0.52	0.18	0.87	0.003

追加表(2)-7 PMF解析により推定されたPM2.5の発生源因子の寄与濃度増加に伴う肺機能の変化(%)
アレルギーの有無別

	IQR	アレルギーあり				アレルギーなし			
		変化量	95%信頼区間		p値	変化量	95%信頼区間		p値
最大呼気流量(PEF)									
半揮発性粒子	0.57	-0.26	-0.77	0.25	0.317	-0.38	-0.69	-0.07	0.015
バイオマス・工業系	3.98	-1.17	-2.18	-0.16	0.023	-0.80	-1.41	-0.19	0.011
硫酸塩(石炭系)	6.01	-0.89	-1.88	0.10	0.078	-0.85	-1.45	-0.26	0.005
海塩・土壌	1.42	0.08	-1.07	1.22	0.896	-0.05	-0.74	0.63	0.877
重油燃烧	1.46	-0.30	-1.15	0.56	0.493	-0.21	-0.73	0.32	0.441
道路交通	1.24	-0.64	-1.47	0.20	0.134	-0.52	-1.03	-0.02	0.043
1秒量(FEV1)									
半揮発性粒子	0.57	-0.16	-0.77	0.45	0.604	0.03	-0.37	0.43	0.881
硫酸塩(石炭系)	3.98	-2.04	-3.23	-0.85	0.001	-0.11	-0.93	0.70	0.787
硫酸塩(石炭系)	6.01	-2.39	-3.55	-1.23	0.000	-0.69	-1.49	0.12	0.094
海塩・土壌	1.42	-0.11	-1.48	1.26	0.875	0.21	-0.70	1.13	0.649
重油燃烧	1.46	-1.32	-2.34	-0.30	0.011	-0.19	-0.89	0.52	0.599
道路交通	1.24	-1.35	-2.34	-0.36	0.007	-0.26	-0.93	0.41	0.446

追加表(2)-8 大気汚染物質濃度の増加に伴う呼気中一酸化窒素濃度(FeNO)の変化(%) : 全期間統合

		FeNO (%)				
	IQR	変化量	95%CI	p値		
質量濃度						
PM _{2.5}	10.0	-2.35	-5.94	1.24	0.199	
OC	1.9	-2.02	-4.81	0.77	0.156	
EC	0.58	-1.68	-4.70	1.34	0.276	
イオン成分						
Cl ⁻	0.060	0.36	-7.75	8.46	0.931	
NO ₃ ⁻	0.355	-1.61	-4.38	1.16	0.254	
SO ₄ ²⁻	3.9	-2.22	-7.32	2.87	0.392	
Na ⁺	0.078	-0.23	-3.59	3.12	0.891	
NH ₄ ⁺	1.5	-2.14	-6.87	2.59	0.375	
K ⁺	0.117	-3.59	-8.41	1.23	0.144	
Mg ²⁺	0.010	-1.40	-5.15	2.34	0.462	
Ca ²⁺	0.026	0.24	-2.68	3.17	0.870	
元素成分						
Na	59	-0.56	-3.08	1.97	0.664	
Al	24	-1.10	-3.09	0.88	0.275	
K	98	-2.84	-6.74	1.05	0.152	
Ca	25	-0.92	-8.75	6.91	0.817	
Ti	2.3	-1.71	-4.10	0.68	0.160	
V	5.3	-1.77	-6.65	3.11	0.476	
Cr	0.78	-1.40	-4.23	1.42	0.329	
Mn	9.9	-1.80	-4.57	0.96	0.201	
Fe	162	-1.92	-5.15	1.31	0.243	
Co	0.043	-1.76	-4.43	0.90	0.193	
Ni	1.9	-2.02	-5.89	1.85	0.306	
Cu	2.2	-2.04	-5.39	1.32	0.234	
Zn	29	-1.58	-3.94	0.78	0.189	
As	1.9	-1.72	-5.82	2.39	0.412	
Se	0.98	-0.59	-4.20	3.02	0.748	
Rb	0.58	-3.00	-7.32	1.31	0.171	
Mo	0.67	-1.44	-5.74	2.86	0.511	
Sb	0.60	-1.95	-4.79	0.89	0.179	
Cs	0.28	-3.76	-9.72	2.21	0.216	
Ba	0.56	-1.50	-3.17	0.16	0.077	
La	0.050	-1.54	-4.62	1.54	0.327	
Ce	0.041	-1.38	-3.49	0.73	0.198	
Sm	0.002	-0.88	-2.60	0.84	0.316	
Hf	0.019	-0.03	-0.36	0.29	0.835	
W	0.18	-1.29	-3.93	1.35	0.337	
Pb	8.7	-2.41	-5.68	0.87	0.149	
Th	0.005	-1.21	-3.33	0.91	0.263	

An Epidemiological Study on Effects of Fine Particulate Matter (PM_{2.5}) and Ozone on Respiratory Health in Areas with Different Air Pollution Levels

Principal Investigator: Masayuki SHIMA

Institution: Hyogo College of Medicine
 1-1 Mukogawa-cho, Nishinomiya, Hyogo, 663-8501,
 JAPAN
 Tel: +81-798-45-6565 / Fax: +81-798-45-6567
 E-mail: shima-m@hyo-med.ac.jp

Cooperated by: National Institute of Technology, Yuge College
 Hyogo Prefectural Institute of Environmental Sciences

[Abstract]

Key Words: Fine particulate matter, Chemical composition, Ozone, Asthma attacks, Pulmonary function, Positive Matrix Factorization (PMF) analysis, Chemical transport model, Epidemiology

In order to evaluate the effects of fine particulate matter (PM_{2.5}) and ozone on respiratory health, epidemiological studies were conducted in two regions located around the Seto Inland Sea.

In Himeji city, Hyogo, the weekly data of asthma attacks from 46 hospitals and clinics and the daily number of primary care visits were collected. The mass concentrations and chemical components of airborne PM_{2.5} were continuously measured at a central site in the city. The association between the average concentration of PM_{2.5} and weekly asthma attacks was significant in the subjects aged 15-64 years, and the relative risk was 1.05 [95% confidence interval (CI): 1.01, 1.09] for the interquartile range (IQR; 5.2 µg/m³) increment. The concentrations of water soluble organic carbon and particle acidity were significantly associated with weekly asthma attacks. These associations were marked in spring and summer. The associations of daily primary care visits for asthma with particle acidity and ozone were also significant.

In Yuge Island, Ehime, peak expiratory flow (PEF) and the forced expiratory volume in 1 second (FEV₁) were measured every morning among 48 healthy students, for about each one month in spring and autumn. The concentration of PM_{2.5} was continuously measured, and the chemical components of PM_{2.5} were analyzed every 24 hours at the school. PEF and FEV₁ were significantly decreased in relation to the increase of PM_{2.5} concentrations (-1.37% [95%CI: -1.98, -0.76] and -1.50% [95%CI: -2.27, -0.74], respectively, for an IQR (15.8 µg/m³) increment). The decreases were also significantly associated with various components of PM_{2.5}, including carbon and sulfate ion. In

addition, pulmonary function were associated with sulfate suggesting transboundary advection, estimated by the Positive Matrix Factorization (PMF) analyses. Subjects with a history of allergic diseases showed a marked decrease in pulmonary function associated with air pollution.

The difference in atmospheric environment in the two regions was evaluated by the source sensitivity analysis using the chemical transport model (WRF/CMAQ). Among six factors estimated by the PMF, the contribution of Sulfate (coal) suggesting the influence of transboundary advection was the highest, accounting for 40% in both regions. The contribution of East Asian anthropogenic sources was about the same (40%) in both regions by WRF/CMAQ. The contribution of ship was higher in Yuge than in Himeji.

In conclusion, this study reveals that increases of PM_{2.5} and ozone may affect respiratory health. Subjects with asthma or allergic diseases are considered to be more susceptible to air pollution.