

Environment Research and Technology Development Fund

環境研究総合推進費 終了研究成果報告書

5-1951 多環芳香族炭化水素類を含む粒子状物質が関与する新しい慢性咳嗽
疾患に関する環境疫学的研究

(5-1951)

令和元年度～令和3年度

**Environmental Epidemiologic Study Regarding the New Chronic Cough Produced by Particulate Matters
Including Polycyclic Aromatic Hydrocarbons**

<研究代表機関>

金沢大学

<研究分担機関>

国立病院機構 福岡病院

金沢大学

国立研究開発法人 国立環境研究所

<研究協力機関>

岡山理科大学

長崎大学

国立病院機構相模原病院

国立病院機構七尾病院

○図表番号の付番方法について

「Ⅰ. 成果の概要」の図表番号は「0. 通し番号」としております。なお、「Ⅱ. 成果の詳細」にて使用した図表を転用する場合には、転用元と同じ番号を付番しております。

「Ⅱ. 成果の詳細」の図表番号は「サブテーマ番号. 通し番号」としております。なお、異なるサブテーマから図表を転用する場合は、転用元と同じ図表番号としております。

令和4年5月

目次

I. 成果の概要	・・・・・・・・・・	1
1. はじめに（研究背景等）		
2. 研究開発目的		
3. 研究目標		
4. 研究開発内容		
5. 研究成果		
5-1. 成果の概要		
5-2. 環境政策等への貢献		
5-3. 研究目標の達成状況		
6. 研究成果の発表状況		
6-1. 査読付き論文		
6-2. 知的財産権		
6-3. その他発表件数		
7. 国際共同研究等の状況		
8. 研究者略歴		
II. 成果の詳細		
II-1 能登半島と金沢における環境疫学研究 （金沢大学）	・・・・・・・・・・	8
要旨		
1. 研究開発目的		
2. 研究目標		
3. 研究開発内容		
4. 結果及び考察		
5. 研究目標の達成状況		
6. 引用文献		
II-2 長崎福江と福岡における環境疫学研究 （独立行政法人国立病院機構福岡病院）	・・・・・・・・・・	25
要旨		
1. 研究開発目的		
2. 研究目標		
3. 研究開発内容		
4. 結果及び考察		
5. 研究目標の達成状況		
6. 引用文献		

II-3 能登半島と金沢における物理・化学解析研究 (金沢大学 環日本海域環境研究センター)	38
要旨	
1. 研究開発目的	
2. 研究目標	
3. 研究開発内容	
4. 結果及び考察	
5. 研究目標の達成状況	
6. 引用文献	
II-4 長崎福江と福岡における物理・化学解析研究 (国立研究開発法人国立環境研究所)	53
要旨	
1. 研究開発目的	
2. 研究目標	
3. 研究開発内容	
4. 結果及び考察	
5. 研究目標の達成状況	
6. 引用文献	
III. 研究成果の発表状況の詳細	66
IV. 英文Abstract	79

I. 成果の概要

課題名 5-1951 多環芳香族炭化水素類を含む粒子状物質が関与する新しい慢性咳嗽疾患に関する環境疫学的研究

課題代表者名 中村 裕之 (金沢大学医薬保健研究域医学系 衛生学・公衆衛生学 教授)

重点課題 主：【重点課題14】化学物質等の包括的なリスク評価・管理の推進に係る研究

副：【重点課題15】大気・水・土壌等の環境管理・改善のための対策技術の高度化及び評価・解明に関する研究

行政要請研究テーマ (行政ニーズ) (5-10) 子どもへの新規化学物質に関する分析方法等の健康影響検出に係る先進的研究

研究実施期間 令和元年度～令和3年度

研究経費

103,662千円 (合計額)

(各年度の内訳：令和元年度：35,802千円、令和2年度：33,930千円、令和3年度：33,930千円)

研究体制

(サブテーマ1) 能登半島と金沢における環境疫学研究 (金沢大学)

(サブテーマ2) 長崎福江と福岡における環境疫学研究 (独立行政法人国立病院機構 福岡病院)

(サブテーマ3) 能登半島と金沢における物理・化学解析研究 (金沢大学)

(サブテーマ4) 長崎福江と福岡における物理・化学解析研究(国立研究開発法人国立環境研究所)

研究協力機関

岡山理科大学、長崎大学、国立病院機構相模原病院

本研究のキーワード 疫学、多環芳香族炭化水素類、粒子状物質、慢性咳嗽疾患、気管支喘息、化学物質影響、大気環境

1. はじめに (研究背景等)

わが国を含め、東アジアにおいて気管支喘息などの呼吸器疾患の昨今の増加は、粒子状物質 (PM) などに含まれる多環芳香族炭化水素 (Polycyclic Aromatic Hydrocarbon, PAH) 類や黄砂の増加と関連していることはよく知られているところである。一方、慢性咳嗽を呈する呼吸器疾患には、咳喘息、アトピー性咳嗽や副鼻腔気管支症候群など、典型的な気管支喘息とは発症機序が異なることから、新たな慢性咳嗽疾患であると考えられ、近年、急増していることから大きく注目されている。さらにはこの急増がPM含有有害物質によるものであるという可能性も指摘されている。特に小児期における曝露は、重篤な難治性の慢性咳嗽疾患につながることも想定されるため、大気環境中のPM成分の詳細な物理・化学的解析とそれによる新しい慢性咳嗽疾患に対する影響を調べることは環境医学上の喫緊の課題であり、場合によっては、健康弱者である小児に対する曝露を抑えるために大気環境基準の見直しも必要になるかもしれない。申請代表者らを含む金沢大学の研究チームは、都市部と非都市部ではPAH類がまっ

たく異なる組成を示すことを詳細な観測によって示してきた。さらには慢性咳嗽疾患の中でも非アトピー性の一群がPMとの関連で症状の増悪をきたすことも明らかにしてきた。しかしPM成分の何が関連疾患を誘発する本体かを明らかにすることはできていない。特にPM成分による慢性咳嗽疾患の病態を明らかにするために必要な小児と成人の相違を明らかにする試みもこれまでまったくない。そこで本研究は、中国からPAH類と黄砂が飛来する金沢・能登半島と福岡・福江島の異なる地域で両者の発生と輸送を広域的に解析し、さらに、これらの地域における小児および成人においてPM成分による新たな慢性咳嗽疾患の症状増悪と発症を従来型の喘息との比較によって、疫学的に解析する。

2. 研究開発目的

わが国では自動車や工場から発生するPAH類やPMに加えて、中国から石炭暖房由来のPAH類や自然由来の黄砂も越境輸送されて、PMの成分は場所と時期によって大きく異なる。一方、気管支喘息症には従来型のアトピー性である典型的な喘息と、非アトピー性の喘息に分けられることが最近、知られるようになり、同時に咳喘息、アトピー性咳嗽や副鼻腔気管支症候群などが慢性咳嗽疾患として注目されるとともに、非アトピー性喘息とともにPMなどの大気汚染物質との関連が指摘されている。研究代表者らは、これまで金沢の病院疫学において非アトピー性喘息の症状増悪がPM濃度の上昇と相関することを明らかにした。そこで本研究では、PM成分と新しい慢性咳嗽疾患との関係を明らかにするためにPM成分の物理化学観測と疫学調査とを組み合わせ、国内及び越境輸送されるPAH類と黄砂の動態を広域的に解析するとともに、新しい慢性咳嗽疾患を中心に小児および成人を対象に疫学研究を実施する。すなわち、①金沢大学と国立環境研究所がそれぞれ長年にわたって越境輸送PM動態研究に実績を有する能登半島と福江島（非都市部）を越境輸送観測拠点と、②この拠点に近い地元由来PAH類、PMもあり、金沢大学と国立福岡病院が呼吸器系疾患調査研究に実績を有する金沢市と福岡市（都市部）においてPMを同時継続捕集し、PAH類と黄砂に焦点を合わせた詳細な物理化学的分析を行い、小児および成人を対象に疫学研究を実施する。これらの疫学研究結果から、小児および成人における、これら越境輸送、地元由来PM成分と新しい慢性咳嗽疾患との因果関係を明らかにする。その際、因果関係が認められた場合、特に健康弱者である小児において慢性咳嗽疾患の難治化を予防するためにPM成分における大気環境基準の見直しを提言する。

3. 研究目標

全体目標	能登半島（志賀町）と金沢および福江島と福岡において、PAH類と黄砂などの越境輸送の広域動態解析を実施し、非アトピー性喘息、咳喘息、アトピー性咳嗽である新しい慢性咳嗽疾患とPM成分との因果関係を明らかにする。そのため、黄砂飛来期を含む季節毎にPMを連続捕集する。一方、金沢市と能登半島（計100人）、福江島と福岡市（計150人）に対する子供および成人に対する慢性咳嗽疾患の発症・症状増悪に関する環境疫学をPAHを中心に実施する。同時に気象データを合わせて発生源と輸送を解析し、PAH類と黄砂別に東アジアのPM動態予測シミュレーション式を誘導する。最終的にPAHを中心とした環境基準に言及する。
サブテーマ1	能登半島と金沢における環境疫学研究
サブテーマリーダー/所属機関	中村 裕之/金沢大学

目標	<p>①金沢市および石川県志賀町（能登半島）の病院において気管支喘息、咳喘息、アトピー性咳嗽患者を有する外来患者(小児および成人、計100人)をリクルートし、2019年12月から5月および7-8月と翌年の同時期における毎日の呼吸器症状(咳、喘鳴、呼吸困難)と鼻症状(鼻水など)を記録</p> <p>②同地域における同時期のPM成分、特にPAHのモニタリング</p> <p>③2018年と2019年度、および2020年と2021年度に分けて大気中化学物質と症状との量反応関係を解析</p>
----	---

サブテーマ2	長崎福江と福岡における環境疫学研究
サブテーマリーダー/所属機関	小田嶋 博/福岡病院
目標	<p>① 長崎県福江市と福岡県福岡市でそれぞれ、長崎県立五島中央病院、国立病院機構福岡病院の外来患者を中心にそれぞれ50例、100例を目標として、2019年12月から2020年5月また7月から8月に、更に2020年12月から2021年8月まで、気管支喘息患者および咳を主訴とする患者に呼吸器及びその他の症状とピークフローメーター（PEF）を毎日記載してもらい。また、薬剤を投与されている者にはその服用経過を記載してもらい。今年度は新型コロナウイルス流行で、患者協力度が例年とは異なったため、その影響を考慮し、2020年度は患者確保は早い時期（9月を予定）から実施する。また、背景因子としての病歴、合併症、基礎的検査などを行い患者の特性を整理する。</p> <p>② 患者の特性や傾向に関しては、過去のデータまた、背景因子の分析を行い、診断名、合併症、アレルギー素因の程度、呼吸機能の程度、コンプライアンスの問題などを評価の際に考慮する参考とする。</p> <p>③ サブテーマの結果とともに分析していただくために、上記データのデータクレンジングなどの準備をする。</p>

サブテーマ3	能登半島と金沢における物理・化学解析研究
サブテーマリーダー/所属機関	早川 和一/金沢大学
目標	<p>① 能登半島（輪島観測所）で2019年12月から2020年5月及び7～8月にPM_{2.5}とPM_{2.5-10}を分別毎日捕集。金沢市（サブテーマ1担当）、長崎県福江島（サブテーマ4担当）及び福岡県福岡市（サブテーマ2担当）でも同期捕集。金沢市郊外（参考地点）で捕集した過去の試料も併せて、PM_{2.5}とPM_{2.5-10}の捕集量を秤量。</p> <p>② 上記試料について、9種PAH類をHPLC-蛍光検出法で定量。7種ニトロPAH（NPAH）類、16種PAH水酸化体（OHPAH）類、32種PAHキノン体（QPAH）についても、必要に応じてそれぞれ開発した分析法：HPLC-自動還元/化学発光検出法、LC-質量分析（MS）法、GC-MS/MSで定量。</p> <p>③ ピレン（Pyr）と1-ニトロピレン（1-NP）の濃度組成から発生源の寄与を解析できる新規NP法を用いて、①の試料について、自動車と石炭燃焼の寄与を計算。</p> <p>④ 気象データを合わせて、PMやPAH類の発生源シミュレーションモデルを構築。</p> <p>⑤ 以上の結果をサブテーマ1の症状との量反応解析に提供。</p>

サブテーマ4	長崎福江と福岡における物理・化学解析研究
サブテーマリーダー/所属機関	高見 昭憲/（国研）国立環境研究所
目標	<p>① 2019年12月から2020年5月までの期間、及び、夏季の2週間程度の期間において、PM_{2.5}などの粒子状物質を毎日ハイボリュームサンプラーで捕集する。場所は、長崎県福江島、及び、福岡県福岡市で行い、他のサブテーマと協力して実施する。</p> <p>② 長崎福江島、福岡県福岡市において、2019年12月から2020年5月までの期間、ラ</p>

	<p>イダーによる上空の粒子の相対濃度、ガス状物質（オゾン）、粒子状物質の化学組成（SO₄、NO₃、有機物）の連続観測を行う。</p> <p>③ 気象データなどと合わせて、越境大気汚染の経年変化、高濃度時における後方流跡線解析による気塊の飛来経路を明らかにする。</p> <p>④ 以上の結果をサブテーマ1、2などの症状との量反応解析に提供する。またサブテーマ3のPMやPAH類の発生源シミュレーションモデルを構築のために提供する。</p>
--	--

4. 研究開発内容

大気中化学物質の物理化学的性状と患者の症状との関連を調べる目的で2020年3月1日から2021年3月31日まで毎日、下記の方法にて大気中化学物質をモニタリングした。総浮遊粒子状物質（TSP）を含むサンプルは、金沢（都市部、石川県金沢市金沢大学医学類）、能登（田舎、石川県輪島市）、福岡（都市部、福岡県福岡市国立福岡病院）と福江（田舎、長崎県福江市五島中央病院）で採取した。

大気汚染物質としては、TSP、PM_{2.5}、SO₂、NO₂、黄砂、イオン物質以外にPAH類である4～6環のフルオランテンFluoranthene, Frt)、ピレン(Pyrene, Pyr)、ベンゾ[a]アントラセン(Benzo[a]anthracene, BaA)、クリセン(Chrysene, Chr)、ベンゾ[a]フルオランテン(Benz[a]fluoranthene, BaF)、ベンゾ[b]フルオランテン(Benzo[b]fluoranthene, BbF)、ベンゾ[k]フルオランテン(Benzo[k]fluoranthene, BkF)、ベンゾ[a]ピレン(Benzo[a]pyrene, BaP)、ベンゾ[ghi]ペリレン(Benzo[ghi]perylene, BgPe)、ジベンツ[ah]アントラセン(Dibenz[ah]anthracene, DA)、インデノ[1,2,3-cd]ピレン(Indeno[1,2,3-cd]pyrene, IDP)の10種類、NPAH類として1,3-ジニトロピレン(1,3-Dinitropyrene, 1,3-NDP)、9-ニトロアントラセン(9-Nitroanthracene, 9-NA)、1-ニトロピレン(1-Nitropyrene, 1-NP)などの10種類、OHPAH類である1-水酸化ナフタレン(1-OHNap)、2-水酸化ナフタレン(2-OHNap)などの16種類、QPAH類である1,2-ナフトキノン(1,2-NQ)、1,4-ナフトキノン(1,4-NQ)、2-メチル-1,4-ナフトキノン(MNQ)などの32種類を測定した。これら成分の大気中濃度を追跡するとともに、新規に開発した発生源開発法を用いて、これら成分の発生源(自動車及び石炭燃焼など)の寄与についても解析した。また国内及び越境輸送されるPAHと黄砂の動態を広域的に解析した。

一方、疫学の遂行のために、金沢大学附属病院などの石川県の医療機関に外来受診している咳喘息、アトピー性咳嗽あるいは気管支喘息の慢性咳嗽(8週間以上の持続する咳)を呈する患者59人(平均年齢±標準偏差、55.3±13.82、男17人、女42人)と国立福岡病院に外来受診している気管支喘息の慢性咳嗽を有する患者39人(平均年齢±標準偏差、13.1±11.4、男22人、女17人)を対象とした。以上の大気汚染物質のモニタリングおよび患者の症状の追跡データをもとに慢性咳嗽の発症および症状悪化因子としてのPM、特にPAH類成分を一般化推定方程式(GER)を用いて同定する。

5. 研究成果

5-1. 成果の概要

金沢および福岡の慢性咳嗽患者における疫学を実施し、TSPとPAH濃度と咳の頻度との関係をlag0-4のGEEモデルにおいて解析したところ、BaP/BghiPとIcdP/(IcdP+BghiP)が咳の頻度と有意な負の相関を示し、ベンゾ[a]アントラセン(BaA)およびピレン(Pyr)が有意なあるいはその傾向を示す正の相関を認めた。このことは、ローカルな交通車両由来のPAHが咳の発症と関係することが示唆された一方、福岡ではIcdP/(IcdP+BghiP)の回帰係数(負)が大きかったことから、福岡では大陸での石炭燃焼由来のPAHが一部、原因と考えられた。この場合、福岡の黄砂期の長距離輸送ルートは、中国環渤海経済圏と長江デルタに由来すると推定された。さらにPyrと1-NP及び燃焼由来粉塵(P_c)濃度の季節変化はわが国の4地点(金沢、能登、福岡、福江)に共通する季節的な気象要因

に依存するが、毎日の発生源状況や気象条件に伴う気流ルートの影響を受けるという違いがあり、慢性咳嗽疾患の増悪に影響する環境因子に関する重要な事実であると考えられた。またイオン、PAHの一部は患者のピークフロー値および咳との間に関連が認められた。

特定なPAHの関与では特にBaAやPyrをはじめとするPAHが咳への影響を有する可能性があることを示した本結果は、PAHと慢性咳嗽との関係についてはPAHの一部が慢性咳嗽の危険因子の可能性があり、慢性咳嗽に対する医学的な予防の観点からは、PAHに対する環境基準を設定する必要があることを示唆する結果であった。また大陸からの影響もあるため、輸送ルートを考慮した予防法の確立も急がれる。

5-2. 環境政策等への貢献

金沢および福岡の慢性咳嗽患者における疫学を実施し、PAHの一部であるベンズ[a]アントラセン (BaA) およびピレン (Pyr) が有意なあるいはその傾向を示す正の相関を認めた。このことは、ローカルな交通車両由来のPAHが咳の発症と関係することが示唆された。また福岡では大陸での石炭燃焼由来のPAHが一部、原因と考えられた。PAHと慢性咳嗽との関係を示す本結果はPAHの一部が慢性咳嗽の危険因子の可能性があり、慢性咳嗽に対する医学的な予防の観点からは、PAHに対する環境基準を設定する必要があることを示唆する。また、黄砂の飛来は必ずしもPAHやNPAH類の上昇を伴うものではなく、両者の発生地域の違いがその後の輸送送致の違いを生ずる。このように大陸からの影響もあるため、PM_{2.5}やPM₁₀といった現行の粒子の大きさだけに基づいた大気基準の改善と共に、その成分毎に異なる輸送ルートを考慮した予防法の確立も急がれる。春季の大気汚染物質の輸送に関しては国内の火山噴火による硫酸イオン濃度上昇以外は、主に中国や韓国を経由して輸送されている。

また、子どもにおいてPAHなどの大気汚染物質が咳の症状と肺機能への影響を認め、これに対してマスクの着用は予防的効果がある可能性が認められたことから、PAH濃度の高い時にはマスクの使用を薦めることは意味のある可能性がみられ、環境政策上示唆のある結果であると考えられた。

<行政等が既に活用した成果>

今のところ、特にないが、上述の如くにPAHに対する環境基準の設定についての環境政策上の提言を行いたい。

<行政等が活用することが見込まれる成果>

- 1) PAHと慢性咳嗽との関係を示す本結果はPAHの一部が慢性咳嗽の危険因子の可能性があり、慢性咳嗽に対する医学的な予防の観点からは、PAHに対する環境基準の設定についての環境政策上の提言を行う。
- 2) 慢性咳嗽患者に対してはPAH濃度の高い時にはマスクの使用を薦める。

5-3. 研究目標の達成状況

能登半島（志賀町）と金沢および福江島と福岡において、PAH類と黄砂などの越境輸送の広域動態解析を実施し、非アトピー性喘息、咳喘息、アトピー性咳嗽である新しい慢性咳嗽疾患とPM成分との因果関係を明らかにするため、黄砂飛来期を含む季節毎にPMを連続捕集し、PAH類を中心としたPM成分の物理化学的観測を実施した。一方、金沢市と能登半島、福江島と福岡市に対する子供および成人（計98人）に対する慢性咳嗽疾患の発症・症状増悪に関する環境疫学をPAHを中心に実施した。その結果、慢性咳嗽疾患における発症および症状悪化因子としてのPM、特にPAH類成分とし

て、ベンズ[a]アントラセン (BaA) およびピレン (Pyr) を同定することができた。PAH類と黄砂別に東アジアのPM動態予測シミュレーション式を誘導し、気象データを合わせて発生源と輸送を解析し、黄砂の飛来は必ずしもPAHやNPAH類の上昇を伴うものではなく、両者の発生地域の違いがその後の輸送送致の違いを生ずることが明らかにされた。

このようにPM_{2.5}やPM₁₀といった現行の粒子の大きさだけに基づいた大気基準の改善と共に、その成分毎に異なる輸送ルートを考慮した予防法の確立の必要性が提唱された。同時に黄砂等の長距離輸送との違いを含め、疫学的結果をもとに、慢性咳嗽疾患の難治化を予防するための方策を大気環境基準の見直しとして提言することができたことから、研究目標は達成できたと考えられる。

6. 研究成果の発表状況

6-1. 査読付き論文

<件数>

30件

<主な査読付き論文>

- 1) I. UNO, Z. WANG, S. ITAHASHI, K. YUMIMOTO, Y. YAMAMURA, A. YOSHINO, A. TAKAMI, M. HAYASHI, M. HAYASAKI, and B-G. KIM: Scientific Reports, 10, 6450 (2020)
Paradigm shift in aerosol chemical composition over regions downwind of China.
- 2) 吉野彩子、高見昭憲：大気環境学会誌, 55(6), 248-251 (2020)
長崎福江島における大気質観測—COVID-19による越境大気汚染への影響—
- 3) A. YOSHINO, A. TAKAMI, K. HARA, C. NISHITA-HARA, M. HAYASHI, and N. KANEYASU:
Atmosphere, 12, 431 (2021)
Contribution of Local and Transboundary Air Pollution to the Urban Air Quality of Fukuoka, Japan.

6-2. 知的財産権

- 1) 早川和一：株式会社島津製作所；「大気中の微粒子の発生源の特定方法」、国際特許出願 PCT/JP2019/019436、令和元年5月16日
WO 2020/217543 A1; 米国国内移行 2021年10月18日 US 62/838,078; 中国国内移行 2021年10月18日 CN 113711007 A

6-3. その他発表件数

査読付き論文に準ずる成果発表	30件
特に記載すべき事項はない	
その他誌上発表（査読なし）	1件
口頭発表（学会等）	86件
「国民との科学・技術対話」の実施	11件
マスコミ等への公表・報道等	4件
本研究に関連する受賞	3件

7. 国際共同研究等の状況

本研究の一部は、ドイツDusseldorf 大学 (IUF – Leibniz Research Institute for Environmental

Medicine) の Tamara Schikowski 教授との共同研究である。研究代表者である金沢大学の中村裕之教授と原章規准教授は「呼吸器疾患に関する大気汚染中の危険因子の日独比較研究」(国際共同研究計画名)の一部として、慢性咳嗽を含む気管支喘息に関する大気汚染中の危険因子を共同で行った。その際、大気汚染の影響を人種間で比較することを容易にするために、遺伝子で調整するという新しい手法を用い、サブテーマ1の成果に貢献した。その成果は、第3回日独予防医学シンポジウム(2021年3月ドイツ、Dusseldorf)、第4回日独予防医学シンポジウム(2022年2月、長崎市)において共同でWeb発表した。

8. 研究者略歴

研究代表者

中村 裕之 金沢大学大学院医学研究科修了、医学博士
現在、金沢大学医薬保健研究域医学系 教授

研究分担者

- 1) 原 章規 金沢大学大学院医学系研究科修了、医学博士
現在、金沢大学医薬保健研究域医学系 准教授
- 2) 小田嶋 博 信州大学医学部卒業、医学博士、日本呼吸器学会指導医、
日本アレルギー学会指導医、日本小児科学会指導医、
現在、国立病院機構福岡病院アレルギーセンター顧問
- 3) 松崎 寛司 九州大学医学部卒業、日本小児科学会指導医、日本アレルギー学会指導医、
現在、国立病院機構福岡病院小児科医長
- 4) 早川 和一 東京大学大学院薬学系研究科博士後期課程中退、
金沢大学医薬保健研究域薬学系教授、
現在、金沢大学名誉教授、同大学環日本海域環境研究センター連携研究員
- 5) 唐 寧 金沢大学自然科学研究科博士後期課程中退、
現在、金沢大学環日本海域環境研究センター准教授
- 6) 松木 篤 名古屋大学大学院環境学研究科博士後期課程修了、
現在、金沢大学環日本海域環境研究センター准教授
- 7) 猪股 弥生 名古屋大学大学院理学研究科博士後期課程修了、
一般財団法人日本環境衛生センター アジア大気汚染研究センター主任研究員、
現在、金沢大学環日本海域環境研究センター准教授
- 8) 本田 匡人 九州大学大学院生物資源環境科学府資源生物科学専攻博士後期課程修了、
New York State, Department of Health, Wadsworth研究所 Research Scientist、
現在、金沢大学環日本海域環境研究センター助教
- 9) 高見 昭憲 京都大学工学部卒業、英国オックスフォード大学大学院修了(D.Phil.)、
現在、国立環境研究所 地域環境保全領域 領域長
- 10) 佐藤 圭 東京工業大学理学部卒業、
東京工業大学大学院総合理工学研究科中退(博士(理学))、
現在、国立環境研究所 地域環境保全領域 室長
- 11) 清水 厚 京都大学理学部卒業、京都大学大学院理学研究科修了(博士(理学))、
現在、国立環境研究所 地域環境保全領域 主幹研究員
- 12) 吉野 彩子 東京都立大学院工学研究科修了(博士(工学))、
現在、国立環境研究所 地域環境保全領域 研究員

II. 成果の詳細

II-1 能登半島と金沢における環境疫学研究

国立大学法人金沢大学

医薬保健研究域医学系 中村 裕之

医薬保健研究域医学系 原 章規

<研究協力者>

国立大学法人金沢大学

医薬保健研究域医学系 鈴木 啓太 (令和3年度)

医薬保健研究域医学系 Kim Oanh Phạm (令和2年～3年度)

医薬保健研究域医学系 趙 嘉業 (令和3年度)

独立行政法人国立病院機構 七尾病院 藤村 政樹

[要旨]

わが国では自動車や工場から発生する多環芳香族炭化水素類(PAH)や粒子状物質(PM)に加えて、中国から石炭暖房由来のPAH類や自然由来の黄砂も越境輸送されて、PMの成分は場所と時期によって大きく異なる。一方、気管支喘息症には従来型のアトピー性である典型的な喘息と、非アトピー性の喘息に分けられることが最近、知られるようになり、同時に咳喘息、アトピー性咳嗽や副鼻腔気管支症候群などが慢性咳嗽疾患として注目されるとともに、非アトピー性喘息とともにPMなどの大気汚染物質との関連が指摘されている。そこで本研究では、PM成分と新しい慢性咳嗽疾患との関係を明らかにするためにPAHを中心としたPM成分の物理化学観測と疫学調査とを組み合わせ、国内及び越境輸送されるPAHと黄砂の動態を広域的に解析するとともに、新しい慢性咳嗽疾患を中心に石川県および福岡県において小児および成人を対象に疫学研究を実施した。その結果、TSPとPAH濃度と咳の頻度との関係をlag0-4の一般化線形方程式(GEE)モデルにおいて解析したところ、BaP/BghiPとIcdP/(IcdP+BghiP)が咳の頻度と有意な負の相関を示し、ベンズ[a]アントラセン(BaA)およびピレン(Pyr)が有意なあるいはその傾向を示す正の相関を認めた。このことは、ローカルな交通車両由来のPAHが咳の発症と関係することが示唆された一方、福岡ではIcdP/(IcdP+BghiP)の回帰係数(負)が大きかったことから、福岡では大陸での石炭燃焼由来のPAHが一部、原因と考えられた。この場合、福岡の黄砂期の長距離輸送ルートは、中国環渤海経済圏と長江デルタに由来すると推定された。特にBaAやPyrをはじめとするPAH類が咳への影響を有する可能性があることを示した結果は、PAHと慢性咳嗽との関係についてはPAHの一部が慢性咳嗽の危険因子の可能性があり、慢性咳嗽に対する医学的な予防の観点からは、PAHに対する環境基準を設定する必要があることを示唆する結果であった。また大陸からの影響もあるため、輸送ルートを考慮した予防法の確立も急がれる。

1. 研究開発目的 1) 石川県においてPM成分と新しい慢性咳嗽疾患との関係を明らかにするためにPM成分、特にPAH類成分の物理化学観測を実施する。

2) 石川県の成人患者における咳日誌を元に、気管支喘息、咳喘息、アトピー性咳嗽の新しい慢性咳嗽疾患についての疫学研究を実施する。

3) 石川県およびサブテーマ2における福岡県の観測データおよび疫学データを総合的に解析し、PM成

分、特にPAH類成分と新しい慢性咳嗽疾患との関係を明らかにする。

- 4) 石川県における気管支喘息患者についての環境および遺伝要因の疫学的リスク解析を行う。
- 5) 国内及び越境輸送されるPAH類と黄砂の動態を広域的に解析することによって、以上の疫学データを用いた慢性咳嗽疾患の難治化を予防するための方策を提言する。

2. 研究目標

- ①金沢市および石川県志賀町（能登半島）の病院において気管支喘息、咳喘息、アトピー性咳嗽患者を有する外来患者(小児および成人、計100人)をリクルートし、2019年12月から5月および7-8月と翌年の同時期における毎日の呼吸器症状(咳、喘鳴、呼吸困難)と鼻症状(鼻水など)を記録
- ②同地域における同時期のPM成分、特にPAHのモニタリング
- ③2018年と2019年度、および2020年と2021年度に分けて大気中化学物質と症状との量反応関係を解析

3. 研究開発内容

1) 大気中化学物質のモニタリングと解析方法

(1) サンプリング

大気中化学物質の物理化学的性状と患者の症状との関連を調べる目的として、2020年3月1日から2021年3月31日まで毎日、下記の方法にて大気中化学物質をモニタリングした。TSPを含むサンプルは、金沢（都市部、石川県金沢市金沢大学医学類）、能登（田舎、石川県輪島市）、福岡（都市部、福岡県福岡市国立福岡病院）と福江（田舎、長崎県福江市五島中央病院）で採取した(図1-1)。両ビルの屋上には、TSPを採取するガラス繊維フィルターを装備した大容量エアサンプラー(HR-RW、柴田、創価製作所、1000L/min流量)で毎日収集した。フィルターをアルミニウム箔で覆い、サンプリングの前後で少なくとも24時間暗所のデシケーター内でバランスをとった。捕集PM_{2.5}の秤量後のフィルターを捕集域の1/4面積毎に分割した。分割域を更に細切してガラス容器に入れてから、内標準（重水素化PAHおよびNPAH類）を添加し、有機溶剤混液でPAHとNPAH類を有機相に抽出した。有機相を希水酸化ナトリウム水溶液、希硫酸水溶液及び蒸留水で順次洗浄し、残った有機相に微量のジメチルスルホキシドを添加後、減圧溜去した。残渣を少量のエタノールに再溶解してHPLC分析の試料溶液とした。

SS EPA 610 PAH Mix(米国スペルコ)中の9つのPAH、フルオランテン(Flt)、ピレン(Pyr)、ベンズ[a]アントラセン(BaA)、クリセン(Chr)、ベンゾ[b]フルオランテン(BbF)、ベンゾ[a]ピレン(BaP)、ベンゾ[ghi]ペリレン(BghiP)およびインデノ[1,2,3-cd]ピレン(IcdP)を、蛍光検出を備えた高速液体クロマトグラフィー(HPLC)を用いて定量した。

(2) 黄砂の観測

日本における黄砂（Asian dust, AD）イベントは、気象庁(JMA)が日本全国の11局のうち1か所以上に到着したと報告されたこと(http://www.data.jma.go.jp/gmd/env/kosahp/kosa_data_index.html)と、光検出と測距(LIDAR)連続データ(<https://www-lidar.nies.go.jp/AD-Net>)に基づいて決定された。LIDARは九州大学(北緯33.52度、東経130.48度)と富山県環境科学研究センター(北緯36.70度、東経137.10度)で福岡と金沢のLIDARを測定した。

(3) 後方軌道 (Backward trajectory) と天気図

6時間間隔での72時間の後方軌道は、米国商務省国立海洋大気局が提供するハイブリッド単一粒子ラグランジュ統合軌道(HYSPLIT)モデルv5(https://www.ready.noaa.gov/HYSPLIT_traj.php)によって計算された。国立環境予測センター(金光、1989年)が作成した全球データ同化システム(経度1度×緯度1度分解能)をHYSPLIT v5実行の入力気象データとして用いた。サンプリング時間中に各月についてクラスター

分析を行った。北東アジア地域の日報天気図は気象(<http://www.data.jma.go.jp/fcd/yoho/hibiten/index.html>)から提供された。

2) 金沢と福岡における慢性咳嗽とPAHを含む大気汚染物質に関する疫学

(1) 対象

金沢大学附属病院などの石川県の医療機関に外来受診している咳喘息、アトピー性咳嗽あるいは気管支喘息の慢性咳嗽（8週間以上の持続する咳）を呈する患者59人（平均年齢±標準偏差、55.3±13.82、男17人、女42人）と国立福岡病院に外来受診している気管支喘息の慢性咳嗽を有する患者39人（平均年齢±標準偏差、13.1±11.4、男22人、女17人）を対象とした（表1-1）。表1-2では、石川の59人と福岡の39人の地域ごとの患者背景を示した。表1-3には、咳の頻度による患者背景を示した。咳あり群の平均年齢がなし群に比べ、有意に高かった。表1-4には地域ごとの咳の頻度による患者背景を示した。石川における咳あり群の平均年齢がなし群に比べ、有意に高かった。

(2) 患者の症状モニタリングと疫学情報

2020年3月までに、上記の患者に対して、咳、喘鳴、鼻水、くしゃみ、眼のかゆみの症状などをアレルギー日誌として渡し、2020年4月1日から5月31日のすべての日に症状を記載して頂いた。その他の患者の疫学情報として、家族歴、現病歴・現症、生活習慣（喫煙、飲酒、栄養、運動など）、治療歴、呼吸器疾患（喘息、咳喘息、アトピー性咳嗽、肺がん）、併存疾患（アレルギー、循環器疾患、肥満症など）、病態検査（アレルギー検査（RIST, RASTなど））を調べた。

(3) 評価方法

毎日、モニタリングされた咳症状と大気中PAHとの関係を単相関および一般化方程式（Generalized estimating equations; GEE）を用いて解析した。その際、地域、性別、年齢、喘息の有無、BMI、SO₂、NO₂、PM_{2.5}による補正も行った。地域別では地域以外で補正した。統計はSPSS 24を用いた。両側検定にて有意確率が0.05以下の場合を有意とした。

(4) 倫理

本研究は、金沢大学医学倫理委員会の承認を受けて実施した（承認番号、1373）。

3) 地域住民における気管支喘息に対する疫学

(1) 対象

石川県志賀町のモデル地区に在住の40歳以上の住民のうち、質問紙表または健康診断を受けた4,544例を対象とした横断的研究である。気管支喘息の有無についての診断情報のない2,945名を除外し、さらに性別についての情報のない93例を除外した。最終的に1,506例（女性851例、男性655例）を解析対象とした。

性別ごとの対象者の背景では、女性における大気中平均NO₂濃度およびPM_{2.5}濃度は、男性におけるそれらに比較して高値であった。また、男性に比較して、女性では年齢および教育歴<10年の割合が高かった。他方、男性に比較して女性では喫煙割合が低く、身長、体重およびBMIが低値であった。また、女性における血清IgE値は男性におけるそれに比較して低値であった。なお、喘息の既往および喘息に対する多遺伝子性リスクスコア(Polygenic risk score, PRS)に性差はみられなかった。次に、喘息の有無で分類した対象の背景では、喘息なし群に比較して、喘息あり群では年齢および教育歴<10年の割合が小さかった。一方、喘息あり群における身長は、喘息なし群におけるそれに比較して大きかった。なお、2群間において、大気中NO₂およびPM_{2.5}濃度には差は見られなかった。喘息なし群に比較して、

喘息あり群のPRSは高い傾向を示した。

(2) 曝露因子

曝露因子として、環境省モニタリングステーション（七尾市）で測定されている大気中の二酸化窒素(NO₂)および微小粒子状物質を対象とし、それらの年間平均濃度を算出した。また、気管支喘息に対する多遺伝子性リスクスコア(Polygenic risk score, PRS)を使用した。本研究におけるPRSは、日本における気管支喘息のゲノムワイド関連解析で得られた知見を活用し、共同研究先であるドイツIUFから提供された計算式を用いて計算した。その他、体格指数(Body mass index, BMI)、喫煙歴の有無、教育歴(10年間以上か未満か)および血清IgE濃度を収集した。

(3) アウトカム

気管支喘息は医師の診断に基づくものと定義し、質問紙表を用いて収集した。

(4) 統計解析

連続変数は平均値(標準偏差)で記述し、カテゴリ変数はn(%)で記述した。2群間の平均値の差の検定および割合の差の検定には、それぞれスチューデントのt検定、カイ二乗検定を行った。また、大気中NO₂およびPM_{2.5}に対して、気管支喘息の有無と性別による二元配置共分散分析を行った。共変量は年齢、BMIおよび喫煙歴とした。さらに、性別ごとに気管支喘息と大気中NO₂およびPM_{2.5}の関連を検討するため、年齢、喫煙歴、BMI、教育歴および血清IgEで補正した多重ロジスティック回帰分析を行った。

(5) 倫理

本研究は、金沢大学医学倫理委員会の承認を受けて実施した(承認番号、1373)。

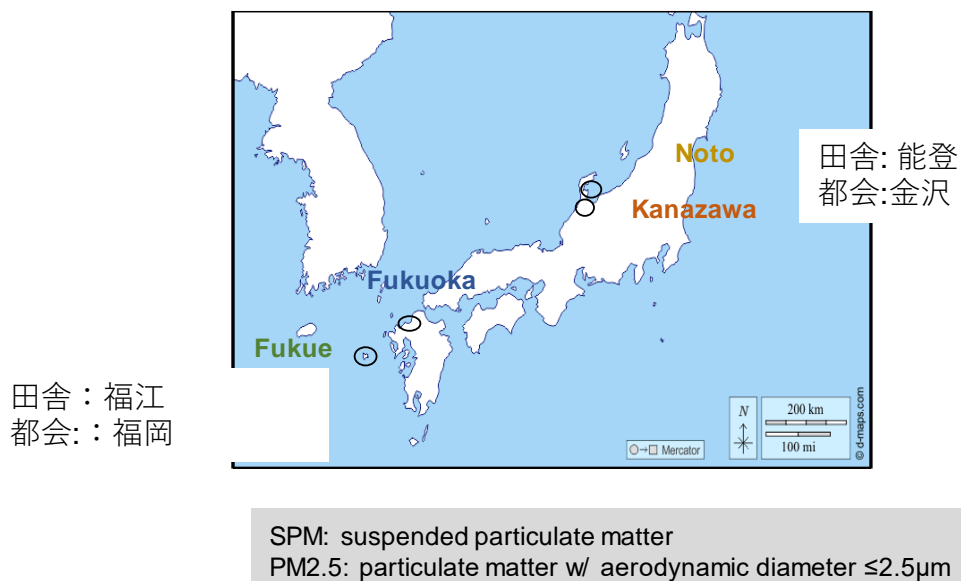


図1-1 サンプル地区(金沢、能登、福岡、福江)

表1-1 地域ごとの患者背景

	金沢 (n=59)		福岡 (n=39)		p値
	平均値	標準偏差	平均値	標準偏差	
年齢, 歳	55.3	20.7	13.1	11.4	<0.001
男性, n	17	28.8	22	56.4	0.006
喘息あり	21	35.6	39	100	<0.001
身長, cm	156.2	15.0	139.0	19.1	<0.001
体重, kg	57.8	18.5	36.2	13.4	<0.001
BMI, kg/m ²	23.9	5.2	18.2	4.7	<0.001
有症状割合, %	0.300	0.370	0.113	0.279	0.005

有症状割合は、「咳あり」日数／観察日数で表した。

表1-2 咳の頻度による患者背景

	咳なし群(n=55)		咳あり群(n=43)		p値
	平均値	標準偏差	平均値	標準偏差	
年齢, 歳	32.7	26.8	45.9	26.2	0.016
男性, n	25	45.5%	14	32.6%	0.196
喘息あり	39	70.9%	21	48.8%	0.026
身長, cm	146.4	20.7	153.1	15.4	0.076
体重, kg	47.3	21.8	52.1	16.9	0.243
BMI, kg/m ²	21.8	6.6	21.5	4.6	0.83
有症状割合, %	0.01	0.02	0.51	0.37	<0.001

群は、各地域における「咳あり」日数／観察日数の中央値で2分類した。

表1-3 地域ごとの咳の頻度による患者背景

	金沢 (n=59)					福岡 (n=39)				
	咳なし群(n=29)		咳あり群(n=30)		p値	咳なし群(n=26)		咳あり群(n=13)		p値
	平均値	標準偏差	平均値	標準偏差		平均値	標準偏差	平均値	標準偏差	
年齢, 歳	49.2	25.0	61.3	13.3	0.026	14.4	13.4	10.5	5.0	0.332
男性, n	9	31.0%	8	26.7%	0.711	16	61.5%	6	46.2%	0.361
喘息あり	13	44.8%	8	26.7%	0.145	26	100%	13	100%	
身長, cm	153.0	20.1	159.0	7.5	0.150	138.7	18.9	139.5	20.2	0.897

体重, kg	55.6	24.2	59.9	11.1	0.395	37.3	13.1	34.2	14.3	0.520
BMI, kg/m ²	24.3	6.7	23.6	3.6	0.634	19.1	5.5	16.7	2.3	0.132
有症状割合	0.01	0.02	0.58	0.33	<0.001	0.00	0.00	0.34	0.40	0.011

群は、各地域における「咳あり」日数／観察日数の中央値で2分類した。

4. 結果及び考察

1) 金沢と福岡におけるTSPとPAH濃度

本結果では、気象庁またはLIDARのいずれかによって報告されたサンプリングサイトでAD事象が観察されたときに黄砂日を決定した。福岡と金沢の黄砂日数は0~3日差だった。弱い黄砂イベントと激しい黄砂イベントの両方の影響を観察するために、それぞれ2020年と2021年の黄砂期間中にサンプルを収集した。

表1-4には、2020年と2021年の3月から5月までの福岡と金沢におけるTSPとPAHの1日平均濃度を示した。福岡では、TSPとPAHの平均濃度は2020年よりも2021年の方が高かった。2021年の平均TSP濃度(福岡:19.2±18.3 μg/m³、金沢:30.1±35.5 μg/m³)は、2021年の極端なLRT-ADにより、2020年(福岡:15.6±7.0 μg/m³、金沢:22.9±11.6 μg/m³)よりも高かった。2020年の月間の平均TSP濃度は、福岡(3月:15.0±5.9 μg/m³、4月:16.7±7.0 μg/m³、5月:15.2±8.1 μg/m³)と金沢(3月:22.6±10.2 μg/m³、4月:22.4±9.9 μg/m³、5月:23.6±14.5 μg/m³)で同程度であった。2021年の平均TSP濃度は3月中に最も高く(福岡:23.7±27.3 μg/m³、金沢:39.6±54.8 μg/m³)、その後、時間の経過とともに低下した。金沢のTSPの平均濃度(26.5±26.5 μg/m³)は福岡(17.4±14.0 μg/m³)よりも高かった。福岡の平均総PAH濃度(0.78±0.77ng/m³)は金沢(0.30±0.16ng/m³)よりも高く、TSP濃度とは逆であった。2021年の福岡の平均総PAH濃度(0.92±0.94 ng/m³)は2020年(0.64±0.53 ng/m³)よりも高く、金沢では同程度であった(2020年:0.30±0.16 ng/m³; 2021年:0.31±0.17 ng/m³)。PAH濃度は3月中に高く、福岡と金沢の両年で徐々に減少し、日本のPAHの季節変動が確認された。PAHの化学輸送モデルによれば、PAH濃度が3月から5月にかけて徐々に減少した。これらの季節変動は、MRT-PAHの減少が気象学の総観スケールによって制御され、PAHの放出が減少したことによって引き起こされている(Inomata et al., 2021)。

金沢では、2021年の平均TSP濃度は2020年よりも高く、PAH濃度は両年とも同等であった。個々のPAHおよびTSP濃度は、福岡と金沢で有意に異なっていた(表1-5)。その結果、福岡と金沢は大気汚染特性が異なっていたことが示唆された。

図1-2では、金沢と福岡での黄砂日(ASD)と非黄砂日(no ASD)の日におけるPAH類(BaP/BghiP—Icdp/(Icdp+Bghip))の散布図を示す。福岡では、BaP/BghiPが比較的、高く、Icdp/(Icdp+Bghip)が低いことから、冬季(3月)の大陸における暖房(石炭燃焼)由来と春季(4-5月)のローカル(北九州工業地帯)な経済的燃焼により発生していると考えられる。一方、金沢では、ローカルな交通車両からの排出が主だが、一部、大陸における石炭燃焼由来もあると考えられる。

TSPと総PAHの関係は、福岡(非AD:r=0.321、AD:r=0.059)と金沢(非AD:r=0.521、AD:r=0.526)で弱かった(表1-6)。この結果は、TSPとPAHの起源が異なることを示唆した。TSPは惑星境界層の上層と自由大気内を移動する砂漠からのLRT-ADの影響を受け(Hara et al., 2009)、PAHは表層付近で水平に移動するMRT-PAHの影響を受けていた(Inomata et al., 2021)。特に福岡では、PAHとTSPの関係はLRT-ADエピソードの間に減少し、LRT-ADルートがMRT-PAHルートと異なることを示唆した。また、福岡は北九州

の主要工業地帯の近くにあり、金沢は既知の工業地帯に近くない。したがって、1)初期排出源、2)輸送経路(方向、距離、高さ)、3)日本の局所的な排出源は、2つの都市におけるLRT-AD期間中のTSPとPAHの濃度の上記の差の重要な要素である可能性があると考えられた。

表1-7は、福江、能登の結果をも含めた、地域間比較を行った結果である。福江は農村部であるにもかかわらず福岡よりも大気汚染物質濃度(Pyrを除く)が高かった。その理由として長距離輸送大気汚染による影響が考えられた。能登は田舎であるため、金沢よりも大気汚染物質濃度が低かった。農村部の比較(福江と能登)では、福江は能登に比べてすべての大気汚染物質濃度が極端に高かった。また都市部では、福岡は金沢に比べて大気汚染物質濃度が高かった。以上の結果は、上述の九州と石川県との輸送ルートの違いを反映したものであると考えられた。

2) 黄砂の長距離輸送(LRT-AD)とPAHの中距離輸送(MRT-PAH)

次に福岡と金沢における黄砂と長距離輸送PAHのさまざまな影響を調べるために、それらの濃度を図1-3に示すように後退軌道で4つのグループに分けた。

(a)黄砂および高PAH：PAH濃度が高い黄砂日数(黄砂日の平均PAH濃度よりも高い[福岡で0.85ng m⁻³、金沢で0.43ng m⁻³])

(b)黄砂および低PAH：より低いPAH濃度を有する黄砂日(黄砂日における平均PAH濃度よりも低い)

(c)非黄砂および高PAH：PAH濃度が高い非黄砂日(非黄砂日の平均PAH濃度よりも高い:福岡[0.76ng m⁻³、金沢で0.28ng m⁻³])

(d)非黄砂および低いPAH：より低いPAH濃度を有する非黄砂日(非黄砂日における平均PAH濃度よりも低い)

図1-3a, bは、それぞれ高およびPAH濃度の黄砂日における後方軌道を表示する。サンプリングサイトから3000~4000 km離れたモンゴル、北西部、中国中部からの最初の情報源は、両方のグループで支配的であった。砂漠の砂は、福岡と金沢に移る前に、地上1000~6000m(AGL)まで地面から吹き飛ばされていた。観察されたモデルは以前の研究と一致していた(Hara et al., 2009;Zhang et al., 2010)。

図1-3c, dは、それぞれ高および低PAH濃度を有する非黄砂日における後方軌道を示す。PAH濃度が高かった頃、風向は福岡や金沢から800~2000km離れた中国東北部からであった。PAH濃度が低い場合、風向は局所的(金沢)または北緯35度以下の地域(福岡)からの混合高さ(AGL500-4000 m)が低かった。

以上の結果から、中国北西部と中部からのLRT-ADはTSPに強く影響したが、福岡と金沢のPAH濃度には影響しなかったと思われる。中国東北部のMRT-PAHは、LRT-ADよりもPAH濃度に大きな影響を与えたと言える。北緯35度以上の地域(満州工業地帯と渤海経済圏)からのMRT-PAHは福岡と金沢に影響を与え、北緯35度以下の地域(長江デルタ)からのMRT-PAHは主に福岡に影響を与えたと考えられる。さらに、地域的な排出量の多様性は、日本の都市ごとに異なる効果をもたらしているかもしれない。金沢のPAHの地元の供給源は交通排出量であり、福岡の産業排出量と考えられた。サンプリングサイトの地形は、大気汚染を蓄積または分散させる要因となる可能性がある。以下の研究では、金沢と福岡のPAH源をニトロピレン法を用いて比較した結果である(Hayakawa et al., 2021, 2020)。

結局、福岡の黄砂期の長距離輸送ルートは、Bohai Economic Rim (中国環渤海経済圏; industrial emission) とYangtze River Delta (長江デルタ; traffic emission)に由来すると推定された。一方、金沢の黄砂期の長距離輸送ルートは、Bohai Economic Rim (中国環渤海経済圏; industrial emission) に由来すると推定された。

表1-4 2020年と2021年3月から5月までの福岡市と金沢市における

PAH(ng m^{-3})とTSP($\mu\text{g m}^{-3}$)の合計(Mean \pm SD)

場所	期間	Total PAH (ng m^{-3})	TSP ($\mu\text{g m}^{-3}$)
福岡	Mar 2020	0.89 \pm 0.72	15.0 \pm 5.9
	Apr, 2020	0.58 \pm 0.26	16.7 \pm 7.0
	May 2020	0.45 \pm 0.40	15.2 \pm 8.1
	2020	0.64 \pm 0.53	15.6 \pm 7.0
	Mar 2021	1.17 \pm 1.11	23.7 \pm 27.3
	Apr 2021	1.07 \pm 0.89	18.3 \pm 9.3
	May 2021	0.53 \pm 0.68	15.5 \pm 12.5
	2021	0.92 \pm 0.94	19.2 \pm 18.3
	Average	0.78 \pm 0.77	17.4 \pm 14.0
	金沢	Mar 2020	0.37 \pm 0.16
Apr, 2020		0.28 \pm 0.14	22.4 \pm 9.9
May 2020		0.25 \pm 0.15	23.6 \pm 14.5
2020		0.30 \pm 0.16	22.9 \pm 11.6
Mar 2021		0.42 \pm 0.15	39.6 \pm 54.8
Apr 2021		0.30 \pm 0.16	26.7 \pm 17.7
May 2021		0.21 \pm 0.14	24.0 \pm 18.3
2021		0.31 \pm 0.17	30.1 \pm 35.5
Average		0.30 \pm 0.16	26.5 \pm 26.5

SD: standard deviation

表1-5 福岡市と金沢市における個々のPAHとTSPの非黄砂 (no AD) 日と黄砂 (AD) 日の差

大気汚染物質	福岡				p-value	金沢				p-value (福岡対金沢)	
	no AD (n=143)		AD (n=41)			no AD (n=150)		AD (n=33)			
	Mean	SD	Mean	SD		Mean	SD	Mean	SD		
Flt	0.16	0.18	0.18	0.25	0.414	0.06	0.03	0.09	0.04	<0.001	<0.001
Pyr	0.12	0.12	0.14	0.16	0.431	0.05	0.02	0.07	0.03	<0.001	<0.001
BaA	0.03	0.04	0.03	0.04	0.525	0.01	0.01	0.01	0.01	0.002	<0.001
Chr	0.08	0.08	0.09	0.11	0.427	0.02	0.01	0.04	0.02	<0.001	<0.001
BbF	0.12	0.11	0.13	0.13	0.534	0.04	0.02	0.06	0.03	<0.001	<0.001
BkF	0.04	0.04	0.04	0.04	0.791	0.01	0.01	0.02	0.01	<0.001	<0.001
BaP	0.06	0.06	0.06	0.06	0.870	0.02	0.01	0.03	0.01	<0.001	<0.001
BghiP	0.10	0.08	0.11	0.09	0.492	0.04	0.02	0.06	0.02	<0.001	<0.001
IcdP	0.06	0.05	0.07	0.05	0.781	0.03	0.02	0.04	0.02	<0.001	<0.001
Σ PAH	0.76	0.73	0.85	0.92	0.503	0.28	0.15	0.43	0.18	<0.001	<0.001

TSP 14.10 7.12 28.85 23.20 <0.001 20.35 9.13 54.57 51.17 0.001 <0.001

p-values less than 0.05 are shown in bold.

表1-6 福岡市と金沢市における非黄砂 (no AD) 日と黄砂 (AD) 日における総PAHとTSPの相関係数 (r)

Pearson の相関係数	TSP			
	福岡		金沢	
	no AD	AD	no AD	AD
Total PAH	0.321**	0.059	0.521**	0.526**

** . Correlation is significant at the 0.01 level (2-tailed).

表1-7 同じ地方および都市部、田舎同志の比較

	PM	Pyr	1-NP	Pc
福江/福岡	1.1	0.6	1.3	1.5
能登/金沢	0.4	0.7	0.2	0.7
福江/能登	3.0	2.5	10.8	6.1
福岡/金沢	1.1	2.7	1.2	1.9

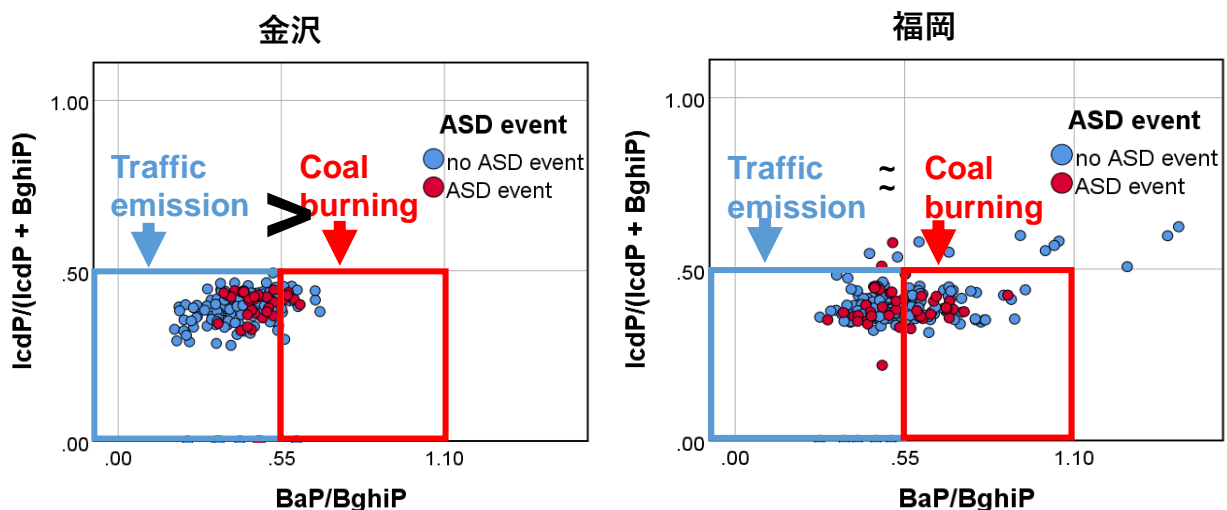


図1-2 金沢と福岡での黄砂日 (ASD) と非黄砂日 (no ASD) の日におけるPAH類 (BaP/BghiP—Icdp/(Icdp+Bghip))の散布図

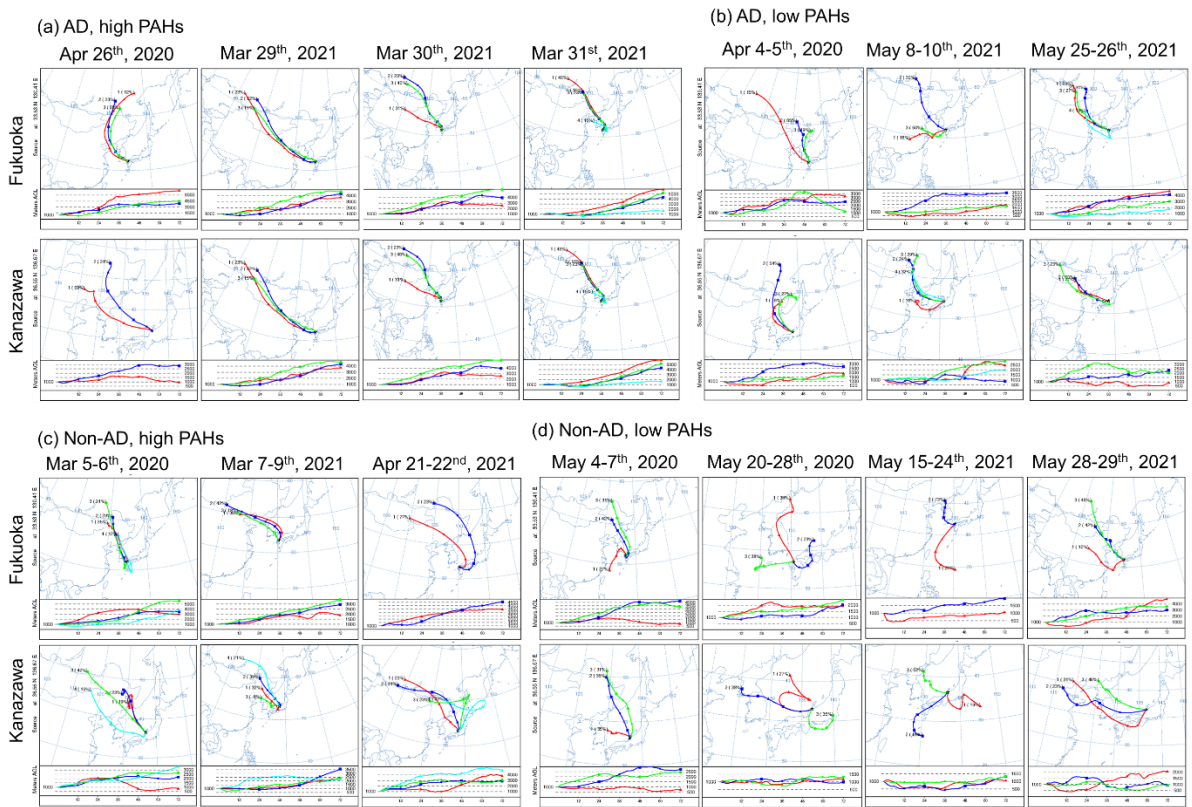


図1-3 後方軌道の4パターン (a) 黄砂と高いhigh PAH, (b) 黄砂と低いPAH, (c) 非黄砂と高いPAH、 (d)非黄砂と低いPAH.

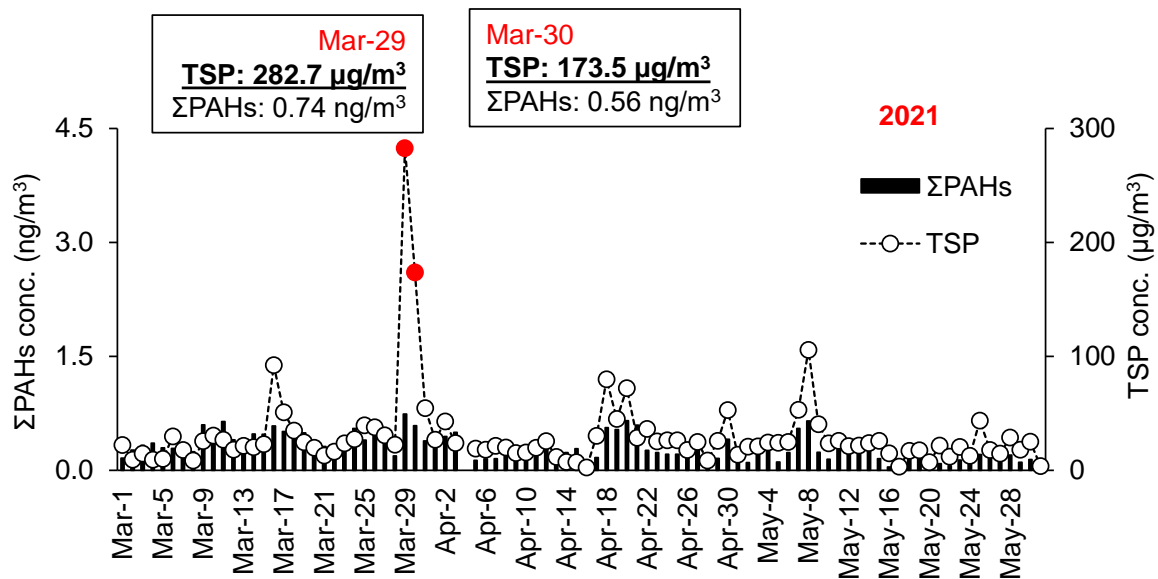
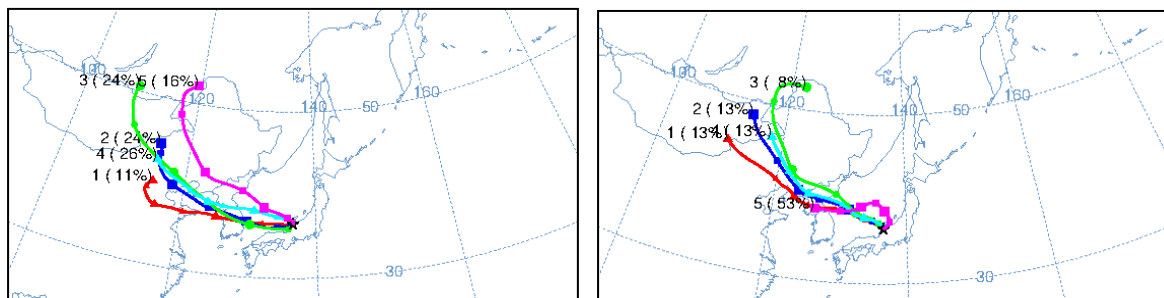


図1-4 (a) 黄砂期の長距離輸送ルート (金沢)

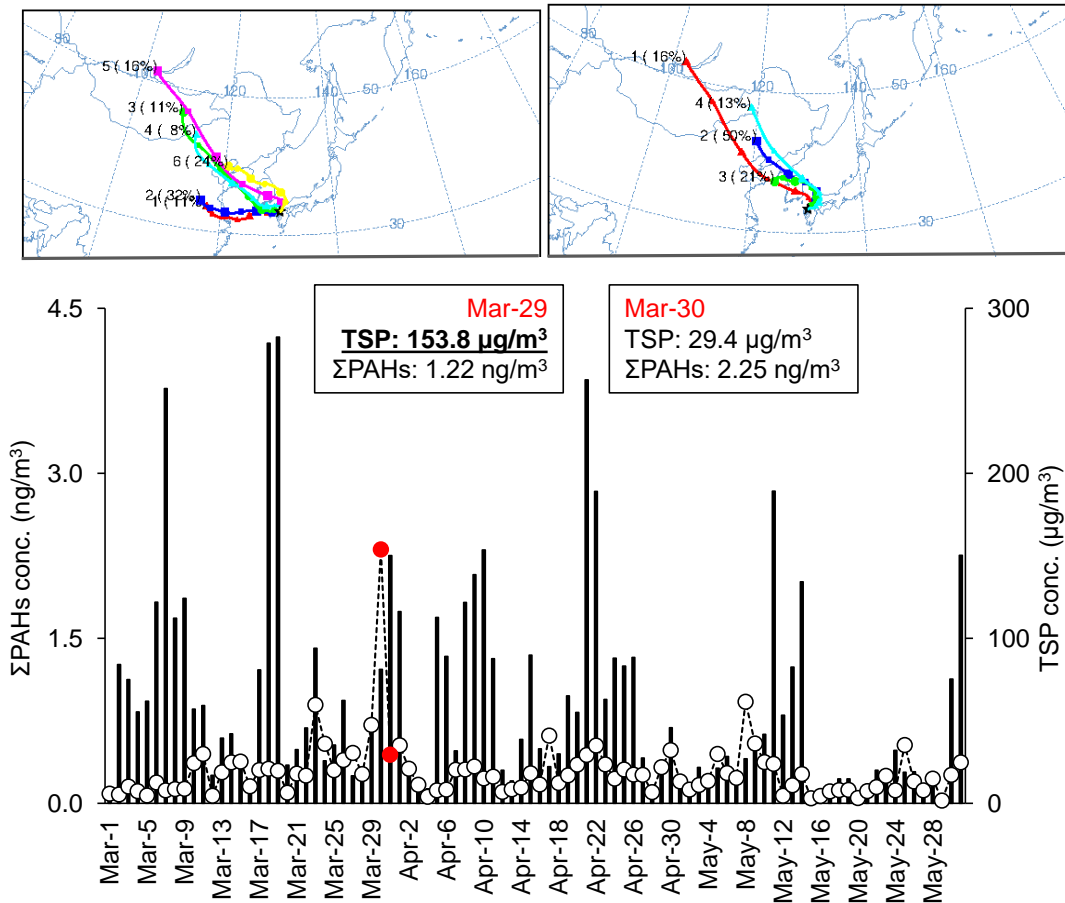


図1-4(b) 黄砂期の長距離輸送ルート（福岡）。

3) 金沢と福岡における慢性咳嗽とPAHを含む大気汚染物質に関する疫学

表1-8では金沢と福岡の2地域におけるPAHを含む大気汚染物質濃度を比較した。金沢におけるTSP濃度は福岡のそれより有意に高かったが、TSP以外のすべての大気汚染物質（SO₂以下IcdPまで）は福岡において有意に高かった。なお、金沢におけるBaA/(BaA+Chr)は福岡のそれに比べ有意に高かったが、BaP/BghiPとIcdP/(IcdP+BghiP)は福岡のそれらに比べて有意に低かった。

TSPとPAH濃度と咳の頻度との関係（GEE）をlag0-4のモデルにおいて表1-9(a), (b), (c), (d) に示した。Lag0モデルでは、BaP/BghiPとIcdP/(IcdP+BghiP)が有意な負の相関を示した（表1-9(a)）。一方、有意ではないもののBaA, BbF, BkF, BaPの主要なPAH類は負の相関を示した（表1-9(a)）。これらの負の相関は、lag1-3になるにつれて、負から正に変わり、lag3では、PyrとBaAが正の有意な相関に近い結果となり（表1-9(b), (c), (d)）、さらにlag4では、BaAが有意な正の相関であった（表1-9(e)）。一方、IcdP/(IcdP+BghiP)では有意に近い負の相関を示した（表1-9(e)）。BaP/BghiP、IcdP/(IcdP+BghiP)が低いときに咳を有することが有意な関係をもって示されたことは、ローカルな交通車両由来のPAHが咳の発症と関係することが示唆された。特にlag4やlag3モデルで示されたように、BaAやPyrをはじめとするPAH類が咳への影響を有する可能性があることを示していた。以上の関係を地域ごとに表1-10に示した。金沢ではBaP/BghiPの回帰係数（負）が大きく、一方、福岡ではIcdP/(IcdP+BghiP)の回帰係数（負）が大きかった。金沢ではよりローカルな交通車両由来のPAHが主な原因であり、福岡は大陸での石炭燃焼由来のPAHが一部、原因と考えられた。

表 1-8 金沢と福岡の2地域における大気汚染物質濃度

	金沢		福岡		p値
	平均値	標準偏差	平均値	標準偏差	
SO ₂ , ppm	0.0003	0.0005	0.0013	0.0009	<0.001
NO ₂ , ppm	0.0025	0.0010	0.0086	0.0033	<0.001
PM _{2.5} , mg/m ³	6.5574	3.6992	12.4262	4.1662	<0.001
Total PAH, ng/m ³	0.2637	0.1457	0.5229	0.3428	<0.001
TSP, mg/m ³	23.0158	12.3600	15.9459	7.5312	<0.001
Flt, ng/m ³	0.0527	0.0370	0.0997	0.0844	<0.001
Pyr, ng/m ³	0.0462	0.0251	0.0822	0.0561	<0.001
BaA, ng/m ³	0.0075	0.0020	0.0130	0.0080	<0.001
Chr, ng/m ³	0.0240	0.0154	0.0586	0.0417	<0.001
BbF, ng/m ³	0.0359	0.0199	0.0817	0.0586	<0.001
BkF, ng/m ³	0.0122	0.0071	0.0262	0.0189	<0.001
BaP, ng/m ³	0.0182	0.0113	0.0388	0.0286	<0.001
DahA, ng/m ³	0.0002	0.0017	0.0103	0.0165	<0.001
BghiP, ng/m ³	0.0393	0.0194	0.0615	0.0338	<0.001
IcdP, ng/m ³	0.0274	0.0144	0.0510	0.0324	<0.001
Flt/(Flt+Pyr)	0.5102	0.0482	0.5211	0.0592	0.264
BaA/(BaA+Chr)	0.2813	0.1063	0.2174	0.1160	0.002
BaP/BghiP	0.4457	0.0907	0.6070	0.2433	<0.001
IcdP/(IcdP+BghiP)	0.4073	0.0224	0.4496	0.0884	0.001

表1-9(a) 咳に対するPAH類の影響（全体）- lag 0モデル

	回帰係数	95%信頼区間		p値
TSP	-0.001	-0.007	0.005	0.740
Total PAH	-0.008	-0.247	0.231	0.949
Flt	0.229	-0.771	1.228	0.654
Pyr	0.225	-1.293	1.742	0.772
BaA	-2.629	-9.891	4.633	0.478
Chr	0.216	-1.818	2.249	0.835
BbF	-0.527	-1.705	0.65	0.380
BkF	-0.593	-4.829	3.643	0.784
BaP	-1.033	-3.763	1.696	0.458
BghiP	0.415	-2.118	2.948	0.748

IcdP	-0.801	-3.449	1.847	0.553
Flt/(Flt+Pyr)	0.866	-0.267	1.999	0.134
BaA/(BaA+Chr)	-0.342	-0.898	0.215	0.229
BaP/BghiP	-0.362	-0.715	-0.009	0.044
IcdP/(IcdP+BghiP)	-0.867	-1.634	-0.1	0.027

共変量: 地域, 性別, 年齢, 喘息の有無, BMI, SO₂, NO₂, PM_{2.5}

表1-9(b) 咳に対するPAH類の影響 (全体) - lag 1モデル

	回帰係数	95%信頼区間		p値
TSP	-0.003	-0.008	0.003	0.325
Total PAH	0.069	-0.164	0.302	0.561
Flt	0.487	-0.539	1.514	0.352
Pyr	0.782	-0.755	2.318	0.319
BaA	-0.357	-11.053	10.340	0.948
Chr	0.673	-1.382	2.728	0.521
BbF	-0.006	-1.178	1.167	0.992
BkF	0.870	-3.328	5.069	0.685
BaP	-0.019	-2.757	2.719	0.989
BghiP	0.696	-1.429	2.821	0.521
IcdP	-0.336	-2.549	1.877	0.766
Flt/(Flt+Pyr)	0.457	-0.690	1.603	0.435
BaA/(BaA+Chr)	-0.255	-0.855	0.345	0.404
BaP/BghiP	-0.218	-0.517	0.081	0.153
IcdP/(IcdP+BghiP)	-0.787	-1.670	0.096	0.081

共変量: 地域, 性別, 年齢, 喘息の有無, BMI, SO₂, NO₂, PM_{2.5}

表1-9(c) 咳に対するPAH類の影響 (全体) - lag 2モデル

	回帰係数	95%信頼区間		p値
TSP	-0.003	-0.009	0.004	0.410
Total PAH	0.085	-0.134	0.304	0.446
Flt	0.424	-0.501	1.349	0.369
Pyr	0.782	-0.616	2.180	0.273
BaA	3.379	-5.783	12.54	0.470
Chr	0.724	-1.106	2.555	0.438
BbF	0.322	-0.865	1.509	0.594
BkF	1.082	-2.749	4.913	0.580
BaP	0.077	-2.327	2.480	0.950

BghiP	0.757	-1.525	3.040	0.515
IcdP	0.106	-2.061	2.273	0.923
Flt/(Flt+Pyr)	0.209	-0.870	1.288	0.704
BaA/(BaA+Chr)	-0.189	-0.769	0.391	0.523
BaP/BghiP	-0.236	-0.508	0.036	0.089
IcdP/(IcdP+BghiP)	-0.544	-1.227	0.138	0.118

共変量: 地域, 性別, 年齢, 喘息の有無, BMI, SO₂, NO₂, PM_{2.5}

表1-9(d) 咳に対するPAH類の影響 (全体) - lag 3モデル

	回帰係数	95%信頼区間		p値
TSP	0	-0.006	0.006	0.973
Total PAH	0.143	-0.051	0.338	0.149
Flt	0.535	-0.250	1.321	0.182
Pyr	1.056	-0.152	2.265	0.087
BaA	8.940	-0.289	18.168	0.058
Chr	0.991	-0.598	2.581	0.222
BbF	0.506	-0.578	1.590	0.360
BkF	1.842	-1.608	5.292	0.295
BaP	0.972	-1.361	3.304	0.414
BghiP	1.574	-0.666	3.814	0.168
IcdP	0.950	-1.170	3.069	0.380
Flt/(Flt+Pyr)	0.457	-0.659	1.572	0.422
BaA/(BaA+Chr)	-0.221	-0.754	0.312	0.417
BaP/BghiP	-0.128	-0.382	0.127	0.325
IcdP/(IcdP+BghiP)	-0.234	-0.879	0.411	0.477

共変量: 地域, 性別, 年齢, 喘息の有無, BMI, SO₂, NO₂, PM_{2.5}

表1-9(e) 咳に対するPAH類の影響 (全体) - lag 4モデル

	回帰係数	95%信頼区間		p値
TSP	-0.004	-0.010	0.001	0.133
Total PAH	0.193	-0.038	0.423	0.101
Flt	0.762	-0.230	1.753	0.132
Pyr	1.382	-0.089	2.853	0.066
BaA	8.609	1.497	15.721	0.018
Chr	1.396	-0.567	3.358	0.163
BbF	0.704	-0.378	1.786	0.202
BkF	3.121	-0.917	7.159	0.130

BaP	1.982	-0.623	4.588	0.136
BghiP	2.055	-0.245	4.355	0.080
IcdP	0.807	-1.498	3.111	0.493
Flt/(Flt+Pyr)	0.774	-0.281	1.829	0.150
BaA/(BaA+Chr)	-0.277	-0.774	0.219	0.274
BaP/BghiP	0.047	-0.206	0.300	0.714
IcdP/(IcdP+BghiP)	-0.638	-1.285	0.008	0.053

共変量: 地域, 性別, 年齢, 喘息の有無, BMI, SO₂, NO₂, PM_{2.5}

表1-10 咳に対するPAH類の影響 (喘息有無別, GEE)

	喘息なし				喘息あり			
	回帰係数	95%信頼区間		p値	回帰係数	95%信頼区間		p値
TSP	-0.001	-0.01	0.008	0.869	-0.002	-0.011	0.007	0.713
Total PAHs	-0.083	-0.774	0.607	0.813	0.028	-0.233	0.29	0.832
Flt	1.163	-1.674	4	0.422	0.196	-0.9	1.291	0.726
Pyr	0.749	-2.989	4.487	0.694	0.302	-1.396	2	0.727
BaA	-49.77	-90.03	-9.507	0.015	0.647	-5.829	7.123	0.845
Chr	0.732	-5.639	7.104	0.822	0.445	-1.779	2.67	0.695
BbF	-0.46	-5.875	4.956	0.868	-0.403	-1.605	0.798	0.511
BkF	-2.469	-17.26	12.32	0.743	0.144	-4.387	4.675	0.950
BaP	-8.642	-16.82	-0.47	0.038	0.381	-2.551	3.312	0.799
BghiP	-3.4	-8.443	1.643	0.186	1.466	-1.619	4.551	0.352
IcdP	-4.328	-11.06	2.403	0.208	0.131	-2.851	3.113	0.931
Flt/(Flt+Pyr)	1.53	-0.352	3.413	0.111	0.571	-0.945	2.087	0.460
BaA/(BaA+Chr)	-0.566	-1.316	0.185	0.139	-0.248	-1.071	0.575	0.555
BaP/BghiP	-0.872	-1.803	0.058	0.066	-0.216	-0.574	0.142	0.238
IcdP/(IcdP+BghiP)	-0.625	-2.787	1.537	0.571	-0.795	-1.617	0.027	0.058

共変量: 性別, 年齢, 喘息の有無, BMI, SO₂, NO₂, PM_{2.5}

4) 地域住民における大気汚染物質と気管支喘息との関連

大気汚染物質に対する気管支喘息の有無と性別による二元配置共分散分析の結果、NO₂濃度(p for interaction = 0.021)およびPM_{2.5}濃度(p for interaction = 0.026)のいずれにおいても性と喘息との間に交互作用がみられることが確認された(表1-11)。二元配置共分散分析の結果より、性別ごとの大気汚染物質と喘息との関連を多重ロジスティック回帰分析にて検討した(表1-12)。その結果、女性においてNO₂濃度(オッズ比7.63, 95%信頼区間2.80~20.77)およびPM_{2.5}濃度(オッズ比10.97, 95%信頼区間4.47~26.90)と喘息との間に関連がみられた(表1-12(A))。他方、男性ではNO₂濃度およびPM_{2.5}濃度と喘息との間に関連はみられなかった。なお、共変量としてPRSを追加しても同様の結果であった(表1-12(B))。

以上の結果、女性においてのみ、大気中NO₂濃度およびPM_{2.5}濃度が喘息と関連した。大気中NO₂およびPM_{2.5}はそれぞれ気管支喘息と関連することが示されてきた。他方、その関連が女性に限定されて観察されたという今回の研究結果は、これまでの報告で同様のものと相異なるものも存在する。若年男性は若年女性に比較して喘息の増悪の程度がより頻回で重度とされている。他方、大気汚染物質の喘息に

対する影響に性差はないとする報告もある。さらに、成人における活動性の喘息は、男性に比較して女性で頻度が高いとする報告もある。このように、人種・民族、対象年齢により大気汚染物質と喘息との関連に及ぼす性の効果が異なるものと考えられる。

表1-11 大気汚染物質濃度に対する性別と喘息の有無による二元配置共分散分析

		喘息なし群 (n=1398)		喘息あり群 (n=91)		p値		
		推定周 辺平均	95%信頼 区間	推定周 辺平均	95%信頼 区間	性別	喘息の 有無	性別* 喘息
大気中NO ₂ (ppb)	女性 (n=843)	4.441	4.397, 4.486	4.754	4.574, 4.933	0.009	0.027	0.021
	男性 (n=646)	4.314	4.264, 4.365	4.312	4.117, 4.507			
大気中PM _{2.5} (g/m ³)	女性 (n=843)	12.650	12.572, 12.729	13.271	12.955, 13.586	0.007	0.005	0.026
	男性 (n=646)	12.403	12.314, 12.493	12.482	12.139, 12.826			

共変量：年齢, BMI, 喫煙歴、p<0.005のp値は太字で示した。

表1-12 喘息に対する多重ロジスティック回帰分析

(A) Model 1

性別	大気汚染物質	オッズ比	95%信頼区間	p値
女性	NO ₂ (+1 ppb)	7.630	2.803 - 20.767	< 0.001
	PM _{2.5} (+1 mg/m ³)	10.97	4.474 - 26.903	< 0.001
男性	NO ₂ (+1 ppb)	1.009	0.268 - 3.794	0.989
	PM _{2.5} (+1 mg/m ³)	2.208	0.879 - 5.545	0.092

共変量：年齢, BMI, 喫煙歴, 教育歴, IgE、p<0.005のp値は太字で示した。

(B) Model 2

性別	大気汚染物質	オッズ比	95%信頼区間	p値
女性	NO ₂ (+1 ppb)	6.441	2.293 - 18.094	< 0.001
	PM _{2.5} (+1 mg/m ³)	9.394	3.721 - 23.716	< 0.001
男性	NO ₂ (+1 ppb)	1.285	0.324 - 5.089	0.721
	PM _{2.5} (+1 mg/m ³)	2.329	0.916 - 5.923	0.076

共変量：年齢, BMI, 喫煙歴, 教育歴, IgE, PRS、p<0.005のp値は太字で示した。

BMI, body mass index; PRS, polygenic risk score

5. 研究目標の達成状況

①金沢市および石川県志賀町（能登半島）の病院において気管支喘息、咳喘息、アトピー性咳嗽患者を有する外来患者をそれぞれ、59人（表1-1）と91人（表1-11）をリクルートし、2019年12月から5月および7-8月と翌年の同時期における毎日の呼吸器症状(咳、喘鳴、呼吸困難)と鼻症状(鼻水など)を記録した。

②同地域における同時期のPM成分、特にPAHのモニタリング（表1-4, 表1-5）した。

③2018年と2019年度、および2020年と2021年度に分けて大気中化学物質と症状との量反応関係を解析した結果、慢性咳嗽疾患における発症および症状悪化因子としてのPM成分、特にPyrとBaAを同定することができた（表1-9 (a) -(e)）。以上より、当初の目標を達成できたと考える。

6. 引用文献

- 1) Hara, Y., Yumimoto, K., Uno, I., Shimizu, A., Sugimoto, N., Liu, Z., M.Winker, D., 2009. Asian dust outflow in the PBL and free atmosphere retrieved by NASA CALIPSO and an assimilated dust transport model. *Atmos. Chem. Phys.* 9, 1227–1239. <https://doi.org/10.5194/acp-9-1227-2009>
- 2) Hayakawa, K., Tang, N., Matsuki, A., Inomata, Y., Toriba, A., Nagato, E.G., 2021. Calculating source contributions to urban atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons and nitropolycyclic aromatic hydrocarbons using 1-nitropyrene and pyrene: An application to an Asian dust event. *Chemosphere* 280, 130662. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2021.130662>
- 3) Hayakawa, K., Tang, N., Toriba, A., Nagato, E.G., 2020. Calculating sources of combustion-derived particulates using 1-nitropyrene and pyrene as markers. *Environ. Pollut.* 265, 114730. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2020.114730>
- 4) Inomata, Y., Takeda, M., Thao, N., Kajino, M., Seto, T., Nakamura, H., Hayakawa, K., 2021. Particulate PAH transport associated with adult chronic cough occurrence closely connected with meteorological conditions: A modelling study. *Atmosphere (Basel)*. 12. <https://doi.org/10.3390/atmos12091163>
- 5) Shimizu, A., Sugimoto, N., Matsui, I., Arao, K., Uno, I., Murayama, T., Kagawa, N., Aoki, K., Uchiyama, A., Yamazaki, A.A., 2004. Continuous observations of Asian dust and other aerosols by polarization lidars in China and Japan during ACE-Asia. *J. Geophys. Res. D Atmos.* 109, 1–14. <https://doi.org/10.1029/2002JD003253>
- 6) Zhang, K., Chai, F., Zhang, R., Xue, Z., 2010. Source, route and effect of Asian sand dust on environment and the oceans. *Particuology* 8, 319–324. <https://doi.org/10.1016/j.partic.2010.03.016>

II-2 長崎福江と福岡における環境疫学研究

国立病院機構福岡病院

小児科

小田嶋 博

小児科

松崎 寛司

<研究協力者>

国立病院機構福岡病院

看護部

池田 奈央

臨床研究部

小田 真紀子

臨床研究部

小島 薫

臨床研究部

竹山 信子

五島中央病院

小児科

小屋松 淳

内科

池谷 千章

内科

時任 高諄

山内診療所

宮崎 岳大

三井楽診療所

田中 孝和

井上内科・小児科医院

井上 憲一

池田内科

池田 秀樹

長崎大学第2内科

尾長谷 靖

[要旨]

長崎福江と福岡における環境疫学研究のグループでは福岡市、福江市での調査協力者のリクルートと福岡病院屋上、五島中央病屋上での汚染物質の採取を行った。汚染物質に関しては検体の採取を金沢大学及び国立環境研究所の指示に基づき、両病院のスタッフが先行し、検体を送付しその測定を、国立環境研究所および金沢大学において行っていただいた（詳細は別に記載される）。健康影響の調査に関してリクルートされた被検者にはピークフロー（PEF）の測定を毎日朝、夕に行ない、また、症状に関する日誌を毎日記録してもらった。症状およびPEFの値と大気汚染物質濃度との関連については今回の研究全体に関して金沢大学で詳しく検討される予定であるが、本サブテーマ2では、福岡病院と五島での状況について検討しまとめ報告する。その結果、イオンの値のまた、多環芳香族炭化水素の項目の一部はPEF値および咳、鼻症状等との間に関連が認められた。但し、2020年途中から、また2021・2022年は新型コロナウイルス感染症の世界的流行の影響が、日本、特に我々が検討した両地域の患者受診状況、マスクの使用などの日常生活に影響を与え、それが結果に影響している可能性も推定され、その点についての確認・考察も行なった。

1. 研究開発目的

日本の大気汚染は硫黄酸化物、炭素酸化物などの濃度は減少傾向にあり、また近年は窒素酸化物、浮遊粒子状物質も徐々にではあるが減少傾向にある。これに伴って、気管支喘息の重症度や有症率も減少している可能性が認められている[1]。しかし、福岡市、五島市はPM_{2.5}などの汚染濃度は日本でも高いところとして知られている[2]。福岡市も濃度が比較的減少しているとはいうものの、明らかに大気の高濃度汚染が認められることが日常生活で経験されている。またこのような日にあつては、咳や鼻水、気管支喘息発作、PEFの低下などの症状が認められていることは我々も含めて多くの報告がある[3、4、5、6]。

したがって、感受性の高いもの、また、その様な状態をもたらす疾患に罹患している者ではなお健康

に留意して生活する必要が推定される。今回の研究では、現状では低濃度といわれるようになってきたが、現在の状態でも影響がどの程度あるのかを検討できるという点も重要である。また、従来浮遊粒子状物質やPM_{2.5}についての研究が多かったが、今回はその成分の多環芳香族炭化水素等について研究がなされることになり、その様な検討は今後の大気汚染の健康影響を考える上では大切であるが、未だ多くはなく、今回はその点でも重要である。今回は特に呼吸器症状を中心に検討を行った。

2. 研究目標

- ① 長崎県福江市と福岡県福岡市でそれぞれ、長崎県立五島中央病院、国立病院機構福岡病院の外来患者を中心にそれぞれ50例、100例を目標として、2019年12月から2020年5月また7月から8月に、更に2020年12月から2021年8月まで、気管支喘息患者および咳を主訴とする患者に呼吸器及びその他の症状とピークフローメーター（PEF）を毎日記載してもらおう。また、薬剤を投与されている者にはその服用経過を記載してもらおう。今年度は新型コロナウイルス流行で、患者協力度が例年とは異なったため、その影響を考慮し、2020年度は患者確保は早い時期（9月を予定）から実施する。また、背景因子としての病歴、合併症、基礎的検査などを行い患者の特性を整理する。
- ② 患者の特性や傾向に関しては、過去のデータまた、背景因子の分析を行い、診断名、合併症、アレルギー素因の程度、呼吸機能の程度、コンプライアンスの問題などを評価の際に考慮する参考とする。
- ③ サブテーマの結果とともに分析していただくために、上記データのデータクリーニングなどの準備をする。

3. 研究開発内容

（大気汚染物質）五島中央病院屋上と国立病院機構福岡病院屋上に設置した測定機により大気汚染物質を毎日測定した。この作業および測定に関しては国立環境研究所および金沢大学を中心に行われた。

（調査実施機関）健康影響に関する対象者は、国立病院機構福岡病院および五島中央病院受診中の患者に依頼して同意取得の上、ピークフロー（PEF）日誌を渡し、毎日記録してもらった。通常、記録された内容に関しては、受診のたびに主治医が確認し、必要に応じてコメントなどを行い、不足事項についても協力依頼を行う形で実施される。しかし、今回に関してはコロナの発症によって、患者の受診期間が延長し、十分なチェックが行えなかった。また、コロナ対策の一つとして電話再診という形が新たに導入され、受診しなくても処方が行えるということになり、一層コンプライアンスが悪化したという問題がある。また、途中からの脱落者もあった。この問題は国立病院機構福岡病院でも五島中央病院でも見られた。五島福江市に関しては、web及び対面での会議の結果、施設を増やすことを考え、五島山内診療所（宮崎岳大医師）、五島三井楽診療所（田中 孝和医師）、井上内科・小児科医院（井上憲一医師）、五島池田内科（池田秀樹医師）の協力を得ることになった。しかし、中々、対象者数を増やすことには困難があった。

（対象者）対象被検者は2019年12月1日からリクルートを開始した。協力者は徐々に増えて福岡市で150名、五島市で40名であったが、コロナウイルスの流行で病院受診者、また受診回数の極端な減少があり、実際に日誌が回収でき、その入力できたのは2021年12月現在で80名であった。この後、現在なお日誌は回収中である。3月21日になりやっと緊急事態宣言は終了したが、巷の感染者数の減少は緩徐であり、受診者の回復もわずかである。

（健康影響の評価）サブテーマ2に関する汚染物質の濃度と健康影響に関しては、福岡市での実態に関する状況を中心に調査し、入力されたデータの総合解析は金沢大学で行っていただくことになった。気道症状としては、呼吸困難、咳嗽、運動時の咳嗽、喀痰、呼吸困難、くしゃみ、鼻水、鼻づまり、を記載してもらい、肺機能としてはPEFを毎日朝、晩に測定し記載してもらった。また、屋外行動、マスクの使用、空気清浄機の使用、発熱についても確認した。また薬剤の使用についても記載してもらった。気道以外では皮膚症状も記載してもらった。

PEFに関しては、我々の経験では慣れれば3歳でも信頼のできるデータを得ることができるが、それは初めに定期的に指導ができる場合であるので、低年齢等で明らかに失敗が多いと考えられるものの

データは除外した。また、特に小児では成長・発育などの個人差でその値は変化するので、その患者の最高値を基準としてその値に対して検査当日は何%であるかを計算し毎日のデータとする方法を用いた。その具体的計算方法は以下のようなものである。

$\% \text{Personal best PEF} (\% \text{ pbPEF}) = \text{Daily PEF} / \text{Personal Best PEF in this study period.}$

ここでは、以下%PEFは%pbPEFを示すものとする。

4. 結果及び考察

一般的に2月から5月がPM_{2.5}の濃度が高い時期であるとされている。2020年と2021年のこの時期の咳嗽があり答えた者の割合を図2-1と2-2に示す。

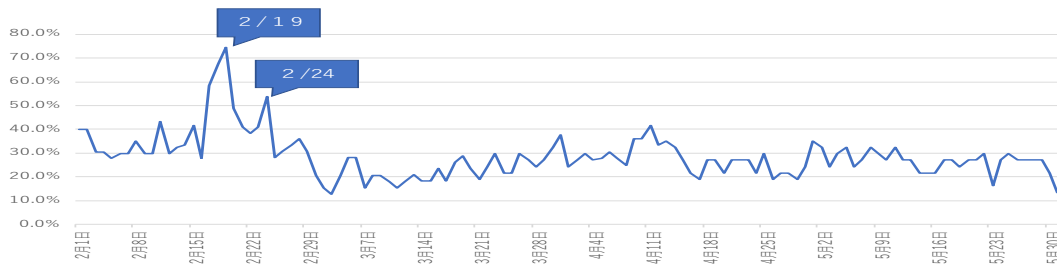


図2-1 咳有症率（2020年2月1日～5月31日）

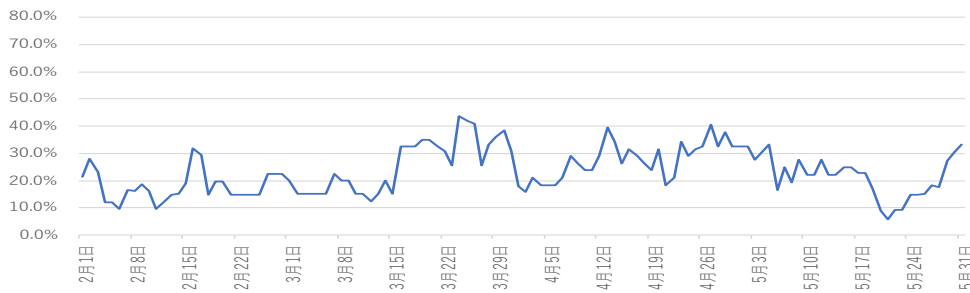


図2-2、咳有症率（2021年2月1日～5月31日）

2020年の2-3月に高い頻度で咳が認められた日があるが、それ以外は両年ともほぼ10%から40%の間に上下している。特に2月19日に関しては、咳がみられた者の割合が高値であるが、後述する%PEFの値もこの日には減少が認められることから、高濃度の刺激があった可能性が推定され、注目される。

患者の肺機能の客観的指標である%PEFの平均値の推移を図2-3、2-4に示した。



図2-3、%PEF（日平均値）（2020.2.1～5.31）

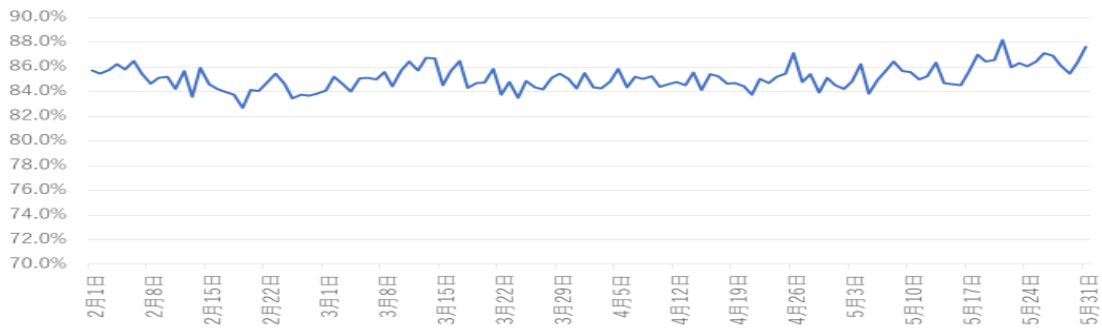


図2-4、%PEF（日平均値）（2021.2.1～5.31）

また、その朝の値と夕の値を2020年2～5月を図2-5，2021年を図2-6に示した。

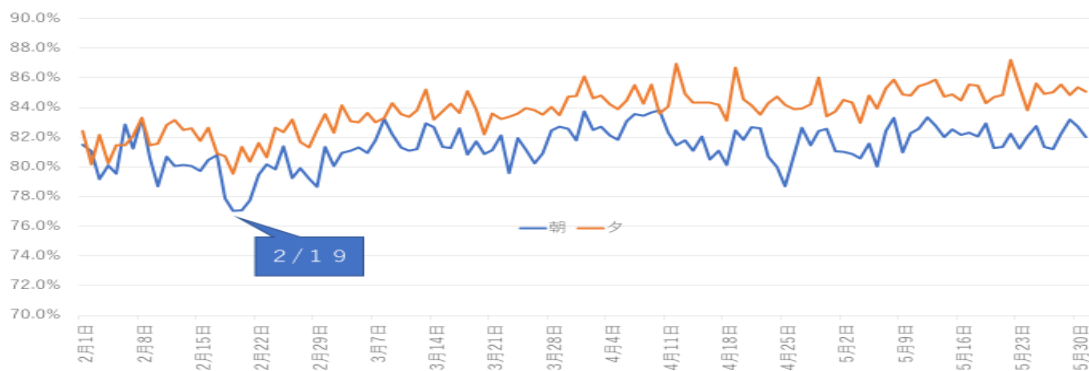


図2-5 %PEF(朝、夕) (2020.2.1～5.31)

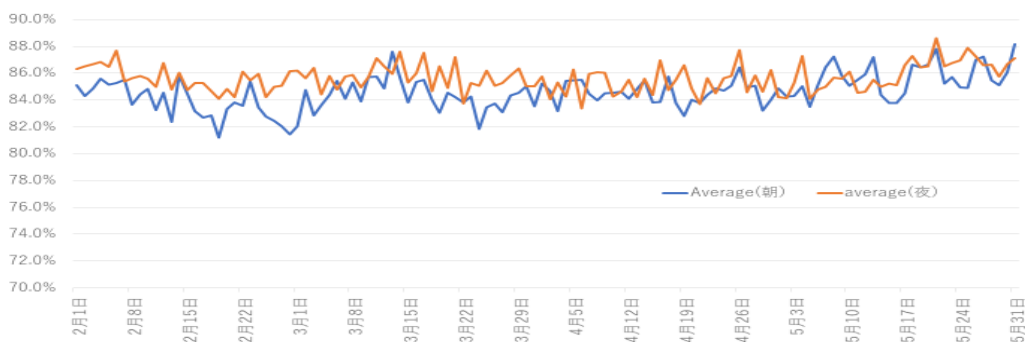


図2-6、%PEF(朝、夕) 2021.2.1～5.31

一般に朝の肺機能が夕方よりも低値を取るが今回のグラフでもその傾向はみられる。特に2020年における値にはその現象がみられる。喘息患者でもmorning dipは気道の過敏性の目安でもあり、2021年の方が症状が安定しているとも考えられる。あるいは、気道刺激が少ないと考えるべきである可能性もある。何れにせよ、朝晩のPEF値に差がみられる傾向は2～3月に強い。特にそれは2020年に見られる。

また、上述した2月の咳嗽とPEFの低下の一致する箇所に関しては、この年の2月は汚染物質濃度の高い日が多く2月2日を中心とした山（高い値）、2月8日から12日にかけてと2月21～23日にかけての山がみられたことと一致する傾向があり、汚染濃度が高い時期にあることによる可能性があり、今後も注

意深い観察を要する。

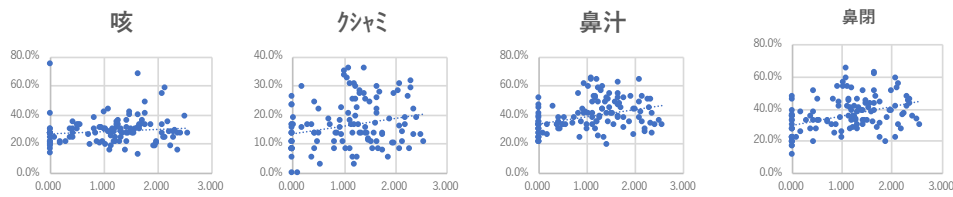
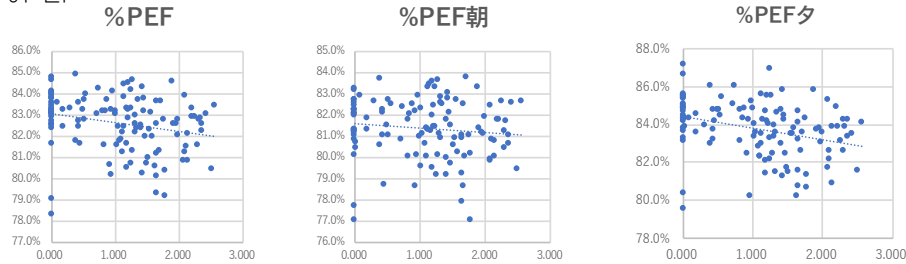
(症状と汚染物質濃度の関連)

表2-1に気道症状として咳、くしゃみ、鼻水、鼻閉の鼻症状と%PEFとの関連を単変量解析(Spearman 's test)した結果を示した。

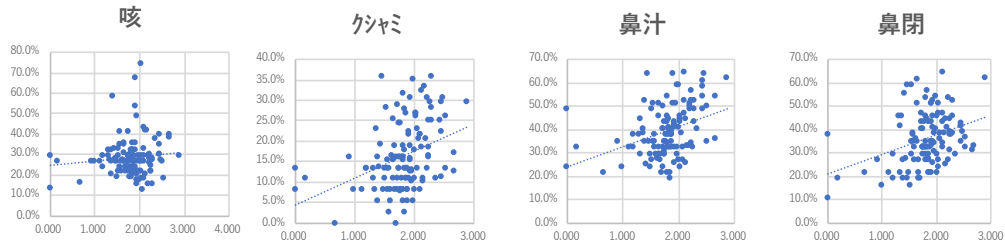
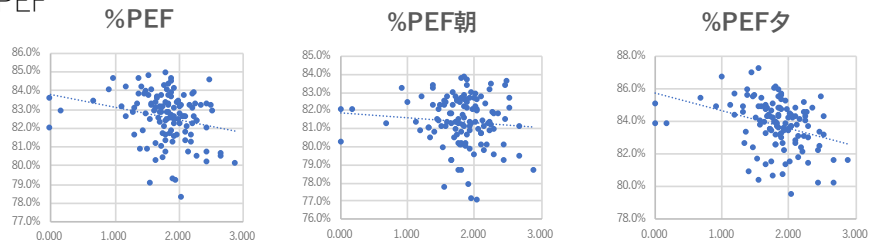
表 2-1 : 汚染物質濃度と気道症状および%PEFの相関					%personal best PEF		
	咳	クシャミ	鼻水	鼻閉	平均	朝	夕
PM2.5	0.0025	0.159	0.066	0.085	0.047	0.099	0.023
	0.9786	0.081	0.475	0.352	0.610	0.280	0.804
Cl-	0.2311*	0.2622**	0.3745**	0.4084**	-0.3297**	-0.178	-0.3960**
	0.0108	0.0037	0.000	0.000	0.000	-0.051	0.000
NO3-	0.0758	0.4030**	0.405**	0.3148**	-0.2527**	-0.075	-0.3545**
	0.4086	4.6E-06	4.07E-06	0.00044	0.0052	0.4136	6.63E-05
SO42-	0.0615	0.0173	0.0579	0.0647	0.00398	-0.0257	0.0608
	0.5025	0.8505	0.5283	0.4809	0.9655	0.7793	0.5074
Na+	-0.2941**	-0.2559*	-0.3552**	-0.3023	0.2629	0.1791	0.3003
	0.0011	0.0046	6.38E-05	0.00075	0.0018	0.0638	0.0008
NH4+	0.0292	0.177	0.0832	0.0145	0.0564	-0.0069	0.0579
	0.7503	0.0521	0.3645	0.8747	0.5389	0.9404	0.5281
K+	0.0871	0.0733	0.1126	0.1575	0.2373**	0.1887*	0.2572**
	0.342	0.4245	0.2188	0.0844	0.0087	0.0382	0.0044
Ca2+	0.0156	0.1185	0.1177	0.3443**	-0.2079*	-0.1323	-0.2215*
	0.8648	0.1955	0.1987	0.00011	0.0272	0.1498	0.0146
Mg2+	0.1638	0.1249	0.1235	0.1688	-0.1028	-0.1717	0.0375
	0.0727	0.1723	0.1112	0.0642	0.262	0.0597	0.697
TPAHs	0.1461	0.2039*	0.2055*	0.2071*	-0.103	0.0049	-0.1850*
	0.1098	0.0249	0.0238	0.0227	0.2611	0.9579	0.0423

Spearman 's test, 上段 : 相関係数、下段 : p 値 **:p<0.01, *:P<0.05, (Two taile)

今回の検討ではいくつかの項目において有意差が認められたがNaイオンに関しては、関連が逆相関であり、気道に対しては保護的に働く可能性が考えられた。上記のいくつかの有意であった関係については散布図を示す。

Cl⁻と症状Cl⁻と%PEF図2-7：Cl⁻と症状及び%PEFの分布

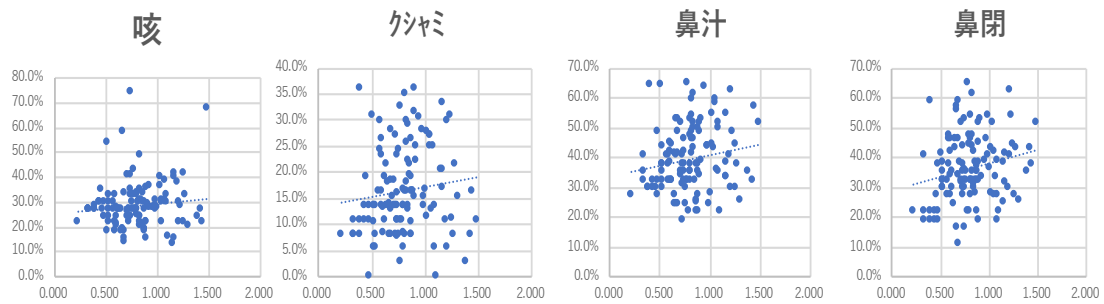
2月1日から5月31日の121日間での夫々の日にちでの症状を有する者の割合はClイオンの濃度の高い日においてはわずかながら有意に高くなっている。また、濃度の高い日においては%PEFの値が低い者が増加する（肺機能が悪化する）ことが分かる。

NO₃⁻と症状NO₃⁻と%PEF図2-8：NO₃⁻の値とその日の有症状者の割合

この図ではイオン濃度の高い日では鼻症状（クシャミ、鼻水、鼻づまり）を示すものの割合が増加する傾向が明らかである（表2-1参照）。咳嗽よりも鼻症状の方が汚染物質濃度との関連する傾向がはっきり見える。これは、日誌を記載している保護者にとっては、咳という症状よりも鼻症状の方が慣れていない、または、ティッシュペーパーを使用するなどの点から記憶に強い、印象に強い症状であること、または本人も咳には日常的に慣れてしまっている可能性も否定できないことなどが関連している可能性があると思われる。

呼吸機能に関しては、客観的数値としての指標であるPEFの低下がこれも明らかである。

TPAH s と症状



TPAH s と%PEF

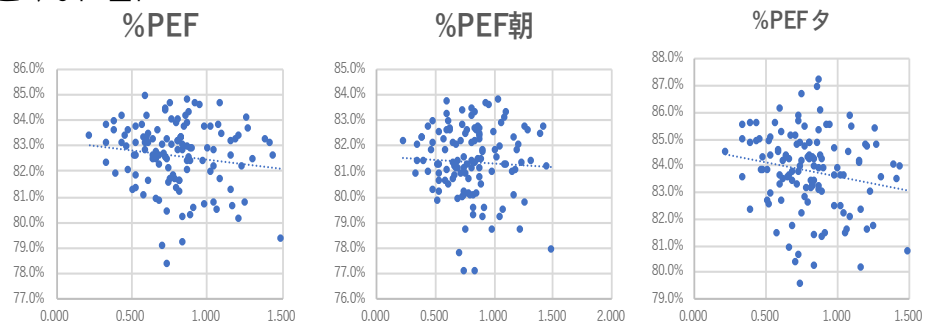


図2-9 : TPAH s と症状、%PEF の関連

今回の検討ではTPAHに関しては鼻症状との関連は見られたが%PEFに関しては夕方方の値とのみ関連がみられた。小児期の慢性咳嗽の原因としては実際は鼻炎または副鼻腔炎による後鼻漏の刺激によって誘発される持続性の咳嗽が多い。従って、鼻症状に影響するという事は慢性咳嗽に関連する可能性が高く、今回の結果は大変に興味深いものがある。しかし、上述したように今回は咳との関連がはっきりしない点がある。その理由に対する考察は、上述したものが1つ考えられる。もう1つ2020年以降の検討ではCOVID-19の流行によって日常生活に大きな変化が起きてしまった点を考えなければならない。この点に関しての検討には限界があるが、それに関しては後述する。従って、2020年の2-3月に限局して考えることにも意味があるかもしれない。

(以上の結果に関連した多変量検討)

以上の単変量解析で有意であった項目を中心に多変量解析を試みた。しかし、症状に関しては R^2 が0.2を大きく超えるものはなく、当てはまりの良い式は得られなかった。ここでは%PEFに関するものを以下に示す。

%PEF

Residuals:

Min	1Q	Median	3Q	Max
-3.7843	-0.8862	0.0724	0.9851	2.4092

Coefficients:

	Estimate	Std. Error	t value	Pr(> t)
(Intercept)	84.6100	0.4082	207.262	< 2e-16 ***
NO ₃ ⁻	-0.6793	0.1446	-4.697	7.31e-06 ***
Na ⁺	3.1586	0.7245	4.359	2.84e-05 ***
K ⁺	4.6089	1.1254	4.095	7.83e-05 ***
Ca ²⁺	-53.1571	22.4445	-2.368	0.0195 *

Signif. codes: 0 '***' 0.001 '**' 0.01 '*' 0.05 '.' 0.1 ' ' 1

Residual standard error: 1.394 on 116 degrees of freedom

Multiple R-squared: 0.3694, Adjusted R -squared: 0.3476

F-statistic: 16.99 on 4 and 116 DF, pvalue: 5.462e-11

予測式による値と測定値との関連を次の図に示した。

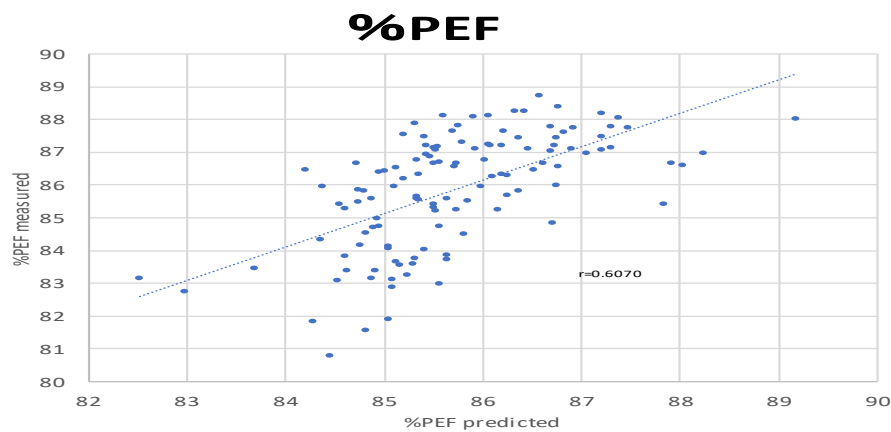


図2-10 予測式による%PEFと実測値との関係

この式では比較的良好な相関を示したと考えられる。

(今回の検討での検討時期に関する検討)

発作時の吸入の頻度とPAH濃度の関連に関する検討からの検討・考察

次に示す図2-11は発作時に吸入した頻度とtotal PAH濃度との関連である。2月始めの値で見ると朱色で示したPAH濃度の高い日には明らかに喘息発作での吸入をしたものの頻度が上昇していてそのピークは一致している。しかし、同様の濃度の日であってもその後からは一致していない。

発作時の吸入頻度とPAH濃度の推移

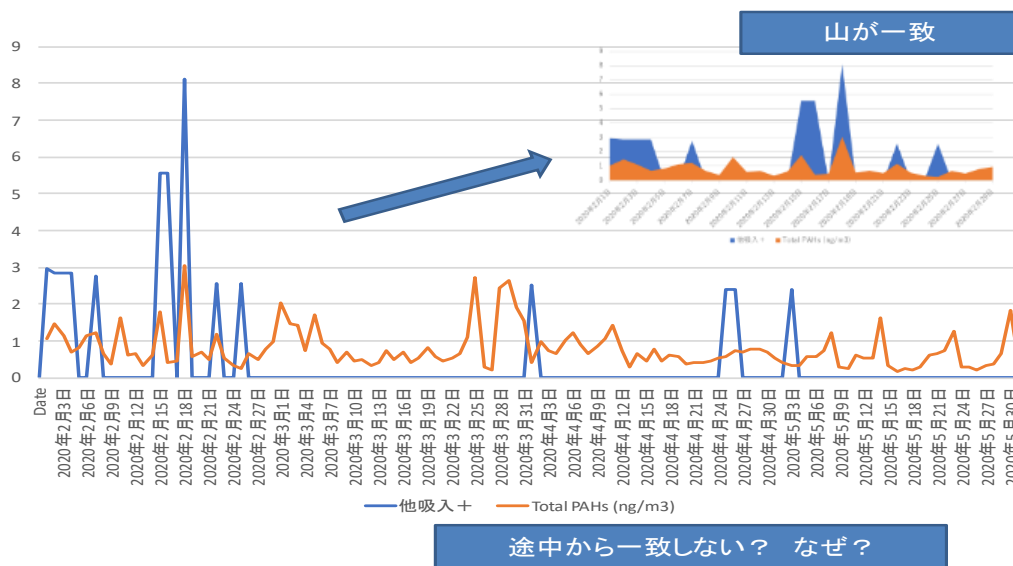


図2-11：発作治療のために吸入した者の割合とPAH濃度の関係（2020年2～5月）

2月末から急に一致しなくなった。すなわち濃度の高い日でも発作が起きていない。そこでこの3月以降では2月とは何が異なるのかを考察した。

発作時の吸入頻度とPAH濃度、コロナ対応の推移

新型コロナウイルスに関する発表(厚労省)初登場2020年1月6日

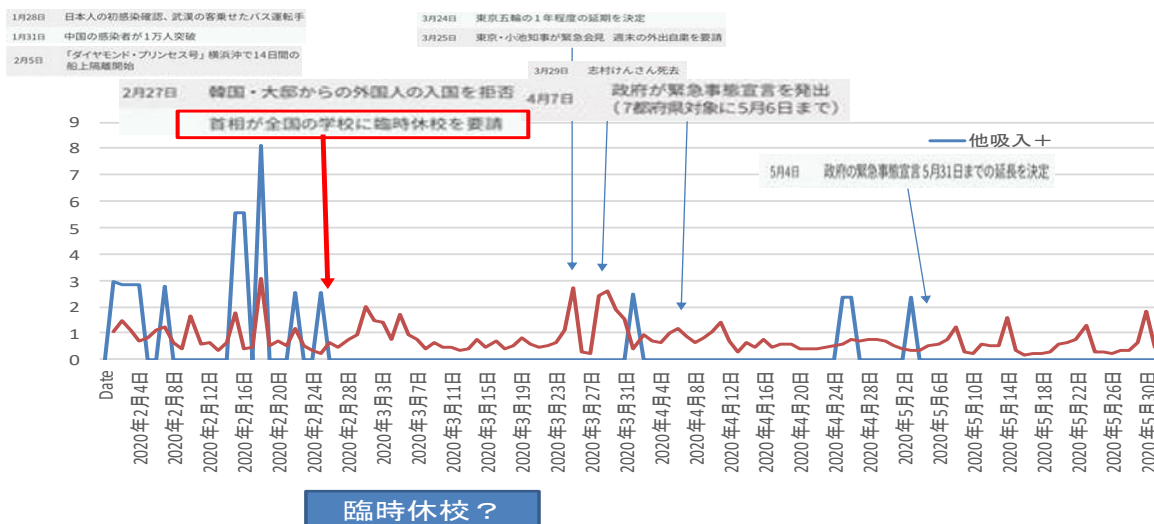


図2-12：コロナウイルスの流行と日常生活の変化

この間の大きな変化は先ずコロナウイルスの流行である。2月24日まではPAH濃度と症状に関連があると見えるのだが2月27日に政府が全国の小学校に臨時休校を求めた。すなわち小児が外出をしなくなった。また、マスクの普及が徐々に始まった。しかし、2月の頃にはまだマスクの普及は十分ではなく、薬局でも棚からマスクがなくなり、病院職員には優先的に配布されたがそれも不足であった。客観的なマスクの普及に関する資料は入手困難であったが、値段で見ると、5月20日までは上昇を続け、その後急速に低下している。この間は不足の傾向にあったと推定されるが5月20日以降は普及し値下げが始まった。

表 9.大気汚染時の効果の実感

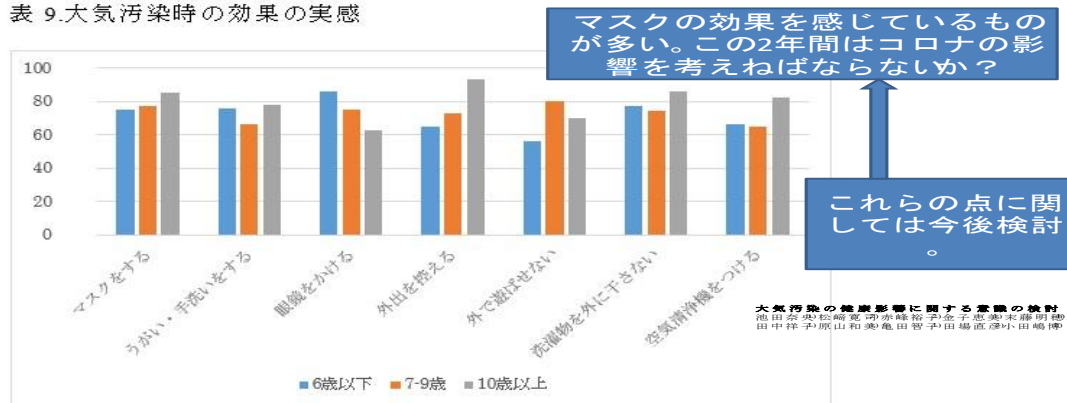


図2-13：大気汚染時の効果の実感のある防御方法

一方、図2-13はコロナ流行以前に患者家族で調査した大気汚染がみられる時の効果のある防御方法であるが年齢を問わずマスクが挙げられている[9]。

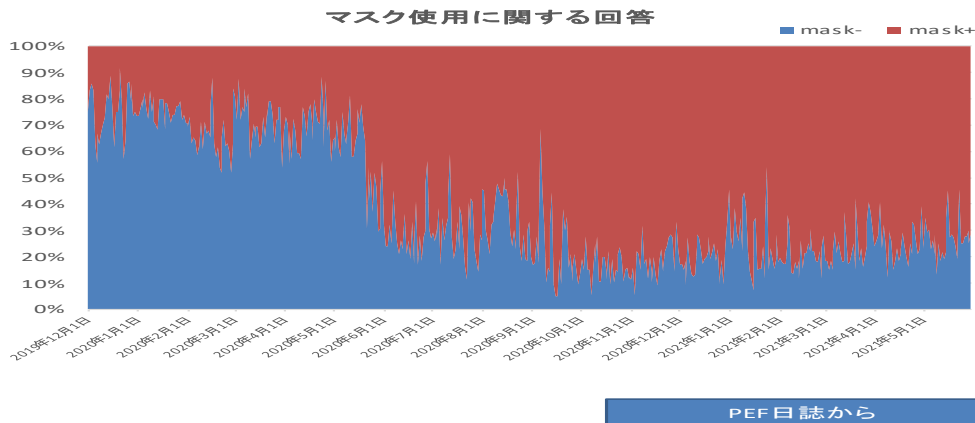


図2-14：対象者のマスクの使用状況

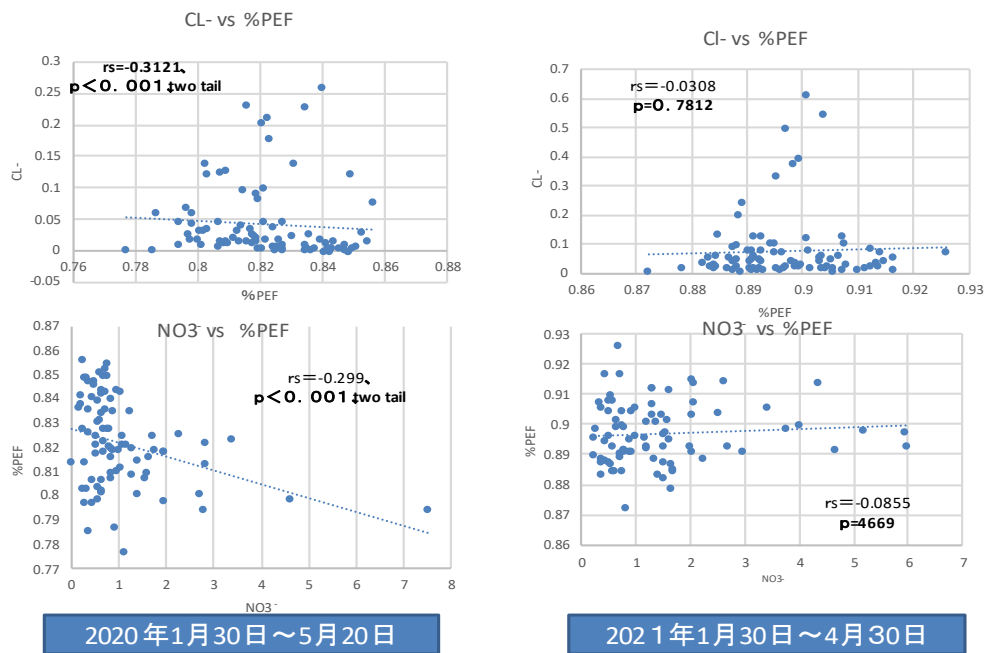
図2-14から分かるように2020年5-6月前はマスクは約70-80%が使用していなかったのがその後は70-80%が使用するようになった。また、小学校は少なくとも5月一杯は休校であった。これらの事項が汚染物質の影響に関与しておりそれが結果に影響して（不鮮明にして）いると推定された。そこで、マスクをしていないものも多かった2020年としている者が殆どであった2021年で比較した。

表2-2、マスクの非使用時期と使用時期の汚染物質と%PEFの相関

%PEF vs	2020.1.30— 5.20		2021,1.30—4.30	
	rs	p	rs	p
PM _{2.5}	0.0929	0.197	0.0137	0.901
Cl ⁻	0.3121	0.034**	0.0308	0.781
NO ₃	0.2990	0.005**	0.0805	0.467
SO ₄ ²⁻	0.1279	0.241	0.0337	0.751
Ca ₂ ⁺	0.0000	0.999	0.0855	0.439
Mg ₂ ⁺	0.1881	0.041*	0.0120	0.911
NH ₄ ⁺	0.0643	0.557	0.0344	0.756

この表で見られるようにマスクの非使用時期には3項目で有意な相関がみられたが、使用時期には一項目も関連がみられなかった。

散布図で示すと次の図2-15のようであった。



マスク使用頻度25%(左)vs80%(右)

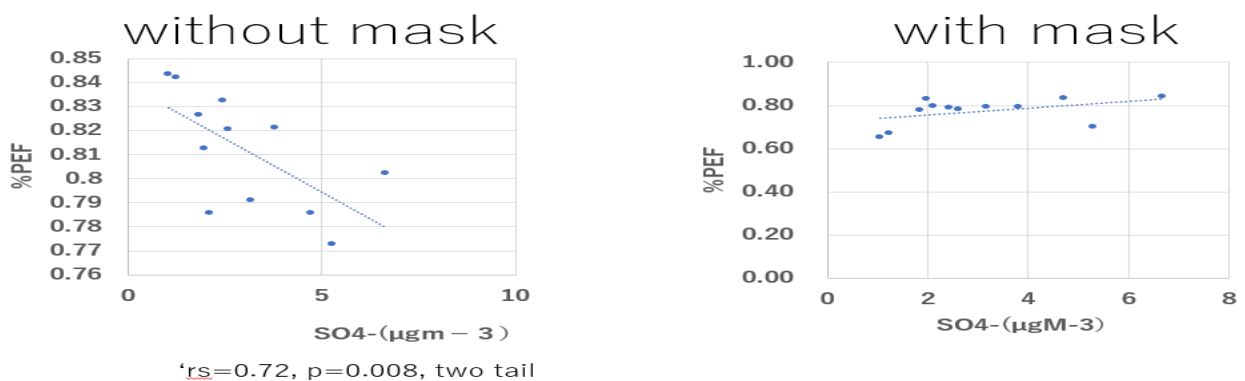
図2-15：マスクの使用の普及前後でのCl⁻、NO₃⁻濃度と%PEFの関連

マスクが普及した時点では有意な関連はなくなっている。

(高濃度汚染時のマスクの効果に関する検討)

マスクの影響を検討するに当たって上記の方法とは別に、実際にマスクをしていたと答えた者と、マスクをしていなかったと答えた者では濃度の高い日にはどうであろうか？これに対する汚染物質の影響を検討した。また汚染物質の影響に関しては汚染物質濃度が特に高いと高見らが指摘した日について検討した。具体的には2020年2月の12日間を選んだ。

図2-16 SO₄⁻ vs %PEF(in the morning)



その日にちの汚染物質と%PEFの関係をみると図2-16に示したようにマスクをしていないとSO₄⁻濃度と%PEFは朝も夕も有意な高い相関を示し、濃度が高いと%PEFは低値となるが、マスクをしていると

そのような関係は見られなかった。NO₃⁻やPM_{2.5}に関してはこのような明らかな関係は見られなかったが、NO₃⁻に関しては影響が失せ気たものと考えられた。

マスクの使用や手洗いが、COVID19に関しては感染防御効果があることが報告されているが、大気汚染物質に関する報告はほとんどない[10]。

これが単にマスクの影響なのか、または学校での活動の制限の問題などが関与するのかまたは、その他の原因によるのかの評価は簡単ではないが、マスクの効果である可能性は一定程度のものがあると推定される。いずれにせよ今後の検討課題である。

まとめ

- 1) 気道症状および肺機能(%PEF)に与える汚染物質の関連を検討し以下の可能性が推定された。
 - ① 咳嗽に対してはCl⁻が悪化因子として関与する。Naは保護的に関与する。
 - ② 鼻症状に対してはCl⁻、NO₃⁻、TPAHが悪化因子として関与する。Naは保護的に関与する。
 - ③ %PEFに対してはCl⁻、NO₃⁻、Ca²⁺、TPAHが悪化因子として関与する。K⁺は保護的に関与する。
- 2) 大気汚染物質に対する予防的方法としては、患者家族の印象、また、マスクの普及した時期とその以前との検討から、マスクは有効である可能性が推定された。
- 3) 今回の検討では、コロナウイルス流行、また、それによる日常生活の全国的制限などで非日常的な制約があった。今後、日常生活が回復した時点での大気汚染物質の影響に関しては考察を加える必要がある。
- 4) また、現在PM_{2.5}濃度の低下が言われているが、今なおその健康影響には注意が必要と考えられた。

以上、福岡での大気汚染物質の結果と対象者のPEF日誌に基づく症状および%PEF値との関連について検討し、考察を加えた。今回の検討では、コロナウイルス感染症の流行が症状やPEF値に対して影響を与えていると考えられ、コロナ感染の流行が無い時点、それはマスクをしない、普通に外来受診のできる日常生活での大気汚染の健康影響という点では不十分な結果になった可能性がある。しかし、それでも、一定の影響が推定される結果であり、更にマスクの有用性をも推定させる結果であったと考えられる。今後も検討を加えて行きたい。

5. 研究目標の達成状況

2020年からの症状の観察に備えて、2019年12月から日誌を配布始めた。また、五島福江市の五島中央病院を訪問し調査協力を依頼した。しかしながら、コロナウイルスの流行により、その後、県境を越えた旅行が禁止され、五島を訪問することが困難となり、また、患者の病院受診回数が減少、電話再診制度などが作成され、会議・打ち合わせも困難となり、患者の登録が困難となった。それでも、福岡約150、五島約20名の登録が行われたが、日誌の回収はその半分から60%ぐらいになってしまった。それでも、約80名のデータを分析し一定の結果を導き出すことができ、大気環境中のPM_{2.5}と咳およびPEFとの相関関係が導き出せた(図2-1,2,3,4,5,6)。このように当初の目的である、汚染物質の影響に関しては一定の結論が得られたと考えている。

6. 引用文献

- 1、Odajima H, Kawano T, Wakatsuki M, et al. Annual changes in the prevalence of asthma may be related to air pollution in Fukuoka: 29 years of observation. ERJ Open Res 2020; 6:00166-2020 [https://doi.org/10.1183/23120541.00166-2020]
- 2、Environmental Health Department, Japanese Ministry of the Environment. Report of environmental health surveillance related to air pollution, 2018.
- 3、Ueda K, Nitta H, Odajima H. The effects of weather, air pollutants, and Asian dust on hospitalization for

- asthma in Fukuoka. *Environ Health Prev Med* 2010; 15: 350–357. doi:10.1007/s12199-010-0150-5CrossRefPubMedGoogle Scholar
- 4、Hasunuma H, Yamazaki S, Tamura K, Hwang YH, Ono R, Amimoto Y, David J Askew, Odajima H, Association between daily ambient air pollution and respiratory symptoms in children with asthma and healthy children in western Japan. *Journal of Asthma*, 2018, 55(7):712-719.
- 5、Lee SH, Lee KW, Hwang YH, et al. The effect of short-term particulate matter 2.5 exposure on asthma attacks in asthma children in Fukuoka. *Japan. Kosin Med J* 2018; 33: 171–180. doi:10.7180/kmj.2018.33.2.171Google Scholar
- 6、Odajima H, Yamazaki S, Nitta H. Decline in peak expiratory flow according to hourly short-term concentration of particulate matter in asthmatic children. *Inhal Toxicol* 2008; 20: 1–10. doi:10.1080/08958370802311151CrossRefPubMedGoogle Scholar
- 7、Hasunuma H, Takeuchi A, Ono R, Amimoto Y, Yoon Ha Hwang, Uno I, Shimizu A, Nishiwaki Y, Hashizume M, Askew DJ, Odajima H, Effect of asian dust on respiratory symptoms among children with and without asthma, and their sensitivity. *Sci Total Environ*, 2021,20;753:141585, Doi:10.1016/j.scitotenv.2020.141585, Epub2020 Aug 18
- 8、Nakamura T, Nishiwaki Y, Hashimoto K, Takeuchi A, Kitajima T, Komori K, Tashiro K, Hasunuma H, Ueda K, Shimizu A, Odajima H, Moriuchi H, Hashizume M, Association between asian dust exposure and respiratory function in children with bronchial asthma in Nagasaki Prefecture, Japan, *Environ Health Prev Med*, 2020 Mar 4; 25(19:8. doi: 10.1186/s 12199-020-00846
- 9、池田奈央、松崎寛司、赤峰裕子、金子恵美、末藤明穂、田中祥子、原山和美、亀田智子、田場直彦、小田嶋博、大気汚染の健康影響に関する意識の検討、日本アレルギー学会雑誌、投稿中。
- 10、Hiroshi Ueki, Yuri Furusawa, Kiyoko Iwatsuki-Horimoto, Masaki Imai, Hiroki Kabata, Hidekazu Nishimura, and Yoshihiro Kawaoka, Effectiveness of face masks in preventing airborne transmission of SARS-CoV-2, *mSphere*, DOI:10.1128/mSphere.00637-20)

II-3 能登半島と金沢における物理・化学解析研究に関する研究

国立大学法人金沢大学

環日本海域環境研究センター	早川 和一
環日本海域環境研究センター	唐 寧
環日本海域環境研究センター	松木 篤
環日本海域環境研究センター	猪股 弥生
環日本海域環境研究センター	本田 匡人

[要旨]

サブテーマ3の金沢大学グループでは、本課題研究で疫学調査を実施地域と連動させて、金沢市、福岡市（以上都市）、能登半島、福江島（以上バックグラウンド）で大気粉塵を連続捕集し、主として含有されるPAH類とNPAH類を分析し、これら成分の大気中濃度を追跡するとともに、新規に開発した発生源開発法を用いて、これら成分の発生源（自動車及び石炭燃焼など）の寄与についても解析した。その結果、粒子濃度は黄砂飛来によって地点共通の変化を示したが、PAHやNPAH及びPcの濃度の経日変化は、4地点間で相関性が乏しかったが、毎月の平均濃度の推移には強い相関が認められ、粒子濃度とは全く異なる推移を示した。即ち、これらPyrと1-NP及びPc濃度の季節変化は我が国の4地点に共通する季節的な気象要因に依存するが、毎日の発生源状況や気象条件に伴う気流ルートの影響を受けるという違いがあり、慢性咳嗽疾患の増悪に影響する環境因子に関する重要な事実を明らかにすることができた。

1. 研究開発目的

- 1) 能登半島、金沢市、福江島、福岡市に從來から調査を継続している金沢市郊外（参考地点）で、大気中の総浮遊粒子状物質（SPM）若しくは微細粒子状物質（PM_{2.5}）を連続同期捕集し、これらの捕集量を秤量する。
- 2) 上記試料について、PAH類をHPLC-蛍光検出法で定量、ニトロPAH（NPAH）類をHPLC-自動還元/化学発光検出法とGC-MS/MSで定量。PAH水酸化体（OHPAH）類、PAHキノン体（QPAH）についても、必要に応じてLC-質量分析（MS）法、GC-MS/MSで定量する。
- 3) ピレン（Pyr）と1-ニトロピレン（1-NP）の濃度組成から発生源の寄与を解析できる新規NP法を開発して、これを用いて、上記の試料について解析する。
- 4) 気象データを合わせて、PMやPAH類の濃度変化を追跡する。
- 5) 以上の結果をサブテーマ1の症状との量反応解析に提供する。

2. 研究目標

- 1) 能登半島（輪島観測所）で2019年12月から2020年5月及び7～8月にPM_{2.5}とPM_{2.5-10}を分別毎日捕集。金沢市（サブテーマ1担当）、長崎県福江島（サブテーマ4担当）及び福岡県福岡市（サブテーマ2担当）でも同期捕集。金沢市郊外（参考地点）で捕集した過去の試料も併せて、PM_{2.5}とPM_{2.5-10}の捕集量を秤量。
- 2) 上記試料について、9種PAH類をHPLC-蛍光検出法で定量。7種ニトロPAH（NPAH）類、16種PAH水酸化体（OHPAH）類、32種PAHキノン体（QPAH）についても、必要に応じてそれぞれ開発した分析法：HPLC-自動還元/化学発光検出法、LC-質量分析（MS）法、GC-MS/MSで定量。
- 3) ピレン（Pyr）と1-ニトロピレン（1-NP）の濃度組成から発生源の寄与を解析できる新規NP法を用いて、①の試料について、自動車と石炭燃焼の寄与を計算。
- 4) 気象データを合わせて、PMやPAH類の発生源シミュレーションモデルを構築。
- 5) 以上の結果をサブテーマ1の症状との量反応解析に提供。

3. 研究開発内容

(1) 大気粉塵捕集地点

SPM若しくはPM_{2.5}を、ハイボリュームエアサンラーを用いて捕集した。サンプラーの設置場所は、福

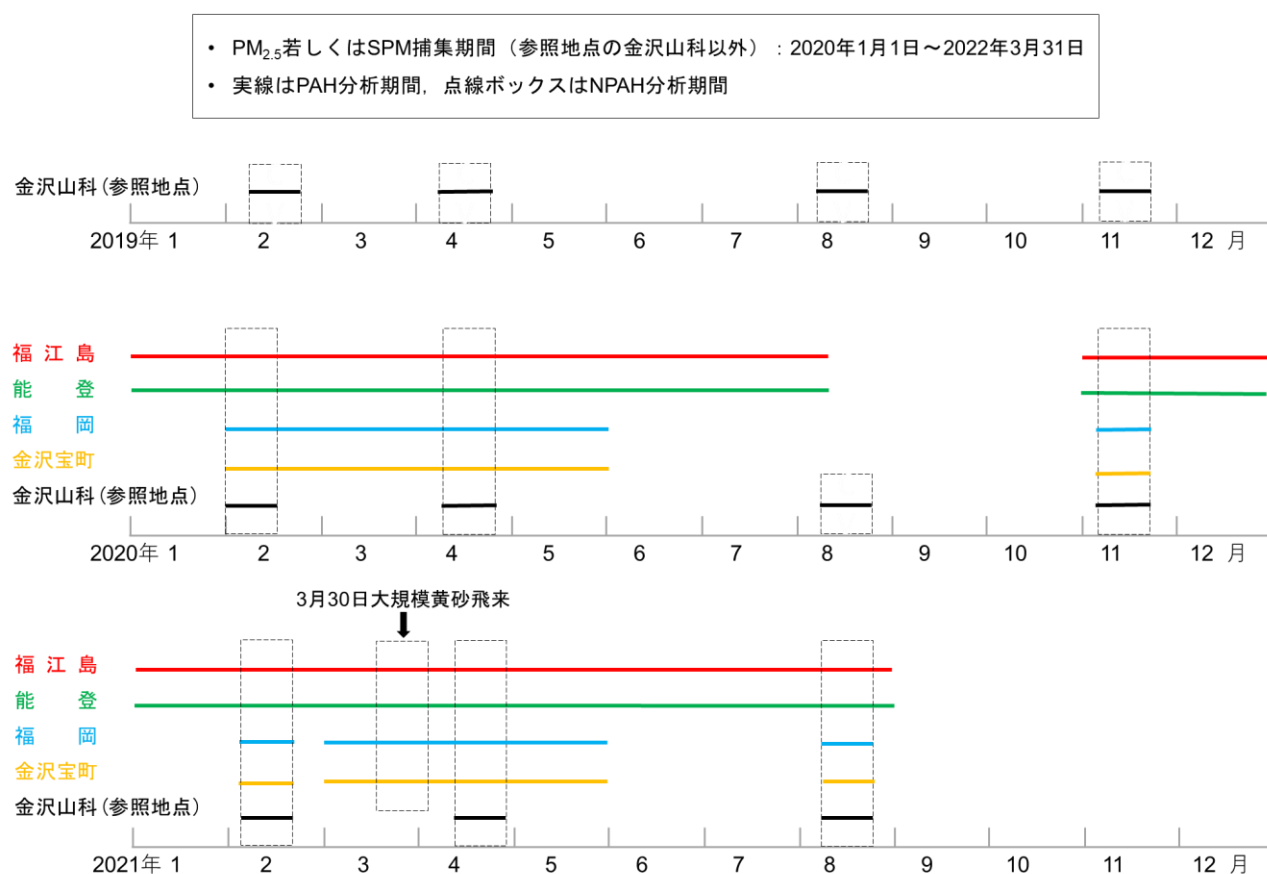
岡（福岡病院屋上、以下図表ではFukuoka）、金沢宝町（金沢大学医学部屋上、Kanazawa T）（以上、都市）、福江島（五島中央病院屋上、Fukue）、能登輪島（金沢大学能登輪島大気観測所、Noto W）（以上、バックグラウンド）及び金沢市山科測定局（長期観測を実施している参照地点、Kanazawa Y）である。

（2）調査期間

SPM若しくはPM_{2.5}（24時間捕集）：都市及びバックグラウンド地点では、2020年2月1日～2022年3月31日に毎日連続して実施した。参照サイト（PM_{2.5}）では、2020年2月、4月、8月、11月、2021年2月、3月及び4月に、それぞれ連続する2週間連続捕集を実施した。尚、2021年3月30日は、わが国で最近では最も大規模な黄砂が観測された。PAH分析：2020年1月～2021年8月31日の試料について実施した。NPAH分析：参照地点のPM_{2.5}捕集と同じ期間の試料について実施した（詳細は表3.1を参照）。

また、金沢市山科測定局（参照地点）では以前から、季節毎に2週間ずつPM_{2.5}捕集（24時間）を継続しており、本研究では2017年及び2018年度に捕集した試料の一部も用いた。

表3.1. PAH, NPAH分析状況



（3）捕集フィルターの調製

大気粉塵捕集用フィルターは、予め金沢大学で一枚ずつ秤量してからサブテーマ1、2及び4に送付した。各サイトで大気粉塵捕集したフィルターは金沢大学に返送してもらい、数日間恒温恒湿に保存した後、SPMとPM_{2.5}の捕集量を秤量した。

（4）PAH及びPAHニトロ体（NPAH）の測定

捕集PM_{2.5}の秤量後のフィルターを捕集域の1/4面積毎に分割した。分割域を更に細切してガラス容器に入れてから、内標準（重水素化PAHおよびNPAH類）を添加し、有機溶剤混液でPAHとNPAH類を有機相に抽出した。有機相を希水酸化ナトリウム水溶液、希硫酸水溶液及び蒸留水で順次洗浄し、残った有

機相に微量のジメチルスルホキシドを添加後、減圧溜去した。残渣を少量のエタノールに再溶解してHPLC分析の試料溶液とした。

PAH 類は HPLC-蛍光検出法若しくは GC-MS 法を用いて、4~6 環のフルオランテン (Fluoranthene, Frt)、ピレン (Pyrene, Pyr)、ベンゾ[a]アントラセン (Benzo[a]anthracene, BaA)、クリセン (Chrysene, Chr)、ベンゾ[a]フルオランテン (Benz[a]fluoranthene, BaF)、ベンゾ[b]フルオランテン (Benzo[b]fluoranthene, BbF)、ベンゾ[k]フルオランテン (Benzo[k]fluoranthene, BkF)、ベンゾ[a]ピレン (Benzo[a]pyrene, BaP)、ベンゾ[ghi]ペリレン (Benzo[ghi]perylene, BgPe)、ジベンツ[ah]アントラセン (Dibenz[ah]anthracene, DA)、インデノ[1,2,3-cd]ピレン (Indeno[1,2,3-cd]pyrene, IDP) の 10 種類を分析した。NPAH 類は HPLC-HPLC-化学発光検出法を用いて、1,3-ジニトロピレン (1,3-Dinitropyrene, 1,3-NDP)、9-ニトロアントラセン (9-Nitroanthracene, 9-NA)、1-ニトロピレン (1-Nitropyrene, 1-NP)、2-ニトロピレン (2-Nitropyrene, 2-NP)、1-ニトロフルオランテン (1-Nitrofluoranthene, 1-NFR)、2-ニトロフルオランテン (2-Nitrofluoranthene, 2-NFR)、6-ニトロクリセン (6-Nitrochrysene, 6-NC)、7-ニトロベンゾ[a]アントラセン (7-Nitrobenz[a]anthracene, 7-NBaA)、6-ニトロベンゾ[a]ピレン (6-Nitrobenzo[a]pyrene, 6-NBaP)、1-ニトロペリレン (1-Nitroperylene, 1-NPer) の 10 種類を分析した¹⁾。

尚、PAH分析に当たっては、サブテーマ1及び3の異なる3研究室でHPLC-蛍光検出法とGC-MS法を用いるため、精度管理を目的に実大気粉塵及びPAH添加フィルターを用いてバリデーションを実施し、標準試料及び実大気試料中の対象PAH全ての測定値が20%以内となることを確認してから実施した。

(5) 水酸化体 (OHPAH) 及びキノン体 (QPAH) の測定

1) PAH水酸化体 (OHPAH) の分析

フィルターの捕集域の1/4面積に分割したものを、更に細切してガラス容器に入れてから、内標準(重水素化OHPAH類)を添加し、ペンタン-エタノール混合液でOHPAH類を有機相に抽出した。有機相を窒素吹付して濃縮し残渣を再度エタノールに溶解させた。溶液を固相抽出 (Bond Elut NH₂) で精製し、溶出液をフィルターろ過してHPLC-質量分析法 (LC-MS法) の試料溶液とした。

OHPAH類はLCMSを用いて次の16種類を分析した²⁾。1-水酸化ナフタレン (1-OHNap)、2-水酸化ナフタレン (2-OHNap)、1-水酸化フルオレン (1-OHFlu)、2-水酸化フルオレン (2-OHFlu)、3-水酸化フルオレン (3-OHFlu)、1-水酸化フェナントレン (1-OHPhe)、2-水酸化フェナントレン (2-OHPhe)、3-水酸化フェナントレン (3-OHPhe)、4-水酸化フェナントレン (4-OHPhe)、9-水酸化フェナントレン (9-OHPhe)、1-水酸化ピレン (1-OHPyr)、2-水酸化クリセン (2-OHChr)、3-水酸化クリセン (3-OHChr)、6-水酸化クリセン (6-OHChr)、3-水酸化ベンツ[a]アントラセン (3-OHBaA)、3-水酸化ベンゾ[a]ピレン (3-OHBaP)。この内、1-OHPheと9-OHPhe、2-OHPheと3-OHPhe、2-OHChrと3-OHChr、6-OHChrと3-OHBaAはそれぞれ検出時に分離できなかったため、合算値とした。

2) PAHキノン体 (QPAH) の分析

フィルターを捕集域の1/4について更に細切してガラス容器に入れてから、ジクロロメタンによる超音波抽出を行なった。抽出液にジメチルスルホキシドを添加した後で減圧濃縮し、超音波抽出した後、ろ過してから溶媒を留去した。トルエンに再溶解してから5% HClを含む飽和NaCl溶液で液-液抽出して精製した。誘導体化は、亜鉛とジチオスレイトール存在下でTMS化試薬 [BSA+TMCS+TMSI (3:2:3)] を加えて80°C、30分間で行った。誘導体化後、ヘキサンと水を加えて抽出して得られたヘキサン相を乾固してヘキサンに再溶解してGC-MS/MS分析の試料溶液とした。

QPAH類はGC-MS/MS法を用いて次の32種類を分析した³⁾。1,2-ナフトキノン (1,2-NQ)、1,4-ナフトキノン (1,4-NQ)、2-メチル-1,4-ナフトキノン (MNQ)、アセナフトキノン (AceNQ)、1,4-アントラキノン (1,4-AQ)、1,4-フェナントレンキノン (1,4-PQ)、1,4-クリセンキノン (1,4-CQ)、ベンゾ[c]フェナントレン-1,4-キノン (BcP-1,4-Q)、9,10-フェナントレンキノン (9,10-PQ)、フルオランテン-2,3-キノン (Frt-2,3-Q)、9,10-アントラキノン (9,10-AQ)、ベンゾ[a]アントラセン-7,12-キノン (7,12-BAQ)、2-メチル-9,10-アントラキノン (MAQ)、2,3-ジメチルアントラキノン (DMAQ)、アセアントラキノン (AceAQ)、イソプロピル-7-メチル-9,10-フェナントレンキノン (iPr-PQ)、5,6-クリセンキノン (5,6-

CQ)、ベンゾ[c]フェナントレン-5,6-キノン (BcP-5,6-Q)、4,5-ピレンキノン (4,5-PyrQ)、1,8-ピレンキノン (1,8-PyrQ)、1,6-ピレンキノン (1,6-PyrQ)、1,2-クリセンキノン (1,2-CQ)、ベンゾ[a]ピレン-11,12-キノン (BaP-11,12-Q)、ベンゾ[a]ピレン-4,5-キノン (BaP-4,5-Q)、ベンゾ[a]ピレン-7,8-キノン (BaP-7,8-Q)、ベンゾ[a]ピレン-6,12-キノン (BaP-6,12-Q)、ベンゾ[a]ピレン-7,10-キノン (BaP-7,10-Q)、ベンゾ[a]ピレン-3,6-キノン (BaP-3,6-Q)、ベンゾ[a]ピレン-1,6-キノン (BaP-1,6-Q)、ベンゾ[e]ピレン-4,5-キノン (BeP-4,5-Q)、ジベンズ[a,h]アントラセン-5,6-キノン (DBahA-5,6-Q)、ジベンズ[a,h]アントラセン-7,14-キノン (DBahA-7,14-Q) を用いた。

(6) 大気粉塵試料の保存

捕集した大気粉塵試料 (表3.1) については、PAH及びPAHニトロ体 (NPAH) の測定に使用した残りのフィルター及び未分析のフィルターは、本課題研究の実施期間後も冷凍庫保存している。

(7) 大気粒子状物質の新規発生源解析法の開発

1) 理論

有機物の燃焼に伴って空気または燃料中の窒素の一部は窒素酸化物を生成し、窒素酸化物は同時に生成したPAHを更にニトロ化する。この何れの反応も温度に依存して進行する。一般に、ディーゼル/ガソリンエンジンの燃焼室温度は2,700~3,000℃以上、石炭ボイラー/ストーブの燃焼温度は1,100~1,200℃、薪ストーブの燃焼温度は500~600℃といわれる。実際に、ディーゼル車排出PM、石炭ストーブ排出PM及び薪ストーブ排出PM中のPAH、NPAHを測定すると、[NPAH]/[PAH]比はディーゼル車排出PMが最も大きく、薪ストーブ排出PMは最も小さい。

Pyrは4環構造を有する代表的なPAHの一つであり、化石燃料やバイオマスの不完全燃焼で発生し、大気中濃度も比較的高い。大気中では主にPM_{2.5}に結合して存在する。1-NPはPyrのニトロ化反応で生成し、都市大気中の一次発生NPAHの中では最も濃度が高く、主に自動車から排出される。そこで、これら1-NPとPyrをマーカーとして、都市の大気中粒子状物質及びPAH、NPAHに対する発生源の寄与を計算する方法 (NP法) を開発した。

大気微細粒子 (P) はPAH、NPAHを含む燃焼由来微細粒子 (P_c) と土壌や植物、ブレーキや路面削物などPAH、NPAHを含まない非燃焼由来微細粒子 (P_n) から構成される。さらにNP法では、次式のようにP_cを高温燃焼排出源由来微細粒子(P_h) と低温燃焼排出源由来微細粒子 (P_l) に分ける。

$$P = P_c + P_n \text{ ----- (i)}$$

$$P_c = P_h + P_l \text{ ----- (ii)}$$

ここで、P_cに含まれるP_hの割合を x ($0 < x < 1$)、Pに含まれるP_cの割合を y ($0 < y < 1$) とおくと、大気中の P_h、P_l、P_c、P_n 及びPの間には次式が成立する。

$$[P_h] = [P_c]x \quad \text{及び} \quad [P_l] = [P_c](1 - x) \text{ ----- (iii)}$$

$$[P_c] = [P]y \quad \text{及び} \quad [P_n] = [P](1 - y) \text{ ----- (iv)}$$

従って、[1-NP_h]、[Pyr_h]、[1-NP_l]及び [Pyr_l]をそれぞれP_h 及び P_l中の1-NP及びPyrの濃度とすると、大気観測地点における1-NPとPyrの濃度比 ([1-NP]/[Pyr]比) と 1-NP濃度 ([1-NP]) は次式で表される。

$$[1-NP]/[Pyr] = \{[1-NP_h]x + [1-NP_l](1 - x)\} / \{[Pyr_h]x + [Pyr_l](1 - x)\} \text{ ----- (v)}$$

$$[1-NP] = \{[1-NP_h]x + [1-NP_l](1 - x)\}[P]y \text{ ----- (vi)}$$

即ち、式(x)はP_cに含まれるP_hの割合(=x) が[1-NP]/[Pyr]の関数であることを示している。著者らは、自動車 (ガソリン車、ディーゼル車、燃焼温度 2,700~3,000℃)、石炭燃焼 (ボイラー、ストーブ、燃焼

温度 1,00～1,200 °C) およびバイオマス燃焼(薪ストーブ、収穫後圃場稲藁燃焼、燃焼温度 500～600 °C) から出るPM中のPyrと1-NPを測定して比較した結果、これらの濃度比 ([1-NP]/[Pyr]比) は自動車由来PM (0.425) が最も大きく、稲藁野焼き由来PM (0.0038) や石炭ボイラー/ストーブ由来PM (0.0013) より2桁以上も大きい ($P < 0.001$) ことを見出した。そこで、都市の主要発生源であることを考慮して、自動車を高温燃焼排出源、石炭燃焼施設を低温燃焼排出源とし、それぞれから排出される粉塵を P_h 、 P_l とし、それらの平均1-NP、Pyr濃度を(v)、(vi)に代入すると、次のように変換できる。

$$[1-NP]/[Pyr] = \{65.5x + 4.6(1 - x)\} / \{180x + 3,400(1 - x)\} \text{----- (vii)}$$

$$[1-NP] = \{65.5x + 4.6(1 - x)\} [P]_y \text{----- (viii)}$$

即ち(vii)、(viii)より、都市大気中のP及び1-NP、Pyrの濃度がわかれば、その地点におけるx及びyを算出できる⁴⁾。

次に、都市大気中の自動車排出PM (P_h) の1-NPとPyrの割合をそれぞれ a ($0 < a < 1$)、 b ($0 < b < 1$) とすると、石炭燃焼排出PM (P_l) のそれぞれの割合は $1-a$ 、 $1-b$ で表される。その結果、大気中の1-NPとPyrの濃度との間に次の関係式が成立する。

$$[1-NP]_h / [Pyr]_h = [1-NP]_a / [Pyr]_b \text{----- (ix)}$$

$$[1-NP]_l / [Pyr]_l = [1-NP](1 - a) / [Pyr](1 - b) \text{----- (x)}$$

これらに上述の自動車燃焼PM、石炭燃焼PM中の濃度比 ([1-NP]/[Pyr]比) を代入すると、次のように変換できる。

$$0.425 = [1-NP]_a / [Pyr]_b \text{----- (xi)}$$

$$0.0013 = [1-NP](1 - a) / [Pyr](1 - b) \text{----- (xii)}$$

即ち(xi)、(xii)より、都市大気中の P_c に結合する1-NP及びPyrに対する自動車からの排出量の割合も求めることが出来る⁵⁾。

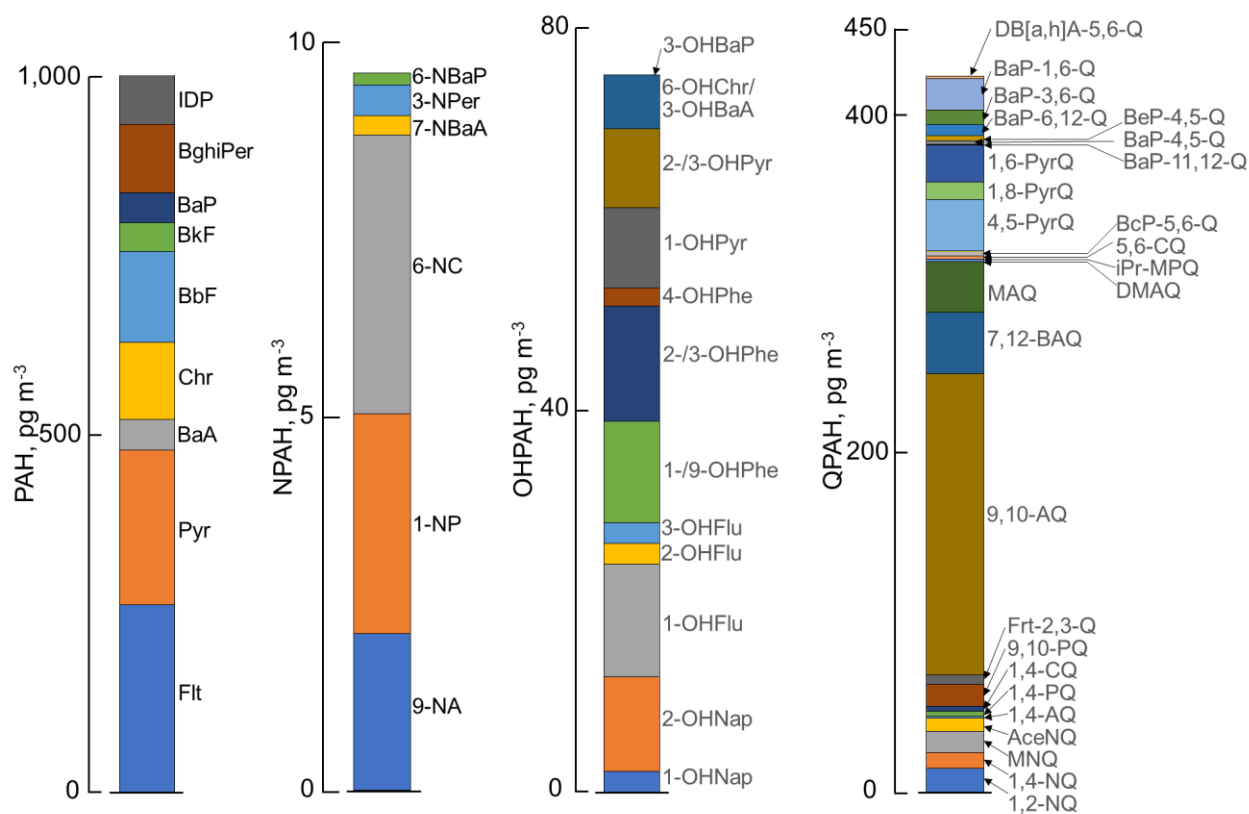
2) 評価

工場が少なく典型的な商業都市の金沢、コークス炉で大量の石炭を使用する世界2位の鉄鋼生産量を誇る製鉄所がある国内有数の工業地帯である北九州、それに冬期の暖房に大量の石炭を有する中国・北京で捕集した大気試料に、開発したNP法を適用したところ、燃焼粉じんの主要排出源が、寄与率を用いて、金沢市は自動車、北九州は石炭燃焼であり、北京は冬に石炭燃焼の寄与が著しく増加することが明らかにできた。PMの発生源解析には、Chemical Mass Balance (CMB) や Principal Component Analyses (PCA)、Positive Matrix Factorizations (PMF) などの方法が報告されているが、これら個別発生源や大気観測地点周辺に関する大量のデータセットを必要とする方法より遥かに優れている。そこで本法を、東アジアの日本、中国、ロシア及び韓国の10都市で、1997年から夏と冬に連続捕集した大気試料に適用した結果、冬に石炭暖房を使用する中国華北及びロシア極東の都市では P_c 濃度が著しく高く、石炭燃焼がPyrの主要排出源であるが、暖房を使用しない中国華南の都市では P_c 濃度が低いこと、また我が国では1990年代には高かったPyrや1-NPだけでなく P_c 濃度が2000年以降急激に低下し、その原因が自動車からの排出量の大幅な削減によることを明らかにできた⁶⁾。そこで、本研究で開発できたNP法を本上述のサイトで捕集した大気試料に適用して、発生源解析を実施した。

4. 結果及び考察

(1) PAH及び酸化体の分布

大気中には PAH の他に、その酸化誘導体であるニトロ体 (NPAH)、水酸化体 (OHPAH) 及びキノロン体 (QPAH) が存在することが知られているが、これらを一斉分析してそれらの分布動態を明らかにした報告はこれまでは殆ど無い。そこで、本研究では参照地点である金沢市山科測定局で捕集した PM_{2.5} 捕集について一斉分析を行い、定量した PAH 類 (9 種類)、NPAH 類 (6 種類)、OHPAH 類 (16 種類) 及び QPAH 類 (26 種類) について作成した棒グラフを図 3.1 に示した。化合物群濃度は、高い方から PAH 類 > QPAH 類 (PAH 類の約 1/2) > OHPAH 類 (PAH 類の約 1/10) > NPAH 類 (PAH 類の約 1/100) であった。高濃度な PAH 類は Frt > Pyr > BbF であり、高濃度な QPAH 類は 9、10-AQ > 7、12-BAQ ≒ MAQ ≒ 4、5-PyrQ であり、高濃度な OHPAH 類は 1-OHFlu ≒ 2-/3-OHPhe ≒ 1/9-OHPhe ≒ 2-OHNap であり、高濃度な NPAH 類は 1-NP ≒ 6-NC であった。PAH の酸化体の中では QPAH 類の濃度が比較的高い。既に、いくつかの QPAH はディーゼル排出粉塵中には検出されないが、大気粉塵中で検出されることを見出しており、発生源から直接排出されるだけでなく、大気中の酸化反応 (二次生成) も大きい可能性がある。QPAH 類の二次生成については、OHPAH 類も加えて研究を継続している。特に発ガン性が懸念される BaP の水酸化物は、より低分子の OHPAH 類と比較して低濃度であった。



PM_{2.5} samples were collected for one week in Kanazawa, Japan in the winter of 2018.

図3.1. PM_{2.5}結合PAHs, NPAHs, OHPAHs及びQPAHs

既に著者らは、QPAH類のうちオルト体が強い細胞毒性を示すこと⁷⁾、OHPAH類のうち両端の環に水酸基を有するものが強いエストロゲン様/抗エストロゲン作用を示すこと⁸⁾を見出している。これらの酸化誘導体の健康影響についてはまだ研究が始まったばかりである。未だ十分な情報が得られていない NPAH類の直接変異原性も含めて、現段階では化合物の濃度と比活性が生体リスク推定の指標の一つとして活用できると考える。

(2) 長期観測

1) PM_{2.5}、SPM

濃度は、PM_{2.5}では福江島 > 能登半島、SPMでは金沢 > 福岡であった。PM_{2.5}とSPMの違いに因らず、いずれの地点でも2021年3月30日に最高濃度に達した。これは近年で最も大規模な黄砂が我が国に飛来した時期に一致する。事実、気象庁による地上気象観測ではここ10年間で最多となる全国11地点中10地点で（新潟、福岡含む）黄砂の飛来が確認され、富山、福江に設置された環境省のライダーにおいても、高濃度の黄砂を含む空気塊が確認されている。即ち、黄砂の飛来が、本研究のサイトで最南の福江島から最北の能登半島まで、我が国の広範囲に同時に及んだことがわかる。しかし、当日のPM_{2.5}濃度は、福江島が160.2 μg/m³、福岡が153.8 μg/m³と差は小さかったが、SPM濃度は、金沢が282.7 μg/m³、能登半島が59.5 μg/m³とサイト間で差が大きかった（以上図3.2）。季節毎の平均濃度を比較すると、いずれのサイトでも大規模黄砂が飛来した2021年3月が最も高かった（図3.3）。

この時の各種観測及び解析の詳細については、サブテーマ4に記載されている：福江島におけるライダー観測（図4.2）、ACSM観測（図4.4）、後方流跡線解析（図4.5）、並びに化学天気予報CFORSシミュレーションによる東アジア域におけるダスト及び硫酸塩の輸送状況（図4.6）。

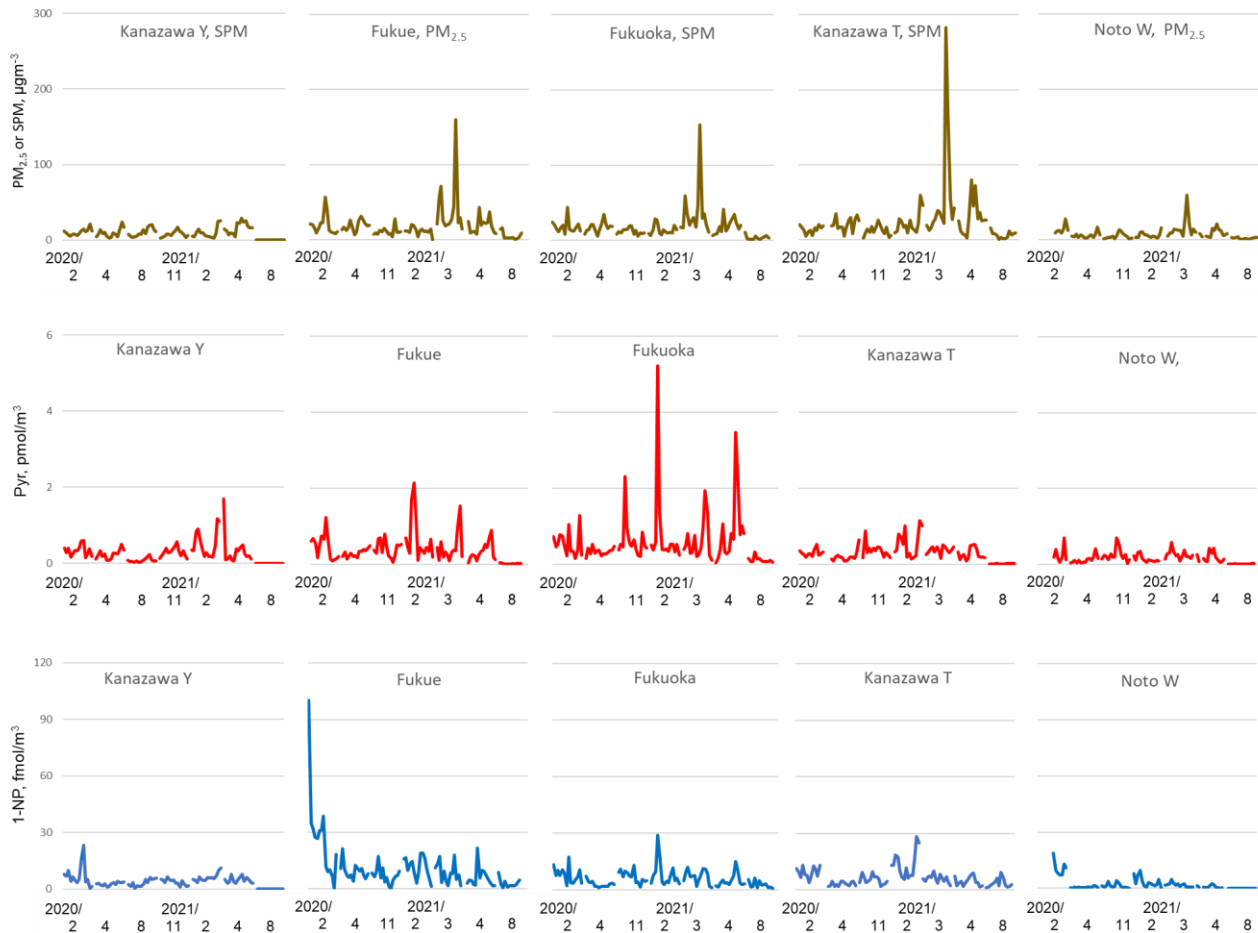


図3.2. 2020年2月～2021年8月の5地点の大気中PM_{2.5}、SPM、Pyr 及び1-NPの濃度推移

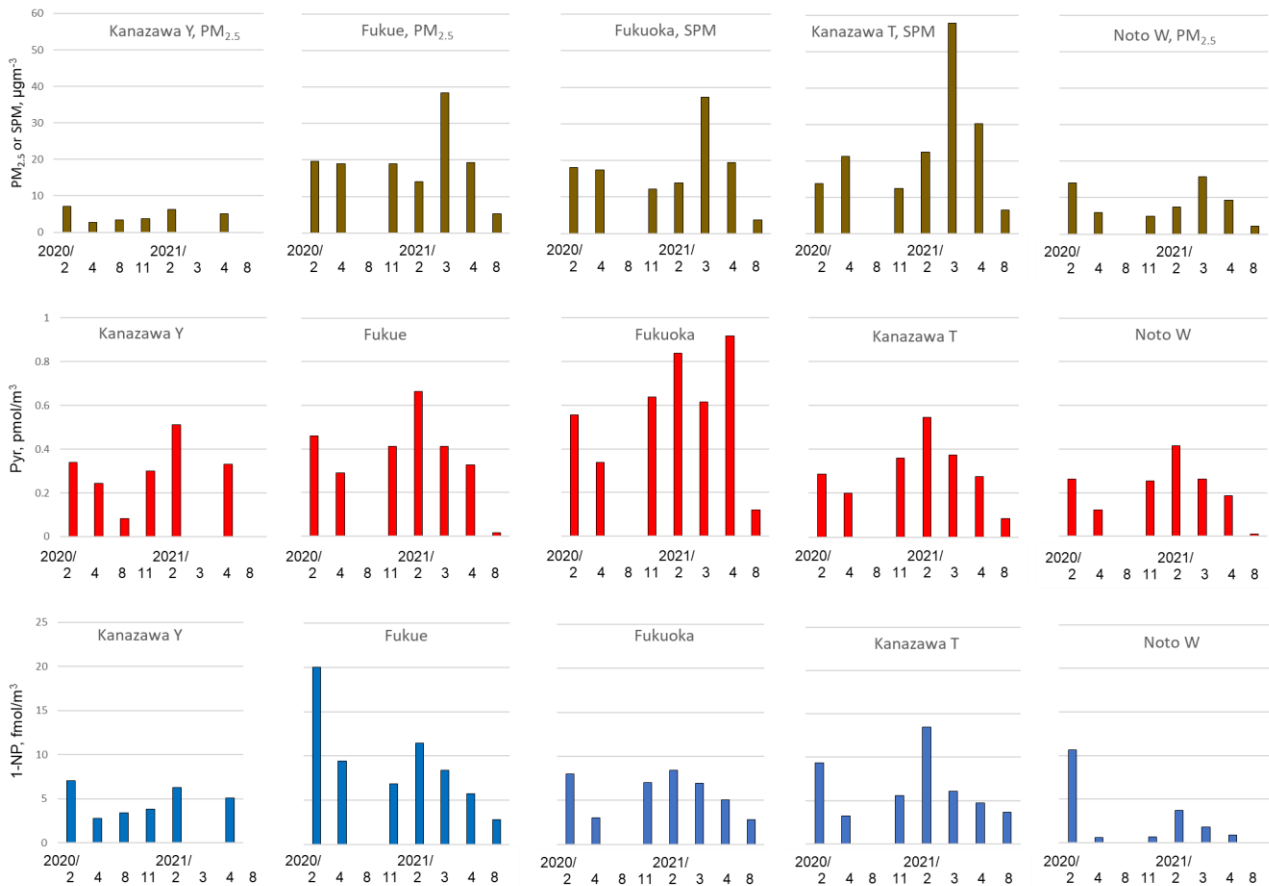


図3.3. 2020年～2021年季節毎の5地点の大気中PM_{2.5}、Pyr及び1-NPの平均濃度

2) Pyr

表3.1に示した捕集大気試料について、PAHとNPAHを分析した試料の全ての結果は、Excel表（追補1）にまとめた。本報告では、主としてPAHだけでなくNPAHも分析した試料について結果と考察を報告する。

最高濃度は福岡で2020年11月をはじめとして2 pmol/m³より高い日が3回観察された。福江島でも2 pmol/m³に達する日が1回あったが、金沢と能登半島は低かった。季節毎の平均濃度を比較すると、福岡（2021年4月に最高濃度）以外は、いずれのサイトも2021年2月に最高濃度を示し、冬が高い季節変動が観察された（図3.2）。また、Pyrの最高濃度月とPM_{2.5}、SPMの最高濃度月（3月）は異なっていた（図3.3）。

サイト別の最高濃度を比較すると、都市では福岡（1.05 ng/m³）>金沢（0.23 ng/m³）、バックグラウン地点では福江島（2.13 ng/m³）>能登半島（0.14 ng/m³）といずれも南>北でその差が大きく、季節毎の平均濃度に基づく平均値は福岡 > 福江島 > 金沢 > 能登半島の順であった（図3.3）。

3) 1-NP

図3.1に示したように、用いた測定法ではNPAHについては6種類が検出されたが、本長期観測実験では、試料の前処理にかかわる労力を削減するために、PAHを分析した残試料を用いてNPAH分析を実施した。試料量に制約があるため、低濃度なNPAH種については定量不可能になる場合もあった。例年最も低濃度となる8月は、全ての地点の試料で定量ができたものは1-NPのみであった。能登半島では、1日のみ定量ができたが、他は検出されても定量下限未満、もしくは検出されなかった。そこで、本研究では、1-NPについてのみ以下の結果と考察を記載する。

最高濃度は福江島で2020年2月に高濃度（100 fmol/m³）が観察されたが、他の地点では30 fmol/m³を超えることはなかった（図3.2）。季節毎の平均濃度を比較すると、いずれのサイトでも2020年、2021年のいずれも2月が他の季節より高かった。バックグラウンド地点の福江島と能登半島では2020年2月の方が2021年2月より高かったが、金沢では逆、福岡では同レベルであり、違いが見られた（図3.3）。季節毎の平均濃度に基づく平均値は福江島 > 金沢 > 福岡 > 能登半島の順であり、福江島と能登半島の濃度差（相対値）は、Pyrより大きかった（図3.3）。

4) 相関

サイト毎に毎日のPM_{2.5}或いはSPMとPyr、1-NP濃度の推移の相関については、福江島のPM_{2.5}と1-NPの間に相関が認められたが（R = 0.6883）、それ以外の能登半島、福岡、金沢宝町はいずれの項目間でも、明確な相関関係（R > 0.6）は認められなかった（表3.2）。しかし、サイト間の相関を見ると、PM_{2.5}とSPMでは、いずれのサイト間でも明確な相関（R > 0.6）が認められた。Pyrでは福江島と福岡間に弱い相関（R = 0.5283）が認められたが、これ以外のサイト間には相関は認められなかった。1-NPでは能登半島と能登半島の間に弱い相関（R = 0.5283）が認められたが、これら以外のサイト間には相関は認められなかった（表3.3）。

ところが、季節毎の平均濃度について見ると、PM_{2.5}、SPMでは、全てのサイト間で0.6以上、福岡と福江島、金沢宝町と福岡間で0.9以上の極めて強い相関が見られた。更にPyrについては、福江島と福岡間以外は0.5以上であり、金沢と能登半島間（R = 0.9592）、離れた福江島と能登半島（R = 0.9576）及び金沢宝町間（R = 0.9198）でも極めて強い相関が認められた。1-NPについても福江島と能登半島間（R = 0.9576）、福岡と金沢宝町間（R = 0.8255）などで強い相関が認められた（表3.4）。この様に、毎日の挙動と季節毎の挙動の間に大きな違いがあることが明らかになった。

表3.2. 2020年2月～2021年8月の5地点のPM_{2.5}、SPM、Pyr、1-NP及びP_cの相関

Fukue			Fukuoka		
	2020-2021	ADS		2020-2021	ADS
PM _{2.5} - Pyr	0.2171	0.0926	SPM - Pyr	0.278	0.1678
PM _{2.5} - 1-NP	0.2228	0.6883	SPM - 1-NP	0.317	0.5110
PM _{2.5} - P _c	0.2395	0.8548	SPM - P _c	0.3111	0.2854
P _c - Pyr	0.5902	0.8128	P _c - Pyr	0.9581	0.9701
P _c - 1-NP	0.8965	0.8031	P _c - 1-NP	0.7756	0.8295

Kanazawa T			Noto W		
	2020-2021	ADS		2020-2021	ADS
SPM - Pyr	0.2812	0.3690	PM _{2.5} - Pyr	0.5256	0.4797
SPM - 1-NP	0.1053	0.1582	PM _{2.5} - 1-NP	0.2437	0.3382
SPM - P _c	0.1303	0.1491	PM _{2.5} - P _c	0.1951	0.4354
P _c - Pyr	0.8133	0.6181	P _c - Pyr	0.3626	0.9178
P _c - 1-NP	0.6275	0.6404	P _c - 1-NP	0.5555	0.8323

Kanazawa Y		
	2020-2021	ADS
PM _{2.5} - Pyr	0.5828	
PM _{2.5} - 1-NP	0.2653	
PM _{2.5} - P _c	0.3716	
P _c - Pyr	0.9127	
P _c - 1-NP	0.6332	

表3.3. 2020年2月～2021年8月の4地点間のPM_{2.5}、SPM、Pyr、1-NPの相関

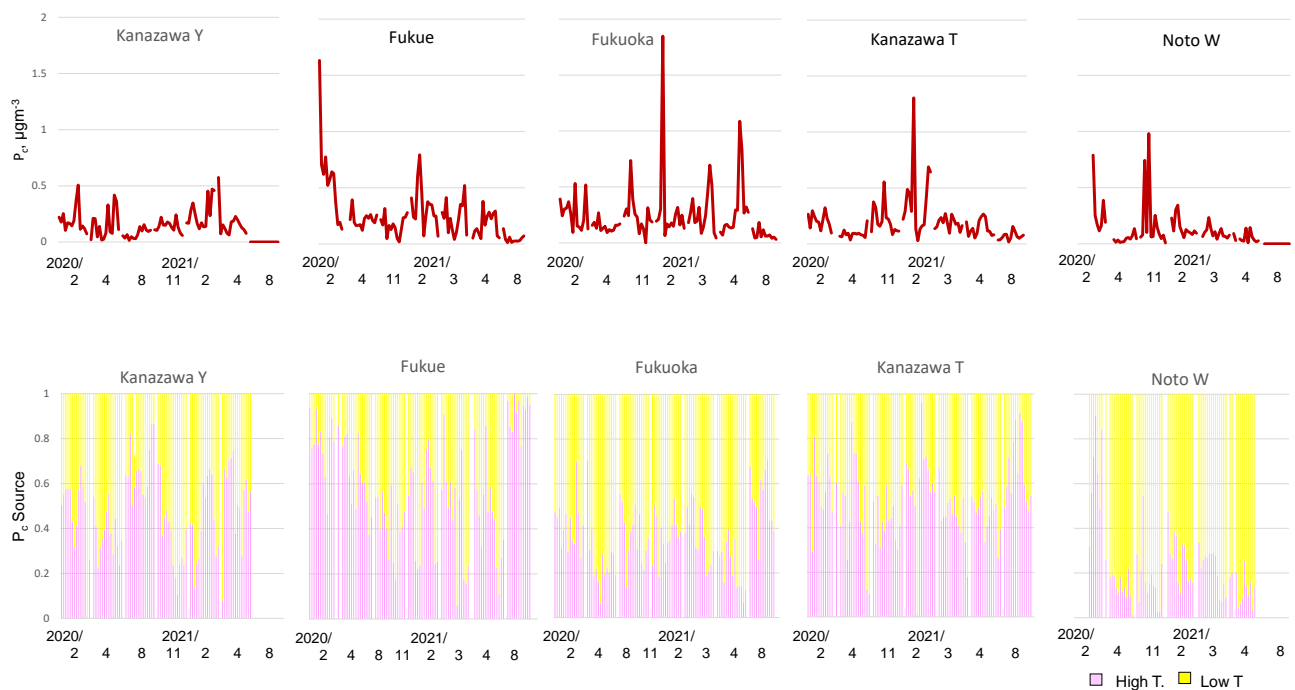
PM _{2.5} /SPM	Fukue				Fukuoka				Kana T				Noto W			
	Fukue	Fukuoka	Kana T	Noto W	Pyr	Fukue	Fukuoka	Kana T	Noto W	1-NP	Fukue	Fukuoka	Kana T	Noto W		
Fukue					Fukue					Fukue						
Fukuoka	0.9141				Fukuoka	0.5283				Fukuoka	0.3350					
Kanazawa T	0.6943	0.7665			Kanazawa T	0.3649	0.2363			Kanazawa T	0.1649	0.3764				
Noto W	0.6933	0.7827	0.8294		Noto W	0.2035	0.2133	0.4932		Noto W	0.5701	0.4073	0.4946			

表3.4. 2020～2021年の季節毎の4地点間のPM_{2.5}、SPM、Pyr、1-NPの相関

PM _{2.5} /SPM	Fukue				Fukuoka				Kana T				Noto W			
	Fukue	Fukuoka	Kana T	Noto W	Pyr	Fukue	Fukuoka	Kana T	Noto W	1-NP	Fukue	Fukuoka	Kana T	Noto W		
Fukue					Fukue					Fukue						
Fukuoka	0.9615				Fukuoka	0.4284				Fukuoka	0.4590					
Kanazawa T	0.8778	0.9423			Kanazawa T	0.9198	0.5604			Kanazawa T	0.5242	0.8255				
Noto W	0.7134	0.7803	0.6190		Noto W	0.9774	0.5183	0.9592		Noto W	0.9576	0.4914	0.4389			

5) 発生源

NP法で求めた燃焼由来粒子状物質 (P_c) は、例外的にPM_{2.5}或いはSPMの10%以上を占める時があったが、殆どは5%未満と小さかった。しかし、毎日のP_c濃度は大きく変動し、地点によって濃度も異なっていることが明らかになった (図3.4)。しかも、毎日のP_c濃度の推移は、福岡及び金沢ではPyrだけでなく1-NPの推移との間にも明確な相関 (R>0.5) が認められた (表3.2)。これは、P_cがPyrや1-NPを含む燃焼由来粒子状物質であることに他ならない。

図3.4. 2020年2月～2021年8月の5地点の大気中P_c濃度と発生源の推移

毎日の P_c 発生源の推移を見ると、サイトによって高温燃焼源（自動車）と低温燃焼源（石炭燃焼など）の比率に違いが見られ、高温燃焼源（自動車）の高い方から概ね、福江島 > 金沢 > 福岡 > 能登半島の順であり、バックグラウンド地点である福江島における自動車の寄与が大きいことが明らかになった（図3.4）。

季節毎の P_c の平均濃度を見ると、いずれの地点でも上述したPyrや1-NPと同様に冬（2月）高く、夏（8月）低い季節変化を呈した（図3.5）。 P_c の発生源寄与率を見ると、能登半島では2020年2月以外は30%以上が石炭若しくはバイオマス燃焼等の低温燃焼発生源由来であるが、福江島では約50%で、同じバックグラウンド地点でも大きな差があった。都市で比較すると、自動車の寄与は金沢（40～70%）の方が福岡（20～60%）より大きい。福江島と能登半島では、高温燃焼源（自動車）が約80%と大きな割合を占めたが、2021年2月はいずれも顕著に低下した（図3.5）。

Pyrの発生源の毎日の推移を見ると、殆どが低温燃焼源（石炭燃焼など）であるが、福江島では一時的に高温燃焼源（自動車）の割合が40%に達する場合があった。1-NPの発生源の毎日の推移を見ると、高温燃焼源（自動車）の割合が大きいが、能登半島では低温燃焼発生源の割合が20%を超える（図3.6）。1-NPにおける石炭燃焼又はバイオマス燃焼の寄与が大きいことは、上述した P_c において石炭燃焼又はバイオマス燃焼の寄与が大きくなった理由でもある。

都市では近傍の発生源の影響を強くけると推定されるが、近傍に主要な発生源がないバックグラウンドの福江島や能登半島で冬に P_c 濃度が上昇する明確な季節変化が見られたことは、アジア大陸から偏西風に乗って燃焼由来の粉塵が輸送されたことを意味すると考えられる。上述したように、毎日のPyrと1-NPの濃度推移には、一部を除いてサイト間に相関性は認められなかったが、季節毎の平均Pyr濃度と1-NP濃度について、遠く離れた福江島と能登半島間でも強い相関が見られた。これは、Pyrと1-NP、さらにこれらを付着して燃焼排出源から排出される P_c の濃度も、季節変化は4地点を含む我が国の広域に共通する季節的な気象条件に依存しているが、経日変化は日々の発生源の状況や気象条件に伴う気流ルートに影響を受けていることを示している。こうした黄砂などの自然起源物質とPyr、1-NPや P_c といった人為起源物質の長距離輸送の違いに関する考察は、6）、7）に後述する。

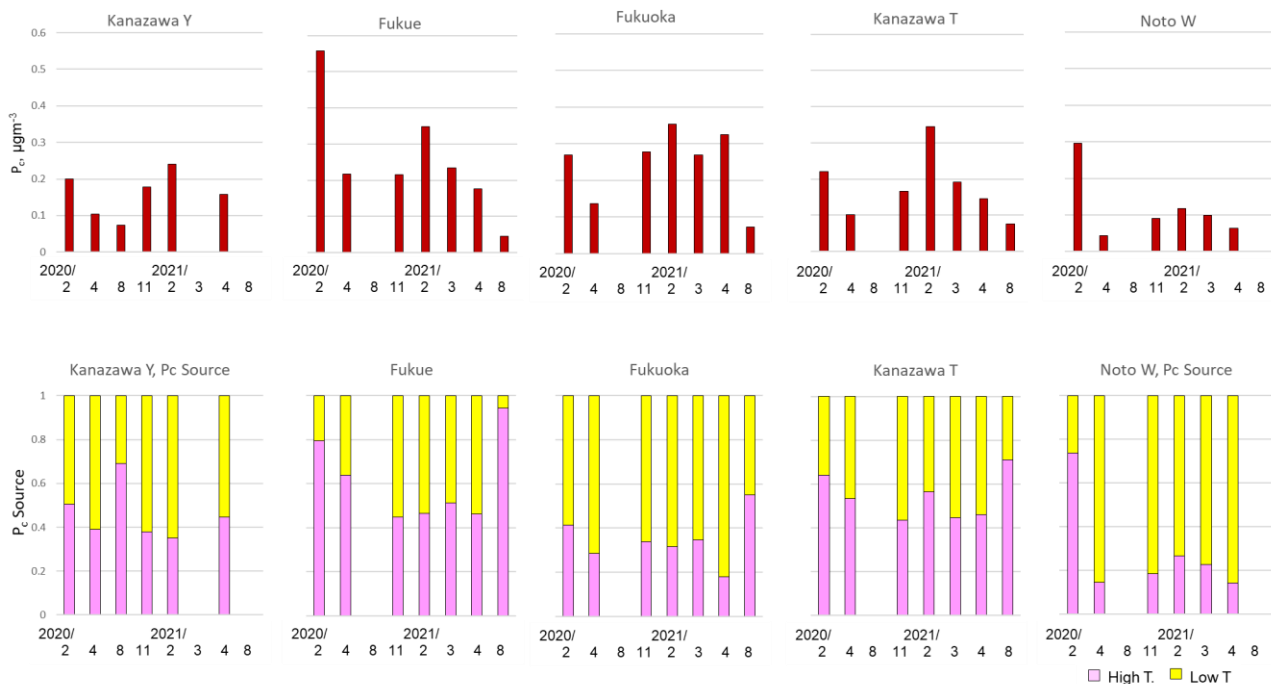


図3.5. 2020年～2021年季節毎の5地点の大気中 P_c の平均濃度と発生源

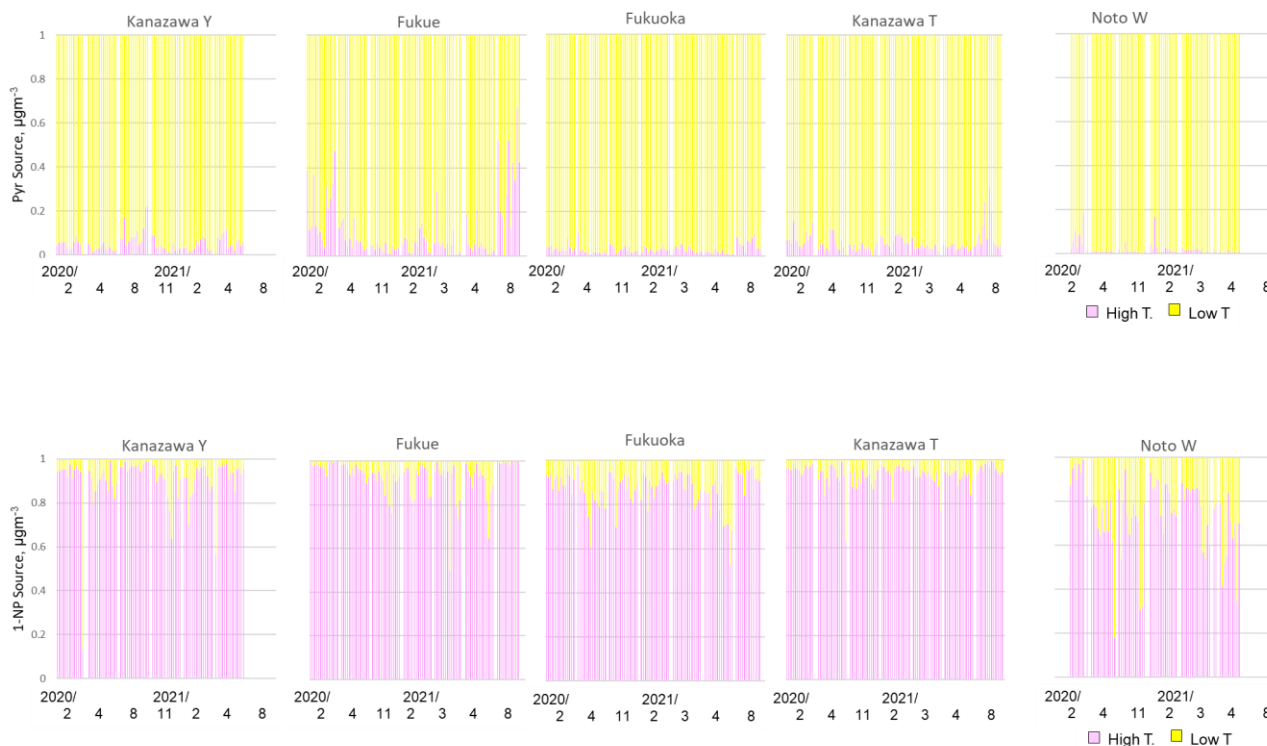


図3.6. 2020年2月～2021年8月の5地点の大気中Pyr、1-NP濃度と発生源の推移

6) アジア大陸からの長距離輸送の影響

著者らは、既に能登半島における2004年から継続する長期観測で、SPMとPAH類の月平均最高濃度がそれぞれ3～5月、12～2月であり、位相が異なることを報告している⁹⁾。また、福江島と能登半島における先行比較で、SPMとPAH、NPAHの濃度の経日推移パターンが異なることを報告している^{10)、11)}。全てのモニタリング地点で、PM_{2.5}、SPMの最高濃度月（3月）とPyrの最高濃度月（金沢宝町以外は2月）が異なる本研究結果（図3.3）は、これらの報告と一致する。

4地点における2021年の黄砂期間中の3、4月の毎日のPM_{2.5}或いはSPMとPyr、P_c濃度及び発生源の推移を図3.7に示した。黄砂が飛来した2021年3月及び4月のPyr及びP_cの濃度推移は、PM_{2.5}やSPMの濃度推移とは全く異なっており、P_cの発生源は季節毎の傾向と一致した。また、福岡や金沢だけでなく能登半島や福江島でもP_cとPyr、PM_{2.5}と1-NPの大气内挙動が相関する（表3.2）こととは異なる。即ち、我が国に黄砂が飛来しても、それが必ずしも中国で発生したP_cを伴うものではない。P_cの輸送は、気塊の輸送ルートだけでなく、都市（即ち発生源）の位置や活動、その時の気象条件に強く依存すると言える。

以上の結果は、PAH、NPAHを含む燃焼由来粒子状物質の発生と輸送は黄砂等の自然由来粒子状物質の長距離輸送と相互作用しないことを意味している。黄砂は中国西方或いはモンゴルの砂漠で発生するため、長距離輸送の結果、我が国の広範囲に飛来するので、PM_{2.5}濃度は遠く離れた福江島と能登半島の何れでも同時（2021年3月30日）に上昇したが、PAH、NPAHの代表であるPyrと1-NPの濃度推移は地点毎に大きく異なり、PM_{2.5}とも全く一致しなかったと考えられる（図3.2）。



図3.7. 2021年黄砂飛来期の5地点の大気中PM_{2.5}、SPM、P_c濃度及び発生源の推移

中国におけるPAH、NPAHの主要発生源は、東シナ海や黄海に近い都市が多い地域であり、我が国への輸送距離は黄砂に比較して遥かに短く、同一地域から発生したPAH、NPAHの我が国への到達範囲も黄砂より狭い。従って、地点毎に中国のPAH、NPAH発生地域は異なる上、我が国の4地点のみならず周辺域の発生源状況も異なる。これが、サイト毎にPAH、NPAHの濃度推移が大きく異なった原因と考えられる。

7) 新型コロナ蔓延の影響

2020年初頭から新型コロナの世界的な流行が始まり、中国武漢市では同年1月23日から4月7日まで都市封鎖が実施された。既に著者らは、この期間では能登半島の大气中PM₁やPM₁₀だけでなく有機炭素や無機炭素、PAHの濃度も低下しており、これらの低下が中国華北の大气中SO₂やNO₂濃度の低下と一致していたことを報告している^{12,13}。本研究で4つのサイトで同時大気観測を開始した2020年2月はこの時期に当たる。福江島の1-NP濃度が2月の観測期間中に急激に低下し、また福江島と能登半島のいずれでも2020年2月に比較して2021年2月の方が低かったこと(図3.3)の原因として、中国の都市域における交通量の低下が起因していた可能性がある。

冬季の長距離輸送気塊の後方流跡線は、福江島は上海を含む中国の華南城からが最も多く、能登半島は北京や瀋陽を含む華北域からが多い。周辺に主要発生源が無くアジア大陸からの長距離輸送の影響を強く受けるバックグラウンドサイトの福江島と能登半島の2020年2月のP_cと1-NPの濃度が2021年2月より高かったことの要因として、自動車が1-NPの主要発生源であることを考えると、2020年2月はまだ中国の都市活動が活発であったが、2021年2月は自粛の影響が強く現れたことが考えられる。

5. 研究目標の達成状況

金沢市、福岡市（以上都市）、能登半島、福江島（以上バックグラウンド）で連続捕集したSPMやPM_{2.5}試料中のPAH及びNPAHの分析データをサブテーマ1に提供しできた。更に各地点のPAH、NPAH及びP₁濃度の推移とSPMやPM_{2.5}濃度の推移の異同を明らかにし、長距離輸送を含めて、その要因を解明した。これらは、疫学調査研究と連携して、慢性咳嗽疾患の増悪に影響する環境因子の解明に寄与する情報になった。以上より、サブテーマ3が計画した内容はほぼすべて達成できたと考える。また、著者らは、現行の大気環境基準として粒子の大きさに基づくPM₁₀やPM_{2.5}には限界があり、含まれる有害化学物質に基づく新時代の基準の必要性を指摘してきたが¹⁴⁾、本研究結果はそれを後押しするデータとしての役割も少なくないと考える。

6. 引用文献

- 1) Tang, N., Taga, R., Hattori, T., Toriba, A., Kizu, R., Hayakawa, K., Simultaneous determination of twenty-one mutagenic nitropolycyclic aromatic hydrocarbons by high-performance liquid chromatography with chemiluminescence detection. In Proceedings of the 13th International Symposium, Bioluminescence and Chemiluminescence Progress and Perspective, ed. by Tsuji, A., Maeda, M., Matsumoto, M., Krica, L., Stanley, P., World Science, London, pp. 441-444, 2005. doi:10.1142/5723
- 2) Chetiyakornkul, T., Toriba, A., Kameda, T., Tang, N., Hayakawa, K., Simultaneous determination of urinary hydroxylated metabolites of naphthalene, fluorene, phenanthrene, fluoranthene and pyrene as multiple biomarkers of exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons. *Anal. Bioanal. Chem.*, **386**, 712-718 (2006). doi:10.1007/s00216-006-0628-6
- 3) Toriba, A., Homma, C., Kita, M., Uozaki, W., Boongla, Y., Orakij, W., Tang, N., Kameda, T., Hayakawa, K., Simultaneous determination of polycyclic aromatic hydrocarbon quinones by gas chromatography-tandem mass spectrometry, following a one-pot reductive trimethylsilyl derivatization. *J. Chromatogr., A*, **1459**, 89-100 (2016). doi:10.1016/j.chroma.2016.06.034
- 4) Hayakawa, K., Tang, N., Toriba, A., Nagato, E. G., Calculating sources of combustion-derived particulates using 1-nitropyrene and pyrene as markers, *Environ. Pollut.* **265**, Part B, 114730 (2020). doi:10.1016/j.envpol.2020.114730
- 5) Hayakawa, K., Tang, N., Matsuki, A., Inomata, Y., Toriba, A., Nagato, E. G., Calculating source contributions to urban atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons and nitropolycyclic aromatic hydrocarbons using 1-nitropyrene and pyrene: An application to an Asian dust event, *Chemosphere.*, **220**, October 2021, 130662. doi:10.1016/j.chemosphere.2021.130662
- 6) Hayakawa, K., Tang, N., Toriba, A., Long-term and seasonal changes in sources of urban atmospheric particulates in the Western Pacific, *Appl. Sci.*, **2022**, 12, 2149. doi:10.3390/app12042149
- 7) Motoyama, Y., Bekki, K., Chung, S.-W., Tang, N., Kameda, T., Toriba, A., Taguchi, K., Hayakawa, K., Oxidative stress more strongly induced by ortho- than para-quinoid polycyclic aromatic hydrocarbons in A549 cells. *J. Health Sci.*, **55** (5), 845-850 (2009). doi:10.1248/jhs.55.845
- 8) Hayakawa, K., Onoda, Y., Tachikawa, C., Hosoi, S., Yoshita, M., Chung, S. W., Kizu, R., Toriba, A., Kameda, T., Tang, N. Estrogenic/antiestrogenic activities of polycyclic aromatic hydrocarbons and their monohydroxylated derivatives by yeast two-hybrid assay. *J. Health Sci.*, **53** (5), 562-570 (2007). doi:10.1248/jhs.53.562
- 9) Tang, N., Hayakawa, K., Atmospheric behaviors of polycyclic aromatic hydrocarbons at a Japanese remote background site, Noto peninsula, from 2004. *Atmos. Environ.*, **120**, 144-151 (2015). doi:10.1016/j.atmosenv.2015.08.090
- 10) Tang, N., Matsuki, A., Takami, A., Hatakeyama, S., Kaneyasu, N., Nagato, E. G., Sato, K., Yoshino, A., Hayakawa, K., A Comparison of particulate-bound polycyclic aromatic hydrocarbons long-range transported from the Asian Continent to the Noto Peninsula and Fukue Island, Japan. *Asian J. Atmos.*

- Environ.*, **12** (4), 369-376 (2018). doi:[10.5572/ajae.2018.12.4.369](https://doi.org/10.5572/ajae.2018.12.4.369)
- 11) Yang, L., Zhang, L., Zhang, H., Zhou, Q., Zhang, X., Xing, W., Takami, A., Sato, K., Shimizu, A., Yoshino, A., Kaneyasu, K., Matsuki, A., Hayakawa, K., Toriba, A., Tang, N., Comparative analysis of PM_{2.5}-bound polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs), nitro-PAHs (NPAHs) and water-soluble inorganic ions (WSIIs) at two background sites in Japan, *Int. J. Environ. Res. Public Health*, **17**, 8224 (2020). doi:[10.5572/ajae.2018.12.4.369](https://doi.org/10.5572/ajae.2018.12.4.369)
 - 12) Zhang, L., Yang, L., Zhou, Q., Zhang, X., Xing, W., Zhang, H., Toriba, A., Hayakawa, K., Tang, N., Impact of the COVID-19 Outbreak on the Long-range Transport of Particulate PAHs in East Asia, *Aerosol Air Quality Res.*, **20**, 2035-2046 (2020). doi:[10.3390/ijerph17218224](https://doi.org/10.3390/ijerph17218224)
 - 13) Zhang, H., Zhang, L., Yang, L., Zhou, Q., Zhang, X., Xing, W., Hayakawa, K., Toriba, A., Tang, N., Impact of COVID-19 Outbreak on the Long-range Transport of Common Air Pollutants in KUWAMS, *Biol. Pharm. Bull.*, **69**, (3), 237-245 (2021). doi:[10.1248/cpb.c20-00692](https://doi.org/10.1248/cpb.c20-00692)
 - 14) Toriba, A., Hayakawa, K., What is necessary for next-generation atmospheric environmental standards? — Recent research trends for PM_{2.5}-bound polycyclic aromatic hydrocarbons and their derivatives —. *Biomed. Chromatogr.* **35**, 1 (Special Issue: 2021 Review and Perspectives Issue), e-5038. doi:[10.1002/bmc.5038](https://doi.org/10.1002/bmc.5038)

II-4 長崎福江と福岡における物理・化学解析研究

国立研究開発法人国立環境研究所

地域環境保全領域		高見 昭憲
地域環境保全領域	広域大気研究室	佐藤 圭
地域環境保全領域	広域大気研究室	清水 厚
地域環境保全領域	広域大気研究室	吉野 彩子

[要旨]

サブテーマ4の国立環境研究所（以下国環研）グループでは、福岡市と五島市においてPMなど大気汚染物質の観測を行った。福岡病院、及び、五島中央病院においてPM_{2.5}を捕集し、国環研では主要なイオン成分を分析した。また、ライダーやエアロゾル質量分析計など各種自動測定機を用いて大気汚染と気象の観測を行った。その結果、2007年以降PM濃度は減少し、PM化学成分のうち硝酸イオンは増加し、硫酸イオンは減少する傾向にあることが分かった。2020年以降はCOVID-19の影響か両イオンとも減少していた。観測とモデルの比較や、観測データの詳細な解析から、福岡では越境大気汚染のみならずローカルな大気汚染影響があることが分かった。

1. 研究開発目的

日本は中国大陸の風下にあり、中国大陸で排出される大気汚染物質は主に冬季から春季にかけて季節風により風下側の日本へ輸送される。中国は1990年代以降急速な経済発展を遂げており、排出量の増大が懸念されていた。しかし、2007年をピークに中国での二酸化硫黄（SO₂）の排出は減少しており、さらに、2013年以降中国では微小粒子状物質（PM_{2.5}）対策として、中国国内の主要都市における排出削減措置を取り、中国でのPM_{2.5}濃度は著しく減少した¹⁾。その結果、韓国や日本でもPM_{2.5}濃度の減少傾向がみられている。

国内のPM_{2.5}濃度の環境基準達成率は年々上昇し、2019年には90%以上の観測所で環境基準を達成しているが、九州北部や瀬戸内海の数か所では、長期、短期環境基準ともに未達成である¹⁾。これは、九州北部地域などでは国内の発生源の影響に加え中国などからの越境大気汚染の影響もあることを示唆している。

本推進費では、PM_{2.5}やPM₁₀などに含まれる多環芳香族炭化水素（PAH）が呼吸器系の疾患に与える影響、特に慢性咳嗽に対する影響の解明を目的としている。疫学調査としては金沢大学と福岡病院が主体となり石川県、福岡県、長崎県において小児および成人を対象とした呼吸器系疾患調査研究を行った。この疫学調査に対応して北陸と北部九州の両地域における粒子状物質（PM）など大気汚染物質の観測、黄砂の観測、PM_{2.5}の成分やPAH類の物理化学的分析を行った。金沢市や福岡市など都市部では域内の自動車等からの排気もあり都市と越境大気汚染の両方の影響がある。一方で、離島や人口が少ない地域では地元の排出が少なく越境大気汚染の影響がより強く現れる可能性がある。これらのことから、本推進費では都市部とリモート（人口の少ない地域）での観測を行った。北陸地区では都市部の金沢市とリモートの能登半島輪島において、また、北部九州地区では都市部の福岡市とリモートで離島の長崎五島列島福江島においてPM_{2.5}などの大気汚染物質と黄砂の観測を行った。

国立環境研究所（以下国環研）のグループでは越境大気汚染の監視を目的に、長崎県五島市（福江島）に観測ステーションを設置し、主に越境大気汚染がもたらす粒子状物質の物理・化学的性質について長期観測を行ってきた。また、福岡市の福岡大学や九州大学と共同し、都市部における粒子状物質の観測を行ってきた。これらの実績から、国環研グループは福岡県福岡市と長崎五島市（福江島）において大気観測を行い、その物理的性質の解析や粒子に含まれる化学組成の測定を行い、サブテーマ1, 2, 3に試料やデータ提供して、呼吸器疾患への影響評価に貢献することを目的とした。

2. 研究目標

① 2019年12月から2020年5月までの期間、及び、夏季の2週間程度の期間において、PM_{2.5}などの粒子状物質を毎日ハイボリュウムサンプラーで捕集する。場所は、長崎県福江島、及び、福岡県福岡市で行い、他のサブテーマと協力して実施する。

② 長崎福江島、福岡県福岡市において、2019年12月から2020年5月までの期間、ライダーによる上空の粒子の相対濃度、ガス状物質（オゾン）、粒子状物質の化学組成（SO₄、NO₃、有機物）の連続観測を行う。

③ 気象データなどと合わせて、越境大気汚染の経年変化、高濃度時における後方流跡線解析による気塊の飛来経路を明らかにする。

④ 以上の結果をサブテーマ1、2などの症状との量反応解析に提供する。またサブテーマ3のPMやPAH類の発生源シミュレーションモデルを構築のために提供する。

3. 研究開発内容

国環研のグループは、福岡県福岡市と長崎県五島市におけるPMなど大気汚染物質の観測を行った。両地点で大気中の粒子状物質（PM）をフィルターで捕集するため、国立病院機構福岡病院（福岡県福岡市）、及び、長崎県五島中央病院（長崎県五島市）の屋上にハイボリュウムエアサンプラー（HV-RW、柴田科学）を設置し、スリット型PM_{2.5}分粒装置（柴田科学）を装着して、流量1000 L/minで石英繊維フィルター上にPM_{2.5}を捕集した。捕集時間は毎日日本時間10:00から約24時間とした。捕集条件等はサブテーマ3における金沢・能登におけるPM_{2.5}捕集条件と同じとした。捕集したフィルター試料はマイナス20℃の冷凍庫に保管され、4週間ごとにサブテーマ3の金沢大学グループに送付された。金沢大学で試料を切り分け、金沢大学ではPAH類の分析が行われ、一部イオン分析に必要な試料は国環研に送付された。国環研では、イオンクロマトグラフィー（Prominence、島津製作所）を用いて、主要なイオン成分を分析した。分析結果はサブテーマ1、2、3に提供され、福岡市や五島市における呼吸器疾患への影響評価に活用された。

国環研のグループは上記フィルター捕集に加え、両地点における大気汚染と気象の全般的状況を把握するために、各種自動測定機を用いて、PM・ガス・気象の連続観測を実施した。化学成分などの観測は福岡県福岡市の福岡大学、及び、長崎県五島市にある福江島大気観測施設で行った。両地点とPMのフィルター捕集を行った福岡病院や五島中央病院の場所を図4.1に示す。微小粒子の化学成分はエアロゾル質量分析計（Aerosol Chemical Speciation Monitor, ACSM, Aerodyne）によって測定した。各種ガス自動測定機によりガス状汚染物質濃度としてオゾン（O₃）、二酸化硫黄（SO₂:福江島のみ）、一酸化炭素（CO:福岡のみ）を測定した。福岡大学では粒子の個数濃度を測定するため、静電分級機

（Differential Mobility Analyzer : DMA, TSI）と粒子個数濃度計（Condensation Particle Counter : CPC, TSI）から構成される走査型移動度粒径分級機（Scanning Mobility Particle Sizer: SMPS, TSI）で個数濃度を計測した。気象要素として気圧・気温・相対湿度・風向・風速・降水量をウェザートランスミッター（WXT520, Vaisala）を用いて測定した。これら装置の概要は表4.1に示した。



図4.1 福江島(左)および福岡(右)における観測地点の配置

(地理院タイルに観測地点を追記して掲載)

ACSMでは大気試料を装置内に引き込み、オリフィスが連続している構造のエアロイナミックレンズによって、ガスと粒子を分離する。分離された粒子は600℃に加熱された蒸発器に衝突し、その温度で蒸発する物質を気化する。気化した分子は70eVの電子衝撃法の電子によってイオン化される。イオンは四重極質量分析計によって質量数ごとに検出される。窒素、酸素など主要なガス成分や、硫酸イオン、硝酸イオンなどフラグメントが明確な無機イオンはそのフラグメントから濃度を計算する。有機物については、全体の質量濃度から無機イオンなどを差し引いた値としている。濃度の校正は、DMAで分級した直径300 nmの硝酸アンモニウムをACSMに導入するとともに、CPCで個数濃度を計測し、硝酸アンモニウムの質量濃度と対応する四重極質量分析計のシグナルから濃度校正値を算出した。DMAは荷電した粒子に電圧をかけると同時に、電圧と垂直な方向に空気を流すことによって特定の質量と荷電の比を持つ粒子のみ分級する装置である。またCPCは低温でブタノールを飽和させたチューブ内に微小粒子を通過させることによって、ブタノールを凝集させ粒子を大きくし、粒子にレーザー光を照射してその散乱光を検出して粒子個数を計測する装置である。オゾン、二酸化硫黄、一酸化炭素についてはそれぞれ専用の計測機(49i、43i、48i、いずれもThermo Fisher)を用いた。オゾンを紫外吸収法、二酸化硫黄を紫外蛍光法、一酸化炭素を非分散型赤外吸収法を用いそれぞれ測定した。

九州大学春日キャンパスおよび福江島大気観測施設においてライダー(Light Detection and Ranging)を用いて上空の粒子消散係数や粒子の形状を示す偏光解消度を計測した。ライダーはNd:YAGレーザーの基本波(1064 nm)と第2高調波(532 nm)をパルス状に繰り返し鉛直上方に射出し、レーザー光が粒子にあたって後方に散乱する光を地上の検出器で検出し、散乱光の強さから粒子濃度を、レーザー射出から散乱光が検出されるまでの時間から粒子の高度を算出する。レーザー光は直線偏光しており、球形粒子からの後方散乱では偏波面が変化しないが非球形粒子からの後方散乱においては偏波面に変化が生じる(偏光解消度が上昇する)。この偏光解消度を計測することで、粒子が球形か非球形かがわかる。また後方散乱強度の波長依存性から粒子の大きさが推定できる。このため、まず波長依存性が弱い大粒子は雲として識別し、さらに小粒子は偏光解消度によって球形の粒子を人為汚染性微小粒子状物質、非球形の粒子を黄砂(ダスト)と分類している。

フィルター捕集分析と等価性が保証されている自動測定機を用いたPM_{2.5}質量濃度測定結果について、福岡市長尾常時監視局、及び、五島市五島常時監視局のデータを解析に利用した。空気塊の輸送経路を調査するため、NOAAのHYSPLIT(The Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory model)システム^{2),3)}を利用した。その際の気象場にはGFS(0.25度グリッド)を利用し、開始高度は500 m及び1000 mとした。また九州大学で開発され国環研で運用が続けられている化学天気予報システムCFORS(Chemical weather FORecasting System)⁴⁾を用いた東アジアにおける硫酸イオンやダストの輸送状況の解析も行った。

これらの測定結果や解析結果を用いて、1) PMの経年変化の解析、2) 越境大気汚染の輸送ルート解析、3) PAH類とPM動態予測モデル構築の支援、4) 国内都市大気への影響解明を行った。

表4.1 モニタリング装置の概要

測定項目	測定装置	測定手法
イオン成分(SO ₄ ²⁻ , NO ₃ ⁻ , Cl ⁻ , NH ₄ ⁺ , Na ⁺ , K ⁺ , Ca ²⁺ , Mg ²⁺)	イオンクロマトグラフィー	イオンクロマトグラフ法
化学成分(硫酸塩、硝酸塩、アンモニウム塩、塩化物、有機物)	エアロゾル質量分析計(ACSM)	電子衝撃イオン化四重極質量分析法
個数濃度、粒径分布	走査型移動度粒径分級機(SMPS)	静電分級(DMA)および凝縮粒子カウント(CPC)
ガス成分(O ₃ , CO, SO ₂)	O ₃ 計, CO計, SO ₂ 計	紫外吸収法、非分散型赤外吸収法、紫外蛍光法
偏光解消度、消散係数	ライダー	光散乱および偏光解消度測定

気温、相対湿度、風向/風速、降水量、気圧

ウェザートランスミッター

超音波等

4. 結果及び考察

福岡県福岡市と長崎県五島市におけるPMなど大気汚染物質の測定結果や解析結果を用いて、1) PMの経年変化の解析、2) 越境大気汚染の輸送ルート解析、3) PAH類とPM動態予測モデル構築を支援、4) 国内都市大気への影響解明を行った。以下結果と考察を示す。

1) PMの経年変化の解析

国環研による長崎県五島市でのPM観測例を示す。図4.2は2021年3月末の大規模黄砂が来た時のライダー観測結果である。ライダー観測では2021年3月30日ごろ黄砂消散係数が地上付近でも非常に大きくなり、五島市五島局の常時監視データでもSPM、PM_{2.5}の高濃度現象が観測された(図4.3)。2021年3月30日の午前10時の時点でSPMは223 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を、PM_{2.5}は135 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を記録した。PM_{2.5}の日平均値の環境基準値が35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ということを考慮すると、非常に高濃度の粒子状物質が飛来したことが観測から明らかになった。

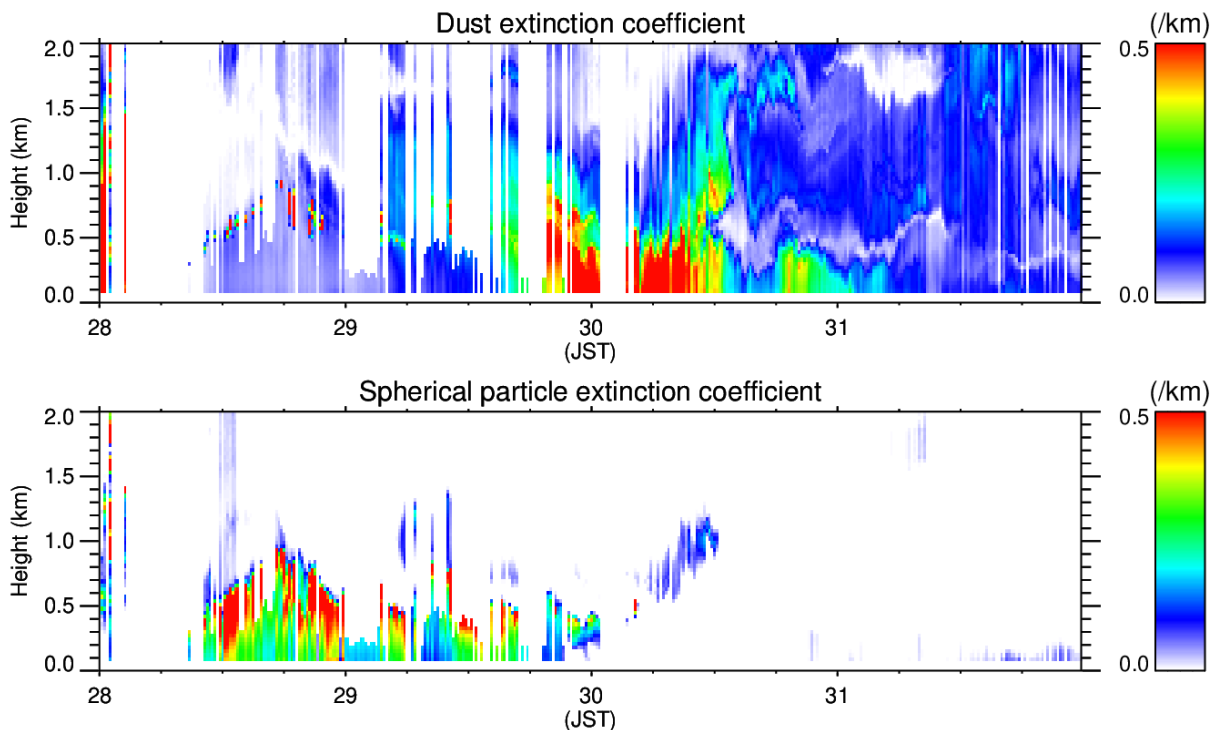


図4.2 福江島における2021年3月下旬のライダー観測結果

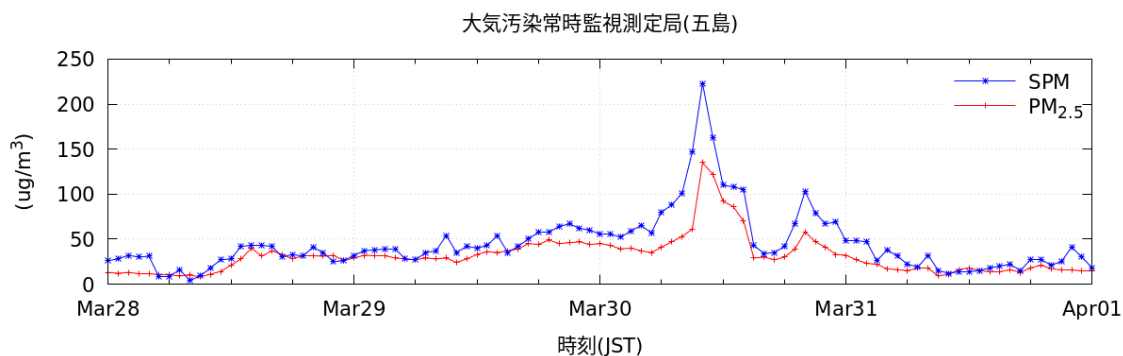


図4.3 福江島における2021年3月下旬のPM_{2.5}質量濃度(五島常時監視局データ)

また、図4.4に示すACSMの化学組成分析では、黄砂と同時期にPM_{2.5}の主成分である、硝酸イオン、硫

酸イオンなどが高濃度になる現象をとらえた。ただし、ACSMで観測された微小粒子の化学成分は3月28ごろから3月29日にかけて濃度が増加しており、五島局のPM_{2.5}濃度も3月28日の午前中から午後にかけて濃度が50 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ まで上昇している。このことは、PMなど大気汚染物質は黄砂本体よりも前に、黄砂に押し出されるように飛来していることを示している。そして3月30日午前中にはACSMで観測された微小粒子の化学成分も黄砂と同じ時に濃度が減少しているの、大気汚染物質は、黄砂の前面で押し出され、黄砂が終了するまで継続的に飛来していたことがこの観測から明らかになった。ACSMで観測された微小粒子の化学成分では3月10日、3月15日、3月18日、3月28日など周期的に高濃度を記録している。気象庁の天気図を見ると、いずれも西から東へ低気圧が中国大陸から日本（本州）を通過し太平洋方面に移動し、そのあとに中国大陸から東シナ海から九州や本州西部に高気圧が張り出してくるパターンであり、高濃度要因は主に気象要素に支配されていることがわかる。また近年、相対的に硝酸イオンの割合が増え硫酸イオンの割合が減少する傾向がみられるが⁵⁾、今回の観測でも一定割合で硝酸イオン濃度が観測されている。

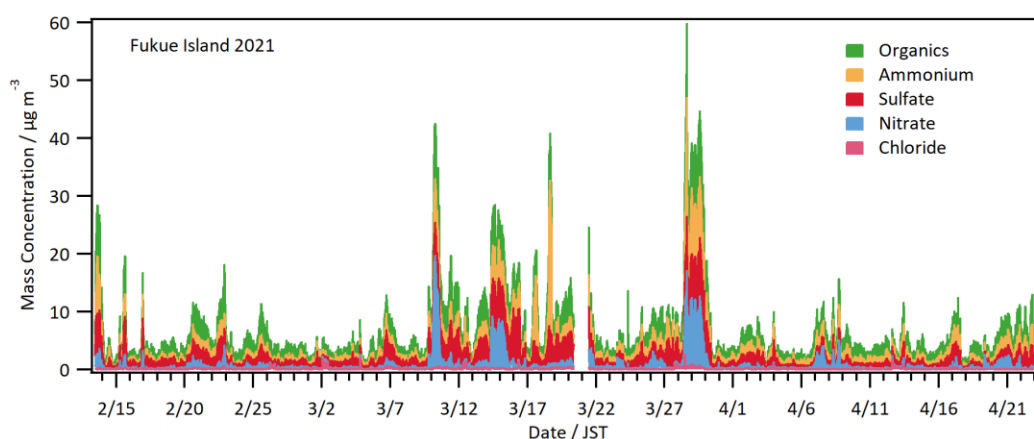


図4.4 福江島におけるACSMによる粒子化学成分の2021年春の測定結果
(緑：有機物、橙：アンモニウム、赤：硫酸塩、青：硝酸塩、桃：塩化物)

NOAA・HYSPLITを用いた後方流跡線解析の結果を図4.5に示す。2021年3月31日より福江島を起点とし、高度500mと1000mからの後方流跡線を48時間遡って計算した。その結果いずれの場合にも中国大陸、特に上海から山東半島にかけての付近から空気塊が飛来していることがわかる。中国沿岸部の大気汚染が短時間で福江島まで到達しており、中国都市部での硝酸イオンを含んだ粒子状物質が輸送されてきたと考えられる。また、CFORSを用いたアジア域での黄砂や硫酸イオンの輸送の状況を、図4.6に示す。これらによると、大規模黄砂は中国大陸から輸送され、九州北部のみならず、日本全体を覆う規模であったことがわかる。

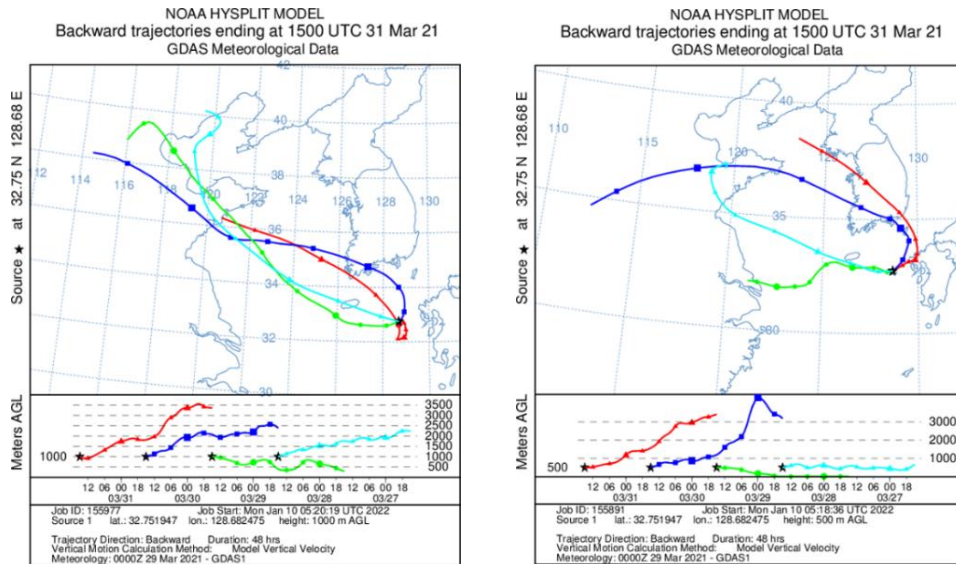
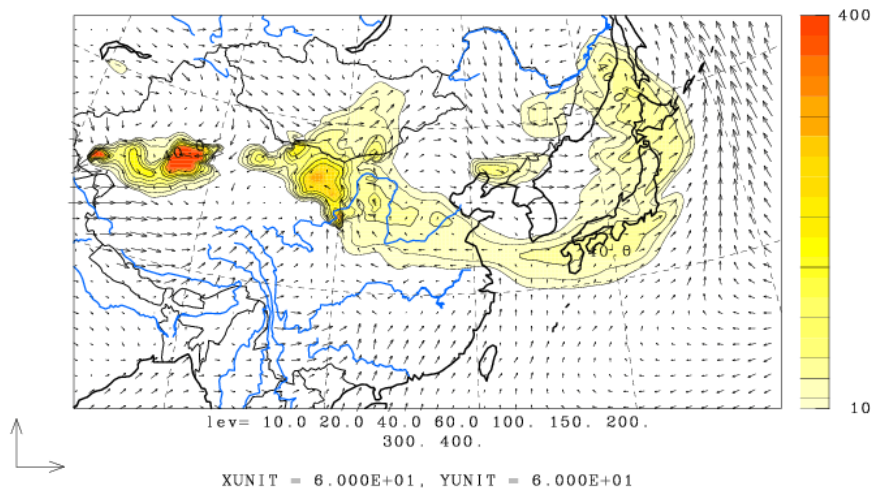
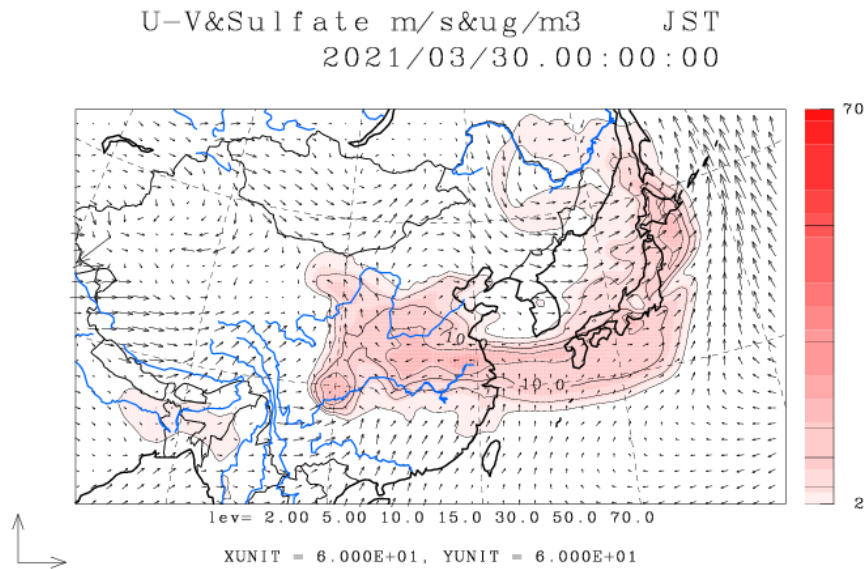


図4.5 福江島に来る空気の流れの様子。2021年3月31日より後方流跡線解析
左 1000m、右 500mスタート いずれも中国韓国から飛来

U-V&Dust total m/s&ug/m3 JST
2021/03/30.00:00:00



©九州大学応用力学研究所(RIAM)/国立環境研究所(NIES)



©九州大学応用力学研究所(RIAM)/国立環境研究所(NIES)

図4.6 化学天気予報CFORSシミュレーションによる東アジア域における
ダスト（上段）および硫酸塩（下段）の輸送状況

中国では2007年をピークにSO₂の排出量が減少し、また、主要都市における大気汚染対策を進められた結果PM_{2.5}濃度が著しく減少した。その傾向は長崎県五島市におけるライダーの長期観測からも確認できた（図4.7）。2003年以降のライダー連続観測による球形粒子の光学的厚さは2007年から2016年頃まで減少を続け、その後はほぼ横ばいとなっている。ライダーの通年観測では、2020年夏の西之島からの火山由来粒子を観測することができ、また、先に述べた2021年春の大規模黄砂の時には、国内ライダーの中でも五島でのライダー観測は早期にその兆候を捉えており、国外から流入する大気汚染や黄砂などのPMの監視拠点として重要な役割を果たした。

国環研では2010年ごろから長崎県五島市において、越境大気汚染の影響を解明するためACSMを用いた微小粒子（PM_{1.0}程度）に含まれる化学組成の連続観測を行っている。中国では排出規制の結果、SO₂の排出が減少し硫酸イオン濃度が減りPM_{2.5}質量濃度が減少したが、アンモニアは施肥などの関係で減

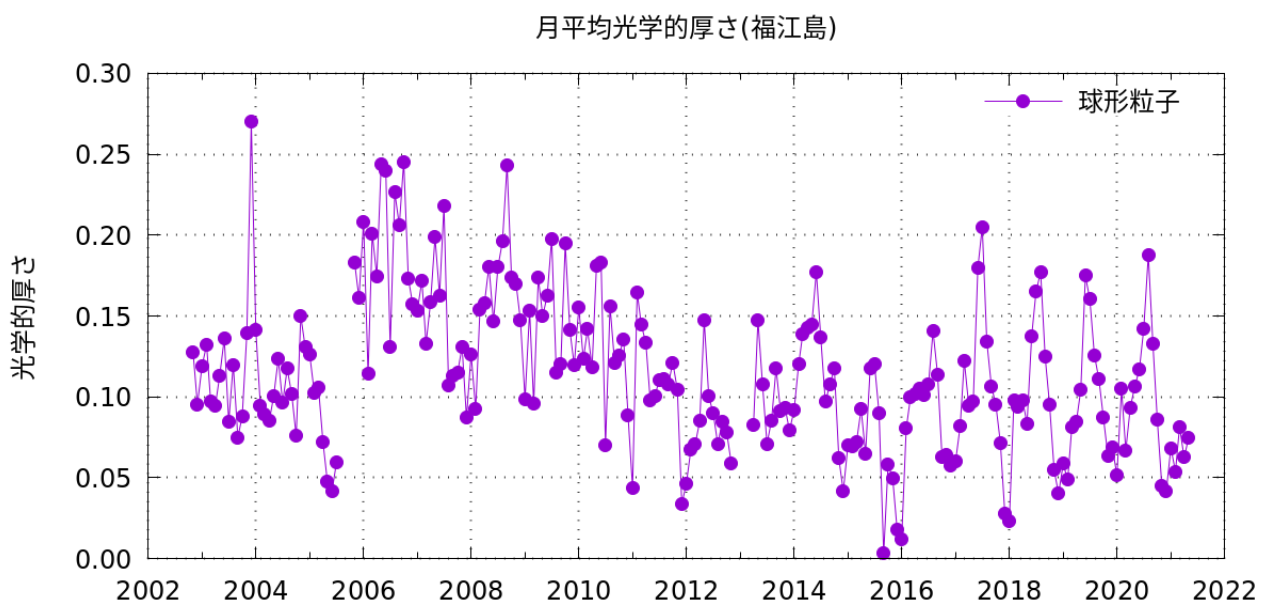


図 4.7 福江島におけるライダーによる球形粒子の光学的厚さの経年変化

少しておらず、また自動車からの排出など燃焼由来の窒素酸化物の排出が増加したため、硝酸アンモニウム粒子の生成が促進されている。2019年までの長崎県五島市での観測ではこのことを裏付けるように、硝酸イオンの相対的な割合が増加し、硫酸イオンの相対的な割合が減少していた図 4.8⁵⁾。一方で、COVID-19の感染が顕著になった2020年冬季から春季の五島市での観測では硫酸イオンも硝酸イオンも両方減少していた図 4.9⁶⁾。これはCOVID-19による経済活動の停滞、及び、暖冬であったため、温度変化に依存する硝酸アンモニウムの生成が抑制されたことが原因と考えられている⁵⁾。ちなみに、2021年春の観測データ（速報値）では平均濃度は2020年度の結果とあまり変化がなかった。数年間観測を継続し、硫酸イオンや硝酸イオンの濃度の傾向を把握することが、国内大気への影響を考えるうえで重要と思われる。

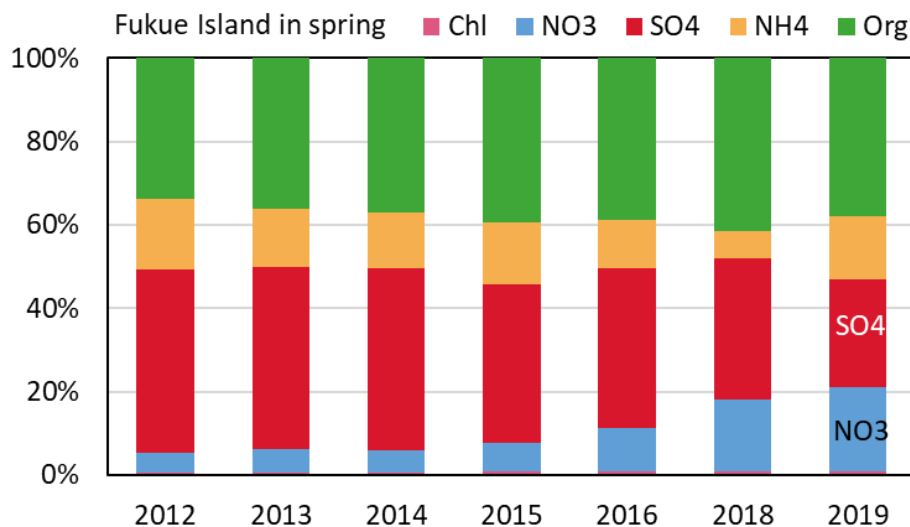


図4.8 春季に福江島においてACSMにより測定した粒子化学成分の経年変化

2)越境大気汚染の輸送ルート解析

2020年3月に福岡県福岡市の福岡病院で捕集した大気中のPM_{2.5}のPAH類と主要なイオン成分（アンモニウムイオン、硫酸イオン、硝酸イオン）の濃度変動を図4.10に示す。図4.10を見るとわかるように、主要なイオン成分とPAH類の濃度変動は一致していない。また主要なイオン成分同士も変動が一致していない場合がある。それぞれの化学成分の濃度が高い場合について、後方流跡線解析を用いて空気塊が飛来してくる経路を調べ、濃度変動と輸送経路に関連があるかどうかを調査した。後方流跡線解析を行った事例は以下の通りである。

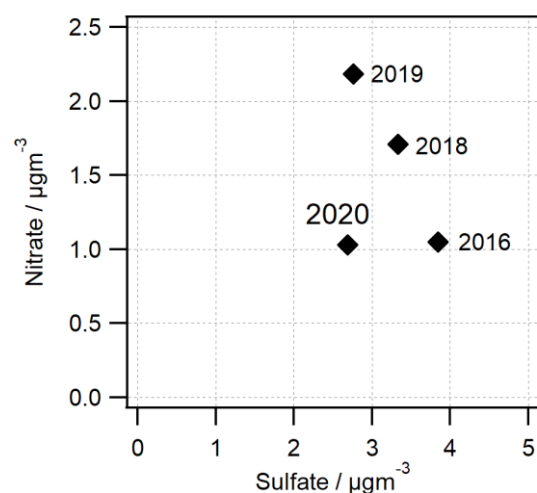


図4.9 2016～2020年の福江島における春季の硫酸塩および硝酸塩の比

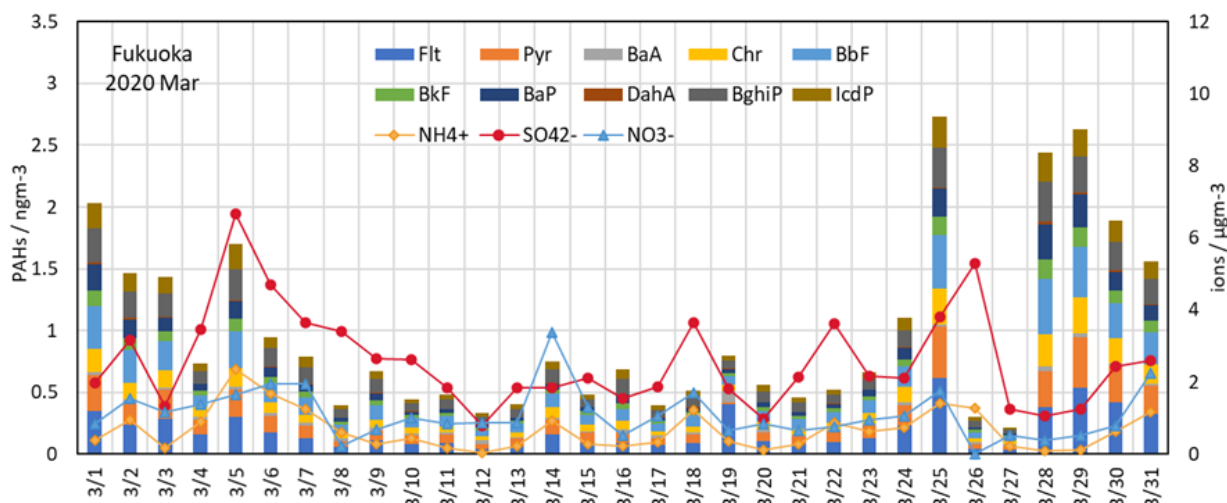


図4.10 福岡市で捕集したPM_{2.5}に含まれる主要なイオン成分とPAH類の濃度変動

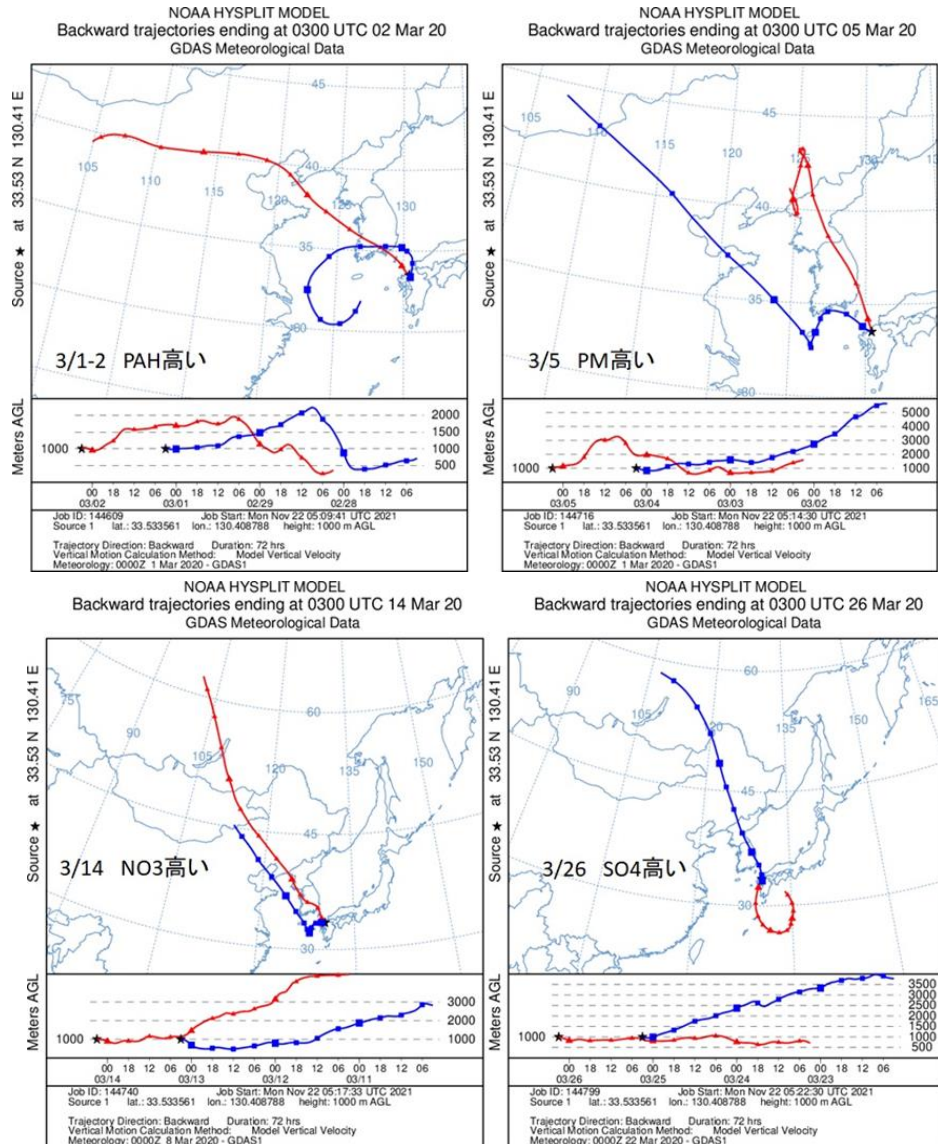
- PAH類の濃度が高い日：3月1～2日
- PM_{2.5}濃度が高い：3月5日
- 硝酸イオン濃度が硫酸イオン濃度に比べて高い：3月14日
- 硫酸イオン濃度がPAH類や硝酸イオンに比べ高い：3月26日

次頁に後方流跡線解析の結果を示す（図4.11）。図を見てわかる通り、3月26日の、硫酸イオンのみが高濃度になった日以外、ほぼ中国及び韓国を經由して福岡に空気塊が飛来している。3月26日は日本の南から空気塊が北上するような輸送経路となっており、これは九州の活動中の火山（桜島、諏訪之瀬島など）から噴出した二酸化硫黄が硫酸イオンとなり、その結果福岡で硫酸イオンのみ高い濃度になる現象が観測されたと考えられる。一方、3月1日から2日にかけてPAH類が相対的に高い濃度を示している時は、東シナ海沿岸や中国の北京、天津、渤海湾などを經由して福岡に輸送されている。また、3月後半（3月28日から31日あたり）の後方流跡線解析では朝鮮半島上空や中国北部（北京以北からモンゴル）から空気塊が輸送されている（図は無し）。同様にPM濃度が高い3月5日も中国北部から朝鮮半島を經由して福岡に空気塊が輸送されている。3月5日はPAH類と硫酸イオンが相対的に高く、これらがPMの主要成分と推定される（有機物も高い可能性はあるが、測定しておらず不明）。さらには3月14日の硝酸イオン濃度が相対的に高い場合も、中国北部から朝鮮半島を經由して福岡にというに多様な経路を経て輸送されている。硝酸イオン濃度が相対的に高い場合上海から山東半島にかけての中国沿岸部から空気塊が飛来するケースがあるが⁷⁾、今回はそのような事例は見られず、硫酸イオン濃度が高い事例をのぞき、いずれも北京以北の中国北部から輸送された事例で、PMやその主要成分の濃度が高かった。これは2020年3月の事例解析であるため、他の年度や月の場合には異なる輸送経路が考えられる

が、この時期は福岡の都市大気は中国北部、朝鮮半島を經由した空気塊の影響を受けていたと考えられる。

図4.11 後方流跡線解析の結果

赤い軌跡が高濃度日当日、青い軌跡が前日の輸送経路を表す。



3) PAH類とPM動態予測モデル構築支援

金沢大学が担当するサブテーマ3で、PAH類に関する東アジア域での濃度分布モデルを作成した。モデルの詳細な説明はサブテーマ3で行うが、ここでも簡単に紹介する。本研究では大気中の粒子態PAH類の越境輸送の動態を解析するために、3次元領域化学輸送モデル（Regional Air Quality Model ver2, RAQM2-POP）を使用した。RAQM2-POPモデルの気象場の計算にはWeather Research and Forecast Model（WRF）を使用した。初期・境界条件には、National Center for Environmental Prediction（NCEP）の緯度経度1度間隔の全球解析値（NCEP FNL ds083.2）を使用した。モデル領域は北東アジアをカバーしており、水平格子間隔は60 kmで90×60グリッド、鉛直方向には地表面から10 kmまでの12層（50, 150, 300, 500, 750, 1500, 2500, 3500, 4500, 6000, 7500, 8950 m）である。エミッションインベントリには、化石燃料等のデータにREASver2を使用した、REAS-POPver2を使用した。

PAH類の観測データがある金沢、能登、福岡について観測結果とモデル計算結果の比較を行った。期間は、金沢は2020年、2021年の3～5月、能登は2020年の3、4月と7、8月、福岡は2020年 2021年の3～5月である。ここではサブテーマ4に関係する福岡での結果を図4.12に示す。散布図が示す通り、福岡の

データでは高濃度部分の再現性があまりよくないという結果になった。能登輪島のモデル計算結果は観測データと比較的良好な一致を示しており、遠隔地の特徴をとらえているものと考えられる。一方で、福岡の結果は日本国内の都市などの発生源の影響を受けていることを示している。この結果からは、福岡市でのPAH類は、越境大気汚染のみならず、福岡市のローカルな影響も受けていることがわかる。粒子状物質に関してはローカルな影響が少なからずあることを次節で別のデータを用いて示す。

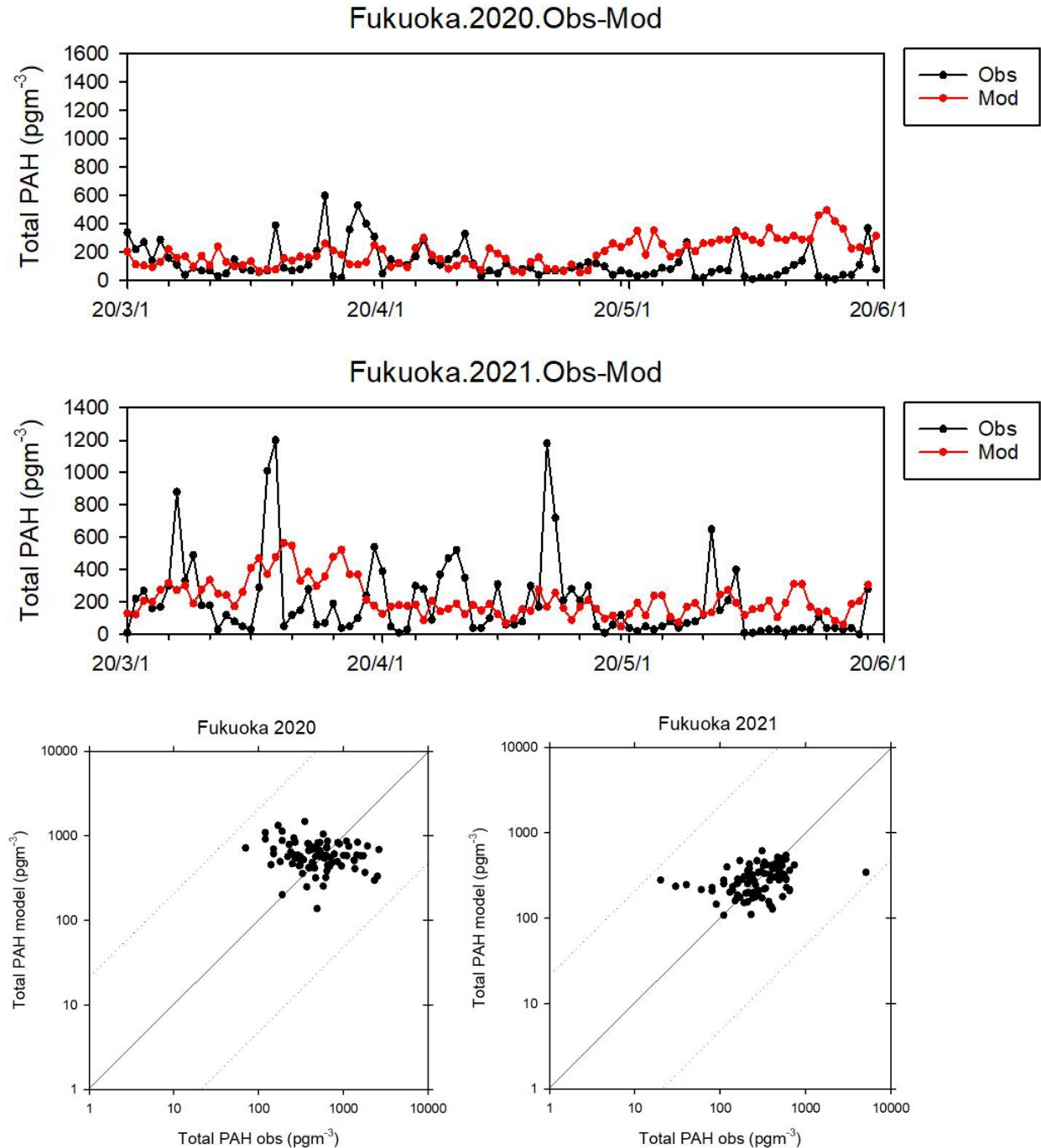


図4.12 2020年、2021年3～5月の福岡における総PAH類の観測結果およびRAQM2-POPモデル計算結果（上段：経時変化 下段：散布図）

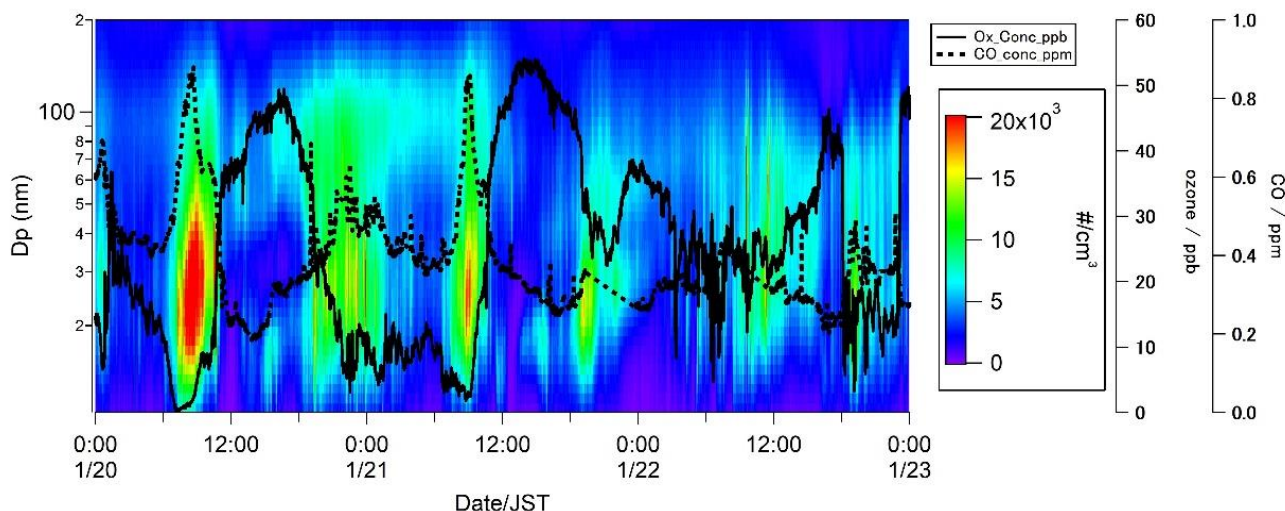
4) 国内都市大気への影響解明

微小粒子状物質（PM_{2.5}）の環境基準達成率は向上しているが、東京などの大都市や、西日本の瀬戸内海や北部九州地区において濃度が高く環境基準を超過する場合がある¹⁾。福岡市は中国大陸にも近く、また、人口150万を擁する大都市であり、大気質は越境大気汚染とローカルな排出による大気汚染の両方の

影響を受ける。PM_{2.5}を含む大気汚染対策を行うためには、越境大気汚染とともにローカルな排出による影響も評価する必要がある。2018年の冬季（1月下旬から2月上旬）に福岡大学で、粒子の個数濃度分布、一酸化炭素、オゾンなどのガス状物質濃度、粒子の化学組成、風向風速などの気象条件を測定し、大気汚染物質が高濃度になる条件について検討した⁸⁾。

粒子個数濃度、一酸化炭素（CO）、オゾンの濃度変動の一部を示す（図4.13）。観測期間中、粒子個数濃度の増減が繰り返し起きていた。SMPSの測定結果では、風速が弱い時に直径20–40 nmの粒子個数濃度（以下PN20_40）の増減が観測された。PN20_40の増加とともに、CO濃度が増加し、オゾン濃度は減少した。PN20_40の増加は、東風が卓越し、風速の弱い、午前中（6–12時ごろ）と夕方（18時–0時ごろ）にしばしばみられ、その時はCO濃度が高く、オゾン濃度が減少した。おそらく都市大気の影響が相対的に大きく寄与しており、風速の弱い気象条件の場合に、PN20_40の増加が起きると考えられる。黒色炭素（Black Carbon: BC）もPN20_40やCOと同じような濃度変動をしており、福岡においては、BCはローカルな排出に支配されていると考えられる。また、風速が弱い時のBCの平均濃度は0.4 μg m⁻³程度であるが、時折BCが1 μg m⁻³をこえる濃度を記録することもあり、風速が弱い時にはBC濃度が蓄積し相対的に高濃度になると考えられる。

観測期間中の濃度などのデータを風速が3 ms⁻¹未満か3 ms⁻¹以上で分類し、その平均値を計算した。その結果をまとめたデータを表4.2に示す。風速が弱い時（表ではGroup A）の特徴としては、風速が強い時（表ではGroup B）に比べ、相対的に気温や湿度が高い。またNO、NO₂、COなど燃焼起源の排出ガスの濃度も相対的に高い。さらに粒子状物質では、直径500 nm以下程度の粒子個数濃度、PM_{2.5}質量濃度、硝酸イオン、硫酸イオンなども相対的に濃度が高い。図4.13に示すように、風速が弱い時にPN20_40の個数濃度、NO_x、COなどの濃度が高いので、風速が弱い時はローカルな自動車などからの排出の影響を強く受けていると考えられる。



（図4.13） 2018年に福岡で観測した粒子個数濃度、オゾン（実線）、CO（破線）

一方で、オゾンは北西風が卓越し風速が強い時に濃度が高く、PMとは逆の相関を示す（図4.14）。風速が弱い時には昼間に濃度の上昇と減少を繰り返す典型的な光化学反応で生成するオゾン濃度の変動を示している（1月20日から1月23日）。一方で風速の強い時には、オゾン濃度は40 ppb程度で一定で、夜間も濃度が下がらず光化学反応が原因とは考えられない変動を示している（1月23日から1月27日）。風速が強い時には西～北の方面から風が吹いており、冬季の典型的な季節風が卓越した風向である。このことから、オゾンは越境輸送が卓越しているときに濃度が高くなることを示しており、オゾンは広域の長距離越境輸送にも支配されていることが明らかとなった。

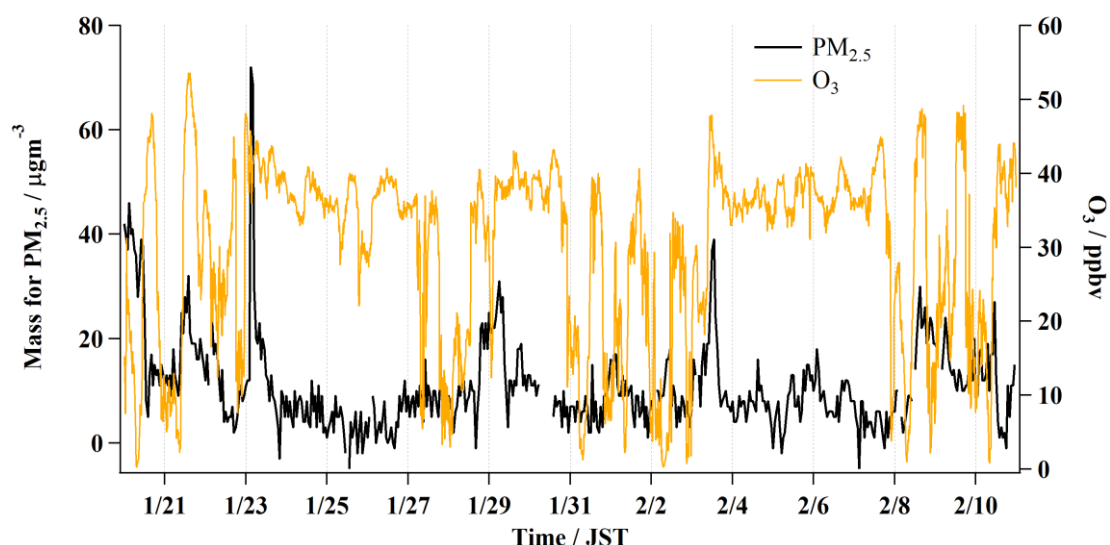
今回観測した福岡市での冬季の場合には、PMの濃度削減にはローカルな対策がより重要と考えられる。一方で、オゾンの場合は、日変動がみられる場合は光化学反応が原因なので福岡市内におけるNO_xや有機化合物の排出対策が重要であるが、風速が強い場合は季節風が卓越し越境大気汚染の影響も大きいので、東アジア

ア全体での対策が必要であると考えられる。

表4.2 福岡で観測した風速とオゾン、PMの濃度との関係

Gas and Meteorological data									
Group		O ₃ / ppb	NO / ppb	NO ₂ / ppb	CO / ppm	SO ₂ / ppb	WS ^{*3} / ms ⁻¹	Temp. ^{*4} / °C	RH ^{*5} / %
Group A (LAP ^{*1})	Average	23.5	3.03	15.3	0.32	1.24	1.50	5.13	65.4
	S.D.	13.5	6.21	8.39	0.12	0.87	0.84	3.17	14.3
Group B (TAP ^{*2})	Average	36.4	0.56	4.60	0.23	1.02	3.90	1.62	51.6
	S.D.	5.41	0.48	3.76	0.08	0.50	1.42	2.05	8.53
PM data									
Group		Total Particle Number / cm ⁻³	BC / ng m ⁻³	PM _{2.5} / μg m ⁻³	NO ₃ ⁻ / μg m ⁻³	SO ₄ ²⁻ / μg m ⁻³			
Group A (LAP)	Average	6868	413	12.4	1.76	1.80			
	S.D.	3210	222	8.33	1.19	0.93			
Group B (TAP)	Average	3168	229	9.07	0.82	1.71			
	S.D.	1701	180	8.69	1.17	1.11			

*1 LAP: local air pollution *2 TAP: trans-boundary air pollution *3 WS: wind speed *4 Temp.: temperature *5 RH: relative humidity



(図4.14) 2018年に福岡で観測したオゾンとPMの濃度変動

5. 研究目標の達成状況

初年度の「長崎県福江島と福岡市において大気粒子を捕集し、金沢大学でのPAH類の分析に試料を提供する」という目標は、研究開発内容に記述した様に五島中央病院と福岡病院においてフィルター捕集を行い、それを金沢大学のPAH類の分析試料に提供した。分析結果はサブテーマ3に記載されている。「エアロゾル化学成分自動測定機などによる観測を実施する」という目標は、1) PMの経年変化の解析で示した通り黄砂飛来時の大気汚染物質の動態や長期変動の解析などに利活用した。(図4.2, から4.9, 表4.1)

二年度目も「前年度の計画を継続する」という目標に従って、大気粒子の捕集と金沢大学への試料提供を行った。結果はサブテーマ3に記載されている。また、「測定結果や常時監視データを用いて、

越境大気汚染の輸送ルート解析を行う」という目標は、国環研では独自にイオン分析を行い、そのほかのデータなども利用して、2)越境大気汚染の輸送ルート解析に記載したように、越境大気汚染部室の輸送ルートの解明を行った。(図4.10, 4.11)

3年度目の「過去の観測データも併せて、金沢大学グループの東アジア域におけるPAH類とPM動態予測モデル構築を支援する」という目標に対しては、3) PAH類とPM動態予測モデル構築支援に記載したように、福岡での観測データと金沢大学のモデルを比較し、モデルの妥当性や課題を評価した(図4.12)。「国内都市大気への影響解明を行う」という目標に対しては、4) 国内都市大気への影響解明に記載したように、福岡での観測結果をもとにPMやオゾンの動態を解析し、福岡市においては冬季にオゾン濃度が越境大気汚染の影響を受けていることを明らかにした(図4.13, 4.14, 表4.2)。以上の通り計画した内容は達成できたと考えられる。

6. 引用文献

- 1) 環境省：<http://www.env.go.jp/air/osen/index.html> (2020)
令和元年度大気汚染物質(有害大気汚染物質等を除く)に係る常時監視測定結果
- 2) A. F. STEIN, R. R. DRAXER, G. D. ROLPH, B. J. B. STUNDER, M. D. COHEN, and F. NGAN: *Bulletin of American Meteorological Society*, 96, 2059-2077 (2015)
NOAA's HYSPLIT atmospheric transport and dispersion modeling system.
- 3) G. ROLPH, A. STEIN, and B. STUNDER: *Environmental Modelling & Software*, 95, 210-228 (2017)
Real-time Environmental Applications and Display sYstem: READY.
- 4) 九州大学, 国立環境研究所：<http://www-cfors.nies.go.jp>
化学天気予報システムCFORS (Chemical weather FORecasting System)
- 5) I. UNO, Z. WANG, S. ITAHASHI, K. YUMIMOTO, Y. YAMAMURA, A. YOSHINO, A. TAKAMI, M. HAYASHI, M. HAYASAKI, and B-G. KIM: *Scientific Reports*, 10, 6450 (2020)
Paradigm shift in aerosol chemical composition over regions downwind of China.
- 6) 吉野彩子、高見昭憲：大気環境学会誌, 55(6), 248-251 (2020)
長崎福江島における大気質観測—COVID-19による越境大気汚染への影響—
- 7) A. TAKAMI, T. MIYOSHI, A. SHIMONO, and S. HATAKEYAMA: *Atmospheric Environment*, 39, 4913-4924 (2005)
Chemical composition of fine aerosol measured by AMS at Fukue Island, Japan during APEX period
- 8) A. YOSHINO, A. TAKAMI, K. HARA, C. NISHITA-HARA, M. HAYASHI, and N. KANEYASU: *Atmosphere*, 12, 431 (2021)
Contribution of Local and Transboundary Air Pollution to the Urban Air Quality of Fukuoka, Japan.

Ⅲ. 研究成果の発表状況の詳細

(1) 誌上発表

<査読付き論文>

【サブテーマ1】

- 1) Y. INOMATA, M. TAKEDA, N. THAO, M. KAJINO, T. SETO, H. NAKAMURA and K. HAYAKAWA: *Atmosphere*, 12, 9, 1163 (2021) (IF:2.682), Particulate PAH Transport Associated with Adult Chronic Cough Occurrence Closely Connected with Meteorological Conditions: A Modelling Study.
- 2) K. HAYAKAWA, N. TANG, W. XING, P. OANH, P.K., A. HARA and H. NAKAMURA: *Atmosphere*, 12, 256. (2021).(IF:2.397), Concentrations and sources of atmospheric PM, polycyclic aromatic hydrocarbons and nitropolycyclic aromatic hydrocarbons in Kanazawa, Japan.
- 3) K. O. Pham, A. Hara, J. Zhao, K. Suzuki, A. Matsuki, Y. Inomata, H. Matsuzaki, H. Odajima, K. Hayakawa, H. Nakamura *Applied Sciences*, 12 (11), 10.3390/app12115404 (2022) (IF:2.679), Different Transport Behaviors between Asian Dust and Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Urban Areas: Monitoring in Fukuoka and Kanazawa, Japan

【サブテーマ2】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ3】

- 1) W.L. XING, L. YANG, H. ZHANG, X. ZHANG, Y. WANG, P.C. BAI, L.L. ZHANG, K. HAYAKAWA, S. NAGAO and N. TANG: *J. Environ. Sci. (China)*, (2022) (IF:5.565), Variations in traffic-related polycyclic aromatic hydrocarbons in PM_{2.5} in Kanazawa, Japan, after the implementation of a new vehicle emission regulation. (Accepted)
- 2) K. HAYAKAWA, N. TANG and A. TORIBA: *Appl. Sci.*, 12, 2149 (2022) (IF:2.679), Long-term and seasonal changes in sources of urban atmospheric particulates in the Western Pacific.
- 3) W.L. XING, L. YANG, H. ZHANG, X. ZHANG, Y. WANG, P.C. BAI, L.L. ZHANG, K. HAYAKAWA, S. NAGAO and N. TANG: *Atmospheric Pollut. Res.*, 12, 12, 101233 (2021) (IF:4.352), Variations in traffic-related water-soluble inorganic ions in PM_{2.5} in Kanazawa, Japan, after the implementation of a new vehicle emission regulation.
- 4) C.-T. PHAM, B.-T. LY, T.-D. NGHIEM, T.H.-P. PHAM, N.-T. MINH, N. TANG, K. HAYAKAWA and A. TORIBA: *Air Qual. Atmos. Health*, 14, 4, 1757–1771 (2021) (IF:3.763), Emission factors of selected air pollutants from rice straw burning in Hanoi, Vietnam.
- 5) A.E. MARGOLIS, D. PAGLIACCIO, B. RAMPHAL, S. BANKER, L. THOMAS, M. ROBINSON, M. HONDA, T. SUSSMAN, J. POSNER, K. KANNAN, J. HERBSTMAN, V. RAUH and R. MARSH: *Environment Int.*, 155, 106516 (2021) (IF: 7.577), Prenatal environmental tobacco smoke exposure alters children's cognitive control circuitry: A preliminary study.
- 6) L. YANG, L. ZHANG, L. CHEN, C. HAN, T. AKUTAGAWA, O. ENDO, M. YAMAUCHI, A. NERODA, A. TORIBA and N. TANG: *Environ. Pollut.*, 287, 117360 (2021) (IF: 6.793), Polycyclic aromatic hydrocarbons and nitro-polycyclic aromatic hydrocarbons in five East

- Asian cities: Seasonal characteristics, health risks, and yearly variations.
- 7) K. HAYAKAWA, N. TANG, A. MATSUKI, Y. INOMATA, A. TORIBA and G. NAGATO: *Chemosphere*, 280, 130662 (2021)
(IF: 5.778), Calculating source contributions to urban atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons and nitropolycyclic aromatic hydrocarbons using 1-nitropyrene and pyrene: An application to an Asian dust event.
 - 8) Y. INOMATA, M. TAKEDA, N. THAO, M. KAJINO, T. SETO, H. NAKAMURA and K. HAYAKAWA: *Atmosphere*, 12, 9, 1163 (2021)
(IF:2.682), Particulate PAH Transport Associated with Adult Chronic Cough Occurrence Closely Connected with Meteorological Conditions: A Modelling Study.
 - 9) E. ITO, T. TAMADATE, Y. INOMATA and T. SETO: *Aerosol Sci. Technol.*, 55, 11, 1239-1248 (2021)
(IF:2.908), Water-based particle size magnifier for wet sampling of aerosol particles.
 - 10) M. KAJINO, M. DEUSHI, T.T. SEKITAMA, N. OSHIMA, K. YUMIMOTO, T.Y. TANAKA, J. CHING, A. HASHIMOTO, T. YAMAMOTO, M. IKEGAMI, A. KAMADA, M. MIYASHITA, Y. INOMATA, S. SHIMA, P. KHATRI, A. SHIMIZU, H. IRIE, K. ADACHI, Y. ZAIZEN, Y. IGARASHI, H. UEDA, T. MAKI and M. MIKAMI: *Geosci. Model Dev.*, 14, 4, 2235-2264 (2021)
(IF:5.24), Comparison of three aerosol representations of NHM-Chem (v1.0) for the simulations of air quality and climate-relevant variables.
 - 11) L. ZHANG, L. YANG, J. BI, Y. LIU, A. TORIBA, K. HAYAKAWA, S. NAGAO and N. TANG: *Environ. Pollut.*, 274, 116527 (2021)
(IF: 6.793), Characteristics and unique sources of polycyclic aromatic hydrocarbons and nitro-polycyclic aromatic hydrocarbons in PM_{2.5} at a highland background site in northwestern China.
 - 12) Q.Y. ZHOU, L.L. ZHANG, L. YANG, X. ZHANG, W.L. XING, M. HU, B. CHEN, C. HAN, A. TORIBA, K. HAYAKAWA and N. TANG: *Chemosphere*, 264, Pt1, 128427 (2021).
(IF:5.778), Long-term variability of inorganic ions in TSP at a remote background site in Japan (Wajima) from 2005 to 2015.
 - 13) X. ZHANG, L. YANG, H. ZHANG, W. XING, Y. WANG, P. BAI, L. ZHANG, K. HAYAKAWA, A. TORIBA, Y. WEI and N. TANG: *Int. J. Environ. Res. Public Health*, 18, 6, 3124 (2021)
(IF:2.849), Assessing approaches of human inhalation exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons: A Review
 - 14) L. YANG, H. ZHANG, X. ZHANG, W. XING, Y. WANG, P. BAI, L. ZHANG, K. HAYAKAWA, A. TORIBA and N. TANG: *Int. J. Environ. Res. Public Health*, 18, 4, 2177 (2021)
(IF:2.849), Exposure to Atmospheric Particulate Matter-Bound Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Their Health Effects: A Review.
 - 15) H. ZHANG, L. YANG, X. ZHANG, W. XING, Y. WANG, P. BAI, L. ZHANG, Y. LI, K. HAYAKAWA, A. TORIBA and N. TANG: *Int. J. Environ. Res. Public Health*, 18, 6, 3017 (2021)
(IF:2.849), Characteristics and health risks of polycyclic aromatic hydrocarbons and nitro-PAHs in Xinxiang, China in 2015 and 2017.
 - 16) H. ZHANG, L. ZHANG, L. YANG, Q. ZHOU, X. ZHANG, W. XING, K. HAYAKAWA, A. TORIBA and N. TANG: *Chem. Pharm. Bull.*, 69, 3, 237-245 (2021)
(IF:1.416), Impact of COVID-19 outbreak on the long-range transport of common air pollutants in KUWAMS.
 - 17) K. HAYAKAWA, N. TANG, W. XING, P. OANH, P.K., A. HARA and H. NAKAMURA: *Atmosphere*, 12, 256. (2021).
(IF:2.397), Concentrations and sources of atmospheric PM, polycyclic aromatic hydrocarbons and nitropolycyclic aromatic hydrocarbons in Kanazawa, Japan.

- 18) A. TORIBA and K. HAYAKAWA: *Biomed. Chromatogr.*, 35, 1 (Special Issue: 2021 Review and Perspectives Issue), e5038 (2021)
(IF:1.902), What is necessary for next-generation atmospheric environmental standards? Recent research trends for PM_{2.5}-bound polycyclic aromatic hydrocarbons and their derivatives.
- 19) L. YANG, Q. ZHOU, H. ZHANG, X. ZHANG, W. XING, Y. WANG, P. BAI, M. YAMAUCHI, T. CHOJI, L. ZHANG, K. HAYAKAWA, A. TORIBA and N. TANG: *Int. J. Environ. Res. Public Health*, 18, 2, 688 (2021)
(IF:2.849), Atmospheric Behaviour of Polycyclic and Nitro-Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Water-Soluble Inorganic Ions in Winter in Kirishima, a Typical Japanese Commercial City.
- 20) L. YANG, L. ZHANG, Q. ZHOU, X. ZHANG, W. XING, Q. WU, Z. ZHOU, R. CHEN, A. TORIBA, K. HAYAKAWA and N. TANG: *J. Environ. Sci. (China)*, 99, 72-79 (2021)
(IF:3.556), Yearly variation in characteristics and health risk of polycyclic aromatic hydrocarbons and nitro-PAHs in urban shanghai from 2010-2018.
- 21) L. ZHANG, L. YANG, H. ZHANG, Q. ZHOU, X. ZHANG, W. XING, A. TORIBA, K. HAYAKAWA and N. TANG: *Aerosol Air Qual. Res.*, 20, 10, 2035-2046 (2020)
(IF:2.735), Impact of the COVID-19 outbreak on the long-range transport of particulate PAHs in East Asia.
- 22) K. HAYAKAWA, N. TANG, A. TORIBA and G. NAGATO: *Environ. Pollut.*, 265 (Part B), 114730 (2020)
(IF:6.793), Calculating sources of combustion-derived particulates using 1-nitropyrene and pyrene as markers.
- 23) L. YANG, L. ZHANG, H. ZHANG, Q. ZHOU, X. ZHANG, W. XING, A. TAKAMI, K. SATO, A. SHIMIZU, A. YOSHINO, N. KANEYASU, A. MATSUKI, K. HAYAKAWA, A. TORIBA and N. TANG : *Int. J. Environ. Res. Public Health*, 17, 21, 8224 (2020)
(IF:2.849), Comparative analysis of PM_{2.5}-bound polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs), nitro-PAHs (NPAHs), and water-soluble inorganic ions (WSIIs) at two background sites in Japan.
- 24) L. ZHANG, X. ZHANG, W. XING, Q. ZHOU, L. YANG, R. NAKATSUBO, Y. WEI, J. BI, M. SHIMA, M., A. TORIBA, K. HAYAKAWA and N. TANG: *Environ. Pollut.*, 263 (Pt A), 114454 (2020)
(IF: 5.714), Natural aeolian dust particles have no substantial effect on atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs): a laboratory study based on naphthalene.
- 25) X. ZHANG, L. ZHANG, L. YANG, Q. ZHOU, W. XING, A. TORIBA, K. HAYAKAWA, Y. WEI and N. TANG: *Int. J. Environ. Res. Public Health*, 17, 3, 957 (2020)
(IF: 2.8491), Characteristics of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and common air pollutants at wajima, a remote background site in Japan.
- 26) W. XING, L. ZHANG, Y. L. YANG, Q. ZHOU, X. ZHANG, A. TORIBA, K. HAYAKAWA and N. TANG: *Int. J. Environ. Res. Public Health*, 17, 3, 805 (2020)
(IF: 2.8491), Characteristics of PM_{2.5}-bound polycyclic aromatic hydrocarbons and nitro-polycyclic aromatic hydrocarbons at a roadside air pollution monitoring station in Kanazawa, Japan.

【サブテーマ 4】

- 1) I. UNO, Z. WANG, S. ITAHASHI, K. YUMIMOTO, Y. YAMAMURA, A. YOSHINO, A. TAKAMI, M. HAYASHI, M. HAYASAKI, and B-G. KIM: *Scientific Reports*, 10, 6450 (2020)
Paradigm shift in aerosol chemical composition over regions downwind of China.
- 2) 吉野彩子、高見昭憲：大気環境学会誌，55(6)，248-251 (2020)
長崎福江島における大気質観測—COVID-19による越境大気汚染への影響—
- 3) A. YOSHINO, A. TAKAMI, K. HARA, C. NISHITA-HARA, M. HAYASHI, and N. KANEYASU:

Atmosphere, 12, 431 (2021)

Contribution of Local and Transboundary Air Pollution to the Urban Air Quality of Fukuoka, Japan.

<査読付論文に準ずる成果発表>

【サブテーマ1】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ2】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ3】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ4】

特に記載すべき事項はない。

<その他誌上発表（査読なし）>

【サブテーマ1】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ2】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ3】

- 1) M.I. Zanaty, H.F. Nassar, H.M. Mahmoud, Kh. Fagr, F.K. Abdel-Gawad, M. Sato, K. Yachiguchi, N. Shimizu, K. Hayakawa, A. Hattori, K. Mukai, Y. Shimasaki, Y. Oshima and N. Suzuki: J. Fac. Agric. Kyushu Univ., 64,287-291(2019)
Influence of polluted sea water in the Red Sea on the osteoclasts and osteoblasts of goldfish, *Carassius auratus*.

【サブテーマ4】

特に記載すべき事項はない。

(2) 口頭発表（学会等）

【サブテーマ1】

- 1) Hiroyuki NAKAMURA, Effects of ambient chemicals on chronic cough, , Current Issues on Behavior and Health Effect of Air Pollutants in Asia, November 21, 2019, Kanazawa, JAPAN
- 2) Hiroyuki. NAKAMURA, Nguyen Thi Thu Thao, Akinori HARA, Effects of environmental chemicals on allergic diseases, Joint International Symposium on Sustainable Development and Environmental issues, December 17, 2019, Kanazawa, JAPAN
- 3) Akinori HARA, Relationship between respiratory symptoms and atmospheric chemicals in people with

- chronic cough, The 2th Chiang Mai University and Kanazawa University Joint Symposium - Approaches to Haze Problems from Environment, Health Effects and Socio-Economic Impacts -, -March 26, 2021, Chiang Mai University, Thailand
- 4) Hiroyuki NAKAMURA, Effects of environmental chemicals on respiratory disorders including allergic diseases, The 2nd Japan - German Symposium on Advanced Preventive Medicine 2019 October 3-4, 2019, Kanazawa, Japan
 - 5) Akinori HARA, Effect of atmospheric particulate matters on respiratory symptoms in people with chronic cough, 3rd Japan – Germany Symposium on Advanced Preventive Medicine 2021 March 4-6, 2021, Dusseldorf, Germany
 - 6) Akinori HARA and Sara KRESS, Sex differences in the association between air pollutants and asthma prevalence in Japanese rural residents , 4th Japan-Germany Symposium on Advanced Preventive Medicine 2022 -Through Worldwide-COVID-19 Pandemic to International lignment, February 3-5, 2022, Nagasaki, Japan
 - 7) Sara KRESS and Akinori HARA, Gene-environment interaction effects on respiratory health among ancestry groups, 4th Japan-Germany Symposium on Advanced Preventive Medicine 2022 -Through Worldwide-COVID-19 Pandemic to International lignment, February 3-5, 2022, Nagasaki, Japan
 - 8) Kim-Oanh PHAM, Akinori HARA, Zhao JIAYE, Hiroshi MATSUZAKI, Hiroshi ODAJIMA, Kazuichi HAYAKAEA, Hiroyuki NAKAMURA, Asian Sand Dust and its effect on polycyclic aromatic hydrocarbons in Fukuoka and Kanazawa, 4th Japan-Germany Symposium on Advanced Preventive Medicine 2022 -Through Worldwide-COVID-19 Pandemic to International lignment, February 3-5, 2022, Nagasaki, Japan

【サブテーマ 2】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ 3】

- 1) 張昊、張セン、王エン、白ポウソウ、張露露、早川和一、鳥羽陽、唐寧：日本薬学会第142年会（2022）
「中国の新型コロナウイルス感染症流行期間中に輪島で観測された越境輸送大気汚染物質の変化」
- 2) 張せん、張昊、王エン、白ホウ楚、張露露、早川和一、魏永杰、唐寧：日本薬学会第142年会（2022）
「中国の都市地域における個人曝露多環芳香族炭化水素の健康影響に関する包括的な調査研究」
- 3) BAI PENGCHU、王エン、張昊、張セン、張露露、早川和一、長尾誠也、唐寧：日本薬学会第142年会（2022）
「黄砂イベントによる輪島の大气中多環芳香族炭化水素類の濃度変動と健康リスクへの影響」
- 4) 王エン、張昊、張セン、白ホウ楚、ネロダーアンドイ、ミシュコフワシリ、張露露、早川和一、長尾誠也、唐寧：日本薬学会第142年会（2022）
「近年におけるロシアウラジオストクの大气中多環芳香族炭化水素及びニトロ多環芳香族炭化水素の変動要因解析」
- 5) 張昊、張璇、王琰、白芄楚、張露露、早川和一、鳥羽陽、唐寧：第92回日本衛生学会学術総会（2022）
「中国新郷における環境保護対策の実施と多環芳香族炭化水素（PAHs）とニトロ多環芳香族炭化水素（NPAHs）の影響」
- 6) 張セン、張昊、王エン、白ホウ楚、張露露、早川和一、魏永杰、唐寧：第92回日本衛生学会学術総会（2022）

- 「大気汚染による住民肺機能への影響評価：中国の深刻な大気汚染都市でのパイロット調査」
- 7) 王エン、張昊、張セン、白ホウ楚、アンドレイネロダー、ワシリミシュコフ、張露露、早川和一、長尾誠也、唐寧：第92回日本衛生学会学術総会（2022）
- 「ロシアウラジオストクにおける大気中多環芳香族炭化水素及びニトロ多環芳香族炭化水素の経年変動と健康リスク」
- 8) 白ボウ楚、王エン、張昊、張セン、張露露、早川和一、長尾誠也、唐寧：第92回日本衛生学会学術総会（2022）
- 「黄砂飛来時に輪島で観測された多環芳香族炭化水素類の濃度と組成変化」
- 9) 松木篤、戸田雅之、井村まゆ、岩田歩：エアロゾル・雲・降水の相互作用に関する研究集会（2022）
- 「金沢大学角間キャンパスで観測された生物氷晶核の増加と気象条件」
- 10) L. ZHANG : Joint Usage/Joint Research Symposium on Integrated Environmental Studies, Kanazawa, Japan, 2021
- “Recent investigation on particulate polycyclic aromatic hydrocarbons in East Asian cities”（アブストラクト提出済み）
- 11) BAI PENGCHU、王琰、楊露、張昊、張セン、邢万里、張露露、早川和一、長尾誠也、唐寧：第62回大気環境学会年会（2021）
- 「2021年の黄砂イベント時に輪島で観測された多環芳香族炭化水素類濃度と組成の変化」
- 12) 王エン、YANG LU、ZHANG HAO、ZHANG XUAN、XING WANLI、BAI PENGCHU、NERODA ANDREY、MISHUKOV VASSILY F.、ZHANG LULU、HAYAKAWA KAZUICHI、NAGAO SEIYA、TANG Ning：第62回大気環境学会年会（2021）
- 「ロシアウラジオストクにおける大気中多環芳香族炭化水素及びニトロ多環芳香族炭化水素の汚染特徴」
- 13) ZHANG HAO、楊露、張セン、邢万里、王琰、白芄楚、張露露、早川和一、鳥羽陽、唐寧：第62回大気環境学会年会（2021）
- 「新規環境政策前後における中国新郷市の大気中多環芳香族炭化水素類の変遷」
- 14) 張露露、楊露、閉建栄、魏永杰、鳥羽陽、早川和一、長尾誠也、唐寧：第62回大気環境学会年会（2021）
- 「中国北西部地域における大気中多環芳香族炭化水素の主要発生源解析」
- 15) 張璇、楊露、張昊、邢万里、王琰、白芄楚、張露露、早川和一、魏永杰、唐寧：第62回大気環境学会年会（2021）
- 「中国大都市における事務職員の大气汚染物質曝露レベルと肺機能への影響調査」
- 16) A. MATSUKI, S. KUBOTA, N. HAYASHI, K. ONO, N. TSUCHIYA, P. SHAO, N. TANG, S. KATO, Y. SADANAGA, Y. IWAMOTO and N. KANEYASU: 2021 Workshop on International Air Quality Studies in East Asia (AQSEA2021), 2021 (オンライン)
- “Characteristics of the atmospheric constituents heavily impacted by the typical winter monsoon at the tip of Noto peninsula, Japan”（アブストラクト提出済み）
- 17) 松木篤、久保田誠史、表野宏之、岩本洋子、鶴丸央、アレシヤ・ニコシア、岩田歩、兼保直樹：第38回エアロゾル科学・技術討論会（2021）
- 「能登半島におけるエアロゾル粒径分布の長期観測」
- 18) 大野耕平、岩田歩、福間剛士、岩本洋子、濱崎恒二、松木篤：第38回エアロゾル科学・技術討論会（2021）
- 「原子間力顕微鏡を用いた海洋起源有機エアロゾルの付着力測定」
- 19) K. ONO, A. IWATA, T. FUKUMA, Y. IWAMOTO, K. HAMASAKI and A. MATSUKI: The 16th IGAC Scientific Conference, 2021 (オンライン)
- “Characterization of adhesivity of marine organic aerosols by atomic force microscopy”（アブストラク

- ト提出済み)
- 20) S. KUBOTA and A. MATSUKI: Russian Week 2021 in Kanazawa University, 2021 (オンライン)
 “Long-term trend of new particle formation events on the Noto peninsula, Japan” (アブストラクト提出済み)
- 21) K. KUNIHISA, R. KANAI, A. IWATA, M. GEN, C. K. CHAN and A. MATSUKI: The 8th Prince of Songkla University–Kanazawa University Joint Workshop (8th PSU-KZU-JWS), Hat Yai, Thailand, 2021 (オンライン)
 “Application of surface enhanced raman spectroscopy (SERS) on atmospheric aerosol research.” (アブストラクト提出済み)
- 22) 久保田誠史、表野宏之、岩本洋子、鶴丸央、アレッシア ニコシア、松木篤：東京理科大学研究推進機構総合研究院大気科学研究部門 第 5 回成果報告会 (2021) (オンライン)
 「能登半島におけるエアロゾル粒径分布の経年変化」
- 23) 大野耕平、水島悠希、古家正規、國久亮太、土屋望、福間剛士、岩田歩、松木篤：第 25 回大気化学討論会 (2020) (オンライン)
 「原子間力顕微鏡を用いた個別エアロゾル粒子の付着力測定法の開発と大気エアロゾルへの応用」
- 24) X. ZHANG、L. ZHANG、L. YANG、H. ZHANG、Q. ZHOU、W. XING、Y. WEI、A. TORIBA、K. HAYAKAWA and N. TANG：第 61 回 大気環境学会年会 (2020) (誌上開催)
 「The impact of exposure to particulate matter and gaseous pollutants to human lung function in Beijing and Baoding, China」
- 25) L. ZHANG、L. YANG、Q. ZHOU、X. ZHANG、W. XING、H. ZHANG、R. NAKATSUBO、J. BI、Y. WEI、M. SHIMA、K. HAYAKAWA、A. TORIBA and N. TANG：第 61 回 大気環境学会年会 (2020) (誌上開催)
 「Effect of water-saturated Kosa particles on the degradation of naphthalene」
- 26) N. TANG、Q. ZHOU、L. ZHANG、L. YANG、H. ZHANG、X. ZHANG、W. XING、A. TORIBA：第 61 回 大気環境学会年会 (2020) (誌上開催)
 「Characteristic and long-term variation of inorganic ions in the atmosphere at a Japanese remote background site, Wajima」
- 27) H. ZHANG、L. ZHANG、L. YANG、Q. ZHOU、X. ZHANG、W. XING、K. HAYAKAWA、A. TORIBA and N. TANG：第 61 回 大気環境学会年会 (2020) (誌上開催)
 「Impact of COVID-19 Outbreak on the long-range transport of common air pollutants in KUWAMS」
- 28) W. XING、L. ZHANG、L. YANG、H. ZHANG、Q. ZHOU、X. ZHANG、A. TORIBA、K. HAYAKAWA and N. TANG：第 61 回 大気環境学会年会 (2020) (誌上開催)
 「Characteristics of PM-bound polycyclic aromatic hydrocarbons at a roadside air pollution monitoring station, Kanazawa, Japan」
- 29) 楊露、張露露、張昊、周全渝、張璇、邢万里、鳥羽陽、早川和一、柏倉桐子、呉慶、周志俊、陳仁杰、H. KIM、V. MISHUKOV、A. NERODA、唐寧：第 61 回 大気環境学会年会 (2020) (誌上開催)
 「アジアの都市域における大気中多環芳香族炭化水素の特徴及び健康リスク評価」
- 30) 鳥羽陽、W. ORAKIJ、T. CHETIYANUKORNKUL、唐寧、早川和一：第 61 回 大気環境学会年会 (2020) (誌上開催)
 「タイ農村の屋内バイオマス燃焼に由来する多環芳香族炭化水素類の特性解析」
- 31) 大野耕平、水島悠希、古家正規、國久亮太、土屋望、福間剛士、岩田歩、松木篤：第 37 回エアロゾル科学・技術研究討論会 (2020) (オンライン)
 「原子間力顕微鏡を用いた個別エアロゾル粒子の付着力直接測定法」
- 32) 早川和一、唐寧、鳥羽陽：日本薬学会第 140 年会 (2020)
 「新規 NP 法を用いた極東アジア都市の大気中 PM、PAH 及び NPAH 類の発生源比較」

- 33) W.L. XING, L.L. ZHANG, L. YANG, Q.Y. ZHOU, X. ZHANG, Q. WU, Z.J. ZHOU, A. TORIBA, K. HAYAKAWA, N. TANG : 第 60 大気環境学会年会 (2019)
「Measurement and behavior analysis of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons in different particulate sizes in Shanghai, China」
- 34) Q.Y. ZHOU, L.L. ZHANG, L. YANG, X. ZHANG, W.L. XING, A. TORIBA, K. HAYAKAWA, N. TANG : 第 60 大気環境学会年会 (2019)
「Acidity of Atmospheric Aerosol Particles at a remote background site, Japan」
- 35) X. ZHANG, L.L. ZHANG, L. YANG, Q.Y. ZHOU, W.L. XING, A. TORIBA, K. HAYAKAWA, N. TANG : 第 60 大気環境学会年会 (2019)
「Yearly variations of gas phase air pollutants at Wajima, Japan」
- 36) L.L. ZHANG, H. MORISAKI, Y.J. WEI, Z.G. LI, L. YANG, Q.Y. ZHOU, X. ZHANG, W.L. XING, M. SHIMA, K. HAYAKAWA, A. TORIBA, N. TANG : 第 60 大気環境学会年会 (2019)
「Distribution and health risk of indoor and outdoor particulate polycyclic aromatic hydrocarbons and nitropolycyclic aromatic hydrocarbons of a school classroom in Beijing, China」
- 37) 河本公威、初瀬裕、牧野雅英、加藤真美、大田聡、柿本均、唐寧、早川和一 : 第 60 大気環境学会年会 (2019)
「石川県における微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 中の多環芳香族炭化水素類の濃度と毒性評価について」
- 38) 楊露、鈴木元気、張露露、周全渝、張璇、邢万里、陳立江、島正之、余田佳子、中坪良平、平木隆年、斉宏業、符文華、孫百軍、鳥羽陽、早川和一、唐寧 : 第 60 大気環境学会年会 (2019)
「中国瀋陽市における大気中多環芳香族炭化水素類の経年変動」
- 39) 早川和一、鳥羽陽、唐寧 : 第 60 大気環境学会年会 (2019)
「NPAH と PAH をマーカーとする NP 法による都市大気粒子状物質の発生源解析」
- 40) 早川和一、唐寧、鳥羽陽 : 第 60 大気環境学会年会 (2019)
「多環芳香族炭化水素類から見た燃焼粒子状物質の特徴」
- 41) 猪股弥生、大泉毅、斎藤辰善、諸橋将雪、山下尚之、高橋雅昭、佐瀬裕之、高橋克行、兼保直樹、藤原誠、岩崎綾、中込和徳、城間朝彰、山口高志 : 第 60 大気環境学会年会 (2019)
「硫黄同位体比を用いた日本における越境輸送由来の硫酸イオン沈着量の評価」
- 42) 早川和一、長門 Edward 豪 : 第 78 回分析化学討論会 (2019)
「エアロゾルの新しい発生源解析法 -PAH と NPAH をマーカーとする燃焼由来粒子状物質の求め方-」
- 43) 山崎陸、川井萌、唐寧、早川和一、鈴木亮、鳥羽陽 : 日本薬学会北陸支部第 131 回例会 (2019)
「加熱式たばこ煙中多環芳香族炭化水素キノンの定量と酸化能への寄与」
- 44) 早川和一、鳥羽陽、唐寧 : 第 28 回環境化学討論会 (2019)
「多環芳香族炭化水素類から見た日本のいくつかの都市の燃焼 PM 排出特性」
- 45) 鳥羽陽、長岡祐樹、深川真夢、T. CHETIYANUKORNKUL、唐寧、早川和一 : 第 28 回環境化学討論会 (2019)
「タイにおいて捕集された自動車排ガス由来の PM_{2.5} に含まれる多環芳香族炭化水素類の分析」
- 46) 瀬戸章文、キムインジョン、高岩滉平、佐藤碧、東秀憲、猪股弥生、鈴木亮、化学工学会第 85 年会 (2019) (要旨 Web 公開)
「気液界面におけるエアロゾルの沈着とその細胞応答」
- 47) 土屋望、加藤祥生、松木篤、川崎一雄、(2019)
「能登半島における大気エアロゾル粒子の磁気調査」
- 48) 上田紗也子、長田和雄、宋秦平、高見昭憲、中山智喜、松木篤、岩本洋子、足立光司 : 第 36 回エアロゾル科学・技術研究討論会 (2019)
「硫酸塩粒子の形態:大気エアロゾル粒子に観られる形態と室内実験による再現」
- 49) A. MATSUKI, R. YAMADA, F. IKEMORI, K. KINOUCHI, Y. IWAMOTO, S. KATO, N. KANEYASU,

- T. WATANABE, T. KAMEDA, M. MINAMI and T. NAKAMURA: East Asia Forum on Particulate Air Pollution, Seoul, Korea, 2019
- “Isotopic source apportionment of carbonaceous aerosols observed in Noto Region, Japan: Impact of biomass burning on the East Asian outflow” 【招待講演】 (アブストラクト提出済み)
- 50) C.T. PHAM, Y. BONGLA, N. TANG, A. TORIBA, K. HAYAKAWA: Joint International Symposium on Sustainable Development and Environmental issues, KU-INET, Kanazawa, Japan, 2019
- “Emission of Polycyclic aromatic hydrocarbon from open burning of rice straw in Hanoi, Vietnam” (アブストラクト提出済み)
- 51) N. TANG, L.L. ZHANG, H. MORIZAKI, Y.J. WEI, Z.G. LI, L. YANG, Q.Y. ZHOU, X. ZHANG, W.L. XING, M. HU, M. SHIMA, A. TORIBA, K. HAYAKAWA: Joint International Symposium on Sustainable Development and Environmental issues, KU-INET, Kanazawa, Japan, 2019
- “Distribution and health risk of indoor and outdoor particulate polycyclic aromatic hydrocarbons of a school classroom in Beijing, China” (アブストラクト提出済み)
- 52) X. ZHANG, L.L. ZHANG, L. YANG, Q.Y. ZHOU, W.L. XING, A. TORIBA, K. HAYAKAWA, N. TANG: Joint International Symposium on Sustainable Development and Environmental issues, KU-INET, Kanazawa, Japan, 2019
- “Yearly variations of air pollutants at Kanazawa University Wajima Air Monitoring Station (KUWAMS), a background site in Japan” (アブストラクト提出済み)
- 53) K. HAYAKAWA, N. TANG, A. TORIBA, E.G. NAGATO: International conference on advances in civil and ecological engineering research, Kaohsiung, Taiwan, 2019
- “Recent atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons pollution in the Far-Eastern Asian context” (アブストラクト提出済み)
- 54) K. HAYAKAWA, N. TANG, A. TORIBA, L. ZHAO: The 9th International forum on green technology and management, Hanoi, Vietnam, 2019
- “Comparison of atmospheric pollution of Beijing and Kanazawa caused by polycyclic aromatic hydrocarbons and nitro polycyclic aromatic hydrocarbons” (アブストラクト提出済み)
- 55) K. LEE, Y. INOMATA, I. CHANDRA, T. SETO, A. YOSHINO, A. TAKAMI: **The 11th Asian Aerosol Conference (AAC) 2019**, Hong Kong, China, 2019
- “Vertical distributions of particle number concentrations associated with new particle formation by aerial observation in Fukue Island, Japan” (アブストラクト提出済み)
- 56) A. MATSUKI, H. HYONO, K. KINOUCI, M. FURUYA, H. TSURUMARU and Y. IWAMOTO: **The 11th Asian Aerosol Conference (AAC) 2019**, Hong Kong, China, 2019
- “Linkage between nighttime new particle formation and winter monsoon: Based on the long-term observation in Noto region, western coast of Japan” (アブストラクト提出済み)
- 57) A. MATSUKI, H. HYONO, K. KINOUCI, M. FURUYA, H. TSURUMARU and Y. IWAMOTO: Kanazawa Day at Tsinghua, Beijing, China, 2019
- “Investigation on the Factors Controlling Atmospheric New Particle Formation: Based on the long-term observation in Noto peninsula, Japan” (アブストラクト提出済み)
- 58) R. KUNIHISA, A. IWATA, M. GEN, C.K. CHAN and A. MATSUKI: AGU fall meeting 2019, San Francisco, USA, 2019
- “Application of SERS on the Chemical Analysis of Individual Nanoparticles” (アブストラクト提出済み)
- 59) Y.-J. CHOI, Y. KANAYA, S.-M. PARK, A. MATSUKI, Y. SADANAGA, S.-W. KIM, I. UNO, X. PAN, M.-H. LEE, H.-J. KIM and D.-H. JUNG: AGU fall meeting 2019, San Francisco, USA, 2019
- “Regional variability in black carbon and carbon monoxide ratio from long-term observations over East Asia: Assessment of representativeness for BC and CO emission inventories” (アブストラクト提出済み)

- 60) C. MIYAMOTO, A. MATSUKI, T. ITAI and Y. TAKAHASHI: Goldschmidt2019, Barcelona, Spain, 2019
 “Estimation of Emission Source of Sulfate Aerosol Collected in the Northwestern Region in Japan” (アブストラクト提出済み)
- 61) J. NODA, K. NISHIOKA, T. NAKAYA, K. YUMIMOTO, K. HAGIWARA, B. HOSHINO, K. BABA, I. NOGUCHI, T. MAKI, A. MATSUKI, C. NISHITA-HARA, M. HAYASHI, E. DAVAANYA, E. MUNKJARGAL, K. KAWAI and K. KAI: European Aerosol Conference 2019, Gothenberg, Sweden, 2019
 “Bioaerosol measurements in Mongolia, China, and Japan during the spring of 2015” (アブストラクト提出済み)
- 62) N. TSUCHIYA, K. KAWASAKI, S. KATO and A. MATSUKI: Joint Usage/Joint Research Symposium on Integrated Environmental Studies, Kanazawa, Japan, 2019
 “Magnetic investigations of atmospheric aerosol particles in Noto region” (アブストラクト提出済み)
- 63) R. KUNIHISA, A. IWATA, M. GEN, C. K. CHAN and A. MATSUKI: Joint Usage/Joint Research Symposium on Integrated Environmental Studies, Kanazawa, Japan, 2019
 “Application of SERS on the chemical analysis of Aitken mode particles” (アブストラクト提出済み)
- 64) K. ONO, Y. MIZUSHIMA, A. MATSUKI and A. IWATA: Joint Usage/Joint Research Symposium on Integrated Environmental Studies, Kanazawa, Japan, 2019
 “Measurement of adhesion force of individual aerosol particles by atomic force microscopy” (アブストラクト提出済み)
- 65) A. NICOSIA, S. KUBOTA, K. ONO, R. KUNIHISA, N. TSUCHIYA and A. MATSUKI: Joint Usage/Joint Research Symposium on Integrated Environmental Studies, Kanazawa, Japan, 2019
 “Long-term measurements of aerosol physical properties in the Noto Peninsula” (アブストラクト提出済み)

【サブテーマ4】

- 1) A. YOSHINO, A. TAKAMI, M. HAYASHI, C. NISHITA, K. HARA, and N. KANEYASU, 11th Asian Aerosol Conference, HongKong, 2019
 “Factors for particle number variation at Fukuoka Japan in winter period.”
- 2) A. YOSHINO, A. TAKAMI, M. HAYASHI, K. HARA, C. NISHITA-HARA, and I. UNO, European Aerosol Conference 2019, Göteborg, Sweden, 2019
 “Variation of aerosol chemical composition and its relation to the trans-boundary air pollution in Japan.”
- 3) 吉野彩子, 高見昭憲, 原圭一郎, 西田千春, 林政彦, 鶴野伊津志, 第60回大気環境学会年会, 府中, 東京(2019)
 「長崎県福江島における近年のエアロゾル化学成分の変化.」
- 4) 吉野彩子, 高見昭憲, 鶴野伊津志, 林政彦, 原圭一郎, 西田千春, 第37回エアロゾル科学・技術研究討論会, オンライン開催 (2020)
 「春季福岡、福江における粒子の質量と化学組成の変化.」
- 5) 吉野彩子, 高見昭憲, 原圭一郎, 西田千春, 林政彦, 鶴野伊津志, 第61回大気環境学会年会, 誌上開催 (2020)
 「2020年春季の九州北部におけるエアロゾル化学成分の変化.」
- 6) A. TAKAMI, and A. YOSHINO, 2021 International Meeting on Characterization and Identification of Atmospheric Aerosols, online (2021)
 “Long-term trend of PM chemical composition measured at Fukue Island, Japan.”
- 7) 高見昭憲, 吉野彩子, 清水厚, 佐藤圭, 畠山史郎, 第38回エアロゾル科学・技術研究検討会, オンライン開催 (2021)

「東シナ海域での東アジアの大気環境監視。」

- 8) A. YOSHINO, A. TAKAMI, K. HARA, C. NISHITA-HARA, and M. HAYASHI, European Aerosol Conference 2021, online (2021)

“Decrease of transboundary air pollution in western Japan in spring 2020.”

- 9) 吉野彩子, 高見昭憲, 菅田誠治, 道川武紘, 山崎新, 第62回大気環境学会年会, オンライン開催 (2021)

「全国PM2.5成分自動測定結果の比較による地域差の検討。」

- 10) 高見昭憲, 吉野彩子, 2021年度福岡から診る大気環境研究所研究会, オンライン開催 (2022)
「福岡から診る越境大気汚染。」

- 11) A. YOSHINO, A. SHIMIZU, K. SATO, and A. TAKAMI, 12th Asian Aerosol Conference, online, and Taipei, Taiwan (2022)

“Recent trend of transboundary air pollution on Fukue Island, Japan” (アブストラクト提出済み)

(3) 「国民との科学・技術対話」の実施

【サブテーマ1】

- 1) Webinar 「大気汚染と健康に関する最近の研究の進展」 (共催: 金沢大学環日本海域環境研究センター・*Applied Sciences*誌 (議長 早川)、2022年1月28日、オンライン、視聴者75名) にて講演
 - i) 燃焼で発生する大気中の有機汚染物質 (早川和一、金沢大学)、ii) 西日本における越境大気汚染の変動について (高見明憲、国立環境研究所)、iii) 大気中化学物質の慢性咳嗽への影響 (中村裕之、金沢大学)
- 2) 市民公開講座「大気汚染は慢性の咳の原因となるか？」 (主催: 金沢大学環日本海域環境研究センター・環境省環境研究総合推進費【5-1951金沢大学】、2022年1月22日、オンライン、参加者34名) にて講演
 - i) 長引く咳の原因を探る一石川県における大気環境の疫学結果を中心に一 (中村裕之、金沢大学)、ii) 小児での呼吸器への影響～福岡での疫学調査を中心に～ (小田嶋博、国立病院機構福岡病院)、iii) 空気中の粒子と有害物質－PM_{2.5}, 黄砂, 多環芳香族炭化水素 (PAH) － (早川和一、金沢大学)、iv) 黄砂や越境大気汚染の最近の傾向一九州での観測からわかること一 (高見昭憲、国立環境研究所)、v) 能登半島における黄砂飛来時に便乗した大気汚染物質の本体 (唐寧、金沢大学)

【サブテーマ2】

- 1) 市民公開講座「大気汚染は慢性の咳の原因となるか？」 (主催: 金沢大学環日本海域環境研究センター・環境省環境研究総合推進費【5-1951金沢大学】、2022年1月22日、オンライン、参加者34名) にて講演
 - i) 長引く咳の原因を探る一石川県における大気環境の疫学結果を中心に一 (中村裕之、金沢大学)、ii) 小児での呼吸器への影響～福岡での疫学調査を中心に～ (小田嶋博、国立病院機構福岡病院)、iii) 空気中の粒子と有害物質－PM_{2.5}, 黄砂, 多環芳香族炭化水素 (PAH) － (早川和一、金沢大学)、iv) 黄砂や越境大気汚染の最近の傾向一九州での観測からわかること一 (高見昭憲、国立環境研究所)、v) 能登半島における黄砂飛来時に便乗した大気汚染物質の本体 (唐寧、金沢大学)

【サブテーマ3】

- 1) Webinar 「大気汚染と健康に関する最近の研究の進展」 (共催: 金沢大学環日本海域環境研究

センター・*Applied Sciences*誌（議長 早川）、2022年1月28日、オンライン、視聴者75名）にて講演

- i) 燃焼で発生する大気中の有機汚染物質（早川和一、金沢大学）、ii) 西日本における越境大気汚染の変動について（高見明憲、国立環境研究所）、iii) 大気中化学物質の慢性咳嗽への影響（中村裕之、金沢大学）
- 2) 市民公開講座「大気汚染は慢性の咳の原因となるか？」（主催：金沢大学環日本海域環境研究センター・環境省環境研究総合推進費【5-1951金沢大学】、2022年1月22日、オンライン、参加者34名）にて講演
 - i) 長引く咳の原因を探る一石川県における大気環境の疫学結果を中心に一（中村裕之、金沢大学）、ii) 小児での呼吸器への影響～福岡での疫学調査を中心に～（小田嶋博、国立病院機構福岡病院）、iii) 空気中の粒子と有害物質－PM_{2.5}、黄砂、多環芳香族炭化水素（PAH）－（早川和一、金沢大学）、iv) 黄砂や越境大気汚染の最近の傾向－九州での観測からわかること－（高見昭憲、国立環境研究所）、v) 能登半島における黄砂飛来時に便乗した大気汚染物質の本体（唐寧、金沢大学）
- 3) 市民講演会「コロナウイルス禍の影響」（主催：金沢大学環日センター、2020年11月21日、金沢大学サテラライトプラザ、参加者24名）にて講演
 - i) 越境輸送されるPM_{2.5}は減少するのか？（松木篤、金沢大学）、ii) 有害有機物の輸送量は低減化したのか？（唐寧、金沢大学）

【サブテーマ4】

- 1) 市民公開講座「大気汚染は慢性の咳の原因となるか？」（主催：金沢大学、2022年1月22日、オンライン開催、観客約50名）にて講演（高見）
講演タイトル「黄砂や越境大気汚染の最近の傾向－九州での観測からわかること－」
- 2) オンラインセミナー「大気汚染と健康に関する最近の研究の進展」（主催：金沢大学環日本海域環境研究センター、MDPI Applied Science誌、2022年1月28日、オンライン開催、参加者約100名）にて講演（高見）
講演タイトル「西日本における越境大気汚染の変動について」
- 3) 公開講演会「福岡の大気環境と健康」（主催：福岡大学産学官連携研究機関研究所「福岡から診る大気環境研究所」、2022年3月12日、オンライン、参加者約50名）にて講演（高見）
講演タイトル「福岡の環境物質：遠隔輸送と都市排出物の混ざりもの」

(4) マスコミ等への公表・報道等>

【サブテーマ1】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ2】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ3】

- 1) 北國新聞（2022年2月23日、全国版、23頁、「大気汚染と咳関係を解説」）
- 2) 北國新聞（2020年11月22日、全国版、32頁、「PM_{2.5}飛来減コロナの影響解説 金大市民講演会」）
- 3) 北國新聞（2020年11月12日、全国版、34頁、「中国汚染物質 飛来少なく 金大センター2月に観測 都市封鎖 創業停止」）
- 4) 毎日新聞（2019年7月8日、全国版、7頁、「放出セシウム1年で還流 福島第1原発事故 想

定より短ルート」

【サブテーマ4】

特に記載すべき事項はない。

(5) 本研究費の研究成果による受賞

- 1) K. ONO, excellent Early Career Poster Presentation at the JNC session, The 16th IGAC Scientific Conference (2021年9月13日)
- 2) 大野耕平、松木篤ほか、ベストプレゼンテーション賞、日本エアロゾル学会 (2021年8月27日)
- 3) 國久亮太、松木篤ほか、ベストポスター賞、日本エアロゾル学会 (2019年9月5日)

IV. 英文Abstract

Environmental Epidemiologic Study Regarding the New Chronic Cough Produced by Particulate Matters Including Polycyclic Aromatic Hydrocarbons

Principal Investigator: Hiroyuki NAKAMURA

Institution: Kanazawa University, Graduate School of Advanced Preventive Medical Sciences,
Department of Environmental and Preventive Medicine,
13-1 Takaramachi, Kanazawa 920-8640, Japan
TEL, +81-76265-2215/ e-mail; hnakamu@staff.kanazawa-u.ac.jp

Cooperated by:

Kazuichi HAYAKAWA, Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University, Nomi city, Ishikawa 923-1224, Japan

Akinori TAKAMI, Centre for Regional Environmental Research, National Institute for Environmental Studies, 16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305-8506, Japan

Hiroshi ODAJIMA, Department of Pediatrics, National Hospital Organization Fukuoka National Hospital, 4-39-1 Yakatabaru, Minami-ku, Fukuoka 811-1394, Japan.

[Abstract]

Key Words: Asthma, Chronic Cough, Epidemiology, Particulate Matters, Polycyclic Aromatic Hydrocarbons, Traffic Vehicles, Transport Behaviors

It is well known that respiratory diseases such as bronchial asthma have recently increased in East Asia, including Japan. The increases are considered to be partly due to particulate matters (PM) including polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) and Asian dust (AD). On the other hand, in addition to bronchial asthma, new chronic coughing diseases such as cough variant asthma and atopic cough have increased rapidly in recent years. Therefore, in this study, in order to clarify the relationship between PM components and new chronic cough diseases, we performed physical and chemical observations of PM components and epidemiological studies in 59 chronic coughing patients in Ishikawa Prefecture, and 39 patients with at Fukuoka National Hospital. Generalized estimation equations (GEE) analyzing the relationship between PAH concentration and cough frequency showed positive correlations of benz [a] anthracene (BaA) and pyrene (Pyr) with cough frequency. In Fukuoka, negative regression coefficient of $IcdP / (IcdP + BghiP)$ suggested that PM was derived from coal burning in the China Ring Bohai economic zone and the Yangtze River Delta. resulted in the long-distance transportation from the continent. These results showed that PAH such as BaA and Pyr may be a risk factor for chronic coughing, and that environmental standards for PAH need to be newly set from the viewpoint of medical prevention against chronic cough. In addition, possible influences from the continent suggests the urgent necessities for establish preventive measures considering transportation routes.