

機関番号：37104
 研究種目：基盤研究(B)海外学術調査
 研究期間：2008～2010
 課題番号：20406001
 研究課題名(和文)中国北部の砂塵を含む大気汚染物質とその個人暴露の量的・質的差に関する調査研究
 研究課題名(英文) Investigation of quality and quantity of air pollution including a sandstorm and it' s personal exposure in northern part of China
 研究代表者
 石原 陽子 (ISHIHARA YOKO)
 久留米大学・医学部・教授
 研究者番号：50203021

研究成果の概要(和文)：大陸から飛来する砂塵を含む大気汚染物質の健康影響が問題視されている。本研究では、北京と農村部、久留米市で大気と個人暴露量を測定し、高齢慢性閉塞性肺疾患(COPD)への影響についても調査研究を行った。その結果、粒径 $2.5\mu\text{m}$ 以下の粒子状物質(PM_{2.5})は北京と久留米で春期に高値を示し、個人暴露量と相関した。汚染度は農村部より都市部で高かった。黄砂飛来時には PM₁₀ と PM_{2.5} が増加し、特に昼間に比較して夜間に SO_x, NO_x, NH₄⁺量が高く、COPD 患者で症状増悪傾向を認めた。

研究成果の概要(英文)：It is worried about the health effect of air pollutant including a sandstorm that comes from northern part of China. In the present study, the air pollution and its personal exposure were measured in Beijing and the farm village in China, and Kurume City, and the surveillance study on the influence to aged patients with chronic obstructive pulmonary disease (COPD) was done. As a result, amount of $<2.5\mu\text{m}$ of diameter particulate matter (PM_{2.5}) was higher in Beijing and Kurume in spring, and correlated to the amount of an individual personal exposure. The pollution level was higher in the city part than that in the farm village part. PM₁₀ and PM_{2.5} increased during yellow dust came flying to Japan, and the amounts of SO_x, NO_x and NH₄⁺ were higher at nighttime compared with at daytime, and patients with COPD showed tendency of the symptom exacerbation.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	6,029,000	2,130,000	8,159,000
2009 年度	2,766,500	960,000	3,726,500
2010 年度	2,900,000	870,000	3,770,000
年度			
年度			
総計	11,695,500	3,960,000	15,655,500

研究分野：公衆衛生学

科研費の分科・細目：環境学・環境影響評価・環境政策

キーワード：大気汚染物質、砂塵、黄砂、砂漠化、呼吸器疾患、環境政策、硫酸塩、有機炭素

1. 研究開始当初の背景

これまで、慢性閉塞性肺疾患と自動車排ガス長期暴露のリスク評価、心疾患、肺機能と大気中濃縮粒子状物質(CAPs)、自動車排気粒子状物

質短期及び長期暴露のハイリスク群での健康影響評価について研究を行ってきた。一連の研究から、慢性閉塞性肺疾患で観察される肺末梢の障害には、化石燃料燃焼成分や大気中のガス

成分よりも粒子成分がより強く影響することを見出した。これらの結果は、微小粒子である黄砂など砂塵もヒト肺末梢部の組織に沈着して炎症を惹起し、慢性閉塞性肺疾患の発症やその進展に関与している可能性がある。加えて、最近の研究では、より微小な粒子状物質ほど感受性の高い肺深部まで毒性物質を輸送する能力が大きく、特に難溶性微小粒子は肺滞留時間の延長や循環血液中への逸脱がみられることから、微小粒子の毒性を重視したリスク評価の必要性が示唆されている。

慢性閉塞性肺疾患は 40-50 歳を境に急速に罹患率が高まる疾患で、現在のところ完全治癒は難しく、早期発見早期治療で進行の遅延を目指した対処療法が行われる。慢性閉塞性肺疾患と大気汚染の関連性はこれまで示唆されてきたが、黄砂塵との関連性についての研究は、国内外では見られない。黄砂など大陸由来の粒子状物質が日本に到達するまでに、大陸内や海域で粒径、形状、表面付着物質など物理的・化学的特性が変化している可能性が高く、その分布地域で生体影響の程度も異なる可能性がある。実際に健康影響評価で重視される粒子は個人が吸入した粒子であり、outdoor の粒子のほかに indoor での暖房器具、調理器具やタバコ煙由来粒子の影響は無視できないが、微小粒子のパーソナルサンプラーを用いて比較検討した報告は殆どみられない。その背景には、信頼性の高い粒径自動測定、粒子成分分析機器の開発や測定手法の確立、簡易な軽量パーソナルサンプラーを用いた測定方法が確立されていないという要因がある。

2. 研究の目的

近年、偏西風による大陸からの黄砂を含む大気汚染物質の日本への輸送が問題視されている。特に九州地域は大陸に近く、高濃度の黄砂塵の影響も受けやすい。春の黄砂飛来時には、大気は靄状となり、住民は咳などの呼吸器症状を示し、外出など差し控える状況にある。最近は、五島列島、壱岐・対馬で夜間に高濃度オゾンを観測し、中国での重工業化に伴う大気汚染物質の日本への影響が危惧されている。大陸と日本間での大気物質移動については、サテライトなどを使用して詳細な研究がなされているが、個人曝露量やその粒径・成分についての信頼性の高いデータは未だ蓄積されていない。黄砂の分布地点にある北京などでは、急速な自動車化により呼吸器系疾患罹患患者が増加しているとされているが、その程度は不明であり、自動車排気ガスの影響や黄砂と化石燃料由来粒子状物質の複合曝露による健康影響の報告も未だ見られない。今後の大気汚染状況の国際比較や健康影響

評価を行うための基礎データを収集するために、北京大学などとの国際共同研究により、黄砂を含む偏西風通過地域と地域外などで、大気中と個人曝露の粒子状物質の測定を行い、重量および成分の地域特性、大気と個人曝露量の相関性、季節変動などについて検討する。この結果を、東アジアで展開する大気汚染物質と慢性閉塞性肺疾患を指標とした健康影響に関する疫学調査の地域選定や疫学デザインに反映させることを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 大気中 PM2.5 及び PM10、個人曝露 PM2.5 量の測定 (表 1) : 大気中 PM2.5 の捕集はローボリュームサンプラー (Partisol FRM2000, Thermo Scientific Inc., USA) に 47 mm テフロンフィルター及び石英フィルターを装着し、捕集時間は日中 (9:00-16:50) と夜間 (17:00-8:50) の 2 分割とし、大気流量は 16.7 L/min とした。大気中 PM10 の捕集はハイボリュームサンプラー (HV-500F, 柴田科学) に 110 mm フィルターを装着し、捕集時間は日中 (9:00-16:50) と夜間 (17:00-8:50) の 2 分割あるいは 1 日 (9:00-翌 8:50) とし、大気流量は 500 L/min とした。個人曝露 PM2.5 の捕集は PM2.5 個人サンプラー用ホルダー (NWPS-35H, 柴田科学) を装備したミニポンプ (MP-Σ3, 柴田科学) に 35 mm テフロンフィルターを装着し、日中 (9:00-17:00) に実施した。大気流量は 2.5 L/min とし、被験者は個人サンプラー装着中の行動及び喫煙状況を記録した。捕集後のフィルターは、-80°C で遮光保存後、電子天秤 (ME5-F, Sartorius AG, Germany) で粒子重量を測定した。

大気粒子の粒子数・粒径分布の測定 : 大気粒子の粒子数及び粒径は、0.5-20 μm 粒径範囲を空気力学径測定器 (aerodynamic particle sizer 3321; APS, TSI Inc., Shoreview, MN, USA) で、10-487 nm 粒径範囲を走査型移動度粒径測定器 (scanning mobility particle sizer 3034; SMPS, TSI Inc.) を用いて測定した。

(2) 粒子構成成分の分析 (日本環境衛生センターで分析) : 金属成分 17 種 (Al, Ti, V, Cr, Mn, Ni, Cu, Zn, As, Mo, Cd, Sb, Ba, Pb, Fe, Co, Se) は誘導結合プラズマ質量分析計 (Inductively coupled plasma-mass spectrometry 7500ce; ICP-MS, Agilent Tech. Inc., USA) で、イオン成分 8 種 (Cl⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻, Na⁺, NH₄⁺, K⁺, Mg²⁺, Ca²⁺) はイオンクロマトグラフィー (ICS-1500, ICS-2000, Dionex Corp., USA) で、炭素成分 (有機炭素, 元素状炭素) は炭素分析装置 (DRI MODEL 2001 OC/EC Carbon Analyzer, Atmoslytic Inc., USA) を用いて、測定した。

(3) 測定場所と測定時期:測定は、福岡県久留米市久留米大学旭町キャンパス構内(33.33N, 130.51E)、北京市北京大学公共衛生学院内(39.56N, 116.20E)、ウランホト市内蒙古興安盟人民医院内(46.08N, 122.06E)で、2008年～2010年の3年間、冬期、春期、秋期の3季節に実施した。機器類は、久留米では2つの幹線道路橋に挟まれた筑後川沿岸の校舎2階又は5階の、北京では幹線道路脇校舎7階のベランダ付近に、ウランホトでは比較的交通量の多い市道脇の建物の9階に設置した。

(4) 健康調査:健康調査では、中国版と日本語版の indoor 暴露や喫煙状況、呼吸器症状、花粉症の有無などの質問に加え、WONCA/COOP 及び GOLD の調査項目(作成者より許可取得済)を含む独自に作成した自己記入式調査票を用いた。調査票の信頼性・妥当性を評価するために一部の対象者では、中国版と日本語版の SF-36 調査票も加えて調査を行った。必要に応じて、肺機能(スパイロメーター、チェスト HI-801)や、血圧、酸素飽和度等も測定した。対象者は 50-79 歳の男女で、気管支喘息や慢性閉塞性肺疾患有病者と呼吸器疾患を有しない検診センタードック受診者または地域住民(北京市)とした。

表 1 各地域での測定日

年	季節	測定場所	測定日
2008	冬期	久留米	1月22日-28日
		北京	1月9日-15日
	春期	久留米	3月19日-4月11日
		北京	3月25日-4月10日
	秋期	久留米	10月18日-29日
		北京	10月21日-28日
2009	冬期	久留米	2月13日-26日
		ウランホト	2月17日-23日
2010	春期	久留米	4月28日-5月29日
	秋期	久留米	11月12日-26日

4. 研究成果

(1) 個人暴露量の質量及び成分分析の信頼性の高い測定手法の確立:PM2.5 測定用に作成されたローボリュームサンプラー2台に、成分分析用フィルターと重量測定用フィルターを装着し、1日を8時間と16時間に2分割して測定した。その結果、粒子重量と成分分析の測定が可能であった。一方、粒子径と粒子数の測定は APS と SMPS を用いた。両者共に安定して24時間長期継続計測が可能であった。個人サンプラーでの捕集は、重量測定は可能であったが、低流量であることや最大測定時間が約8時間であるために成分分析値のほとんどが検出限界以下であった。また、1台につき8時間測定で単3電池8

個が必要であり、装着時の重量、測定時の騒音、捕集時間の延長による機器加熱など、さらに改善が必要と考えられた。

(2) 大気中粒子状物質の季節的变化と個人暴露量と大気中粒子状物質の関係:2008年冬期及び春期、秋期における久留米市と北京市での日中の大気中及び個人曝露 PM2.5 量を図1に示した。ローボリュームサンプラーでの大気中 PM2.5 量の平均値は久留米市ではそれぞれ 19.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (冬期)、30.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (春期)、22.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (秋期)で、北京市では 85.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (冬期)、121.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (春期)、36.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (秋期)であった。季節では久留米市と北京市共に冬期及び秋期と比べて春期で最も高く、久留米市と比べて北京市で著しく高値を示した。一方、個人曝露 PM2.5 の変動は、久留米市と北京市共に大気中 PM2.5 の変動とほぼ同様な傾向で推移した。久留米市では冬期と春期に大気中 PM2.5 が少ない日は、個人サンプラーで捕集した粒子重量も検出限界値以下であった。個人暴露量測定時のタバコ粒子の影響は、久留米市では被験者の喫煙は個人曝露量に影響しなかったが、北京市では非喫煙者と比べて喫煙者で個人曝露 PM2.5 量が明らかに高い傾向を示し、タバコの種類や質、喫煙本数などの影響が示唆された。

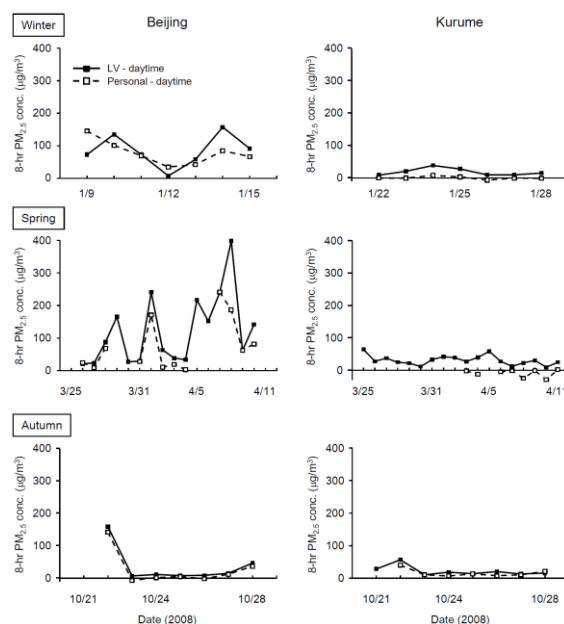


図 1. 久留米市と北京市での日中の大気中及び個人曝露 PM2.5 量:2008年冬期及び春期、秋期の 9:00-16:50 の大気中と個人曝露 PM2.5 量の比較

(3) 粒子数と粒径の比較:APS で測定した久留米市と北京市での2008年の大気中粒子数を図2に示した。粒径 0.542 μm 以上の粒子数は、久留米市では冬期に高値を示したのに対し、北京市では春期に高値を示した。SMPS による久留米市での 10-487 nm 粒径範囲の粒子数も APS の測定

結果と同様に冬期に高値を示した。久留米市における大気中PM2.5重量測定では、春期が最も高値であったのに対し、粒子数は粒径 $0.542\mu\text{m}$ 以上と $10\text{-}487\text{nm}$ 粒子は共に冬期に高値を示した。この結果は、春期のPM2.5には粒径の大きい粒子が、冬期のPM2.5には粒径の小さい粒子が多く含まれて入るものと考えられた。大気中PM2.5の重量は、春期に最も高く、粒子数は冬期で最も多い原因の1つには、冬期の昼夜間での気温差による逆転層の影響もその一因と考えられた。一方、2010年には春期と秋期に多量の黄砂の飛来を観察した。黄砂飛来直前から飛来時にかけてのSMPSによる粒径と個数の測定では、 $10\text{-}487\text{nm}$ 粒径の粒子総数が高値を示したが、APSでは $0.542\mu\text{m}$ よりも大きな粒子の総数が増加しないことから、飛来初期の粒子には微小な粒子が多数含まれていた可能性が示唆された。

(4) 黄砂飛来頻度の高い地域と低い地域での大気中粒子数の検討：北京市とウランホト市及び久留米市の大気中粒子数の日平均値を図3に示した。測定期間中の粒径 $>0.542\mu\text{m}$ の粒子数日平均値は、北京市で $65.2\text{個}/\text{cm}^3$ (2008年1月9~15日)、ウランホト市で $33.9\text{個}/\text{cm}^3$ (2009年2月16~23日)であり、ウランホト市に比べて北京市で高値を示した。同時期の久留米市の粒径 $>0.542\mu\text{m}$ の粒子数日平均値は、 $42.5\text{個}/\text{cm}^3$ (2011年2月16~23日)であった。

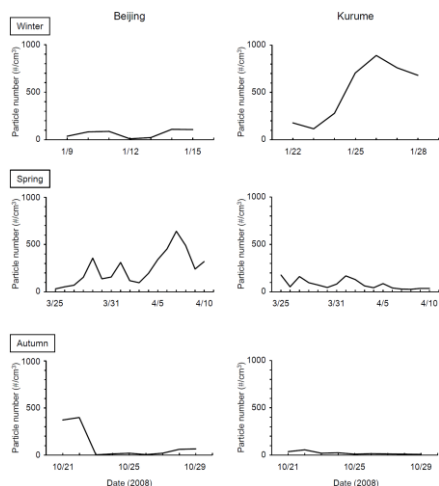


図2. 久留米市と北京市での大気中粒子数
2008年冬期及び春期、秋期の粒径 $0.542\mu\text{m}$ 以上の日平均粒子数の変動 (APS)

(5) 大気粒子の成分分析：2008年秋期における久留米市と北京市での大気中PM2.5成分の結果を表2に示した。いずれの成分も久留米市と比べて北京市で概ね高値を示し、特に北京市ではイオン成分が高く、 NO_3^- が8.5倍、 NH_4^+ が2.3倍、 SO_4^{2-} が1.3倍、 Ca^{2+} が7.7倍、 Na^+ が1.6

倍高かった。黄砂が飛来した2010年春期の久留米市での大気中粒子成分を表3に示した。大気中PM2.5とPM10の日平均粒子重量はそれぞれ $19.7\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $55.5\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、PM10では NH_4^+ 以外のイオン成分がPM2.5に比較して高値を示した。

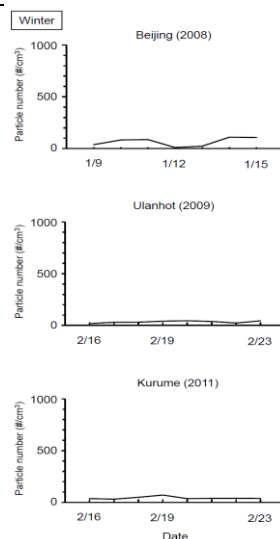


図3
北京市、ウランホト市、久留米市の大気中粒子数の日平均値 (> $0.542\mu\text{m}$ 、2008-2011年冬期1-2月)

2010年春期の黄砂飛来時と非飛来時のPM成分については、表4にまとめた。非飛来時と比較して、飛来時にはPM10では SO_4^{2-} と Ca^+ 、 Na^+ が、PM2.5では SO_4^{2-} 、 NH_4^+ と有機炭素が増加した。 Ca^{2+} や Na^+ は、PM10では増加したが、PM2.5ではむしろ低値を示した。飛来時のPM10及びPM2.5での硫酸塩の増加は、重工業化や自動車化による汚染度の高い黄砂が飛来した結果と推測された。個人暴露PM2.5の成分分析は、粒子捕集量が少ないために検出限界値以下であった。

表2 大気中PM2.5の構成成分分析 (久留米、北京、2008年)

成分 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	北京	久留米
	秋季	秋季
TC	17.2	9.7
EC	5.4	1.9
OC	11.7	7.8
Al	0.12	0.03
Ca^{2+}	0.23	0.03
Na^+	0.16	0.10
K^+	0.73	0.19
V	0.001	0.002
Fe	0.29	0.06
NO_3^-	9.3	1.1
NH_4^+	5.4	2.3
SO_4^{2-}	7.1	5.5

Abbreviations: TC, total carbon; EC, elemental carbon; OC, organic carbon

表5に、2010年5月の黄砂飛来時と非飛来時の昼間と夜間のPM2.5の成分分析結果を示した。黄砂は5月21日と24日に観測された。

非飛来時の大気成分は、昼間と夜間ではほぼ同じ比率であり、その濃度も概ね同程度であった。それに対して黄砂飛来時には、昼間よりもむしろ夜間で SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 、 NO_3^- が増加した。この結果は、黄砂飛来時には、夜間ではより高濃度の硫酸塩や硝酸塩に暴露されている可能性を示していた。

表3 黄砂飛来時を含む大気中 PM の成分分析 (久留米、2010年4~5月)

成分 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	久留米	
	PM10	PM2.5
TC		5.8
EC		1.0
OC		4.8
Ca^{2+}	0.78	0.05
Na^+	2.66	0.21
K^+	0.31	0.20
NO_3^-	4.9	0.7
NH_4^+	0.7	2.4
SO_4^{2-}	11.3	6.6

表4 黄砂飛来時と非飛来時の大気中 PM10 及び PM2.5 の構成成分分析 (久留米、2010年4~5月)

成分 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	久留米			
	PM10		PM2.5	
	黄砂 飛来時	黄砂非 飛来時	黄砂 飛来時	黄砂非 飛来時
TC			8.6	5.5
EC			1.9	0.9
OC			6.7	4.5
Ca^{2+}	1.50	0.65	0.001	0.10
Na^+	4.16	2.40	0.08	0.22
K^+	0.42	0.30	0.23	0.20
NO_3^-	5.90	4.74	0.89	0.67
NH_4^+	0.68	0.67	5.05	2.06
SO_4^{2-}	17.00	10.31	13.50	5.70

表5 黄砂飛来時と非飛来時の日中及び夜間の PM2.5 の成分分析結果 (久留米、2010年5月21日~29日)

成分 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	久留米 PM2.5			
	黄砂飛来時		黄砂非飛来時	
	日中	夜間	日中	夜間
TC	6.1	7.5	4.7	3.7
EC	1.3	1.9	0.8	0.8
OC	4.8	5.7	3.9	2.9
Ca^{2+}	0.001	0.001	0.68	0.073
Na^+	0.20	0.24	0.23	0.23
K^+	0.21	0.34	0.13	0.08
NO_3^-	0.47	1.80	0.56	0.63
NH_4^+	4.45	5.65	1.54	1.20
SO_4^{2-}	12.5	15.5	4.15	3.28

日中：9:00~16:50、夜間：17:00~翌8:50
黄砂飛来日 (2010年)：5月21日、24日

(6) 健康影響調査結果：現在データ入力と集約及び解析中である。これまでの解析では、特に黄砂飛来時に起床時の痰や咳、鼻詰まり、の

どのいがらっぽさなど呼吸器症状関連項目に「あり」と答えたケースが多く、成人喘息や慢性閉塞性肺疾患患者でその傾向が強く観察された。また、COOP/WONCA 調査書では、呼吸器疾患有症者で非黄砂時に比較して健康状態全般がやや低下すると感じているケースが多く見られた。健康調査と大気及び個人暴露量とその成分分析から、黄砂飛来時の咳や痰などの症状の増悪には、大陸由来大気汚染物質が影響している可能性が示唆された。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計1件)

- ① 石原陽子、柴田彰、長谷川豪、微小粒子状物質と心肺疾患、呼吸と循環、査読無、56(8)、817-826、2008

[学会発表] (計2件)

- ① Hasegawa G, Hirano M, Wang Q, Pan X-C and Ishihara Y, Assessment of the Ambient-personal Exposure Levels of PM2.5 in Japan and China. Urban Environmental Pollution (UEP2010), Boston, MA, USA, June 22, 2010

- ② 長谷川豪、平野祐人、石原陽子、大気中一人曝露及び季節間での PM2.5 の量的・質的差の検討、自動車技術会 2010 年春季大会、横浜、2010 年 5 月 20 日

[図書] (計1件)

- ① 石原陽子、長谷川豪、小山哲史、第2章 ナノ材料の生体への影響 5. ナノ粒子の体内への取り込み経路、標的となる臓器とその影響、ナノ材料のリスク評価と安全性対策、フロンティア出版、pp. 60-66、2010 [その他]

- ① 熊本日日新聞(朝刊)に記事掲載「黄砂の影響、日中韓で合同調査 熊本からも参加」2010年8月19日

6. 研究組織

(1) 研究代表者

石原 陽子 (ISHIHARA YOKO)

久留米大学・医学部・教授

研究者番号：50203021

(2) 研究分担者

柴田 彰 (SHIBATA AKIRA)

久留米大学・医学部・准教授

研究者番号：10113226

長谷川 豪 (HASEGAWA GO)

久留米大学・医学部・助教

研究者番号：80383751

小山哲史 (KOYAMA SATOSHI)

久留米大学・医学部・助教

研究者番号：10549637