

3. 人への曝露様態

3.1. 基本概念

この節では、人への曝露がどのようにして起こるのか、環境大気曝露、環境大気以外の曝露と個人曝露量との関係について、基本的な概念を説明する。

大気汚染物質が人に健康影響を発現するまでには、発生源からの排出(emission)→濃度(concentrations)→曝露(exposure)→吸収(dose)→健康影響(health effects)、という段階を経る。

「曝露」とは、口や鼻で空気を吸い込む時の現象のようにとらえられるが、厳密に言えば鼻腔、上気道、気管支、肺胞など呼吸器官各部位における接点で曝露は生じている。また、皮膚や消化管における曝露もあるが、これらはタバコ煙を除けば粒子状物質の健康影響としてはほとんど考慮する必要がない。

一般に曝露濃度とは、鼻や口で吸い込んでいる空気の濃度を指す。ここでもその意味で使うこととする。実際に曝露濃度を測定する場合、理想的には鼻や口の近く（呼吸域）で、かつ呼吸の影響がないところでサンプリングすることになる。

日本や欧米の一般住民が曝露する大気は、実際には生活時間のほとんどを屋内で過ごしているため屋内曝露が曝露全体の大半を占めることになるが、屋内の粒子状物質には、屋内で発生した粒子状物質の曝露などとともに屋外から侵入している粒子状物質も多く含まれる。すなわち人の粒子状物質への曝露は、屋外はもとより、屋内でも環境濃度と密接に関連している。

個人曝露量の総体は、環境大気中の粒子状物質と環境大気以外の粒子状物質の曝露と分けることができる (T (個人曝露量) = A (環境大気曝露) + N (環境大気以外の曝露))。

ここで A は、 E_a (外気曝露) と E_{ai} (屋内に入った外気の曝露) に分解でき、 N は、 E_{ig} (屋内発生粒子の曝露)、 E_{ir} (屋内で反応して発生した粒子の曝露)、 E_{pc} (人の活動で発生した粒子の曝露: personal cloud) に分解できる。

また、個人の1日の生活を考えると、 A は、 yC (屋外平均濃度) と $(1-y) C_{ai}$ (屋内に入った外気濃度) (y は屋外にいた時間割合) の和と考えることができる。このように、曝露の中身を分解することは、以下の個人曝露の考察に役立つ。

個人曝露を時間経過で考えると、ある時間における曝露総量は曝露濃度と時間の積分と考えることができる。実際には個人が滞在する場所ごとにある単位時間の平均濃度を測定して、濃度を掛けて求めることになる。ただし、場所ごとの平均濃度は、対象の個人がそこにいた時だけの平均濃度を測定することは通常困難なことから12時間あるいは24時間の平均濃度を測定して用いる。しかし、実際にはそれぞれ場所の濃度は時間によって変化し、さらに対象者の活動による発生 (E_{pc}) により曝露濃度が上昇することもあるため、固定式測定器により、その場所における人の活動のない時間帯を含む長時間の平均濃度を用いて個人曝露を推定する場合には、過小評価になりやすいことに注意を払う必要がある。

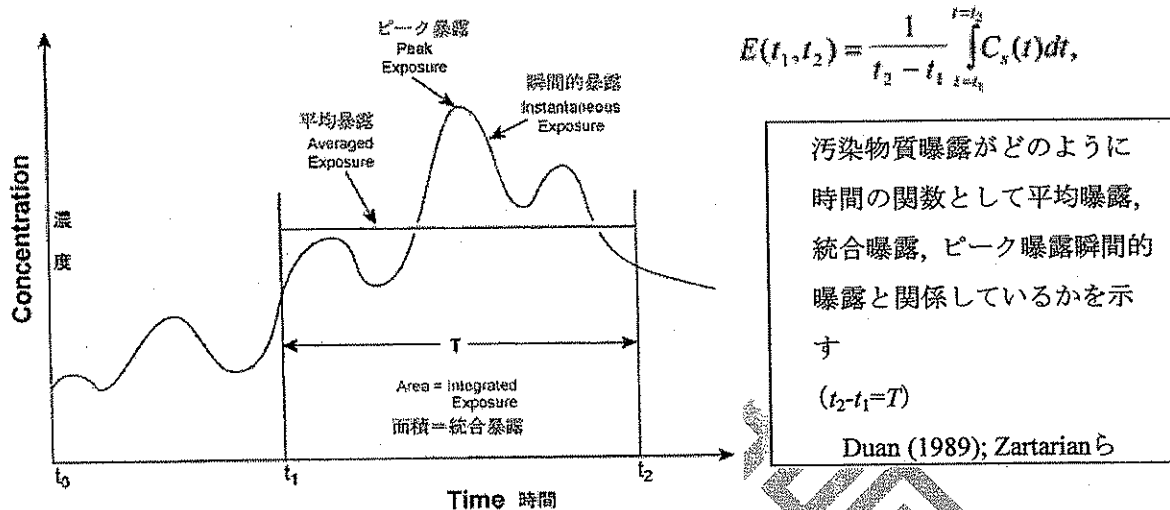


図 3.1.1 仮定的な曝露時間プロファイル

3.2. 環境濃度（大気中濃度）

ある地域の環境濃度（大気中濃度）は一般環境大気測定局（以下、測定局という。）における測定濃度で代表されることが多い。地域集団（住民）を対象とした多くの疫学調査研究においても、対象地域内の一測定局の濃度あるいは複数の測定局の平均濃度を地域全体の環境濃度として、それをそのまま曝露濃度（あるいはその代替指標）にして解析をしている。

環境濃度も当然地域内で異なっているが、測定局における測定濃度を地域の環境濃度として疫学研究に採用するには、地域内に分布する住宅周辺の屋外濃度と測定局における濃度とが大きな差が無く、日間変動についても十分な相関を持っていることが確認できることが必要である。

Oglesby ら（2000）は、スイスのバーゼルにおける研究で、それぞれの被験者の家の屋外で測定した $PM_{2.5}$ 濃度にはほとんど空間的にも変動がなく、固定モニタ地点における PM_{10} 濃度と強い相関があったことから、逆にそれぞれの屋外で測定した $PM_{2.5}$ 濃度をバーゼルの $PM_{2.5}$ 濃度と考えるとよいと結論づけた。

国内の測定事例では、環境省「微小粒子状物質曝露影響調査報告書」（平成 19 年 7 月、環境省（2007）以下、この節において「報告書」という。）に 7 地域の結果が掲載されている。地域内の測定局において家屋外の測定に用いたサンプラで同時に測定した結果、 $PM_{2.5}$ の屋外の平均濃度は測定局における濃度とほとんど一致していることが確認された。家屋ごとの濃度のばらつきについては、一例として取手市の結果を図 3.2.1、3.2.2 に示す。この例では、 $PM_{2.5}$ の屋外濃度測定値は、秋季、夏季で平均から大きく外れた値がまれに観測されたが、ほとんど屋外濃度の平均値と一致し、変動係数は春季、冬季、秋季がいずれも 8%、夏季が 20%であった。こ

れら国内外の測定結果から、小地域内ではその地域内の一般局などの固定モニタ地点における測定濃度（環境濃度）をもって対象家屋の屋外濃度の代替とすることは可能であると考えられる。

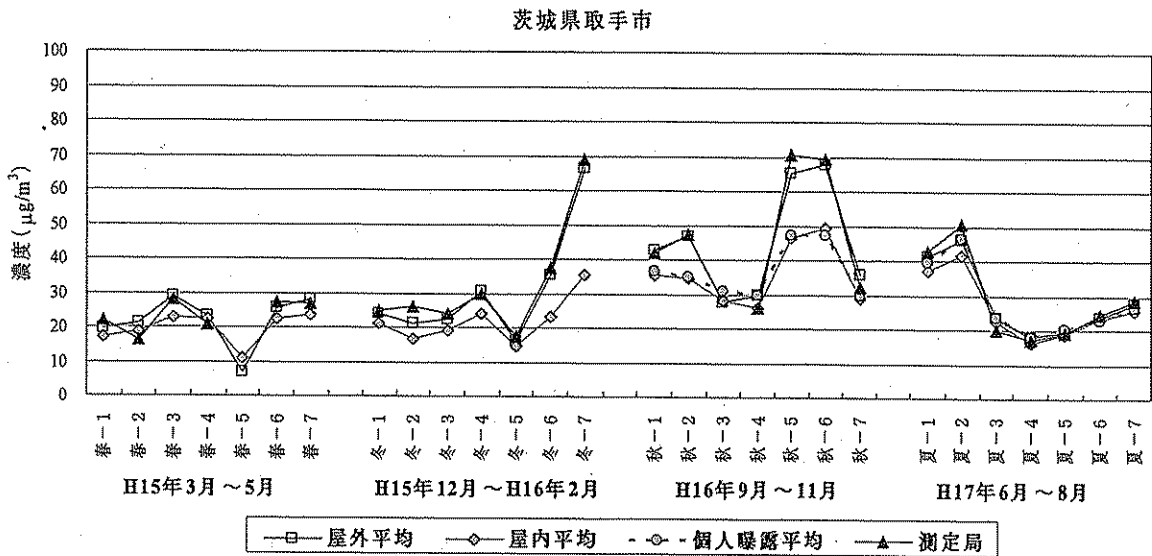


図 3.2.1 茨城県取手市における地域内測定局での PM_{2.5}濃度と対象家屋の屋外、屋内、個人曝露の各平均濃度

「微小粒子状物質等曝露影響調査」報告書(環境省 (2007))より作成

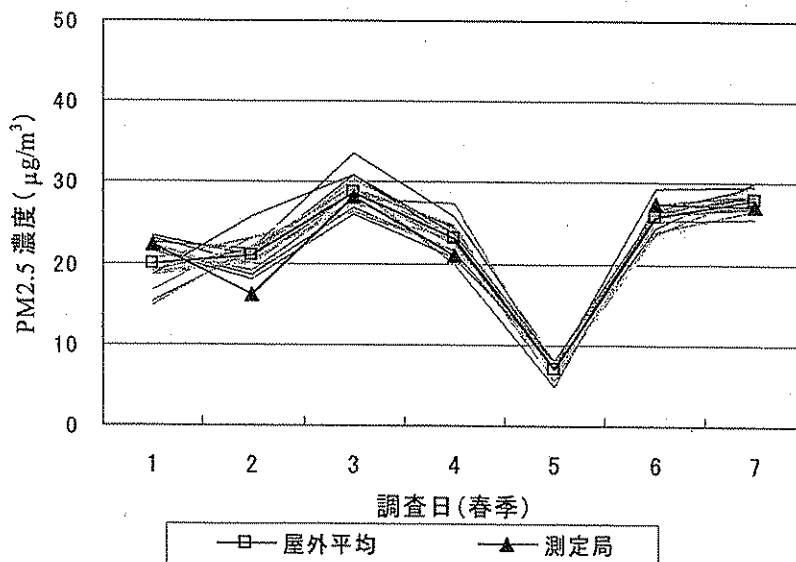


図 3.2.2 茨城県取手市の春季における対象家屋の屋外 PM_{2.5}濃度と屋外平均濃度および地域内測定局での濃度

「微小粒子状物質等曝露影響調査」報告書(環境省 (2007))より作成

3.3. 屋外濃度（大気中濃度）と屋内濃度、個人曝露濃度との関係

個人曝露研究では、被験者の選定の仕方、確率的方法と意図的すなわち非確率的方法に分けられる。確率的方法では、母集団から一定の基準で被験者をランダムに選定するため、その結果は対象集団に関する統計的推定を行うことができる。これに対し、意図的方法は対象者の特性を限定することで、特定の集団における曝露状況は把握できるが、被験者が含まれる母集団との関係は分からないため、母集団全体の平均的な曝露濃度の推定を行うことはできない。

対象選択の方法とは別に、研究の方法により、小数の被験者を何日も継続して測定する縦断型、多数の被験者ではあるがそれぞれの被験者を1日か2日異なる日に測定するプール型、多数の被験者を同じ日に測定する日平均型の3つに区分できる。

確率的方法による研究は、ほとんどがプール型であり、意図的方法の研究はプール型もあるが多くは縦断型である。日平均型の研究に該当するものはこれまで14名を14日間測定した1研究だけであった。「報告書」(環境省(2007))にある国内7地域で実施した個人曝露調査では、地域ごとには10名前後の規模で2季節(計14日間)測定しており、7地域では100名以上の測定規模となり、これまでで最大規模の調査といえる。

プール型研究においては、環境濃度あるいは屋外濃度と、屋内濃度や個人曝露との相関関係がほとんど見られないという結果が多く出されてきた。しかし、Mageら(1999)は個人ごとでは縦断的(経時的)測定により屋外濃度と屋内濃度に強い相関関係があっても、それぞれの家屋で屋内/屋外濃度比が異なる場合や特異的な非環境曝露が入る場合、横断的なプール型研究では屋外濃度と屋内濃度の相関関係が非常に低くなることを立証した。実際、Tamuraら(1996)及びJanssenら(1997)、Janssenら(1998)、Janssenら(1999)の縦断型研究では、個人曝露と環境濃度の相関は、プールされたデータから得られた相関よりも強いことを明らかにした。また、国内7地域の調査結果も、環境濃度と個人曝露濃度の相関が強いことを示した。

もっとも、縦断的な研究の結果においては、必ずしもすべての家屋において屋外濃度と屋内濃度に強い相関があるわけではない。幹線道路に面している鉄筋集合住宅などでは騒音防止のために機密性の高い窓枠を採用し、常時窓を閉め切りエアコンで屋内環境を管理しているところがある。このような場合は、屋内での発生がない場合であっても、当然屋内と屋外濃度間に相関はない。

米国における調査結果では、屋内や個人曝露濃度が屋外(環境)濃度を上回っていた。これは屋内における粒子状物質の発生が個人曝露に重要な要素であることを示している。また、個人曝露濃度や屋内濃度と屋外濃度や環境濃度との相関が乏しい結果となっていた。

日本における継続的な調査結果では、図3.3.1のように全体としても屋内濃度と個人曝露量との間に強い相関があり、また多くの場合屋内濃度の方が屋外濃度より低いか同じレベルであることがわかった(「報告書」環境省(2007))。

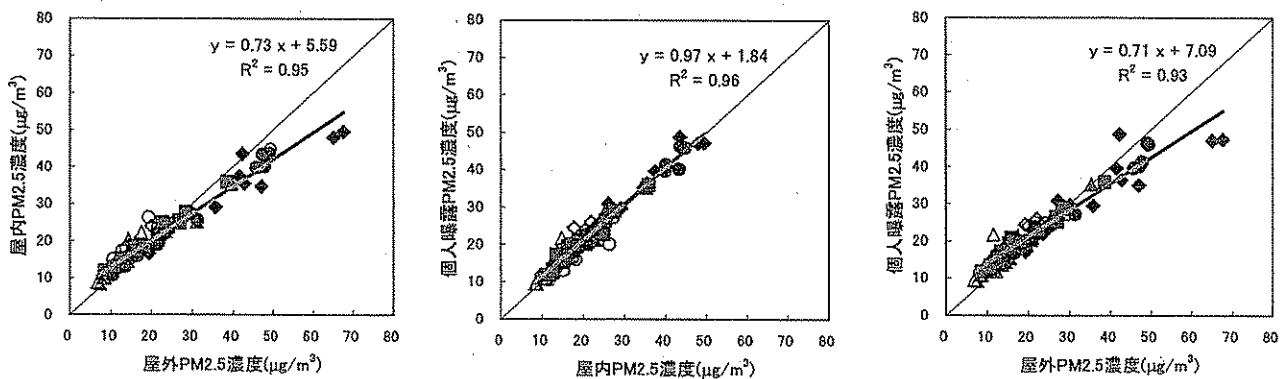


図 3.3.1 国内7地域の夏季・秋季における測定日ごとの屋外・屋内・個人曝露平均濃度

図中の印は地域の違いを示す。

「微小粒子状物質等曝露影響調査」(環境省 (2007)) データより作成

また、沿道など屋外濃度が高い場合には屋内の方が屋外より低い傾向があった。屋内の人の行動による屋内大気中への粒子状物質の発生という点では、屋内で靴を脱ぐなど欧米と異なる日本の生活習慣が屋内濃度を欧米より減少させている可能性がある。

さらに、Janssenら (1995)や Tamuraら (1996)は、米国や日本における研究で、喫煙や線香など屋内の発生源が存在しない条件で継続的に測定した場合には、個人曝露と環境濃度との間に強い相関があることを示した。これらの結果から、個人曝露における環境粒子曝露と非環境粒子曝露を分けて考察する必要性が確認された。

3.4. 環境濃度から個人曝露濃度を推定することの妥当性

現代の日本人は、学生や勤め人も含めた平均値で1日のうち平均15.8時間在宅している(2005年「生活時間調査」、NHK 放送文化研究所 (2006))。外出先でも屋内にいる時間が多いため、平日の生活時間の約90%を屋内で過ごしているという統計がある(塩津ら(1998))。世界的にも先進国では約85%、途上国では約70%が屋内で過ごしている(World Health Organization (2006)より推計)。また、米国EPAでは、12歳以上の屋内滞在時間として約21時間(屋外1.5時間、車中1.5時間)を曝露評価の推奨値としている(U.S.EPA National Center for Environmental Assessment of Office of Research and Development (1997))。このように、個人曝露はほとんど屋内濃度によって決定されるのが現状である。一方、多くの研究で、一定の地域内であればその地域の一般環境モニタリング局で測定されている環境濃度と地域内の各家屋の屋外濃度は大きな差が無いことも示されている。従って、個人曝露濃度と環境濃度に関する相関関係の強さは、屋外濃度と屋内濃度に関する相関関係の強さを見ることで概ね推定できる。

Wilsonら (2000)は、米国のPTEAM研究の結果を再評価し、PM₁₀における環境大気由来の粒子(以下、環境粒子という。)の日中の屋内での侵入率と、総個人曝露量に占める環境粒子曝

露の率 (A/C) の度数分布を求めた。図 3.4.1 に示すとおり、屋内における環境粒子の割合はさほど高くなく、また屋内における総個人曝露量に占める環境粒子の割合についても同様に高くない。従って、図 3.4.2 (a) および (c) に示すとおり、環境濃度と総個人曝露濃度との相関は弱く、また、環境濃度と非環境粒子の個人曝露濃度との相関はなかった。しかし、(b) のように環境粒子に限れば個人曝露濃度と環境濃度とは強い相関があることが認められた。このことから、疫学研究において、環境粒子の個人曝露濃度の代替として環境濃度を用いることの妥当性が示された。

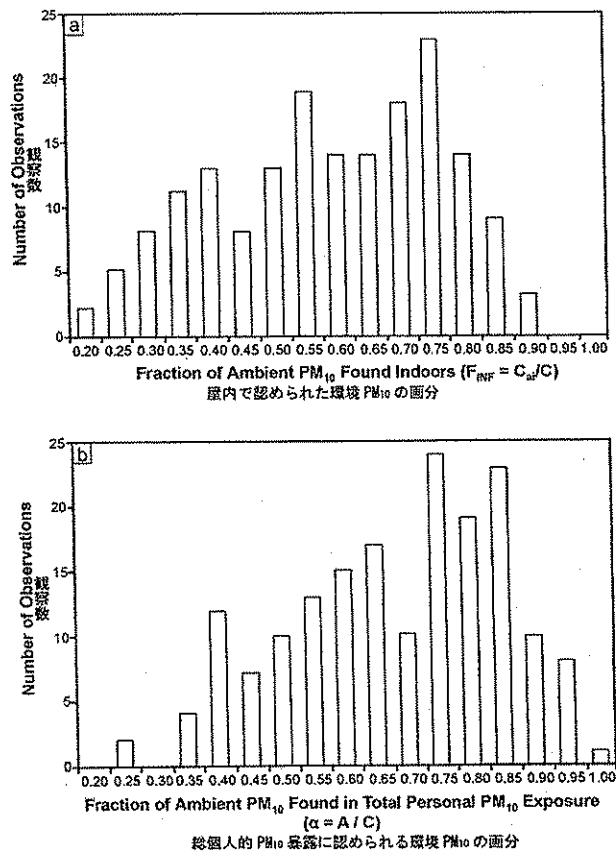


図 3.4.1 PTEAM 研究データから推定した日中の FINF (a) 及び α (b) 分布
出典：Wilson ら (2000)

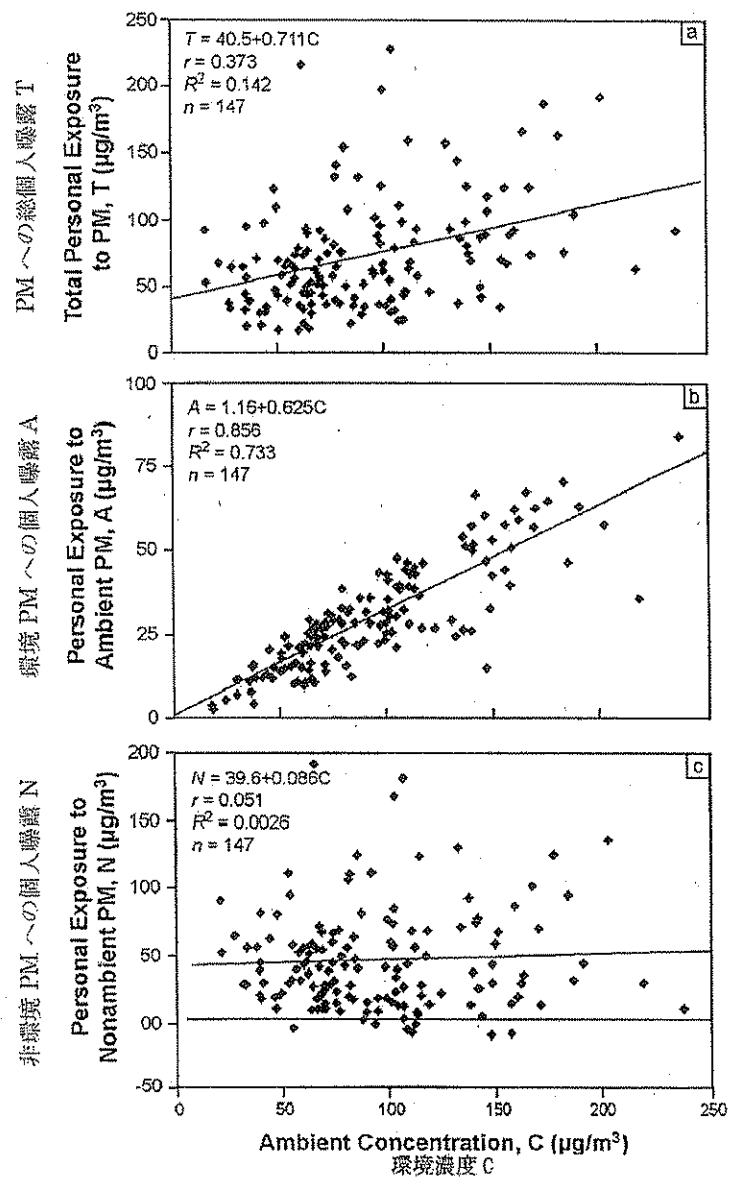


図 3.4.2 PTEAM 研究のデータを用いて推定された PM10 へ日中の個人曝露の回帰分析：環境濃度に対する (a) 粒子状物質への総個人曝露, (b) 環境中粒子状物質への個人曝露及び (c) 非環境粒子状物質に対する個人曝露

出典：Clayton ら (1993)、Mage ら (1999) 及び Wilson ら (2000) のデータを EPA が改変したもの

調理や人の活動による屋内発生源が無視できる夜間には、屋内・屋外濃度比あるいは侵入率を用いて屋内における環境大気成分を決定することができる。Long ら (2001) は、ボストンにおける 9 家屋の測定で得た夜間の測定データから、粒子径別の屋内・屋外濃度比を求めた。

屋外環境の粒子は、 $0.5\mu\text{m}$ 以上では粒径が大きくなるほど侵入係数が低下し、 $0.1\mu\text{m}$ 以下で

は小さくなるほど侵入係数が低下し、夜間では $0.1\sim 0.5\mu\text{m}$ ではほぼ 90% から 100% が屋外からの粒子であるという結果であった。また、屋内に浸透する環境中の粒子状物質は換気率が低い秋よりも換気率が高い夏に高くなっていた。

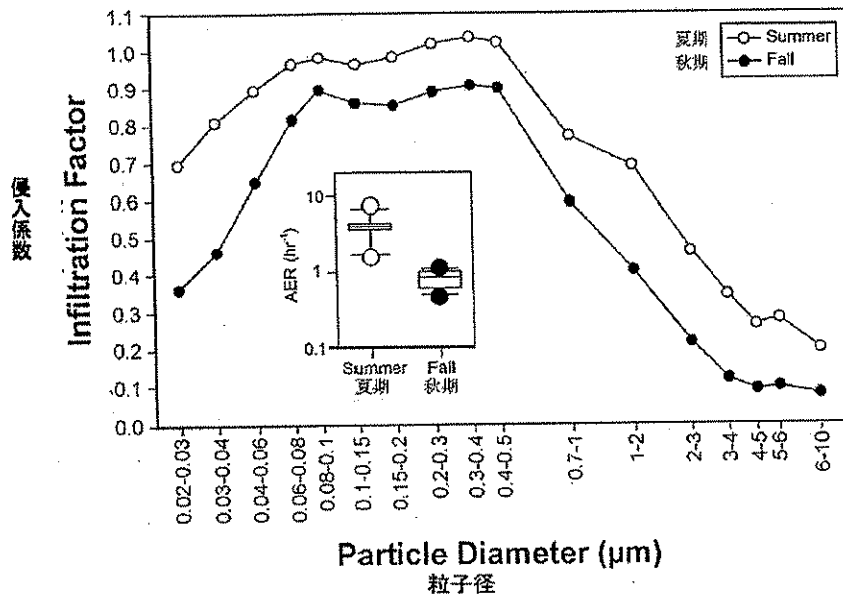


図 3.4.3 季節の夜間 1 時間ごとの非発生源データによる幾何平均侵入係数（屋内/屋外比）
換気率のボックスプロットを各プロットに挿入して示した（ボストン, 1998）

出典：Longら (2001)

このように、 $\text{PM}_{2.5}$ に該当する微小粒子は、粗大粒子に比べ屋内に侵入しやすく、屋外濃度との差が小さいことから、 PM_{10} 以上に個人曝露濃度との相関が強い $\text{PM}_{2.5}$ の環境濃度は、個人曝露濃度の代替指標として適していると言える。

粒子状物質によるヒトへ健康影響は、汚染物質の特性（粒径）や、ヒトの感受性、活動性（呼吸量）などに影響される。粒径については、粒径が小さくなることで、ヒトの呼吸器部位における粒子の沈着のしやすさに変化が生じることと併せて、図 3.3.1 に示すとおり屋内における曝露が屋外における曝露と差が少なくなるについても考慮する必要がある。また、活動と呼吸量については、バイクで走る場合と自転車をこいで走る場合では、呼吸量が 2 倍違うことにより自転車をこいだ方の曝露量がバイクの 2 倍になる知見もある。このように正確な個人曝露量の把握が必要になる場合は、単に曝露濃度だけではなく呼吸量も合わせて把握することが重要である。

3.5. 個人曝露量の推定

個人曝露の測定は、理想的には対象者に個人サンプラを装着し、呼吸域の大気を対象時間中、

連続的にサンプリングすることが望ましい。しかし、このような測定法は多数の対象者に実施することが現実的ではないため、多くの疫学研究では地域集団（住民）の曝露の代替物として、一般大気環境測定局の測定濃度を用いることが多い。

3.5.1. 直接的方法：個人サンプラあるいは個人曝露モニタによる測定

PM_{2.5}の個人曝露濃度測定のため、対象者個人に装着して測定する個人サンプラ（吸引ポンプとフィルタホルダ）に要求される条件をまず確認しておく。

吸引ポンプとしては、捕集試料の秤量、分析のためには吸引流量が大きく、流量低下が無く、小型・軽量で低騒音かつバッテリーが長時間持つことが望ましい。しかし、これらの条件をすべて満たすものは現時点では存在していないため、実験の条件に応じて適当な機材が選ばれるのが現状である。

吸引ポンプから発生する騒音については、かなり小さな音でも就寝時などの障害になることから、夜間は防音箱に収納するなど特別な防音対策が必要である。調査時の利便性から、タイマーは捕集データを記憶する仕組みがあることが望ましい。また、通常内蔵バッテリーは12時間程度しか駆動できないものが多く、現状では小型軽量の2L/min程度の吸引量に対応するポンプが一般的であるが、24時間の平均濃度の測定を必要とする場合は外部電池を追加する必要がある。

個人サンプラ本体（フィルタホルダ）の要件としては、所定の吸引流量で正確にPM_{2.5}を分級捕集できることが必要である。また、既存のSPMあるいはPM₁₀濃度測定データと比較するために同時に胸部粗粒子（すなわちPM_{10-2.5}）あるいはPM₁₀、SPMが捕集できることが望ましい。また、インパクトあるいはサイクロンの捕集面にはグリース塗布などにより確実に土壌粒子や屋内のほこりなどの粗大粒子を捕集して除外する仕組みが必要である。また安価であり、フィルタ交換などの操作性が良いことも望ましい。

これまでに多くの調査研究で用いられてきたPM_{2.5}を分級捕集する個人サンプラ（フィルタホルダ）としては、慣性衝突原理を利用したハーバード・インパクト（吸引流量4L/分、2.5μm又は10μmの50%カットポイント、MSP）とMSP-PEM（2L/分、2.5μm、SKC）、遠心力を利用したスパイラルサンプラ（2L/分、2.5μm、SKC）が知られている。大多数の研究では、PM_{2.5}あるいはPM₁₀どちらかだけが測定されており、胸部粗粒子の個人曝露に関するデータは非常に少ない。

日本では捕集特性をPM_{2.5}に合わせた個人サンプラは作られていなかったが、数年前に多段インパクトによりPM_{10-2.5}とPM_{2.5}を同時に捕集するATPS-20H、NWPS-35H（2.5L/分、Sibata）が作られた。特にATPS-20Hについては、スパイラルサンプラおよびMSP-PEMとの並行測定を行って捕集性能などにおいて両機種に比べ遜色ないことを確認している（「報告書」環境省（2007）参照）。また、吸引ポンプについては静音タイプのもので開発され、そらプロジェクト（後述）で用いられている。

個人曝露モニタでは、原理はいずれも光散乱法を用いており、ダストトラック・エアロゾルモニタ（TSI）、pDR（MIE）、PDS-2（Sibata）などがある。通常は吸引する粒子径を2.5μm以

下にするなどの制限をしていないが、pDRとPDS-2などでは吸引部にPM_{2.5}のインパクタを設置し排気部にミニポンプを接続して規定の流量で吸引することにより、PM_{2.5}粒子のみを測定することができる。ただし、光散乱モニタは測定粒子径や粒子表面の反射率により散乱光量が違うため、モニタに表示された濃度に、並行測定（フィルター捕集による測定）で求めた質量濃度から補正して濃度を算出する必要がある。

これらのモニタを用いることにより、短時間の高濃度曝露が生じているか知ることができるようになり、屋内における調理時の粒子状物質への曝露が高濃度になることなどが明らかになった。ただし、高温度の条件では、光散乱モニタは高濃度を表示するため注意を要する。モニタを吸引ポンプにつなぎ、吸引口にPM_{2.5}用のインパクタとさらに乾燥用の装置を取り付ければより正確な測定が可能となる。こうなると個人に装着して使用するには適さないが、屋内など限られた微環境（Microenvironment）のモニタリングには利用可能である。

このように、直接対象者にサンプラやモニタを装着するのではなく、サンプラを定置して微環境を測定する場合は、粒子の質量濃度だけでなく、粒子中の成分分析にとって有利な吸引量の多いポンプを用いることができるため、10L/分から40L/分で12時間あるいは24時間捕集することが多い。

また、PM_{2.5}ではないが、ナノ粒子を含む、より小さな粒子数を測定するCPC（凝縮粒子カウンター）も最近では小型化して携帯できるようになったため、沿道や屋内などの微環境の計測などで有意義な情報を提供することが期待される。

個人曝露測定では、できるだけ呼吸域でサンプリングすることが望ましいが、24時間など長時間サンプラを装着しておくことは困難であることから、局所的な発生が無視できる場合は、サンプラを携帯して身近に置いてサンプリングすることが現実的な次善の策と考えられる。

環境濃度と屋内濃度、個人曝露との関係を検討する時には、対象家屋の粒子の特異な室内発生（線香等）や居住者の喫煙の有無が重要な要素となる。特に喫煙の影響は、屋内でのわずかな喫煙によっても24時間のPM_{2.5}平均濃度を数倍にまで増加させることがある。このため、対象者が限られる実際の個人曝露調査では、喫煙者や粒子の特異な屋内発生がある対象を除くように設計される。

3.5.2. モデルによる推定方法

個人曝露モデルは、モニタリングデータに基づく統計的モデル、物理的關係を用いるシミュレーションモデル、変動や不確実性を考慮した物理的確率モデルが作られている。

曝露モデルには、微環境の曝露を経時的に測定して評価する時系列アプローチと、微環境の24時間などの平均濃度と各微環境の滞在時間から推定する時間平均アプローチがある。個人の曝露濃度の正確な推定は前者の方法のみ可能であるが、集団に対する個人曝露を評価するためには、後者を用いることができる。これまでの多くの曝露研究では、日内の濃度変動を考慮して屋内及び屋外の24時間平均濃度と滞在時間から曝露濃度を推定している。

沿道に居住する住民の健康影響に関する疫学研究において、沿道に居住する住民の個人曝露の指標として、最初は幹線道路からの距離を用いていた。その後、詳細な曝露濃度の推定手法とし

て、道路からの発生量を交通量、排出係数、再飛散率などを用いて推計する交通モデルが作られ、これをもとに拡散モデルやシミュレーション実験を組み合わせることで沿道周辺地域の濃度分布を推定する方法が用いられた。

環境省で実施している「局地的大気汚染の健康影響に関する疫学調査（そらプロジェクト）」（<http://www.env.go.jp/chemi/sora/index.html>）においても、沿道における自動車排出ガスの排出量、気象条件、道路・周辺建物構造を考慮して作成した拡散モデルによって、対象地域の年間平均濃度マップを作成している。対象者の居住地や小学校などの行動空間毎に年間平均屋外濃度を推計し、対象者の属性（児童、成人）別にそれぞれの平均的な生活時間データを結合させることにより、調査対象者の個人曝露を把握することとしている。さらに、PM_{2.5}粒子中の EC、OC 濃度を測定し、両濃度と濃度比をもとに、自動車排ガス由来の個人曝露の評価をおこなう。

対象者個人の行動については、通常本人が記録する時間活動日誌で把握する。集団的な曝露評価では行動時間のデータベースが用いられる。米国では、EPA の国立曝露研究所が 11 の異なる人の活動パターン研究から 22,000 人日以上の活動時間データを統合した「統合ヒト活動データベース（Consolidated Human Activity Database、CHAD）」があり、曝露分析のために多様な特性を有する集団コホートのモデルを構築することができる。

日本では総務省統計局が 1976 年から 5 年ごとに「社会生活基本調査」を実施しており、この生活時間調査が最も充実したデータを提供している。最新の 2006 年の調査では国勢調査の調査区から 6,696 調査区を選定し、その中でランダムに選定した約 8 万世帯に居住する 10 歳以上の世帯員約 18 万人を対象としており、生活時間に関しては 2 日間(48 時間)の自記式である。生活時間調査としては世界で最も対象者が多い調査であり、都道府県別などの詳細な統計結果はインターネット上で公表されている(総務省統計局 (2007))。

このほかに、日本放送協会放送文化研究所が 1960 年から 5 年に 1 度実施している「国民生活時間調査」がある。最新の 2005 年の調査では全国 150 地点で 12,600 人を対象に実施され、社会生活基本調査と同様 2 日間(48 時間)の行動を記入する。回収率は 61% で、データは公表され、様々な研究にも用いられている(NHK 放送文化研究所 (2006))。

3.5.3. 間接的方法

3.5.3.1. 場所と時間から推定する方法

対象者の滞在場所と滞在時間を把握し、それぞれの場所の平均濃度から個人曝露量を推定する方法で、対象期間中の「生活活動日誌」(time-activity diaries)によって推定に必要な滞在場所と滞在時間を把握する。

家屋が幹線自動車道の沿道にある場合や工場等が近接する等、粒子状物質の発生源がある場合を除いて、通常の家屋の屋外の環境濃度はほぼ均一であることから、家屋周辺の測定場所による濃度の不均一性はないとみなすことができる。一方、屋内濃度は喫煙や線香などの発生源を除外したとしても、調理を行う台所、多くの時間を過ごす居間、寝室などの場所では、日平均濃度が異なると考えられる。家屋内の場所による濃度の違いが把握できていないことや一つの対象家屋の中に多数の測定器を設置することができないことから、通常は最も長時間を過ごす居間にサン