

適切な粒径のカットポイントの検証

粒子状物質は、形状や粒径も多様であり、また発生源によって異なる成分を含みうることから、化学的、物理的性質が異なる。粒子状物質の持つこれらの多様な性質が、呼吸を通じて吸入する粒子の気道内の沈着場所および除去の経路を決定することになる。

これまで、世界各国において行われた粒子状物質の環境基準の設定や、多くの研究者による粒子状物質の健康影響に関する研究において、様々な性質を有する粒子状物質を定義するにあたり、空気力学的直径によりカットポイントを設定して基準や研究の対象となる粒径範囲を特定してきた。これは、粒子状物質の大気中の挙動や気道内に吸入した後の体内の挙動から、粒子の粒径がヒトへの健康影響に関して重要な要素となるためである。

我が国では、粒子状物質の指標に関して、粒径に着目し、粒径 $10\mu\text{m}$ 以上の粒子を100%カットする浮遊粒子状物質 (SPM) の環境基準を1973年に設定した。

この理由は、以下に示す当時の医学的な知見に基づくものであり、米国では当時、全浮遊粒子 (TSP: Total Suspended Particles) を対象としていたことを考えると、日本ではより小さな粒子に着目していたと言える。

- (1) $10\mu\text{m}$ 以下の粒子は、沈降速度が小さく、大気中に比較的長期間滞留する。
- (2) $10\mu\text{m}$ を超える粒子状物質は鼻腔および咽喉頭でほとんど捕捉されるが、 $10\mu\text{m}$ から $5\mu\text{m}$ の粒子は90%が気道及び肺胞に沈着し、呼吸器に影響を与える。
- (3) 2~ $4\mu\text{m}$ の間の粒子状物質の肺胞沈着率は最大である等の当時の医学的な知見に基づいているものである。

一方、米国では、1997年に、空気力学的直径で $10\mu\text{m}$ 以下の粒子状物質 (PM_{10}) に加えて $2.5\mu\text{m}$ 以下の粒子状物質 ($\text{PM}_{2.5}$) に関する基準も追加している。これは、粒径が $2.5\mu\text{m}$ 以下の粒子に関する健康影響の知見の存在や微小粒子や粗大粒子の発生源の相違、体内の挙動の相違によるものである。

今般、微小粒子状物質の健康影響評価の作業を行うにあたって、粒子状物質の特性、曝露評価、生体内沈着及び体内動態、毒性学研究や疫学研究に関する知見の整理を行ってきたが、これらの知見を踏まえ、(1) 粒子の物理的・化学的要素、(2) 曝露データ、(3) 吸入粒子の生体内挙動、(4) 科学的知見の蓄積等実態面からの検討材料を提供し、微小粒子や粗大粒子に関する粒径の適切なカットポイントを検証する。

(1) 物理的・化学的要素の検証

環境大気中に存在する粒子は広い粒径範囲に分布するが、質量 (体積) 濃度分布では、粒子径が $1\mu\text{m}$ 付近に谷を持つ二峰型を示し、この峰のうち粒径の大きい方が粗大粒子、小さい方が微小粒子に相当する。粒子は、その粒径から核形成モード、蓄積モード、粗大粒子モードに分類されるが、核形成モ

一ドの粒子は、凝集により速やかに蓄積モードの粒子に移行するが、0.1~1.0 μm の大きさとなった蓄積モード粒子は粗大粒子にはほとんど成長しない。その一方、相対湿度の高い状態下では、吸湿性の蓄積モード粒子は、微小粒子と粗大粒子が重複するサイズ (1 μm ~3 μm)、場合によってはそれより大きい粒子に成長する。

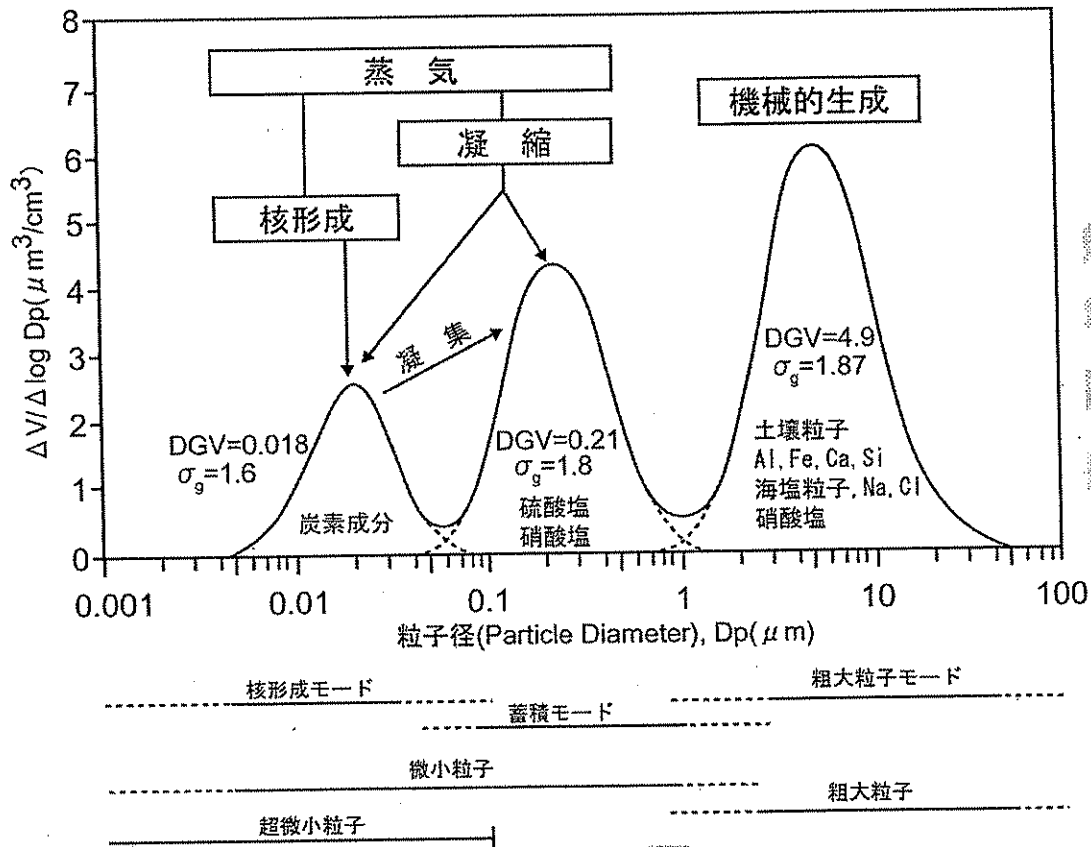


図 7.2.1 粒子の粒径分布及び代表的な組成例

粗大粒子は地殻物質および有機堆積物などの機械的な破碎や磨耗等により微細化して発生するが、微小粒子は燃焼に伴う EC や有機化合物等ならびにガス状物質からの光化学反応による硫酸塩、硝酸塩、有機化合物等の粒子として存在しており、主な発生源は人為由来である。

超微小粒子や粗大粒子の大気中での半減期は数分から数時間であるのに対し、蓄積モード粒子は数日から数週間に亘り大気中に存在することから、空間的により均一に存在し、環境や人の健康には蓄積モード粒子が大きく関与することになる。

(2) 曝露データの整理

1) 大気環境濃度

国内の粒子状物質の大気環境濃度について、2000 年以降、SPM 濃度は、明瞭に低減傾向にあり、PM_{2.5} 濃度は、微小粒子状物質曝露影響調査の測定結果から、自動車排ガス測定局で減少割合が大きい傾向が

みられる。この背景には、自動車の排ガス規制等の施策により、人為発生源起因の粒子の削減による影響が存在するものと考えられる。

PM_{2.5}の主要成分はEC、OC、NO₃⁻、SO₄²⁻、NH₄⁺である。一般環境大気測定局ではSO₄²⁻の占める割合が最も多いのに対し、自動車排ガス測定局ではECの占める割合が最も多い。一般環境大気測定局のうち都市部と非都市部を比較すると、都市部では非都市部よりNO₃⁻の占める割合が多くなっており、非都市部では都市部よりSO₄²⁻の占める割合が多くなっている。

粒子状物質の粒径分布に関して、自動車排出ガス測定局では微小粒子側の粒径の濃度が一般環境大気測定局に比べやや高い。一般環境大気測定局では微小粒子、粗大粒子ともに非都市部に比べ、都市部の方で濃度が高く、特に微小粒子でその差は明瞭である。

以上のように、近年の粒子状物質の成分や粒径分布のデータからみると、微小粒子は粗大粒子に比べ人為発生源の寄与率が高く、このため大気環境保全の施策実施による効果が現れやすいと言え、微小粒子をターゲットにした対策が有効であると推察できる。

なお、春季には黄砂が観測されるため、他の季節に比べSPM及びPM_{2.5}濃度が高くなることがある。ただし、黄砂のピーク粒径は4μm程度であるため、PM_{2.5}の影響はあるものの、SPMに比べ、その影響は小さい。

2) 個人曝露

大気中の粒子状物質濃度と個人への粒子状物質の曝露の相関を明らかにするためには、1) 環境大気濃度と家屋近傍の居住空間に近い大気濃度との関係、2) 居住空間に近い大気濃度と家屋内の濃度との関係、3) 家屋内の濃度と個人曝露の関係を観察する必要がある。

粒子状物質の個人曝露は、屋外の一般環境から曝露されるほか、外気から屋内に侵入した粒子状物質、屋内で発生する粒子状物質等の非大気環境からの曝露も含まれる。屋内への粒子状物質の侵入は空気交換率に依存するものの、屋外環境の粒子は、0.1から0.5μmの粒径の粒子の侵入率は他の粒径の大きさの粒子よりも高く、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。

わが国で実施された調査では、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おり、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示されている。諸外国の多くの調査においても、屋内濃度と個人曝露量には強い相関があり、ほぼ同じ濃度であることも確認されている。特に、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る。また、微小粒子のうち蓄積モード粒子については、粗大粒子や超微小粒子と比較して地域全体に均一に分布し、屋外から屋内への侵入率も高く屋外濃度との差が小さい。

これらのことから、PM₁₀と比べ個人曝露濃度との相関性がより強いPM_{2.5}の環境濃度は、粒子状物質の著しい屋内発生源がない場合には個人曝露濃度の代替指標となりうると言える。

(3) 吸入粒子の生体内挙動の整理

粒子状物質の気道内の沈着パターンは複雑であり、上気道領域、下気道領域および肺胞領域における

超微小粒子、蓄積モード及び粗大粒子の沈着は、それぞれ、換気量の増加及び口・鼻呼吸によって複雑な変化を示す。

気道領域により沈着率に差異がみられ、上気道領域では $0.01\sim 1\mu\text{m}$ (鼻呼吸)及び $0.01\sim 3\mu\text{m}$ (口呼吸)までの粒子の沈着率が低く、下気道領域では $0.05\sim 2\mu\text{m}$ (口呼吸)、 $0.05\sim 10\mu\text{m}$ (鼻呼吸)までの粒子の沈着率が低い。また、肺胞領域では $0.1\sim 1\mu\text{m}$ 、超微小粒子の下端、粗大粒子の上端モードでの沈着率が低くなっている。

微小粒子全般に関しては、粒径の大きさや呼吸器の部位によって沈着の挙動が異なることから、沈着率の観点から粒子サイズ域を明確に区別するカットポイントをみつけるのは容易ではない。

$0.1\sim 1\mu\text{m}$ の蓄積モード粒子は肺内に沈着しにくいものの、一部の粒子は肺の中で保持されている時に次第に沈着されるものもあり、呼吸器内の湿度の影響を受けて膨潤化して沈着するものもある。吸湿性が気道内粒子沈着パターンに影響を及ぼすものもある。

一方、粗大粒子に関してその粒径分布に応じた粒子の沈着率を見ると、 $10\mu\text{m}$ を超過する粒子に関しては多くが上気道領域で捕捉され、下気道領域や肺胞領域の沈着率が低いことから、粗大粒子の上端が $10\mu\text{m}$ とする従前の知見に変更はない。

(4) 実態面からの検討

粒子状物質のヒトへの健康影響を調査するため、毒性学や疫学に関する膨大な研究が行われている。これらの文献レビュー結果から、粒子状物質を粒径で分画して微小粒子の影響を見る研究は、カットポイントを $2.5\mu\text{m}$ とする研究が大半であった。この理由は、米国において、微小粒子状物質による健康影響に関する研究が先導的に実施されており、1970年代に当時の新式の2分級サンプラでは $2.5\mu\text{m}$ のカットポイントが選択され、微小粒子として測定されてきたことが発端になっている。

米国において、1997年に $\text{PM}_{2.5}$ の大気環境基準の設定に伴い、 $\text{PM}_{2.5}$ の測定法が制定され、測定データがさらに蓄積されたことによって $\text{PM}_{2.5}$ を微小粒子のカットポイントとする考えがさらに一般化され、米国以外の国の研究機関や研究者が行う研究にも影響を与えたと推察される。また、米国では微小粒子のカットポイントを $1\mu\text{m}$ とする案も検討されたが、相対湿度が高い条件下において、微小粒子が成長して粒径の上端が $2.5\mu\text{m}$ を超えるものが発生することから、微小粒子をより完全に捕集する必要があることからカットポイントを $2.5\mu\text{m}$ とすることを妥当としている。

粗大粒子の影響については、近年では米国を中心に $\text{PM}_{2.5-10}$ の研究も行われているものの、知見としてはまだ十分に蓄積されているとは言えないが、粒子全体の影響を見るものとして、欧米では PM_{10} 、国内では SPM を対象にカットポイントを $10\mu\text{m}$ とする研究が大半であった。

(5) まとめ

粒子状物質は質量濃度の粒径分布から微小粒子と粗大粒子に分けられる。微小粒子と粗大粒子のカットポイントについて、以上の視点から総合的に検証すると、①毒性に関与しうる微小粒子は人為発生源からの排出ガスに多く含まれ、制御がより容易であること、②微小粒子のうち蓄積モード粒子は大気中に長期間滞留し、一定地域内ではより均一に存在し、屋内にも侵入しやすく、微小粒子の大気環境測定

結果はヒトへの曝露量と見ることができること、③粒径の大きさによる体内の沈着は複雑で明確なカットポイントを示すことは困難であるが、微小粒子は肺胞領域にまで侵入しやすいこと、④多くの健康影響に関する研究論文や測定データは微小粒子を $PM_{2.5}$ と扱い科学的知見が蓄積されていること、⑤高湿度等の条件でも $PM_{2.5}$ は微小粒子の大半を捕集することができることから、粒子状物質に関する微小粒子と粗大粒子の間のカットポイントは欧米と同様に $2.5\mu m$ とすることが妥当である。

また、粗大粒子については $10\mu m$ を超える粒子は上気道領域で捕捉されるが、 $10\mu m$ 以下の粒子は下気道領域や肺胞領域の沈着率が低いことから、粗大粒子の上端で $10\mu m$ とする従前の知見とは変わりが無いことから、粗大粒子の上端のカットポイントを $10\mu m$ とすることが妥当である。

カット特性については、 $PM_{2.5}$ は米国における環境基準で用いられている 50%カットであるが、粗大粒子に関するカット特性については $10\mu m$ の粒子について、50%カットの PM_{10} と 100%カットの SPM の 2通りある。なお、SPM を PM_{10} と同じ基準で表した場合は PM_7 程度となる。