

環境研究総合推進費 C-1005

大気中粒子状物質の成分組成 及びオゾンが気管支喘息発作に 及ぼす影響に関する疫学研究

研究代表者： 島 正之（兵庫医科大学）

研究実施期間：平成22～24年度

累積予算額： 70,013千円

1

研究体制

(1) 大気中粒子状物質及びオゾンの気管支喘息発作への影響に関する疫学研究

兵庫医科大学 島 正之

(2) 大気中粒子状物質のPIXE法による多元素分析及びイオン成分の分析に関する研究

環境計測株式会社 齊藤勝美

(3) 大気中粒子状物質の日平均成分濃度の解析に関する研究

(財)ひょうご環境創造協会兵庫県環境研究センター
平木隆年・中坪良平

2

研究の目的

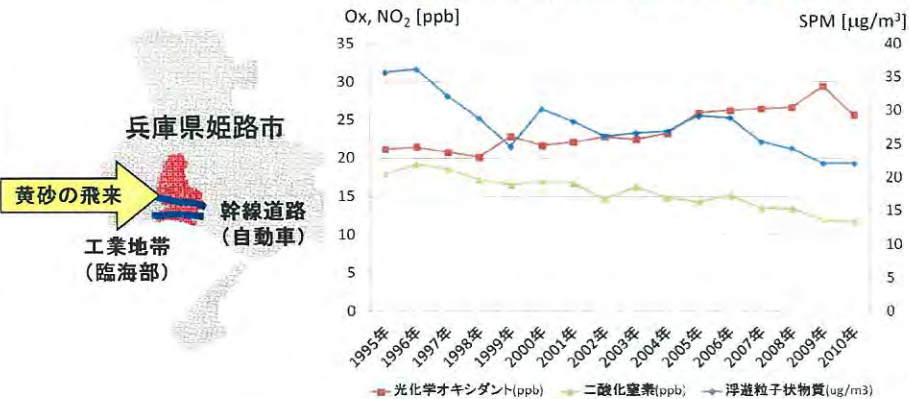
- 大気中の微小粒子状物質(PM_{2.5})の健康影響が懸念されているが、国内の知見は少なく、成分組成との関係についてはほとんどわかっていない。
- PM_{2.5}をはじめとする大気汚染物質が気管支喘息発作に与える影響を疫学的に明らかにする。
- 粒子状物質の質量濃度、元素組成、イオン成分を分析し、発生源及びその寄与割合の推定とともに、喘息発作との関連性を検討した。
- 春～夏季に高濃度となる大気中オゾンの影響についても評価した。

3

対象地域

- 姫路市は兵庫県南部に位置し、瀬戸内海に面しており、臨海部は工業地域となっている。
- 1995年より継続して気管支喘息発作調査が実施されている。

大気汚染物質濃度年平均値の推移



4

サブテーマ(1)

大気中粒子状物質及びオゾンの気管支喘息発作への影響に関する疫学研究

- 姫路市において、大気中粒子状物質濃度の連続測定を行い、喘息発作との関連を検討した。
- サブテーマ(2)で得られた大気中粒子状物質の成分組成等の結果との関連も解析した。

7

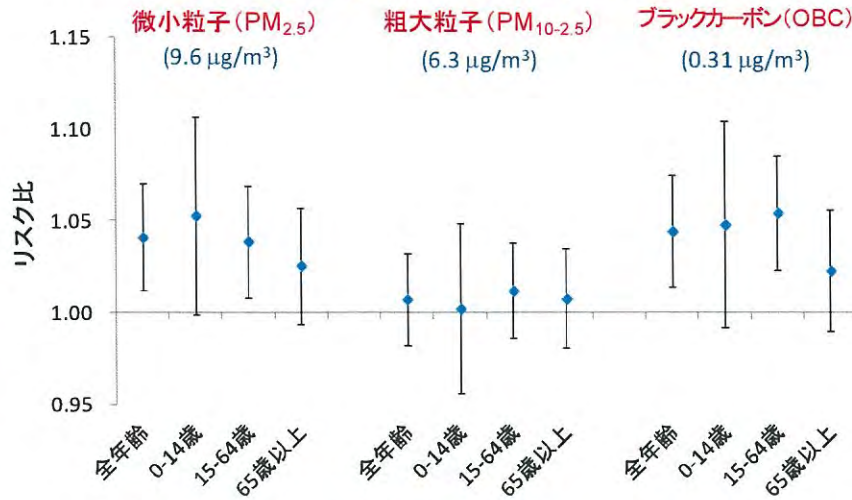
気管支喘息発作との関連

- 1週間毎の喘息発作
 - 姫路市内の46医療機関において気管支喘息発作数を1週間毎に性、年齢、居住地区別に集計
 - 喘息発作の定義:「**笛性喘鳴を伴う呼吸困難**」
 - 医師が診察、問診等で確認し、1週間毎に発作数を報告
- 1日毎の喘息による受診
 - 市の夜間急病センターに喘息発作で受診した患者数
- 解析方法
 - 喘息発作数を従属変数とし、一般化線型モデルにより気圧、気温、湿度、日照時間、季節、年度を調整し、粒子状物質またはオゾン濃度との関係を解析した。

8

粒子状物質増加による喘息発作リスク比

(週平均値、2008年8月～2012年12月)



()内に示した四分位範囲増加当たり
気圧、気温、湿度、日照時間、季節、年度の影響を調整

9

PM_{2.5}濃度と喘息発作の関連

日平均PM_{2.5}濃度の週内最大値と喘息発作リスク

年齢	リスク比	95%信頼区間	P値
全年齢	1.03	(1.01, 1.05)	0.004
0-14歳	1.04	(1.00, 1.08)	0.047
15-64歳	1.03	(1.00, 1.05)	0.023
65歳以上	1.03	(1.00, 1.05)	0.024

※四分位(13.8μg/m³)増加当たり

週平均PM_{2.5}濃度の四分位別の喘息発作リスク

濃度	リスク比	95%信頼区間	P値
< 16.7	1.00		
17.7-20.5	1.04	(0.98, 1.09)	0.169
20.6-26.0	1.04	(0.98, 1.10)	0.171
≥ 26.1	1.08	(1.03, 1.14)	0.003

※単位: μg/m³

10

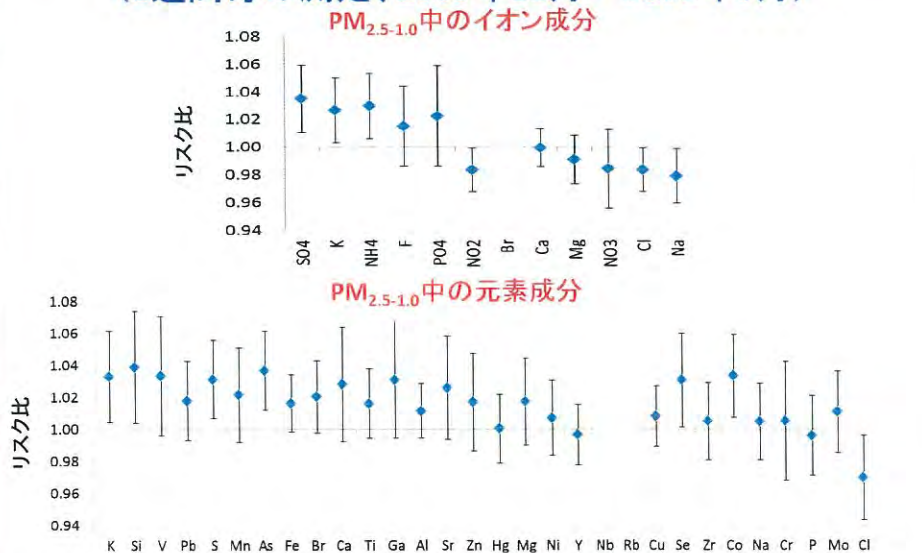
粒子状物質の成分濃度と喘息発作リスク比 (ACSA-08による自動連続測定、2012年1月～7月)

	微小粒子(PM _{2.5})成分				粗大粒子(PM _{10-2.5})成分			
	IQR	RR	95%CI	P値	IQR	RR	95%CI	P値
NO ₃ ⁻ (nmol/m ³)	12.1	1.13	(1.05, 1.21)	0.002	11.6	1.12	(1.05, 1.20)	0.002
SO ₄ ²⁻ (nmol/m ³)	15.1	1.10	(1.04, 1.15)	0.001	17.1	1.08	(1.03, 1.14)	0.004
WSOC (μg/m ³)	99.8	1.09	(1.01, 1.18)	0.035	108.7	1.11	(1.04, 1.17)	0.002
ΔH ⁺ (nmol/m ³)	8.19	0.82	(0.69, 0.95)	0.007	6.19	0.88	(0.74, 1.02)	0.102

- NO₃⁻: 硝酸イオン、SO₄²⁻: 硫酸イオン、WSOC: 水溶性有機炭素、ΔH⁺: 酸性度(水素イオン濃度)
- IQR: 四分位、RR: リスク比、95%CI: 95%信頼区間
- 各成分の四分位範囲増加当たりのリスク比
- 気圧、気温、湿度、日照時間、時期を調整

11

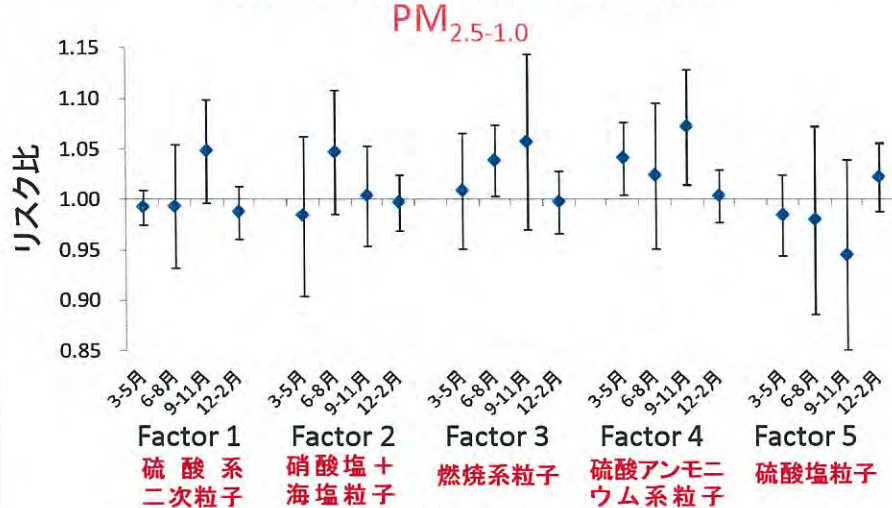
粒子状物質の成分濃度と喘息発作の関係 (1週間毎の測定、2009年11月～2012年5月)



(四分位範囲増加当たり、気圧、気温、湿度、日照時間、季節、年度を調整) ¹²

粒子状物質のPMF解析結果と喘息発作の関係

(全年齢、2009年11月～2012年5月)



(四分位範囲増加当たり、気圧、気温、湿度、日照時間、季節、年度を調整)

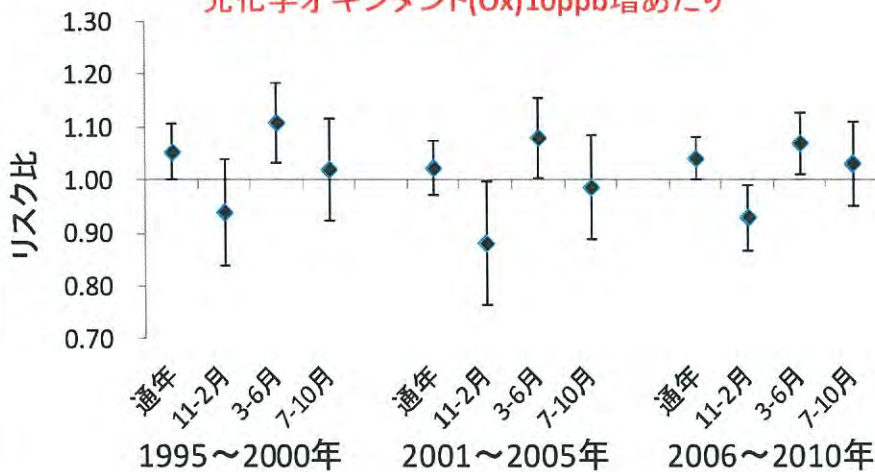
Positive Matrix Factorization (PMF): 測定値から共通変動プロファイルとその寄与の大きさを同時に求めることができる。

13

大気中Ox濃度増加による喘息発作リスク比

通年・季節別 (1995～2010年度)

光化学オキシダント(Ox)10ppb増あたり



(二酸化窒素濃度、気温、湿度、調査年度、月、の影響を調整)

14

1日ごとの喘息受診数と大気汚染濃度の関連

ケースクロスオーバーデザインによる解析

汚染物質 (増加単位)	4～6月		7～9月		10～11月		12～3月	
	RR	95%CI	RR	95%CI	RR	95%CI	RR	95%CI
PM _{2.5} (10μg/m ³)	1.00	0.88-1.13	0.96	0.78-1.18	0.99	0.86-1.11	1.04	0.88-1.22
PM ₁₀ (10μg/m ³)	0.99	0.94-1.04	0.97	0.82-1.15	0.97	0.90-1.05	1.02	0.90-1.16
OBC (0.1μg/m ³)	1.02	0.96-1.08	1.06	0.97-1.16	1.02	0.97-1.08	0.98	0.94-1.03
SPM (10μg/m ³)	0.94	0.83-1.07	1.02	0.83-1.26	1.01	0.88-1.15	0.73	0.55-0.96
Ox (10ppb)	1.00	0.85-1.19	1.12	0.93-1.34	0.98	0.79-1.22	0.90	0.69-1.17
NO ₂ (10ppb)	0.88	0.59-1.31	1.11	0.56-2.21	1.13	0.78-1.61	0.87	0.61-1.26

- 単一汚染物質モデルによる受診当日の濃度との関連
- 気圧、湿度、気温、風速、日照時間で調整

※ 対象が急病センター受診者であるため、バイアスの可能性

15

サブテーマ(1)の成果

- 大気中PM_{2.5}及びOBC濃度の増加に伴って喘息発作数の有意な増加が認められた。
- PM_{2.5}中のイオンではSO₄²⁻, NH₄⁺, K⁺, 元素ではSi, S, As, Coなどの成分と喘息発作との関連が示された。
- PMF解析結果では、PM_{2.5-1.0}中の燃焼系粒子及び主に移流によると思われる硫酸アンモニウム系粒子との関連が示唆された。
- オゾンについては、大気中濃度が高い3～6月に喘息発作を増加させることが明らかとなった。
- 1日毎の喘息による救急受診と大気汚染との関連を明らかにすることはできなかった。

16

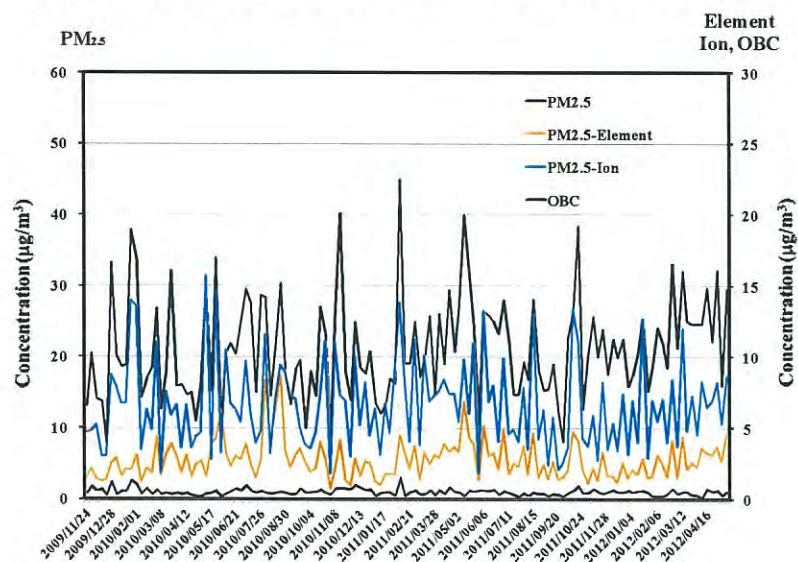
サブテーマ(2)

大気中粒子状物質のPIXE法による 多元素分析及びイオン成分の分析

- ▶ 大気中粒子状物質を1週間毎に粒径別に連続捕集し、元素組成は荷電粒子励起X線(PIXE)法、イオン種はイオンクロマトグラフィー法により分析した。
- ▶ 成分組成結果をもとにPMF解析を実施し、粒子状物質の特徴と発生源を検討した。

17

PM_{2.5}の質量濃度と元素・イオンの経時変化



18

PMF Analysis

	Factor 1	Factor 2	Factor 3	Factor 4	Factor 5
OBC	0.1426	0.0000	0.0254	0.1527	0.1139
Al	0.0152	0.0944	0.0047	0.0000	0.0000
Si	0.0089	0.2365	0.0090	0.0086	0.0104
Mn	0.0041	0.0031	0.0002	0.0022	0.0009
Fe	0.0607	0.1073	0.0106	0.0113	0.0085
Ni	0.0002	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000
Cu	0.0015	0.0000	0.0005	0.0000	0.0003
Zn	0.0247	0.0027	0.0000	0.0000	0.0038
Pb	0.0043	0.0003	0.0000	0.0015	0.0018
F ⁻	0.0007	0.0000	0.0003	0.0029	0.0005
Cl ⁻	0.0000	0.0121	0.1757	0.0162	0.0064
NO ₂ ⁻	0.0008	0.0000	0.0004	0.0009	0.0028
Br ⁻	0.0000	0.0000	0.0001	0.0000	0.0004
NO ₃ ⁻	0.0178	0.0463	0.2673	0.0087	0.0629
PO ₄ ³⁻	0.0005	0.0004	0.0002	0.0012	0.0013
SO ₄ ²⁻	0.0973	0.0006	0.0506	0.0396	0.7230
Na ⁺	0.0313	0.0000	0.1740	0.0000	0.0028
NH ₄ ⁺	0.0034	0.0036	0.0000	0.0000	0.3022
K ⁺	0.0041	0.0013	0.0072	0.0003	0.0198
Mg ⁺	0.0065	0.0011	0.0253	0.0119	0.0000
Ca ²⁺	0.0000	0.0073	0.0000	0.2428	0.0143

• 各粒径の成分データを一括して解析した(一括することにより、各粒径のFactorを共通にすることができる)。

• Factorの単位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$
(成分データの単位と同じ)

Factor 1: 燃烧由来粒子

Factor 2: 土壤由来粒子

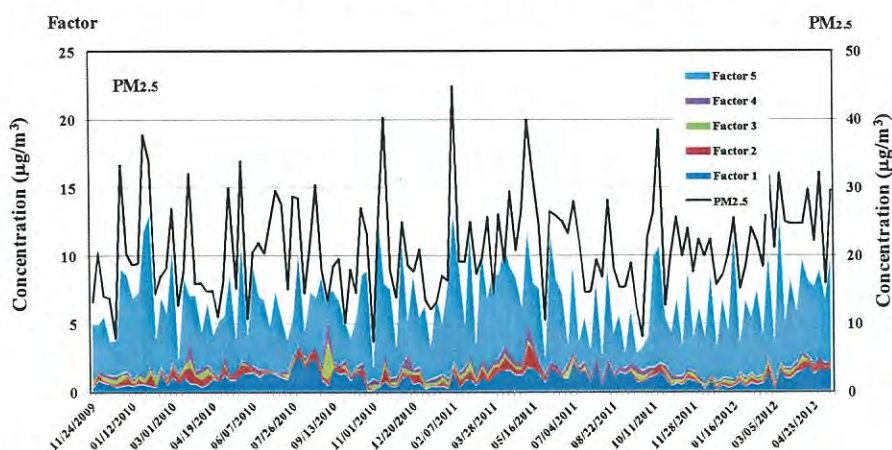
Factor 3: 海塩粒子+
硝酸イオン系粒子

Factor 4: カルシウムを主体
とした粗大粒子

Factor 5: 二次生成粒子

19

PMF Analysis結果の推移



PM_{2.5}とFactor 1~5の積算値の差は、PMFモデル解析に用いられていないOC値とEC値が主体であり、粒子に含有される水分や元素に付加された酸素なども考えられる。(Al, Si, Mn, Feなどは酸化物として存在している。)

20

サブテーマ(3)

大気中粒子状物質の日平均成分濃度の解析に関する研究

▶ 測定結果の精度評価

サブテーマ(1)、(2)で得られた粒子状物質及び成分濃度の評価

▶ PM_{2.5}濃度変動要因や発生源の寄与割合の推定

PM_{2.5}の主要成分を分析し、発生源及びその寄与割合の推定

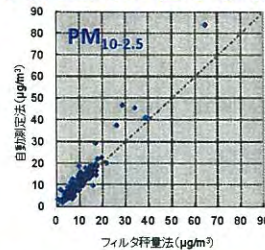
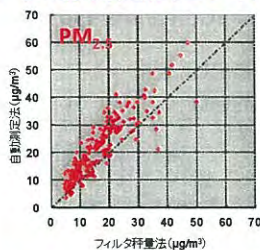


年4回、各季節に20日間ずつ、大気中粒子状物質を粒径別に24時間単位で連続捕集

21

測定結果の精度評価

▶ 自動測定法とフィルタ秤量法の粒子状物質濃度の比較



【PM_{2.5}】(n=198)

単回帰式: $Y=1.03X+4.72$

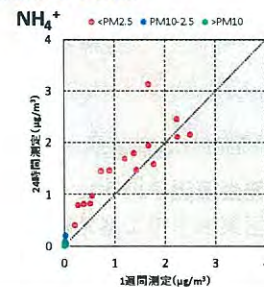
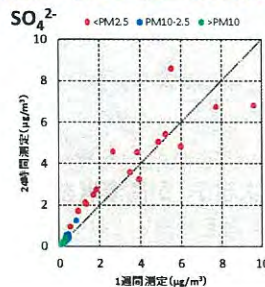
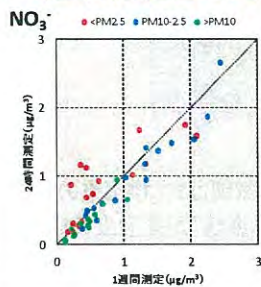
相関係数: $R=0.89$

【PM_{10-2.5}】(n=197)

単回帰式: $Y=1.20X-0.16$

相関係数: $R=0.96$

▶ 1週間測定と24時間測定における主要成分濃度の比較

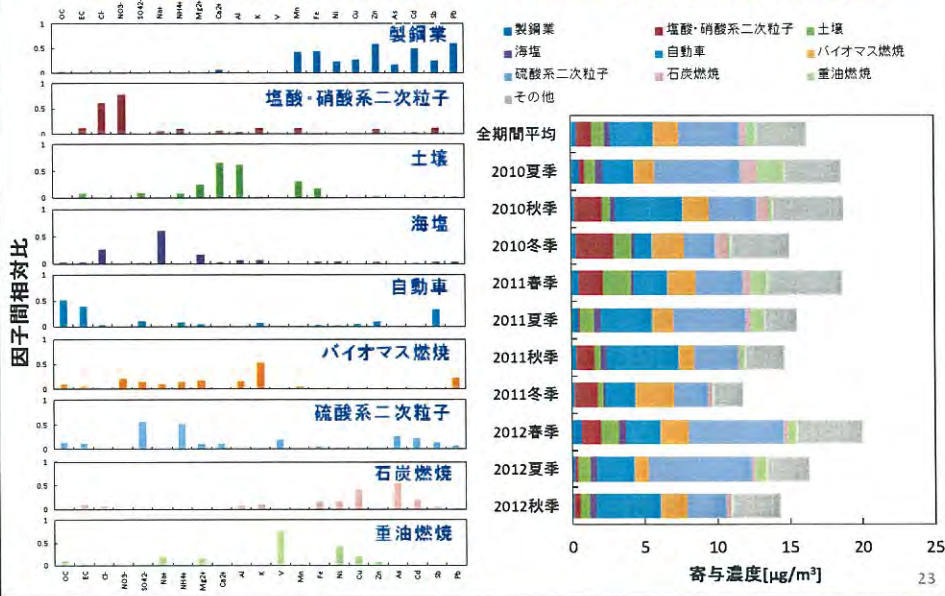


22

PMF法を用いたPM_{2.5}の発生源寄与評価

発生源因子の成分プロファイル

発生源因子の期間別寄与濃度

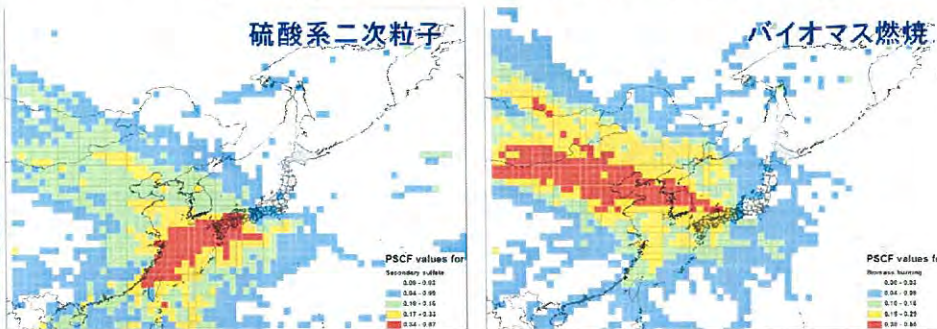


PSCF解析による発生源因子の起源推定

PSCF (Potential Source Contribution Function) 解析

測定期間の後方流跡線が1° × 1° の各グリッドを通過した回数をカウントし、発生源因子の寄与濃度が高濃度時のカウント数との比をとって地図上にプロットする。

$$PSCF_{ij} = \frac{m_{ij}}{n_{ij}} \left(\begin{array}{l} m_{ij} : \text{因子寄与率上位25\%の後方流跡線が通過した回数} \\ n_{ij} : \text{測定期間全ての後方流跡線が通過した回数} \end{array} \right)$$



◆ 発生源因子のうち、“硫酸系二次粒子”が高濃度を示した際の気塊はSO₂排出量の多い中国東海岸の工業地帯から東シナ海を経由しており、“バイオマス燃焼”が高濃度の際の気塊はモンゴルと中国・ロシア国境付近から渤海・朝鮮半島を経由して輸送されていた。 24

サブテーマ(2)、(3)の成果

- 1週間ごとの連続測定では、粗大粒子は、黄砂や海塩粒子などの自然因子の影響を受けていた。
- $PM_{2.5}$ は二次生成粒子が主体であり、燃焼由来粒子が加わっていた。
- 1日単位の測定と、自動測定機及び1週間単位の測定結果を比較したところ、質量及び主要成分の濃度はよく一致していた。
- PMF解析では、 $PM_{2.5}$ 高濃度時は硫酸系二次粒子の寄与が大きく、大陸からの移流の影響が示唆された。
- 自動車、石炭燃焼、重油燃焼等を表す因子は、国内発生源の影響も示された。

25

本研究により得られた成果

- 大気中 $PM_{2.5}$ 濃度の上昇により、喘息発作数が増加することを疫学的に明らかにした。
- 大気中 $PM_{2.5}$ は硫酸イオンの割合が大きく、高濃度時は大陸からの移流の関与が示唆された。一方、自動車、重油燃焼等の国内発生源の影響も示された。
- 硫酸イオン、アンモニウムイオン等の大陸からの移流粒子、及び燃焼系粒子の喘息への影響が示唆された。
- 春季には、オゾン濃度の上昇と喘息発作増加の関連が認められた。
- わが国における今後の $PM_{2.5}$ 等の大気汚染対策を進める上で重要な知見を得ることができたと考える。

26

大気中粒子状物質の成分組成及びオゾンが 気管支喘息発作に及ぼす影響に関する疫学研究

