

## 微小粒子状物質健康影響評価検討会報告書（抜粋）

### 1. 目的及び背景

#### 1.1. 目的及び背景

我が国では、粒子状物質に関する取組みとして、大気中に比較的長く浮遊し、呼吸器系に吸入される粒径 $10\mu\text{m}$ 以下の粒子を浮遊粒子状物質と定義して昭和48年に環境基準を定め、総合的な大気環境保全施策を進めてきた。近年、これらの浮遊粒子状物質の中でも粒径 $2.5\mu\text{m}$ 以下の微小粒子状物質(いわゆる $\text{PM}_{2.5}$ )が、呼吸器系の奥深くまで入りやすいこと、粒子表面に様々な有害な成分が吸収・吸着されていること等から健康への影響が懸念され、欧米においては、浮遊粒子状物質に加えて、微小粒子状物質の環境目標値を設定する動きがある。米国では微小粒子状物質の環境基準が1997年に設定された後、2006年9月に基準の改定が行われ、WHO（世界保健機関）は微小粒子状物質の環境目標値に関するガイドラインを2006年10月に設定した。

これらの動きを受けて、1999年に環境省（当時の環境庁）は、（社）大気環境学会、東京都、（独）環境再生保全機構（当時の公害健康被害補償予防協会）との共催で、「大気中微小粒子と健康に関する国際シンポジウム (International Symposium on Ambient Fine Particles and Health)」を東京において開催し、微小粒子状物質に関する諸外国との情報の共有と、国内での啓発に努め、2002年には、「ディーゼル排気微粒子リスク評価検討会 平成13年度報告」を公表してきた。さらに環境省は、一般大気環境における微小粒子状物質の曝露と健康影響との関連性を明らかにすることを目的とし、平成11年度（1999年度）より「微小粒子状物質曝露影響調査研究」を開始し、平成18年度（2006年度）にかけて計8年間にわたって、曝露、疫学、毒性学の3つの分野について各種調査研究を継続的に実施し、我が国における微小粒子状物質の曝露と健康影響との関連性に関する知見の集積を図ってきたところであり、その成果を平成19年7月にとりまとめ公表した。さらに、これらの国内における調査研究結果のみならず、国内外における既存の調査研究の文献を収集・整理を行う粒子状物質の健康影響に関する文献調査を実施したところである。また、微小粒子状物質の長期曝露による死亡の影響を示す知見を充実させる観点から、現在も追跡作業を実施している「大気汚染に係る粒子状物質による長期曝露影響調査」のデータを活用して微小粒子状物質を含めた粒子状物質の長期曝露影響の推定を行った。

これらの科学的知見や情報等を踏まえ、大気環境保全対策の検討に必要な基礎資料を得ることを目的に、学識経験者からなる微小粒子状物質健康影響評価検討会が、環境省水・大気環境局の下に開催され、微小粒子状物質に係る健康影響に関する評価について、以下のとおり精力的に調査・審議を進めてきた。

第1回	平成19年5月29日	検討会の進め方等について
第2回	平成19年7月24日	国内の調査研究結果について
第3回	平成19年9月25日	国内外の文献調査結果について

第4回	平成19年10月30日	評価文書作成方針等について
第5回	平成19年12月25日	検討事項の審議について
第6回	平成20年1月22日	検討事項の審議について
第7回	平成20年1月28日	検討事項の審議について
第8回	平成20年2月21日	検討事項の審議について
第9回	平成20年3月11日	検討事項の審議について
第10回	平成20年3月24日	長期曝露調査報告及び健康影響評価について
第11回	平成20年4月3日	報告案の審議について

本報告書は、疫学、毒性学や曝露に関する様々な国内外の知見をもとに、微小粒子状物質の曝露と呼吸器系や循環器系等に対する健康影響に関する評価を行い、特に微小粒子状物質の有害性の同定について専門的な検討を進め、その成果をとりまとめたものである。

## 1.2. 検討体制

検討会は、曝露、毒性学及び疫学に関する学識経験者を委員として構成した（表 1.2.1）。また、検討会における実務的な検討作業及び評価文書の作成を行うため、曝露、毒性、疫学の3分野のワーキンググループを設置し、検討を進めてきた（表 1.2.2）。

## 1.3. 評価文書の構成

第1章では、本検討会の目的や開催の背景、検討体制及び評価文書の構成を紹介している。

第2章では、大気中粒子状物質の物理的な特性、化学組成、生成機構、大気中挙動、発生源、環境動態、大気中濃度測定方法に係る情報を紹介している。

第3章では、大気中粒子状物質の濃度、粒子状物質の排出インベントリや排出量及び発生源寄与濃度や大気中の質量濃度や成分組成の推計手法、個人曝露量の推計等に係る情報を紹介している。

第4章では、粒子状物質の生体内沈着及び体内動態について、呼吸器系の構造、粒子による気道沈着や動態・クリアランスの機構、粒径による粒子の沈着部位、数学的モデルによる沈着率の推定に係る情報を紹介している。

第5章では、微小粒子状物質の影響メカニズムに関する検討に資するため、毒性学研究における健康影響の知見についての整理をおこなった。呼吸器系、循環器系（心血管系）及び免疫系その他への影響、変異原性・遺伝子傷害性及び発がん影響、粒子成分と健康影響の関係、粒径と健康影響の関係の分野毎に、ヒト志願者や動物を用いた実験の知見を基に、仮説の紹介、論文の紹介、論文による仮説の確からしさの評価を行っている。

第6章では、疫学研究の健康影響に関する知見について、短期曝露又は長期曝露による影響に分類し、呼吸器系、循環器系等の死亡、入院及び受診、症状及び機能変化等の健康影響の指標毎に Hill が示した観点（整合性及び生物学的妥当性を除く）から評価を行っている。

第7章では、第2章から第6章までの知見を統合して、粒子状物質の大気・体内中の挙動、適切なカットポイントや影響メカニズムの検証、有害性の同定に関する総合的な健康影響評価を行っている。

第8章では、本報告書のまとめと今後検討を行うべき課題を示している。

表 1.2.1 微小粒子状物質健康影響評価検討会 委員名簿

	氏名	所属
委員	安達 修一	相模女子大学学芸学部食物学科公衆衛生学 教授
委員	上島 弘嗣	滋賀医科大学社会医学講座福祉保健医学 教授
座長	内山 巖雄	京都大学大学院工学研究科 教授
委員	香川 順	東京女子医科大学 名誉教授
委員	川本 俊弘	産業医科大学医学部衛生学講座 教授
委員	工藤 翔二	日本医科大学呼吸器・感染・腫瘍内科 主任教授
委員	小林 隆弘	東京工業大学統合研究院ソリューション研究機構 特任教授
委員	坂本 和彦	埼玉大学大学院理工学研究科 教授
委員	佐藤 洋	東北大学大学院医学系研究科 教授
委員	島 正之	兵庫医科大学公衆衛生学 教授
委員	祖父江 友孝	国立がんセンターがん対策情報センターがん情報・統計部 部長
委員	高野 裕久	独立行政法人国立環境研究所環境健康研究領域 領域長
委員	富永 祐民	愛知県がんセンター名誉総長
委員	新田 裕史	独立行政法人国立環境研究所環境疫学研究室 室長
委員	溝畑 朗	大阪府立大学産学官連携機構先端科学イノベーションセ ンター センター長
委員	森田 昌敏	愛媛大学農学部生物資源学科環境計測学 教授
委員	横山 榮二	元 国立公衆衛生院 院長
委員	若松 伸司	愛媛大学農学部生物資源学科大気環境科学 教授

\*五十音順 所属は平成20年3月現在

表 1.2.2 微小粒子状物質健康影響評価検討会 分野別ワーキンググループ 委員名簿

	氏名	所属
曝露 WG	大原 利眞	独立行政法人国立環境研究所環境健康研究領域アジア自然共生グループ広域大気モデリング研究室 室長
	小林 伸治	独立行政法人国立環境研究所社会環境システム研究領域交通・都市環境研究室 室長
	◎ 坂本 和彦	埼玉大学大学院理工学研究科 教授
	田村 憲治	独立行政法人国立環境研究所環境健康研究領域総合影響評価研究室 主任研究員
	西川 雅高	独立行政法人国立環境研究所環境研究基盤技術ラボラトリー環境分析化学研究室 室長
	溝畑 朗	大阪府立大学産学官連携機構先端科学イノベーションセンター センター長
	若松 伸司	愛媛大学農学部生物資源学科 教授
毒性 WG	阿部 信二	日本医科大学内科学講座 呼吸器・感染・腫瘍内科 講師
	安達 修一	相模女子大学学芸学部食物学科公衆衛生学 教授
	川本 俊弘	産業医科大学医学部衛生学講座 教授
	小林 隆弘	東京工業大学 総合研究室 ソリューション研究機構 特任教授
	◎ 高野 裕久	独立行政法人国立環境研究所環境健康研究領域 領域長
	青柴 和徹	東京女子医科大学大学院呼吸病態制御学 教授
	局 博一	東京大学大学院 農学生命科学研究科 獣医学専攻 比較病態生理学教室 教授
	藤巻 秀和	独立行政法人 国立環境研究所環境リスク研究センター 高感受性影響研究室 室長
	松本 亜紀	日本医科大学付属病院 呼吸器内科
疫学 WG	磯 博康	大阪大学大学院医学系研究科社会環境医学講座公衆衛生学 教授
	小野 雅司	独立行政法人国立環境研究所環境健康研究領域 総合影響評価研究室 室長
	佐藤 俊哉	京都大学大学院医学研究科社会健康医学系専攻医療統計学 教授
	島 正之	兵庫医科大学公衆衛生学 教授
	祖父江友孝	国立がんセンターがん対策情報センターがん情報・統計部 部長
	中井 里史	横浜国立大学大学院環境情報研究院 教授
	中館 俊夫	昭和大学医学部衛生学 教授
	◎ 新田 裕史	独立行政法人国立環境研究所環境健康研究領域 環境疫学研究室 室長

◎：ワーキンググループ長 \*五十音順 所属は平成20年3月現在

## 7. 知見の統合による健康影響評価

粒子状物質の特性、曝露評価、生体内沈着・体内動態、毒性学研究の健康影響及び疫学研究の健康影響に関する知見を統合し、適切な粒子状物質の指標に関するカットポイントや微小粒子状物質の影響メカニズム、有害性同定に関する健康影響の評価を記述する。

最初に、粒子状物質の特性、曝露評価及び生体内沈着・体内挙動に関する結果を要約して粒子状物質の大気や体内中の挙動に関する整理を行う。これらの結果等を踏まえ、粒径の適切なカットポイントを検証する。

次に、ヒト志願者試験や動物実験による毒性学研究の知見を踏まえ、呼吸器系、循環器系(心血管系)、免疫系、発がん等の分類毎に微小粒子状物質の曝露による有害性に関する影響メカニズムを記述する。

最後に、粒子状物質の曝露による健康影響を総合的に評価するため、疫学知見から示された結果について、毒性学知見から想定されるメカニズムとの生物学的妥当性や整合性に関する評価を行うとともに、これらの評価と疫学研究の健康影響に関する知見の整理に基づく評価を統合して、有害性同定に関する評価を行う。

### 7.1. 粒子状物質の大気・体内中の挙動

#### 7.1.1. 粒子状物質の特性の整理

##### 7.1.1.1. 粒子状物質の物理・化学的性質

環境大気中に存在する粒子には、堆積物等の破碎や研磨等の細粒化や物の燃焼に伴って排出される一次発生粒子と、固定発生源、移動発生源等における燃焼に伴って発生する硫黄酸化物、窒素酸化物、塩化水素等のガス状物質が、主として大気中での化学反応により蒸気圧の低い物質に変化して粒子化した二次粒子がある。このように粒子状物質は様々な生成過程を経たものの混合体であり、粒子の化学組成は、無機成分( $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 、 $\text{NH}_4\text{NO}_3$ 、 $\text{NH}_4\text{Cl}$ )、炭素成分(有機炭素(OC)、元素状炭素(EC)、炭酸塩炭素(CC)等)、金属成分、土壌成分等に分類される。また、二次粒子の前駆物質としては、硫黄酸化物、窒素酸化物、塩素化合物、 $\text{NH}_3$ 、揮発性有機化合物(VOC)が挙げられる。

環境中に存在する粒子は広い粒径範囲に分布しているが、質量(体積)濃度分布は、粒子径(直径)が空気動力学径で約  $1\ \mu\text{m}$  に谷をもつ二峰型を示し、粒径の大きい方を粗大粒子、小さい方を微小粒子と呼ぶ。また、微小粒子はさらに分類され、約  $0.1\ \mu\text{m}$  以下の粒子を超微小粒子と呼ぶことがある。質量(体積)濃度では、約  $6\ \mu\text{m}$  付近と約  $0.3\ \mu\text{m}$  付近にピークを持つ二峰性分布を示すが、表面積濃度分布では、約  $0.2\ \mu\text{m}$  の所にピークを持つ単峰性分布を示し、個数濃度分布では約  $0.01\ \mu\text{m}$  の所にピークを持つ一山分布を示す。主として粗大粒子は機械的な破碎や磨耗等により微細化して発生し、非球形の様々な形態で存在す

るが、微小粒子は燃焼に伴う高温蒸気からの形成や気体からの二次生成によるもので球形粒子として存在している (図 7.1.1)。

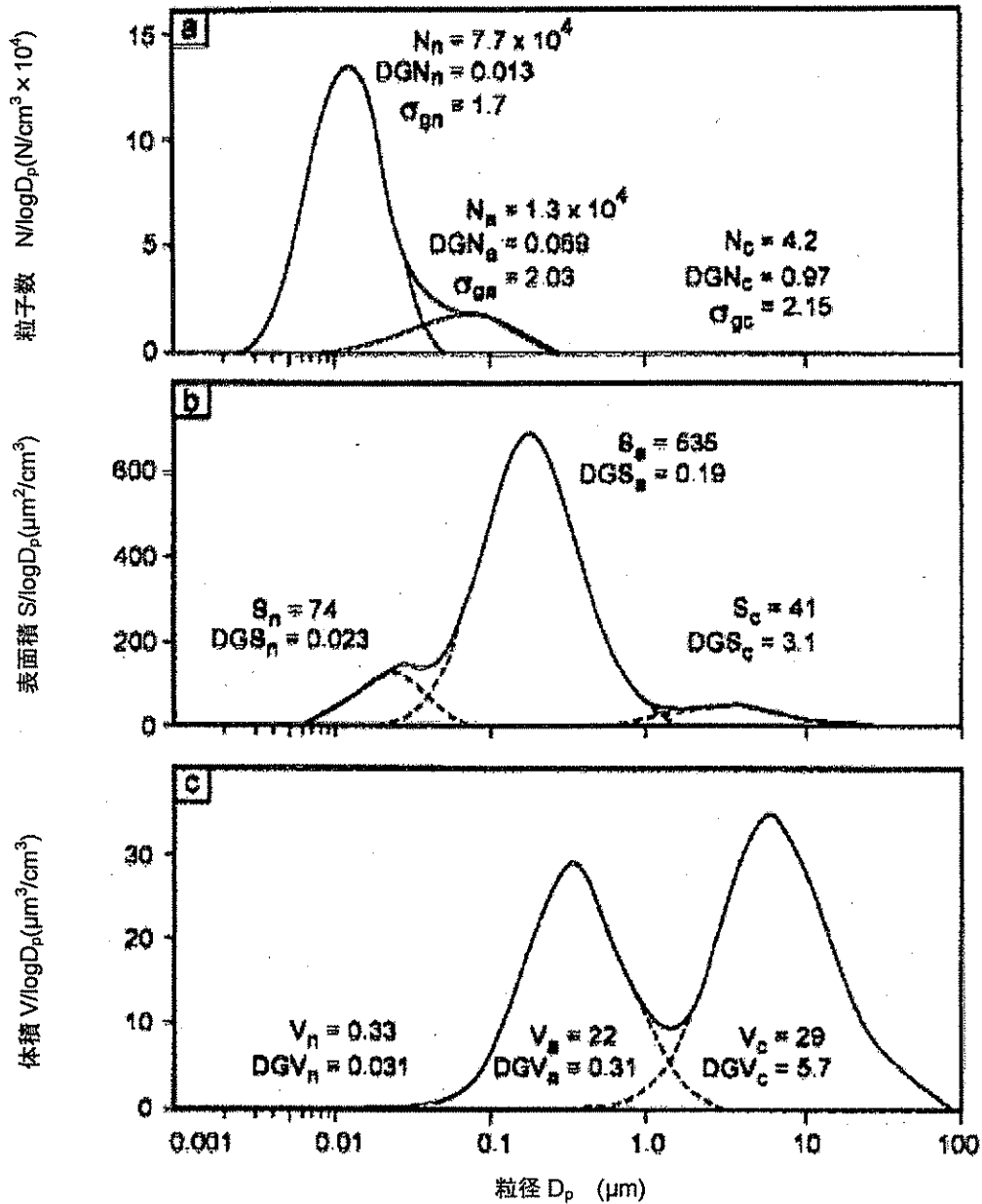


図 7.1.1 粒子状物質の粒子数・表面積濃度・質量 (体積) 濃度分布(Whitby (1978))

粒子状物質の発生源としては、人為起源と自然起源に大別され、人為起源には、固定発生源 (工場・事業場等) と移動発生源 (自動車、船舶、航空機等) がある。

自然発生源としては、土壌粒子、海塩粒子、火山噴煙等がある。特に、四方を海に囲まれ、海岸線に沿って都市が発達しているわが国では、季節特有の風系により飛散する海塩

粒子の影響に留意する必要がある。

国外より越境移流する代表的な粒子状物質として、黄砂が挙げられる。中国内陸部のタクラマカン砂漠、ゴビ砂漠や高度高原等の乾燥、半乾燥地域で風によって巻き上げられた鉱物・土壌粒子は偏西風によって運ばれ、しばしば日本にまで飛来する。日本においては、黄砂は一般的に3月～4月に多く観測され、11月にも観測される場合がある。

大気粒子は、発生後、風速、風向、気温、相対湿度、日射量、気温垂直分布、大気安定度、混合層高度、局地気象（海陸風、不連続線・前線、ヒートアイランド）等の気象条件の影響を受けて、拡散・輸送及び混合され、反応・変質過程を繰り返しながら、降水を伴う湿性沈着ならびに土壌、草木、水面、建造物表面等へ乾性沈着して除去される。

粒子状物質の大気中での滞留時間には、気象条件と粒径が大きく影響する。降雨がある場合は、乾性や湿性沈着により大気中から除去される比率が高まる。また、それぞれの粒子がもつ粒径に由来する拡散係数と重力沈降にも支配される。粗大粒子は主として、重力沈降、超微小粒子は拡散による沈着や凝集による微小粒子への成長により除かれていくが、拡散や重力沈降の影響を受けにくい微小粒子は大気中での滞留時間が最も長く、降水に伴う除去が主要機構となるため数週間の寿命を持っている。よって、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、微小粒子(蓄積モード粒子)は数日から数週間に亘り大気中に存在し、微小粒子による環境やヒトへの健康に大きく影響することになる。

また、微小粒子は、EC、OC、 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 、 $\text{NH}_4\text{NO}_3$ 、 $\text{NH}_4\text{Cl}$ 、水溶性や吸湿性の高い成分との結合水等から構成されており、その濃度や存在割合は都市部、後背地、交通量、季節等により大きく変化する。しかし、粒子と気体との平衡が存在しない EC、硫酸塩等は、大気中での滞留時間が長いいため微小粒子成分として普遍的に存在している。

大気微小粒子の時間・空間変化には発生源条件、気象条件、化学反応条件が影響を及ぼす。多くの都市では、ラッシュアワー時間帯に粒子状物質の発生量が多くなるので、特に、沿道の自動車排ガス測定局では朝夕に大気微小粒子濃度のピークが発生する。

また、大気微小粒子濃度は、一般に生産活動や大型車の走行が多い平日の方が高く、それらからの発生が減少する祝祭日には濃度が低い。

冬季と夏季とでは、大気微小粒子生成に及ぼす気象条件に違いがあるので微小粒子の構成物質が大きく異なる。冬季において高濃度が発生する主要因は接地逆転層の発生と弱風であるのに対し、夏季においては沈降性逆転層内における活発な空気の混合と光化学反応が主要要因である。このため、冬季には接地層付近に存在する炭素状成分を主体とした一次生成微小粒子が主構成要素であるのに対し、夏季には二次生成微小粒子が主構成要素となる。冬季に微小粒子濃度が高濃度になる時には炭素粒子や気温に依存するガスと粒子間の平衡に関わる  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  や  $\text{NH}_4\text{Cl}$  が多いのに対し、夏季には有機粒子が多く存在する。春季には黄砂飛来による SPM の上昇があり、この事が特に日本の西部地域での SPM 環境

基準未達成の大きな要因となっている。

経年変化には、気象条件と発生源条件が影響を及ぼす。例えば、1999年に一年間だけSPM濃度が全国的に多く低減したが、その主要因は夏季における気圧配置パターンが通常年とは大きく異なり、北太平洋高気圧の中心が仙台沖まで北上して強風が卓越したためであった。一方、1999年以降、SPM濃度は明瞭に低減の傾向にあり、この背景としては、自動車の単体規制、ダイオキシン対策特別措置法、首都圏を中心としたディーゼル車規制や、自動車NOx・PM法規制等による効果が考えられる。

気象は周期的に変化するので野外調査での環境動態把握には、この周期よりも長い期間の観測が必要となる。例えば、春季には低気圧と移動性高気圧の1サイクルが1週間程度の事が多いので、平均的な状況を知るためには少なくとも2週間程度の期間に亘る統計値取得が望ましい。

#### 7.1.1.2. 粒子状物質の測定方法

現在、諸外国においてPM<sub>2.5</sub>標準測定法として定められている方法は、米国EPAのFRMの規定に代表されるフィルタ法による質量濃度測定のみである。

我が国においてはSPM濃度の環境基準が1時間値及び1時間値の1日平均値で定められており、1時間毎の測定が可能なβ線吸収法、光散乱法、圧電天びん法が環境基準を評価する方法として定められている。

一方、米国において定められているPM<sub>2.5</sub>の環境基準値は日平均値及び年平均値であり、1時間値の基準値は設定されていない。しかしながら、現行のSPMと同様、時間変動をリアルタイムに確認できる自動測定機は有用であると考えられており、わが国を含む諸外国において、PM<sub>2.5</sub>自動測定機、特にTEOM、β線吸収法及び光散乱法による各種自動測定機の開発が活発に行われている。PM<sub>2.5</sub>ではSPM以上に高性能が要求されるため、それぞれの装置のいずれも改良が実施されている。

TEOM、β線吸収法では水分や半揮発性物質の影響を受けやすく、特に日本では米国に比べ湿度が高い傾向にあることから湿度影響の程度を把握するとともに影響の低減を図るための改良を行う必要がある。一方で、PM<sub>2.5</sub>を測定する場合にはフィルタ法による質量濃度測定が最も信頼性が高い測定法であるが、1時間値の測定ができないことその他、フィルタの測定にあたっては温度、湿度のコントロールが可能な計測環境が必要である。このように、PM<sub>2.5</sub>測定機は機械的な構造改良の途上であり、低濃度域における測定精度の確認が必要であること、PTFE製フィルタの吸湿性は低い、高温多湿であるわが国の夏季において、測定値に正の誤差を生じやすいこと、また、気温やPM<sub>2.5</sub>の組成等により程度の差はあるが、試料採取時の半揮発性物質の揮散による負の誤差を生じることから、これらの測定値に与える影響の把握、ならびに正確な濃度を測定するため、誤差の解消に向け、さらなるデータの蓄積や測定機器の改良等が今後の課題と言える。

なお、我が国では大気中微小粒子状物質(PM<sub>2.5</sub>)質量濃度に関して調査を行う場合の参



考として、平成 12 年に測定マニュアルが作成され、さらに平成 19 年には同マニュアル作成以降に収集された PM<sub>2.5</sub> 計測技術に関する情報等をもとに、同マニュアルの改訂版が作成され、併せて成分測定マニュアルも作成されている。

## 7.1.2. 曝露評価の整理

### 7.1.2.1. 大気環境データの現状

日本では、環境省が平成 13～18 年にかけて、PM<sub>2.5</sub> 及び大気環境基準の対象となっている浮遊粒子状物質 (SPM) を対象とし、それぞれ 35、31 地点で測定を実施した。SPM は 8 線式粉じん濃度計で、PM<sub>2.5</sub> は 50℃加熱方式 TEOM による連続測定 (2001～2006 年、平成 13～18 年) を行った。いずれも自動車排ガス測定局で顕著な濃度低下がみられ、都市部一般局では初期に減少したが最近では横ばい傾向、非都市部一般局では全体にわたって横ばいであった。PM<sub>2.5</sub>/SPM 比が冬季に最も低くなる傾向にあったが、地域差は認められなかった。高温多湿の夏季におけるそれぞれの測定機器 (方法) の違いによるものと思われる、SPM と PM<sub>2.5</sub> の本質的な粒子特性とは考えられない。

平成 13～18 年度に観測した粒子状物質質量濃度の全平均粒径分布をみると、微小粒子側の 0.5μm と粗大粒子側の 5μm の粒径をピークとし、1～2μm が谷となる二峰型の分布となり、自排局では微小粒子側の粒径の濃度が一般局に比べやや高くなった。一般局の都市部と非都市部での比較では微小粒子、粗大粒子ともに都市部の方で濃度が高くなっており、特に微小粒子側でその差が大きくなっている。

PM<sub>2.5</sub> の主要成分である炭素成分について、EC は 0.5μm 以下の微小粒子側の粒径に偏在し、OC は 0.6μm 付近にピークをもつ濃度分布形を示す。都市部の一般局及び自排局では 4μm 付近の粒径でも EC と OC 濃度がやや高くなる傾向がある。

### 7.1.2.2. 発生源影響

大気中微小粒子の評価を行うためには、各種発生源から排出される粒子状物質 (一次粒子) の排出量を把握することに加えて、大気中粒子の約半分を占める二次粒子の原因となる前駆物質に関する排出量を把握する必要がある。

粒子状物質に関する排出量の推計に当たって、排出量を把握することが望ましい物質としては PM、NO<sub>x</sub>、CO、SO<sub>x</sub>、NMVOC、NH<sub>3</sub>、HCl があげられる。

各種発生源からの大気汚染物質排出量を算出する方法としては、排出量の実態調査をもとに排出量を算出する方法と原単位法と呼ばれる排出係数に活動量を乗じて間接的に推計する方法とがある。

実態調査に基づく排出量の算出では、環境省が実施している大気汚染物質排出量総合調査が良く知られている。この調査は、ある規模以上の事業所からの排出量の実態を反映したものと言えるが、大気汚染に係わる全ての発生源を網羅している訳ではないことに加え

て、二次粒子の前駆物質である NMVOC、NH<sub>3</sub>、HCl 等については調査対象外である。そのため、大気環境評価予測モデルの入力データとしての排出インベントリの作成には、実態調査に基づく方法と原単位法が併用されている。

原単位法では、単位活動量当たりの排出係数を設定し、各種統計資料等より求めた活動量に乗じて排出量を算出するが、特に我が国では、排出係数の情報は少なく、数少ない測定値や諸外国における値を使用しているのが実状であり、その代表性や活動量との対応については、注意が必要である。

粒子状物質に関する我が国の排出インベントリについては、これまで、推計例が幾つか存在するが、その推計には①大気汚染物質排出量総合調査の対象施設以外の発生源データの整備、②排ガス性能が大きく変化している新しい車両の排気組成に関する情報収集、③植物起源の排出インベントリの整備の課題が残されている。これらの課題を踏まえた推計精度の高い排出インベントリの早急な整備が望まれる。

#### 7.1.2.3. モデルによる推計

大気汚染物質制御の最適政策を展開するために汚染質の発生源寄与濃度の把握が必須であり、様々なモデルを用いて推定される。その代表的なアプローチにはシミュレーションモデルとレセプターモデルがある。

シミュレーションモデルでは発生源インベントリから出発し、汚染質の輸送と変質をシミュレートして最終地点での大気質への影響を推定する。他方、レセプターモデルの出発点は環境大気の測定であり、そこから逆に辿って発生源寄与濃度が推定される。

レセプターモデルは CMB モデルと多変量モデルに大別される。CMB モデルでは、発生源プロファイルと呼ばれる発生源粒子の化学成分データが必要である。この発生源プロファイルを利用することによって 1 組の環境測定データによっても簡便に発生源寄与を推定できる。しかし、対象地域での主要な発生源とその代表的な発生源プロファイルを必要とすることは、CMB モデルの大きな短所である。これに対して、多変量モデルでは、多数個の環境測定データを統計的に解析処理して、主要発生源数とそれら発生源プロファイル及び寄与濃度を同時に導出しようとするものである。

また、主要成分の分析値から再構築した質量濃度とフィルタ秤量法で測定された微小粒子濃度との一致性を調べるマスクロージャーモデルにより精度管理された精度の良い環境データの提供は、CMB モデル等による発生源寄与濃度の推定に大いに貢献している。

シミュレーションモデルで発生源別寄与濃度を算出するためには、発生源から排出される一次粒子ならびに二次粒子の前駆ガスが大気中で輸送・変質・沈着する複雑な物理化学過程をシミュレートする必要がある、不確実性は大きい。しかし、シミュレーションモデルは、発生源別寄与濃度の時空間分布を計算できること、発生源地域や個々の発生源からの寄与濃度を推計できること、対策効果の評価や将来予測に使用できること、といったメ

リットがある。

国内で粒子状物質を対象としたシミュレーションモデルは、行政調査用には解析モデルが、研究用には数値モデルが使用されることが多い。一般的に、解析モデルは SPM 年平均濃度の再現性が高く、少ない情報で環境濃度を推計でき計算も容易である。その一方、モデルが単純であり、粒子の変質や粒径分布を考慮していない、簡略な二次粒子生成モデルを使用している、領域外からの流入は一定値を用いている、単純な拡散場・輸送場を仮定している、などの課題がある。また、国内で使用されている解析モデルは、国際的に充分、認知されていないと考えられる。一方、数値モデルは解析モデルよりも大気の詳細にモデル化でき、排出データや気象データが正確であれば、より確かな結果が得られる。特に、発生源対策により一次粒子が低減し、相対的に二次粒子の割合が増加している現状を考慮すると、数値モデルの必要性・重要性が増加している。しかし、数値モデルは、解析モデルに比べて計算負荷が大きく、例えば、年平均値のような長期評価や多数ケースの感度解析を行う場合に問題となることがある。また、粒子濃度の現況再現性が不十分な場合があり、その一つとして、二次生成有機粒子(SOA)を過少評価することがあげられる。

なお、国内において一次粒子の発生源別寄与率をシミュレーションモデルで評価した場合、レセプターモデルによる結果と大きな乖離が生じる可能性がある。国内では、このような比較資料が皆無であるため、早急に両者の比較研究を実施することが重要であり、その結果も踏まえて、排出インベントリの改良を進める必要がある。

#### 7.1.2.4. ヒトへの曝露様態

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関係を明らかにするためには、1) モニタリングサイトで測定した広範囲の環境を代表する環境大気濃度と家屋近傍の屋外等のより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との関係を観察する必要がある。

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)に 7 地域の調査結果が掲載されている。地域内の測定局に家屋内外の測定に用いたサンプラで同時に測定した結果、PM<sub>2.5</sub> 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。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。また、この調査に限らず欧米等の多くの調査で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、沿道等、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。よって、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ことになる。

個人の曝露には、屋外の一般環境から曝露される粒子状物質のほか、屋内で生成された粒子状物質による非環境大気成分、または個人活動に伴い曝露することによって大気粒子

状物質の濃度と相関が良くない成分も含まれる。また、日本人は平日の生活時間の約90%を屋内で過ごしている等の統計も踏まえれば、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。屋内の人の行動は屋内大気中へ粒子状物質を発生させる原因でもあるが、屋内で靴を脱ぐなど欧米と異なる日本の生活習慣が、欧米に比べ屋内濃度を増加させない原因として考えられる。

米国における調査では、屋内への粒子状物質の侵入は換気率に依存するが、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率が低下し、 $0.1\mu\text{m}$ 以下では小さくなるほど侵入率が低下し、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、屋内に侵入する環境中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7.1.2)。

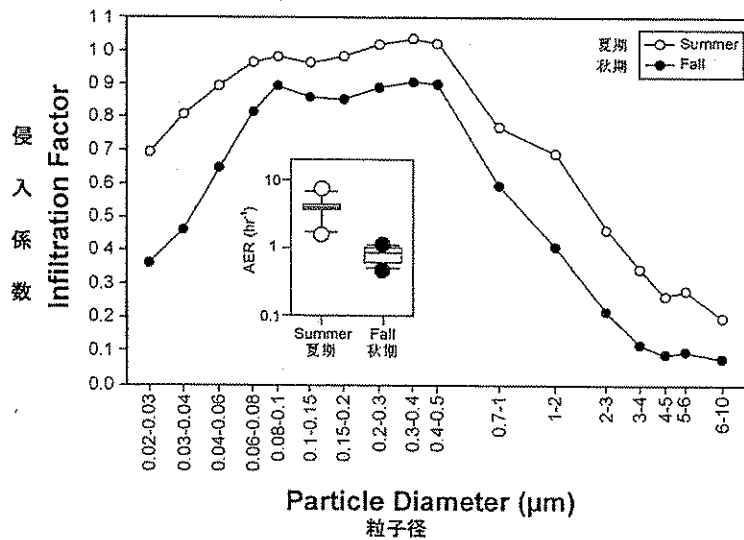


図 7.1.2 季節の夜間1時間ごとの非発生源データによる幾何平均侵入係数(屋内/屋外比)

出典: Longら(2001)

また、 $\text{PM}_{2.5}$ に該当する微小粒子は粗大粒子や超微小粒子に比べて地域内での濃度の差が小さいことも知られている。さらに、 $\text{PM}_{2.5}$ 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、 $\text{PM}_{10}$ 以上に個人曝露濃度との相関が強く、 $\text{PM}_{2.5}$ 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ことを示している。

### 7.1.3. 生体内沈着及び体内動態の整理

#### 7.1.3.1. 生体内沈着

粒子の呼吸器系への沈着部位や沈着量を決定する要素として、粒子の粒径、粒径分布、粒子の形、表面の性状、密度のほか吸湿性、水溶性等の物理・化学的性状や気道の構造、

気道内での気流の状態や呼吸のパターン（口呼吸か鼻呼吸、呼吸回数や一回換気量等の換気因子）などがある。

沈着の機構としては、慣性による衝突、沈降、遮断、粒子荷電及び拡散があり、粒子の大きさや形状等により寄与が変わる。

上気道領域、気管支領域、肺泡領域における粒子沈着を詳細に分析しているモデルによって推計したところ、その粒子の沈着率の傾向として上気道領域では  $0.01\sim 1\mu\text{m}$ （鼻呼吸）及び  $3\mu\text{m}$ （口呼吸）までの粒子は沈着率が低い。下気道領域では  $0.05\sim 2\mu\text{m}$  まで（口呼吸）、 $0.05\mu\text{m}$  より大きい粒子（鼻呼吸）の沈着率が低い。肺泡領域では  $0.1\sim 1\mu\text{m}$ 、 $0.001\mu\text{m}$  あたりの超微小粒子、 $10\mu\text{m}$  以上の粗大粒子の沈着率が低い。微小粒子に関して粒径の大きさや呼吸器系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見つけるのは容易ではない。

また、蓄積モード粒子は肺内に沈着しにくいものの、一部の粒子は肺内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ことにも留意が必要である。

#### 7.1.3.2. 体内動態

呼吸器系に一旦、沈着した粒子は呼吸器系がもつ種々の機構により移行、除去される。鼻汁、粘液線毛輸送、咳、くしゃみ、肺泡マクロファージ等による貪食と貪食後の移動、嚥下、痰、上皮細胞による飲作用、間質への浸透、血流中への移行、リンパ系への移行等の機構がある。また、粒子の物理・化学的性状（溶解性、形状、粒径等）や生物学的特性（タンパク等との結合、細胞内での動態等）も動態には影響を与える。

肺泡に沈着した粒子は、貪食と輸送という二つの機構により除去されるが、肺泡領域に沈着した粒子は一般に、粘液線毛輸送で排出される気道に沈着した粒子より保持時間が長い。

## 7.2. 適切なカットポイント

粒子状物質は、形状や粒径も多様であり、また発生起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及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及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、空気力学径で  $10\mu\text{m}$ 以下の粒子状物質 ( $\text{PM}_{10}$ )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。

### 7.2.1. 物理的・化学的要素からの検討

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、核形成モードの粒子は、凝集により速やかに蓄積モードの粒子に移行するが、 $0.1\sim 1.0\mu\text{m}$ 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( $1\mu\text{m}\sim 3\mu\text{m}$ )、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)。

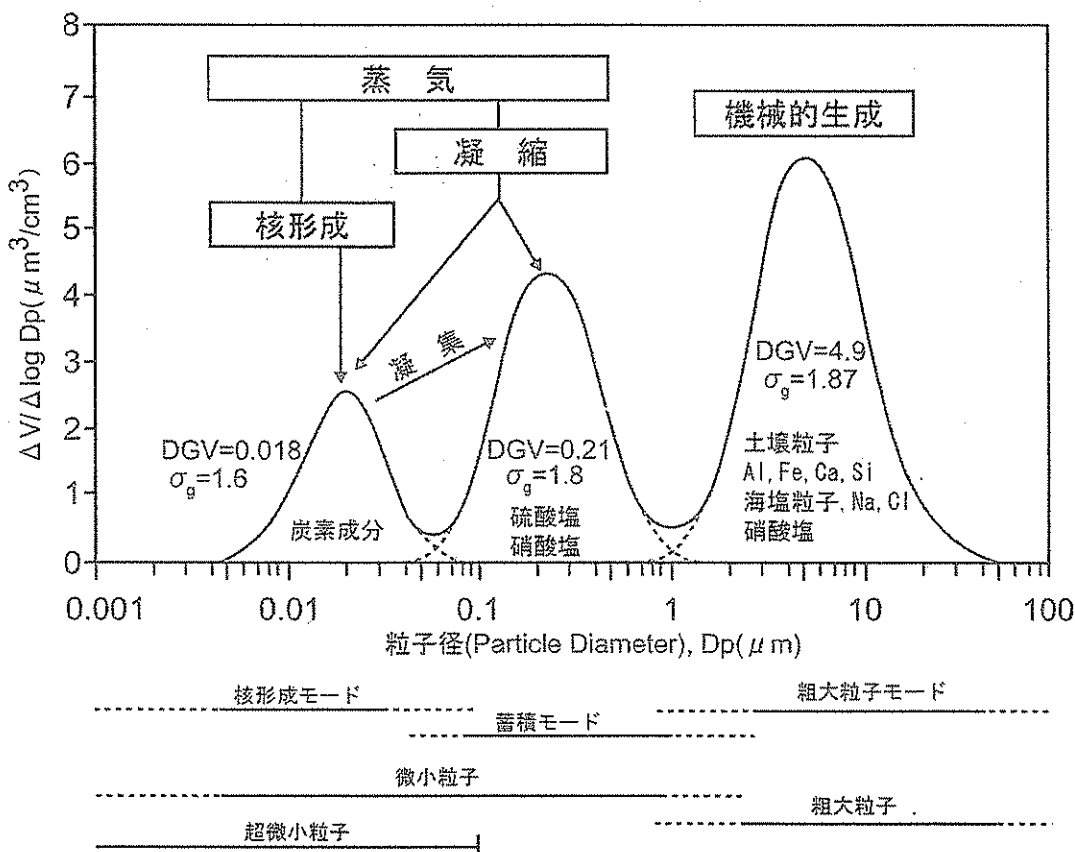


図 7.2.1 粒子の粒径分布及び代表的な組成例

粗大粒子は地殻物質及び有機堆積物等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、環境やヒト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。

## 7.2.2. 曝露データからの検討

### 7.2.2.1. 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<sub>2.5</sub>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<sub>2.5</sub>の主要成分はEC、OC、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>である。一般環境大気測定局ではSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>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NO<sub>3</sub><sup>-</sup>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SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>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<sub>2.5</sub>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<sub>2.5</sub>の影響はあるものの、SPMに比べ、その影響は小さい。

### 7.2.2.2. 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、屋外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<sub>2.5</sub>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<sub>2.5</sub>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、沿道等屋外濃度が高い場合には