

国立環境研究所特別研究報告

Report of Special Research from the National Institute for Environmental Studies, Japan

SR - 64 - 2005

中国における都市大気汚染による健康影響と予防対策  
に関する国際共同研究  
(特別研究)

International cooperative research on health effects of  
urban air pollution and its preventive measures in China

平成12～16年度

FY 2000～2004

NIES



独立行政法人 国立環境研究所

NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES

<http://www.nies.go.jp/>

中国における都市大気汚染による健康影響と予防対策  
に関する国際共同研究  
(特別研究)

International cooperative research on health effects of  
urban air pollution and its preventive measures in China

平成12～16年度

FY 2000～2004

**特別研究「中国における都市大気汚染による健康影響と予防対策に関する国際共同研究」**

**（期間 平成12～16年度）**

**特別研究責任者：田村憲治**

**特別研究報告書編集担当：田村憲治**

## 序

本報告書は、平成12年度から16年度の5年間にわたって実施した特別研究「中国における都市大気汚染による健康影響と予防対策に関する国際共同研究」の成果をまとめたものです。

国立環境研究所では中国をフィールドとして、大気エアロゾル、黄砂、酸性雨、長江流域の環境管理などさまざまな課題のプロジェクトを実施してきましたが、健康影響に焦点を当てた特別研究は「石炭燃焼に伴う大気汚染による健康影響と疾病予防に関する研究」(2000年SR-33)以来です。

前の研究では、石炭燃焼に伴う屋内フッ素汚染による健康影響を対象としましたが、今回の研究は急速な近代化とともに深刻化している中国の大都市における大気汚染の現状の把握と健康影響を対象としました。

暖房のための石炭燃焼に、自動車や工場から大気汚染が加わっている中国東北地方の瀋陽市、撫順市、鉄嶺市をフィールドとして、特に大気中微小粒子(PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub>)濃度と児童への肺機能影響に焦点を当てて調査研究を行いました。

本研究は最終年度まで現地の調査を継続していたため、この報告書は中間的な報告となっていますが、これまでの研究の結果、石炭燃焼による微小粒子の高濃度汚染は、室内濃度や住民の個人曝露濃度も高くしている実態を明らかにしました。また、粒子中のPAHとNPAH濃度や重金属成分の分析から、その発生源も考察しています。

このような状況の大気汚染による健康影響について、児童を対象に調査した結果、全体的な傾向として暖房期にわずかな肺呼吸機能値の低下が観察されましたが、幸い既に深刻な健康影響が出ているという結果ではありませんでした。

中国東北地方では依然として石炭燃焼による暖房が継続する上に、今後一層自動車排ガス汚染が加わるため、適切な環境対応が求められています。本報告がその一助になれば幸いです。

最後に、本研究遂行に当たって尽力頂いた所外の研究者、中国側研究スタッフ、各調査都市の協力者に感謝する次第です。

平成17年12月

独立行政法人 国立環境研究所  
理事長 大塚 柳太郎

## 目次

1 研究の目的と経緯	1
1.1 研究の目的	1
1.2 研究の構成	1
1.2.1 研究課題	1
1.2.2 対象都市の概要	1
2 研究の成果	4
2.1 都市大気中粒子濃度の季節変動と粒径分布	4
2.1.1 目的	4
2.1.2 方法	4
2.1.3 結果	5
2.1.4 撫順市の大気粉じん中の粒径別元素組成	7
2.1.5 まとめ	8
2.2 3都市住民の生活環境におけるPM曝露	8
2.2.1 目的	8
2.2.2 対象と方法	8
2.2.3 結果	9
2.2.4 考察(3都市の住民曝露調査結果から)	12
2.3 3都市の大気粉じん中多環芳香族炭化水素及びニトロ多環芳香族炭化水素	13
2.3.1 目的	13
2.3.2 実験方法	14
2.3.3 結果及び考察	15
2.4 都市大気汚染の児童の呼吸器系に対する影響	19
2.4.1 中国東北地方における冬季の大気汚染が児童の肺機能に及ぼす影響	19
2.4.2 呼吸器症状調査票による慢性影響の評価	25
2.5 まとめ(対策への提言)	28
引用文献	30
[資料]	
I 研究の組織と研究課題の構成	33
1 研究の組織	33
2 研究課題と担当者(*客員研究員)	33
II 研究成果発表一覧	34
1 誌上発表	34
2 口頭発表	35

# 1 研究の目的と経緯

## 1.1 研究の目的

中国では近年急速に工業化がすすんでいるが、工場から排出される粉じんの脱硫や除塵への対応は現状ではまだ進んでいない。大都市においては急速な自動車普及に伴って、都市沿道の大気汚染も深刻となり、大気汚染は中国の環境問題の中で非常に大きな位置を占めるようになった。さらに、中国東北地方の大都市では、冬季の都市暖房を石炭燃焼に頼るため大気中浮遊粒子濃度や二酸化硫黄濃度は我が国の環境基準をしばしば大きく超える状況となっている。

大気中の浮遊粒子にはさまざまな有害成分が含まれるが、特に微小な粒子には有害成分が多く含まれ、肺への沈着率も高い。さらに微小粒子濃度と日々の呼吸器疾患や心疾患の死亡率との関連が疫学的に明らかになり、大気環境の管理においても、浮遊粒子に対する規制は、総浮遊粉じん(TSP)濃度から、浮遊粒子状物質(SPM)あるいはPM<sub>10</sub>濃度、さらにPM<sub>2.5</sub>濃度へと、より微小な粒子濃度に注目した管理へと推移している。

中国でも、90年代の後半からPM<sub>10</sub>濃度の環境基準を追加して大都市での観測を開始してきたが、多くの都市では微小粒子濃度の監視体制は十分とは言えず、また現状の大気汚染による健康影響についてもほとんど明らかになっていない。

そこで、我々は東北地方の大都市である瀋陽市や撫順市などフィールドとして、中国医科大学の研究者や各都市の疾病予防控制中心のスタッフと共同で大気汚染の現状を把握し、特に大気中微小粒子の児童の肺機能影響に焦点を当てて調査研究を行うこととした。

## 1.2 研究の構成

### 1.2.1 研究課題

具体的な研究課題と個々の概要は、以下の通りである。

#### I. 都市大気汚染濃度の評価—大気中微小粒子濃度と粒径分布—

冬季に都市暖房を行う中国東北地方の対象3都市内に大気汚染高濃度、中濃度、低濃度の3地域を選定し、大気中粉じん(PM<sub>10</sub>、PM<sub>2.5</sub>)、1年間に4期(20回程程度)のサンプリングを行い年間の大気汚染実態を把握する。

#### II. 対象都市住民の大気汚染個人曝露濃度に関する研究

一般の都市住民の生活環境における大気汚染曝露を把握するため、3地域住民各10人(非喫煙者)を対象として暖房期と非暖房期に各7日間、住宅内外のPM<sub>10</sub>、PM<sub>2.5</sub>、二酸化硫黄(SO<sub>2</sub>)、二酸化窒素(NO<sub>2</sub>)濃度を測定するとともに、対象者に個人サンプラーを携帯させて個人曝露濃度を測定する。これらの濃度と環境濃度との関連を検討する。

#### III. 粉じん中有害成分の特徴と健康影響に関する研究

各都市で捕集する粉じん中のPAH(多環芳香族炭化水素)、NPAH(ニトロ多環芳香族炭化水素)を分析し、日本などとの化合物の種類、濃度、組成、季節変動、粒度分布を比較して特徴を明確にする。

#### IV. 都市大気汚染の児童の呼吸器系に対する影響に関する研究

##### 1) スパイロメーターによる肺機能変化の評価

3地域の児童約100名ずつに対して暖房期(11月初～3月末)をはさんで年間4回にわたり、スパイロメーターを用いて同一児童の1秒率(FEV<sub>1</sub>)などを継続的に測定することにより、都市暖房に起因する大気汚染濃度の上昇に対応した閉塞性換気障害の有無をとらえる。

##### 2) 質問票調査による慢性影響評価

3地域の小学校の児童約500名ずつを対象に、標準化された質問調査票(ATSD-DLD(The American Thoracic Society, the Division of Lung Diseases)-78版にISAAC(The International Study of Asthma and Allergies in Childhood)版の項目を追加)により大気汚染による慢性影響を把握する。

以上の4課題の成果をまとめて、都市大気汚染による健康影響の予防に寄与する提言を行う、というものであった。

### 1.2.2 対象都市の概要

対象都市は、いずれも冬季に都市暖房を行う東北地方(遼寧省)の瀋陽市、撫順市、鉄嶺市の3都市とした



図1 調査対象の3都市

(図1)。瀋陽市は、人口690万人、都市部人口489万人の省都である。北緯42度で日本では小樽とほぼ同じで、黄海から200kmほど内陸に位置する。年平均気温は摂氏6～8度で、夏季(7月)には23～25度となるが、冬季(1月)の平均気温は-12～-14度となる。中国東北地方の重化学工業都市として有名であったが、近年工場地帯は閉鎖が続いた。現在市内では工場は主要な大気汚染源ではないが、自動車交通量が急増し、新たな汚染源となっている。

撫順市は、瀋陽市の東側に隣接する都市。人口226万人、都市部人口139万人で、対象とした望花区には石油化学などの工場地帯があり、ここからの煤煙による大気汚染が特徴である。

鉄嶺市は、瀋陽市の北側に隣接する地方都市である。全市の人口は299万人であるが、都市部人口は43万人で、冬季の暖房以外には特に大きな大気汚染発生源はない(人口はいずれも2002年)。

研究期間は、平成12年度から16年度の5年間であるが、初年度は中国側の共同研究体制確立、調査方法や機器の整備に充て、現地における調査は平成13年度から開始した。

現地調査の初年度(平成13年度)と平成16年度は瀋陽市、平成14年度は撫順市、平成15年度は鉄嶺市において

測定・調査を実施した。調査時期は、暖房期をはずさんだ4期としたため、最終年度である平成16年度の瀋陽市の最後の調査が平成17年6月まで継続することとなり、最終年度の調査結果およびこれと平成13年度の結果とを比較した評価は本報告書では扱えなかった。

各都市内の調査対象地域は、各都市の疾病予防控制中心の意見や交通量、工場の配置などを考慮して、その都市内での一般環境大気レベルが「高濃度」、「中濃度」、「低濃度」と想定される3地域を調査対象に設定した。

中国でも主要都市では大気汚染の常時測定を行っているが、あいにく日平均濃度が公表されておらず、また測定地点も少ないため、調査対象地域の大気中浮遊粒子濃度は、季節ごとに本調査研究の中で実測することとした。粒子は粒径によって有害な成分や呼吸器への沈着部位や影響が異なるため、粒径別の捕集機器を日本から持ち込んで測定した。さらに、まだ日本でも測定例が少ないが、住民の生活環境での微小粒子曝露状況を把握するために、住宅内外の測定と住民の個人曝露調査も同時に実施した。

SO<sub>2</sub>とNO<sub>2</sub>濃度はパッシブサンプラーによる簡易測定を試みたが、測定感度と低温などにより安定した測定値が得られなかったため、結果から除かざるを得なかった。

児童の肺機能については、各地域の小学校の協力を得て、暖房期をはさんで同じ児童に4回の測定を行い、大気汚染濃度と肺機能との関連を検討した。

1) 瀋陽市（平成13年度，平成16年度対象都市）



2) 撫順市（平成14年度対象都市）



3) 鉄嶺市（平成15年度対象都市）

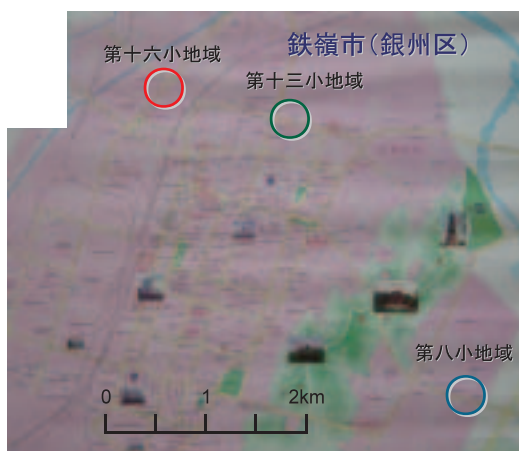


図2 対象都市と市内3カ所の調査地域  
都市内の大気汚染は、○赤丸（汚染地域）>○緑丸（中等度）>○青丸（低汚染地域）の地域を設定。



## 2 研究の成果

### 2.1 都市大気中粒子濃度の季節変動と粒径分布

#### 2.1.1 目的

大気中浮遊粒子（PM）の有害性については、粒子の大きさ（空気動学的粒径）の小さなものは呼吸器の奥深く肺胞域まで到達し、沈着する割合が高く、また有害性の高い成分の割合が高いと考えられることなどから、総浮遊粉じん（TSP）濃度からSPM、さらにPM<sub>2.5</sub>へと、より微小な粒子濃度による環境管理の方向に進んでいる。中国においても、大気中浮遊粒子の環境基準として、「総懸浮顆粒物」（総浮遊粒子状物質、TSP）濃度が用いられてきたが、1996年からPM<sub>10</sub>（空気動学的粒径が10マイクロメータ以下の粒子）濃度の基準も導入され、現在では大都市ではほとんどPM<sub>10</sub>濃度による管理が行われている。

この研究で対象としている3都市は冬季の冷え込みが厳しい中国東北地方にあるため、いずれも11月初めから3月末まで、石炭を燃焼させて加熱した熱水あるいは蒸気を住宅団地に供給する集中暖房を行っている（図3）。そのため、都市ごとの特徴や都市内の地域による大気状況の違いはあるものの、暖房期には都市内に点在するボイラー施設の大きな煙突から排出されるばい煙による高濃度の大気汚染が発生している。

この節では、まず対象とした各都市の3対象地域内の測定地点のPM濃度を定期的に測定した結果を示し、そのあとに粒子に含まれる有害成分として注目される多環芳香族炭化水素（PAH）とニトロ多環芳香族炭化水素（NPAH）の粒径別濃度を検討する基礎調査結果について報告する。

#### 2.1.2 方法

対象都市において、市内で大気汚染レベルが異なると思われる3地域を選定し、それぞれの地域内の1小学校に、ローボリュームエアサンプラー・アンダーセントタイプ（LVA、柴田科学 AN-200型、230V仕様）を1台ずつ設置し、4期の同時測定を行った（図4）。このサンプラーは、多段の衝突板によって、上段から順に11 $\mu$ m以上、7 $\mu$ m以上、4.7 $\mu$ m以上、3.3 $\mu$ m以上、2.1 $\mu$ m以上、1.1 $\mu$ m以上、0.65 $\mu$ m以上、0.43 $\mu$ m以上（いずれも50%のカットオフ径）の粒子を捕集し、最後に0.43 $\mu$ m以下をバックアップフィルターで捕集する仕組みになっている。詳細な粒径分布をみるためには、この粒径別濃度を用いたが、その他の比較やPAH濃度、NPAH濃度では、全体の濃度をTSP、上の2段を除いた濃度をPM<sub>7</sub>、上の5段を除いた濃度をPM<sub>2.1</sub>とした。なお、PM<sub>7</sub>は日本のSPM濃度にほぼ相当し、PM<sub>2.1</sub>はPM<sub>2.5</sub>とほぼ同じ濃度となる。

捕集用フィルターには、ガラス繊維にテフロン加工をしたもの（Pallflex TX40HI20）と後の分析用に適した石英繊維フィルターを1回おきに用いた。捕集前後のフィルターの秤量は、恒温恒湿（室温23℃、相対湿度50%）の秤量室に24時間以上開放してから行った。秤量には最小表示単位0.1 $\mu$ gの電子天秤（Mettler Toledo UMT2）を使用し、マイクログラム単位で再現性のある値を採用した。

測定期間は表1に示すように、瀋陽市、撫順市、鉄嶺市の順に1年ずつ調査対象都市を変えた。当初は7日



図3 住宅街に点在する集中暖房用の石炭燃焼施設の煙突（矢印）（瀋陽市のテレビ塔から）



図4 小学校に設置したLVAサンプラー

表1 対象都市における測定期間

	瀋陽市		撫順市		鉄嶺市		
	測定期間	測定単位 (回数)	測定期間	測定単位 (回数)	測定期間	測定単位 (回数)	
第1期 (非暖房期)	開始	2001/7/9	7日	2002/7/11	2日	2003/7/15	2日
	終了	2001/8/6	(4回)	2002/7/25	(7回)	2003/7/29	(7回)
第2期 (非暖房期*)	開始	2001/10/15	7日	2002/10/10	2日	2003/10/15	2日
	終了	2001/11/26	(6回)	2002/10/24	(7回)	2003/10/29	(7回)
第3期 (暖房期)	開始	2002/1/7	7日	2002/12/3	2日	2003/12/26	2日
	終了	2002/2/4	(4回)	2002/12/17	(7回)	2004/1/9	(7回)
第4期 (暖房期)	開始	2002/4/15	2日	2003/4/8	2日	2004/5/10	2日
	終了	2002/4/27	(6回)	2003/4/22	(7回)	2004/5/24	(7回)

\*瀋陽市の第2期は後半から暖房期に入る

間単位の測定としたが、暖房期になるとサンプラーの目詰まりが起これり、分級特性が保証されなくなったため、瀋陽市の4期目以降は2日間単位の測定とし、2年度目の撫順市からは1期に2日単位で7回(14日間)の測定とした。また、瀋陽市の2期目は都市暖房が開始される11月初旬をはさんで6回のサンプリングを実施したため、前半と後半の3回ずつ測定で分けて整理した。

### 2.1.3 結果

#### (1) 瀋陽市における測定結果

測定回ごとに3段に区分したLVAによる濃度を図5

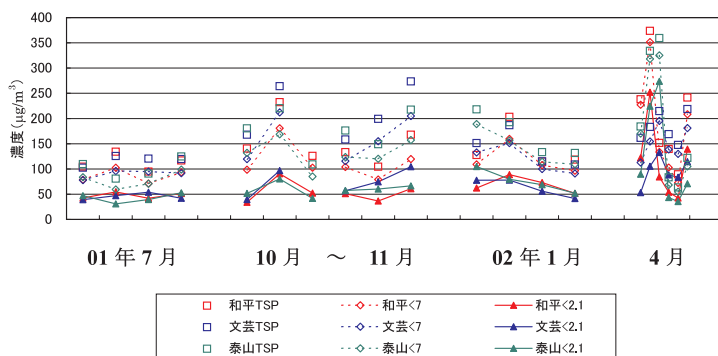


図5 瀋陽市内3地点における粒径別PM濃度

に示す。非暖房期の7月は、どの粒径濃度も他の測定時期より低いが、PM<sub>2.5</sub>の7日間平均濃度がどの地域も50 µg/m<sup>3</sup>に近く、SPMにほぼ相当するPM<sub>10</sub>濃度も50~100 µg/m<sup>3</sup>であった。地域別に見ると大気汚染が比較的軽度な地域とした泰山地域が他の2地域よりわずかに低い傾向であったが、和平地域と文芸地域には違いは見られなかった。

10月の測定期は、まだ都市全体での暖房は始まっていなかったが、部分的には暖房が開始されており、7月期よりは明らかに高濃度になり、地域間の差は全くなくなっていた。11月の測定期は測定日による違いはあるものの1月の測定濃度とほぼ同じレベルであり、地域ごとの傾向は見られなかった。第4期の高濃度は、測定期前半と後半では非常に濃度が違っており、前半は暖房期以上の高濃度となっていた。この高濃度の原因として、4月17日、18日と日本で黄砂の飛来が観測されていることから、測定期前半の高濃度は黄砂の通過によるものと考えられた。

#### (2) 撫順市における測定結果

撫順市における測定結果を瀋陽市と同様に図6に示す。非暖房期である7月の測定期においても48時間平均濃度でPM<sub>2.5</sub>濃度が100 µg/m<sup>3</sup>を超えることがあった。10月の濃度レベルは7月と変わらず、撫順市においてはこの時期の暖房が開始されていないことを示した。

7月、10月では、地域的には工場地域に最も近い蓋平地域がわずかに他の2地域より高濃度であり、光明地域が低濃度であった。暖房期である12月の測定結果では、PM<sub>2.5</sub>濃度が100~150 µg/m<sup>3</sup>、PM<sub>10</sub>濃度は100~300 µg/m<sup>3</sup>のレベルとなり、瀋陽市に比べ高濃度で、地域間の濃度差もなくなっていた。

また、前年の瀋陽市と同様、暖房期後の4月の測定期間の途中の測定日に、TSP、PM<sub>10</sub>濃度

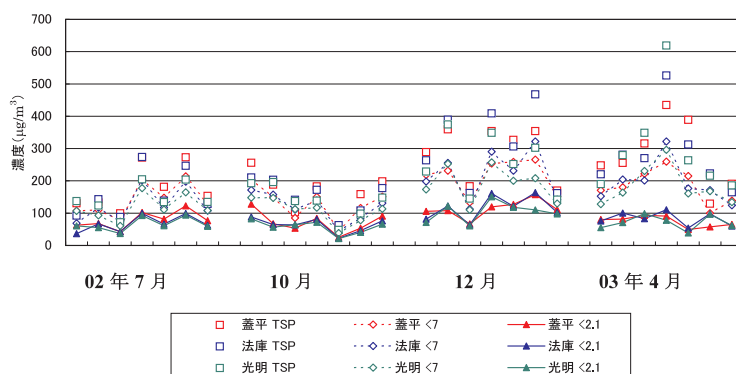


図6 撫順市内3地点における粒径別PM濃度

が非常に高濃度になった時のあったことが確認された。このときにはPM<sub>2.1</sub>濃度の上昇は前年の7月レベルと大きな差が無いが、粗大粒子濃度が短期間に大きく上昇していたことが分かる。この時期にちょうど上空を黄砂が通過したためであることが衛星写真(図7)でもとらえられており、この濃度上昇が、1年前の瀋陽の測定結果と同様、黄砂の影響であることが確認された。

次に、早狩進氏の作図ソフト (Andersen Analyzer) を用いて粒度分布図を作成した(図8)。ここでは各測定期の粒径別の測定値を平均し、横軸に対数目盛の粒径を取り、縦軸に濃度の指標を示している。各測定期とも2μmを谷とする二峰性の分布を示しており、暖房期にはほとんどそのままのパターンで濃度が上昇していた。また、4月期には、粒径の大きな黄砂が加わったために以上の粗大粒子だけが大幅に増加したことが分かる。

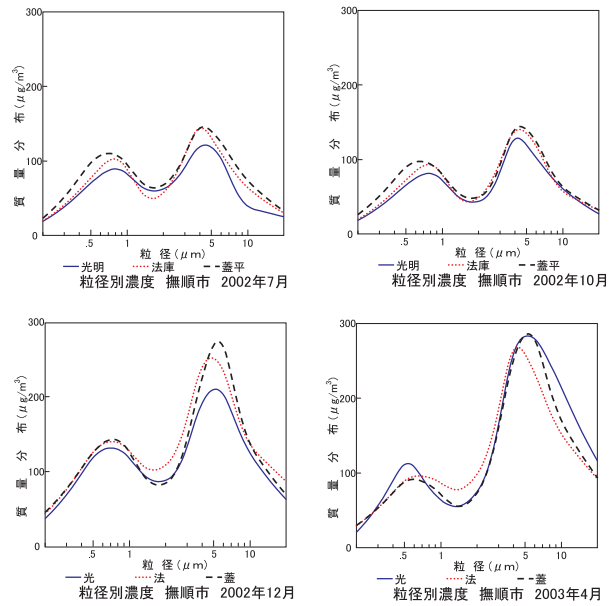


図8 撫順市内3地点における各測定期の粒度分布

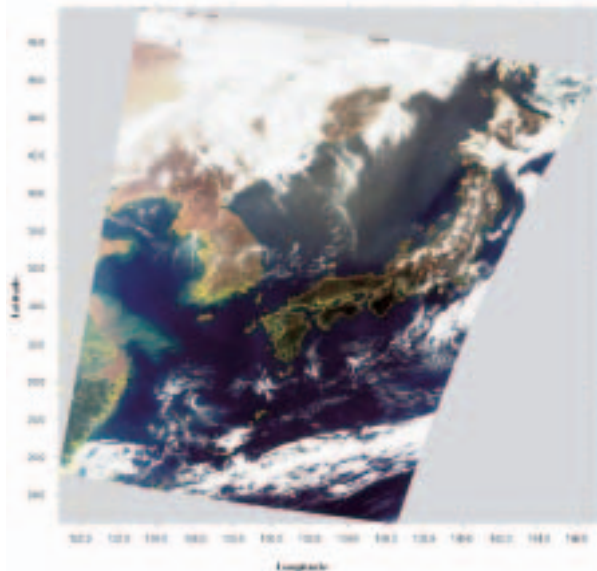


図7 2003年4月16日午前11時頃 みどりII GLI (Global Imager) 画像

日本海全域にわたってうっすら黄色くなっているのが中国大陸から流れてきた黄砂。宇宙航空研究開発機構 (JAXA) 提供

### (3) 鉄嶺市における測定結果

鉄嶺市における測定結果を図9に示す。非暖房期の7月、10月の濃度レベルは瀋陽市とほぼ同じレベルで、PM<sub>2.1</sub>濃度が50 μg/m<sup>3</sup>程度、PM<sub>7</sub>濃度が50~100 μg/m<sup>3</sup>であった。暖房期の12月にはいずれの粒径も濃度が上昇し、このときは撫順市の暖房期とほぼ同程度のPM<sub>2.1</sub>濃度が50~150 μg/m<sup>3</sup>、PM<sub>7</sub>濃度は100~300 μg/m<sup>3</sup>のレベルであった。5月にはPM<sub>7</sub>濃度、PM<sub>2.1</sub>濃度とも4月の測定値より低かった。鉄嶺市は

市内に大きな発生源がないため、非暖房期には郊外地域の第八小地域が若干低い傾向が見られた。暖房期には第十六小地域のPM<sub>2.1</sub>濃度が他の2地域よりかなり高い傾向が見られた。

撫順市と同様に粒度分布図を作成して比較すると、非暖房期には撫順市と同様に鉄嶺暖房期には2μmを谷とする二峰性の分布を示していたが、暖房期の12月には地域により異なる複雑な分布を示し、4月には微小粒子側の山が非常に低い分布であった(図10)。12月については、3地域とも2~3μmのところにもう一つの高濃度が現れ、特に6回目の測定時には高濃度となった。この傾向は12月期のどの地域でも共通に見られた傾向であり、暖房用煙突から排出される粒子径が他の2都市と異なること、調理や加熱などの沿道の小規模な発生源の影響などが考えられるが、原因は確認できなかった。

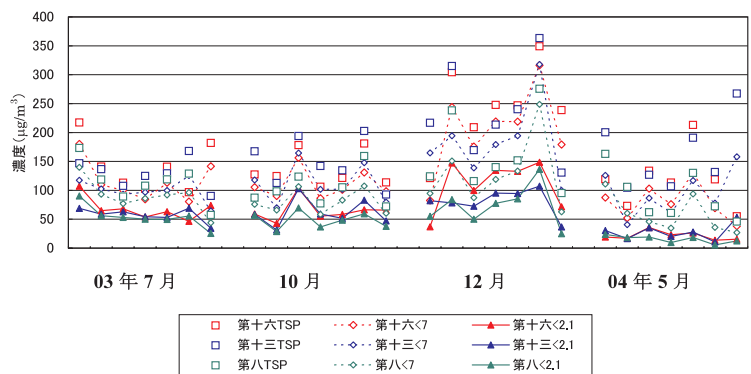


図9 鉄嶺市内3地点における粒径別PM濃度

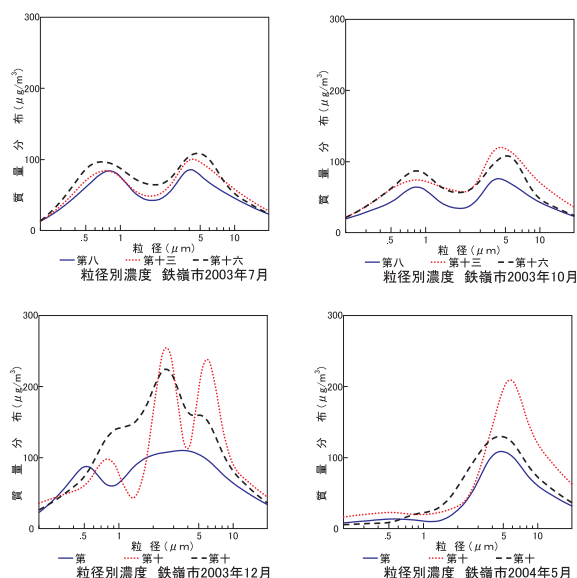


図10 鉄嶺市内3地点における各測定期の粒度分布

## 2.1.4 撫順市の大気粉じん中の粒径別元素組成

### (1) 目的と方法

撫順市の測定結果では、非暖房期にもPMが高濃度となっており、工場からのばい煙の影響が示唆された。そこで、蓋平、法庫、光明の3地点について、粗大粒子側と微小粒子側に分けて粒子中の各元素の季節（夏季と冬季）による濃度分布比較を行った。

アンダーセンサンプラー捕集試料の2分の1を使い、酸分解（硝酸+過塩素酸+フッ化水素酸）を行ったのち、ICP/AES（プラズマ発光分光分析装置）法により、その分解試料中の諸元素を測定した。使用した装置は、ICAP750（Nippon Jarrell-Ash 社製、日本）とICP 61E-Trace（Thermo Jarrell-Ash 社製、米国）の両方で、並行測定を行った。なお、結果の評価には各元素のうち、夏季と冬季両方で分析定量できた元素のみを対象とするため、地点によって元素数にばらつきがある。

### (2) 結果と考察

#### 1) 大気粉じん中の粒径別元素組成

粗大粒子側 (>2.1 μm) と微小粒子側 (<2.1 μm) に区分し、その化学組成を比較した結果を図11に示す。粗大粒子側の夏季と冬季の元素分布は、3地点とも相関が良かった。各元素が1本の直線に近ければ近いほど、両季を通して元素組成は均一であり、発生源も複雑でないことを意味し、夏季：冬季の傾きが1の直線から離れる分だけ、その季節に多く同一組成の大気粉じんが大気中

に浮遊していることになる。

3地点全体を通じて、主成分はFe、Ca、Mg等の土壌や石炭燃焼煤であり、Cu、Pb、V等の微量成分は主成分濃度の約100分の1のオーダーで存在していた。夏季～冬季の等濃度直線（各図の対角線）から、蓋平、法庫、光明とも、夏と冬の比が5～10倍冬季側に持ち上がっている。つまり、冬季の粗大粒子側の寄与がそれだけ高いことを示している。直線からのずれが小さいか大きいかという観点から見ると、3地点の中で、法庫が比較的ずれが大きかった。これはZn、Pbが、夏季に比べ、冬季の捕集粒子に多く存在していたことを示すものであり、夏季に比べ5～10倍多くなっていることがわかる。そして、法庫は、他2地点より発生源が単純でなく、このPb、Znが特徴的な発生源寄与が加わっていると推定される。ただし、Pb、Znがより多く発生する冬季の発生源が何かまでは特定できない。

微小粒子側についても同じような観点から見てみると、工場地帯から最も離れた光明地域の直線性が非常に良かった。粗大粒子側の直線性の良さも考慮し、光明地域は大気粉じん全般にわたって、年中同じ発生源（おそらく単一）から発生した粉じんによって構成されているものと考えられた。蓋平と法庫は、Fe、S、K、(Zn)が

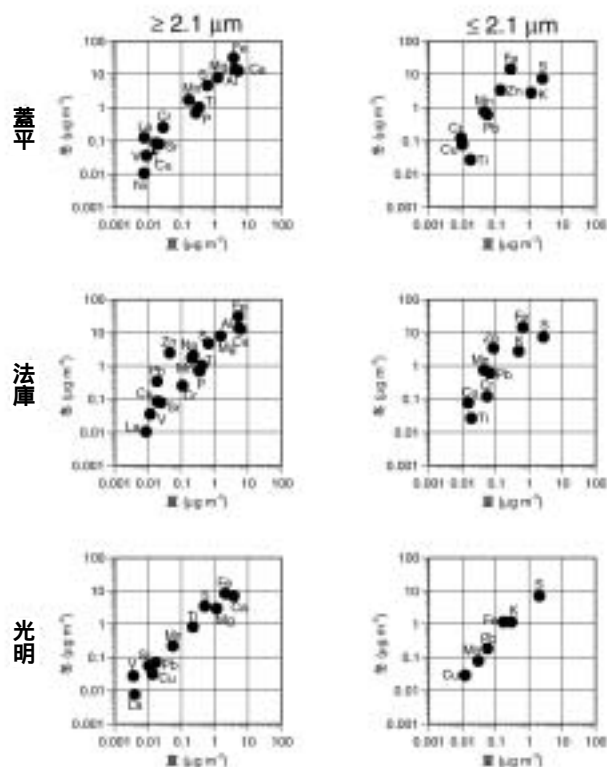


図11 粗大粒子と微小粒子別にみた撫順市3地域の夏～冬の粒子中元素濃度

主要な成分で Mn, Pb, Zn が中程度, Cu, Ti, Cr が微量成分となる濃度順がだいたい同じであったが、直線性が悪いことから、微小粒子側を構成する粒子の発生源寄与は夏季と冬季では同じでないこと、また、Zn, Fe, Mn などが高くなるような発生源が存在するものと考えられた。

微小粒子側の大きな特徴は、硫酸塩を形成していると想像できる S がいずれも飛び抜けて濃度が高いことであり、石炭燃焼の寄与が高いことを示した。S の季節差をみると、冬季：夏季は粗大粒子群中ではおよそ 6：1 であり、微小粒子群中ではおよそ 2.5：1 であった。濃度としては微小粒子側に多く存在するが、季節差は粗大粒子側に大きく寄与していることがわかる。仮に S を全て石炭燃焼起源とすると、2つの起源の燃焼系 S が混在していると推察される。年間を通じて一定に排出される硫黄分があり、これは燃焼効率のよい大型燃焼施設で、硫黄分は微小粒子に主に存在するはずである。もう一つが燃焼効率の悪い小型燃焼施設（例えば旧式の集中暖房用ボイラーや家庭用のボイラーなどから発生する硫黄分は粗大な未燃焼粒子を多く含む排気系）であるとすれば、冬季に未燃分が多く含まれる粗大粒子側の比率が高くなる理由として納得できる。同じように、Fe についてみると、粗大粒子側および微小粒子側を問わず、冬季と夏季の比はだいたい 5～20 の範囲に入った。他の重金属類は、元素によって冬季と夏季の比が 10～50 前後で、粗大粒子と微小粒子では大きな違いは見られなかった。なお、今後、未燃炭素分の粒径分布も多元素分布と併せて追加調査することができれば、大ボイラーか小型ボイラーかなど発生源状況を知ることが期待される。

#### 2.1.5 まとめ

対象とした瀋陽市、撫順市、鉄嶺市では、非暖房期においてもいずれの測定地点で PM<sub>2.5</sub>濃度が 50 μg/m<sup>3</sup>程度以上と高い濃度であった。都市の中で大気汚染レベルが異なると想定して設定した 3 地域では、夏季（7 月）にはわずかに PM 濃度の差が見られたが、暖房期には全地域の PM 濃度が上昇し、地域間の違いは全く見られなくなった。

また、4 月の非暖房期の測定期間中、瀋陽市や撫順市では、粗大粒径濃度が特に高くなる黄砂の飛散が確認された。

撫順市においては、7 月においても 100 μg/m<sup>3</sup>近い

PM<sub>2.5</sub>濃度が観測されたため、捕集粒子の元素分析を行った結果、工場地帯から排出される煤じんの影響が示唆された。

## 2.2 3 都市住民の生活環境における PM 曝露

### 2.2.1 目的

中国東北地方の都市の一般的な住宅は、6 階から 9 階建ての団地形式である。各戸にベランダがあるが、冬季の厳しい冷え込みに対応するために硝子窓で覆ったサンルーム形式となっているところが多く、当然冬季には窓を堅く閉め切った生活をしている。

調査対象の 3 都市（9 地域）では、いずれの地域でも、冬の暖房期の環境大気中に高濃度の PM が観察されたが、そこで暮らしている住民の曝露濃度はどれくらいなのであるか。

そこで、この問いに答えるために、家事を主にしている人を対象に、つねに身近にサンプラーを携帯してもらい PM の個人曝露濃度を測定し、同時に住宅の外気と室内（居間）の大気中の PM（PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub>）濃度を測定し、屋外濃度と室内濃度、そして個人曝露濃度相互の関連について検討した。

### 2.2.2 対象と方法

対象者は各都市の調査地域の住人で、粒径別濃度を測定している小学校から概ね 500 m 以内の住宅に住み、本人及び同居家族が喫煙者でないこと、連続 7 日間の調査期間中は毎日午前中のサンプル交換に立ち会えることを条件として、3 都市 3 地域の住民組合に 10 名ずつの協力者の選定を依頼した。なお、鉄嶺市の第八地域以外の地域は、地域の集中暖房以外の暖房は行っておらず、通常は室内での PM 発生はないと考えられる。

対象者には測定開始前に国立環境研究所の調査スタッフと調査実施を担当する各都市の疾病予防控制中心スタッフが説明会を開いて調査内容の説明と協力依頼を行い、同意が得られた者を対象とした。

対象家庭には携帯用、屋外測定用、室内測定用の計 3 台の PM サンプラーを持ち込んだ。PM サンプラーは、PM を捕集するフィルターホルダ（柴田科学 ATPS-20H）を小型吸引ポンプ（携帯用は柴田科学 MP-Σ300 あるいは MP-Σ3、屋外、室内設置用は MP-Σ300）に接続して毎分 1.50 リットルの流量で吸引した。屋外と室内のポンプは家庭用電源で稼働させ、携帯用は電池で

稼働させた（図12）。

携帯用の新型ポンプ（Σ3）は、初年度の瀋陽市での調査では準備できなかったため、瀋陽市では携帯用にもΣ300を使用した。また、Σ3は専用の外部充電電池を併用したため、24時間ごとにフィルターホルダの交換に訪れる調査スタッフが電池交換も行ったが、Σ300は12時間ごとに内蔵電池を交換する必要があるため、充電電池の充電と夜間の充電電池交換を対象者に依頼した。

フィルターホルダは、毎分1.50リットルで吸引した時に、空気動力学的な粒径が10ミクロン以上の粒子をグリーン塗布したステンレス板で衝突捕集し、下段のフィルター上に2.5ミクロン以上（10ミクロン以下）の粒子を同様に衝突捕集し、2.5ミクロン以下の粒子をバックアップフィルターで過捕集する仕組みになっている。ポンプの吸引速度の設定は、ミニポンプ内の校正された流量計により10ml単位で設定ができるようになっているが、できるだけ機差を除くため、1つのテーパ管流量計で正確に1.50リットルとなる表示流量を求め、その流量に設定した。ポンプには定流量装置が付いているので、測定途中での流量調整をする必要はないが、終了時にポンプに記憶された測定時間、吸引量、平均吸引速度を記録して、停止など測定中に異常のあったサンプルを除外した。

捕集フィルターにはTX40HI20を使用した。捕集前後のフィルターの秤量は、室温23℃、相対湿度50%の秤量室に24時間以上開放し、秤量には最小表示単位0.1μgの電子天秤（Mettler Toledo UM3, UMX2）を使用した。わずかではあるが静電気の影響などを完全に排除できないので2回以上秤量し、マイクログラム単位で再現性のある値を採用した。

調査は、毎年他の調査と合わせて対象とする1都市ずつ実施した。対象者ごとに連続する7日間を1期として、都市暖房で屋外大気汚染濃度が高くなっている冬季と、非暖房期の2期に実施した。1日（概ね24時間）ごとにPM捕集フィルターを交換して、日平均濃度を求めた。各都市の3地域の測定は一斉に行うことが望ましいが、測定器材数などの制約から同時には10家屋（人）から15家屋（人）ずつ実施した。



図12 個人サンプラーを用いたPM曝露調査と一般的な集合住宅

### 2.2.3 結果

#### （1）調査実施対象数と期間

各都市の地域ごとの対象数と調査時期を表2に示す。

瀋陽市では、暖房期の調査で用いたポンプの防音が不十分で対象者からの苦情があったため、非暖房期調査では家屋内外のみの調査とした。翌年の撫順市の調査からは、携帯用に新しいΣ3ポンプと防音効果の高いポーチを用いたため、2期とも個人曝露調査が実施できた。

表2 個人曝露調査調査対象数と調査期間

都 市	地 域	対象数	暖房期調査		非暖房期調査		
			開始	終了	対象数 (継続)	開始	終了
瀋陽市 2002年	和 平	8	1月30日	2月6日	8(8)	6月5日	6月12日
	文 芸	8	1月14日	1月21日	8(8)	5月28日	6月4日
	泰 山	8	1月22日	1月29日	8(8)	6月13日	6月20日
撫順市 2003年	蓋 平	10	2月20日	3月7日	10(9)	6月24日	7月8日
	法 庫	10	2月20日	3月7日	10(5)	6月24日	7月8日
	光 明	10	2月20日	3月7日	10(7)	6月24日	7月8日
鉄嶺市 2004年	第十六	10	2月10日	3月6日	10(8)	6月14日	6月21日
	第十三	10	2月10日	2月25日	10(8)	6月7日	6月28日
	第 八	10	2月10日	2月26日	10(10)	6月7日	6月14日

瀋陽市の非暖房期調査では屋外・室内調査のみ  
各対象の測定期間は連続した7日間

#### （2）瀋陽市の調査結果

屋外と室内は家庭用AC電源で稼働したが、瀋陽市の調査では調査期間中に地域によって夜間の停電が頻繁に発生したため、途中で停止するポンプが多数発生してしまった。また、電池によってポンプを駆動させた個人曝露測定も、電池の不良や対象者自身による電池交換時のトラブルのためにポンプの停止が多くでてしまった。これらの異常を除いた、各測定場所の平均濃度を図13に示す。棒グラフの青い棒の高さがPM<sub>2.5</sub>濃度を示している。

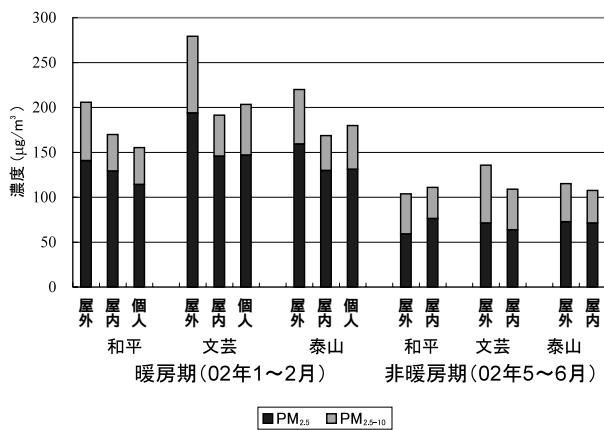


図13 瀋陽市3地域におけるPM<sub>2.5</sub>及びPM<sub>10</sub>の屋外、室内、個人曝露濃度

その上の黄色い部分が同時に測定している2.5ミクロン以上の粒子濃度 (PM<sub>2.5-10</sub>) で、合計した高さがPM<sub>10</sub>濃度を示している。測定場所や測定日によって濃度のばらつきが大きかったが、暖房期には屋外のPM<sub>2.5</sub>の平均濃度がどの地域でも141~194 µg/m<sup>3</sup>という高濃度になっていた。室内濃度の平均も100 µg/m<sup>3</sup>を大きく超えて、個人曝露濃度も室内濃度とほぼ同じレベルになっていた。非暖房期の濃度は、屋外と室内の濃度差がほとんど無く、暖房期に比べれば、屋外では3分の1、室内では2分の1程度であるが、それでも平均濃度は60 µg/m<sup>3</sup>以上であった。瀋陽の一般家庭ではまだ冷房機の普及は進んでいないため、5、6月の調査期間には、各家庭の窓を開放する時間が多いことが、屋外と室内の濃度差がない原因であろうと考えられた。また、この時期の個人曝露濃度の測定はできなかったが、屋外、室内の濃度が同じレベルであることから、個人曝露濃度も60~70 µg/m<sup>3</sup>であろうと推察された。

当初、瀋陽市の3調査地域は幹線道路が多い市の中心街である和平地域を最も大気汚染の激しい地域と想定したが、この調査時期では平均濃度で見ると、和平地域は他の2地域より低くなっていた。この理由として、瀋陽市における調査実施日が地域ごとにずれていたことが考えられたため、瀋陽市市内の継続測定値の平均濃度として公表されている瀋陽市のAPI (大気汚染指数, Air Pollution Index) から求めたPM<sub>10</sub>濃度 (公表濃度) の期間中の平均濃度を求めて比較したところ、我々の屋外

のPM<sub>10</sub>濃度平均値ととても近い濃度であった。さらに、公表濃度と3地域のPM<sub>10</sub>屋外平均濃度を測定日ごとに比較すると、図14のように日間変動のパターンだけでなく、3地域の屋外濃度とも公表濃度とほとんど一致していた。このことから、地域間の平均濃度の差は、測定期間の市内全般の濃度を反映したものであり、PM<sub>10</sub>あるいはPM<sub>2.5</sub>濃度で見ると、住民の生活環境においては、地域的な差はほとんど見られなかった。

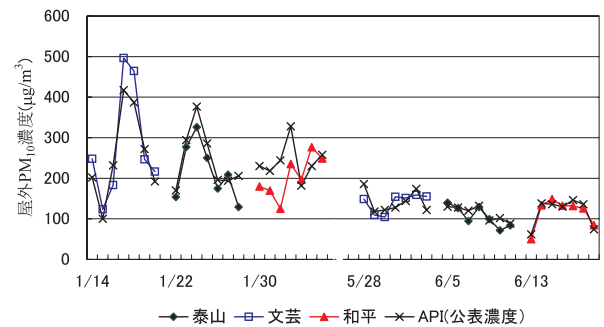


図14 瀋陽市3地域における屋外PM<sub>10</sub>濃度の日別平均濃度とAPIによるPM<sub>10</sub>濃度

比較的測定のトラブルが少なく、有効な測定数が多かった対象について、屋外濃度、室内濃度、個人曝露濃度の散布図を例示する (図15)。瀋陽では暖房期しか個人曝露調査を実施できなかったため、非暖房期については屋外濃度と室内濃度の対応のみ示している。室内濃度と個人曝露濃度はどの例でもかなり良く一致しているが、屋外濃度との関係は、相関関係のない「和平-6」や「泰山-22」のようなケースから、「文芸-18」のように非常に強い相関を示すものまで様々であった。ここでは対象地域ごとに1例を示しているが、どこの地域の中にもこのような例が混在していた。瀋陽市の住宅は日本に比べ、すべて中層集合住宅という比較的均質な居住環境であったが、屋外濃度と室内濃度には、家によって大きな特徴の違いがあることが分かった。

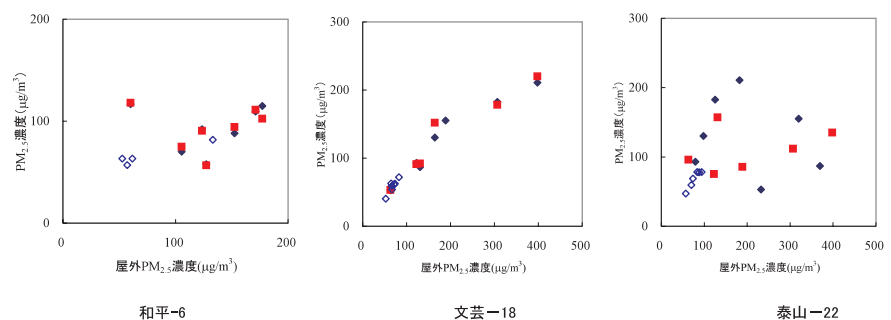


図15 瀋陽市の対象家屋ごとにみた日平均PM<sub>2.5</sub>屋外濃度と室内濃度、個人曝露濃度 ◆は暖房期の室内、■は暖房期の個人曝露、◇は非暖房期の室内濃度を示す。

### (3) 撫順市の調査結果

撫順市の調査では、暖房期、非暖房期に、約2週間の調査期間で各地域をほぼ半数ずつ実施した。撫順市では、金属精錬などの工場地帯からの距離で大気汚染レベルの違いを想定したが、PM<sub>2.5</sub>の屋外平均濃度で、暖房期、非暖房期とも蓋平、法庫地域の濃度が光明地域に比べて高く、非暖房期の光明地域以外は、PM<sub>2.5</sub>の平均濃度が100 μg/m<sup>3</sup>を超えていた(図16)。

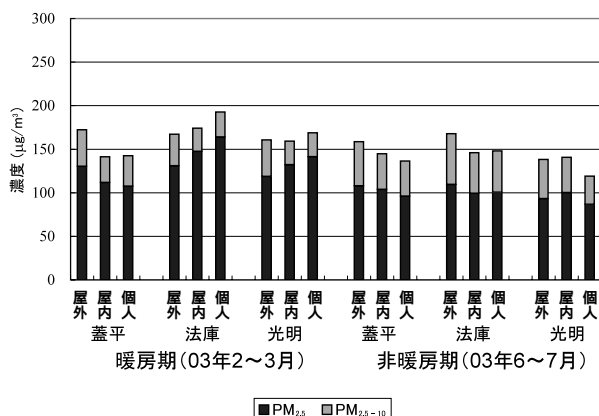


図16 撫順市3地域におけるPM<sub>2.5</sub>及びPM<sub>10</sub>の屋外、室内、個人曝露濃度

測定日ごとの屋外PM<sub>2.5</sub>の平均濃度で比較すると、蓋平地域と法庫地域はほとんど変わらないが、光明地域はほとんどの測定日で他の2地域より低くなっていることが確認できた(図17)。

暖房期の屋外濃度は、瀋陽よりは低い傾向であったが、屋外のPM<sub>2.5</sub>日別平均濃度が非暖房期でも100 μg/m<sup>3</sup>を大きく超えることが確認された。室内濃度の平均は瀋陽市と変わらなかった。また、蓋平地域で個人曝露>室内>屋外となっていた例があったが、PMを捕集したフィルターにわずかではあるがタバコ煙の特徴である茶色があったものがあり、測定室内での喫煙影響があったことを示唆した。

撫順市の結果で、最も重要なことは、非暖房期においてもPM<sub>2.5</sub>屋外濃度の平均が100 μg/m<sup>3</sup>前後という、PM

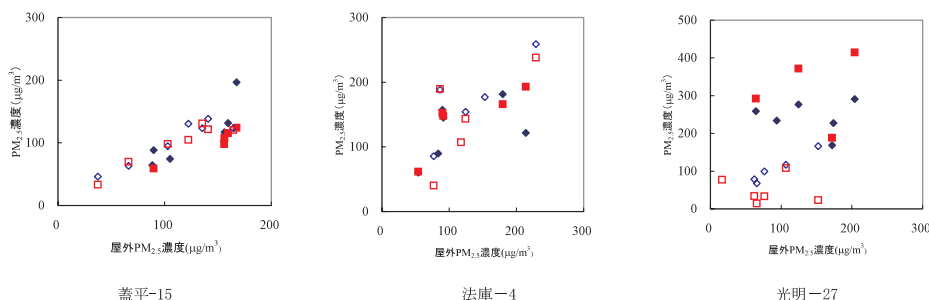


図18 瀋陽市の対象家屋ごとにみた日平均PM<sub>2.5</sub>屋外濃度と室内濃度、個人曝露濃度

◆は暖房期の室内、■は暖房期の個人曝露、◇は非暖房期の室内、□は非暖房期の個人曝露濃度を示す。

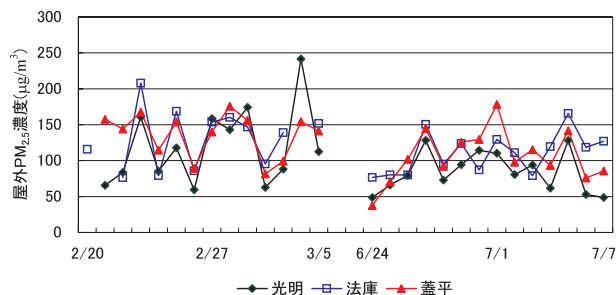


図17 撫順市3地域における屋外PM<sub>2.5</sub>濃度の日別平均濃度

濃度の高さである。暖房期との違いはわずかに20 μg/m<sup>3</sup>が程度であり、暖房期に比べ非暖房期の屋外濃度が半減した瀋陽とは全く状況が異なっていた。すなわち、年間を通して工場地帯からの高濃度大気汚染が存在していることが明らかになった。非暖房期では、瀋陽の結果と同様、屋外濃度と室内濃度が同じ濃度であり、個人曝露濃度もほとんど同じ濃度であった。

瀋陽市と同様に、比較的測定のトラブルが少なく、有効な測定数が多かった撫順市の対象について、屋外濃度、室内濃度、個人曝露濃度の散布図を例示する(図18)。撫順市では暖房期と非暖房期の2期に個人曝露調査を実施している。ここでも室内濃度と個人曝露濃度はどの例でもかなり良く一致しているが、屋外濃度との関係は、相関関係のない「光明-27」のようなケースから、「蓋平-15」のように非常に強い相関を示すものまで様々であった。どの地域も瀋陽同様、中層集合住宅であり、屋外と室内の関係では、地域による差は見られなかった。

### (4) 鉄嶺市の調査結果

鉄嶺市は大きな工場地帯や渋滞するような幹線道路の無い地方都市である。そのなかでも工場に近い第十六の周辺地域、街の中心に近い第十三小地域、郊外の第八小地域の順に大気汚染濃度が高いと想定した。

屋外濃度の平均は、図19のように暖房期、非暖房期

とも、第十六>第十三>第八の順になっており、暖房期のPM濃度は屋外>室内≧個人曝露という関係であった。また、非暖房期は他の2都市と同様に、屋外、室内、個人曝露濃度はほとんど同じレベルであった。



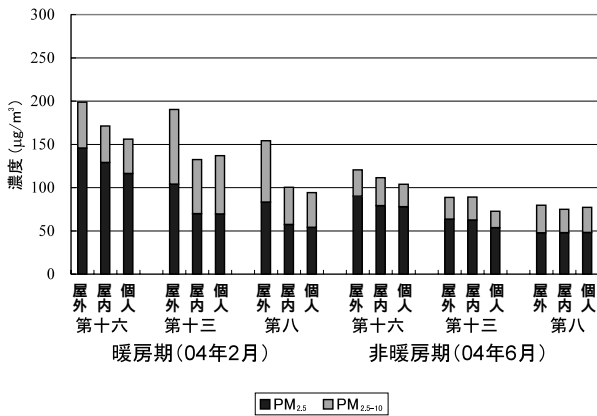


図19 鉄嶺市3地域におけるPM<sub>2.5</sub>及びPM<sub>10</sub>の屋外、室内、個人曝露濃度

鉄嶺市の調査も、3地域の測定を暖房期、非暖房期でそれぞれ約2週間の間に実施しており、測定日ごとに3地域の濃度を比較することができる。図20に屋外PM<sub>2.5</sub>平均濃度の日別平均濃度を示す。暖房期、非暖房期とも、第十六が他の2地域より高濃度であり、第十三小地域はわずかに第八小地域より濃度が高いことが分かった。

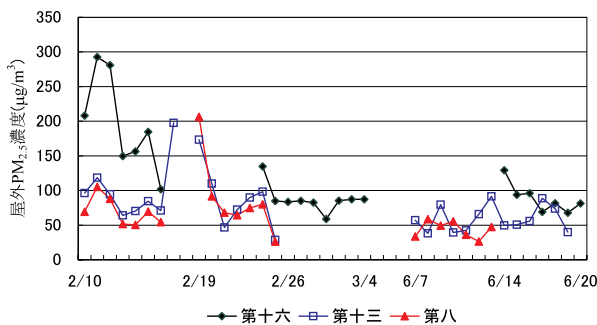


図20 鉄嶺市3地域における屋外PM<sub>2.5</sub>濃度の日別平均濃度

鉄嶺市の対象の家屋について、屋外濃度、室内濃度、個人曝露濃度の散布図を例示する(図21)。第十六小地域では、他の2地域に比べ屋外と室内濃度の相関の強い対象があったが、測定期間中の屋外濃度に濃度差が大きかったことも影響していたと考えられた。

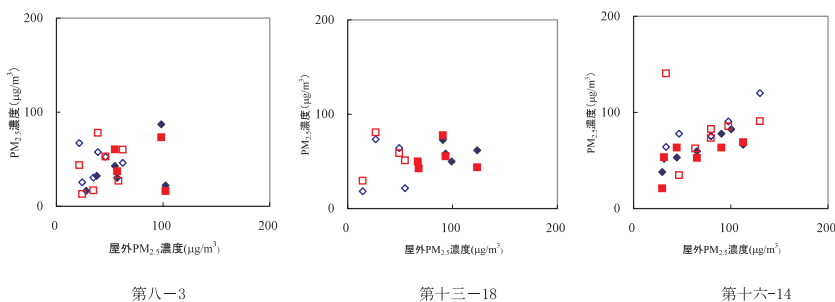


図21 鉄嶺市の対象家屋ごとにみた日平均PM<sub>2.5</sub>屋外濃度と室内濃度、個人曝露濃度 ◆は暖房期の室内、■は暖房期の個人曝露、◇は非暖房期の室内、□は非暖房期の個人曝露濃度を示す。

## 2.2.4 考察(3都市の住民曝露調査結果から)

3都市の調査結果から、いずれの都市においても暖房期の屋外PM濃度はPM<sub>10</sub>、PM<sub>2.5</sub>とも非常に高濃度になっており、現在中国環境保護総局が公表しているAPIから計算される高濃度汚染が、一般住民の生活環境で実際に起きていることが確認された。対象都市は、いずれも冬季は日中でも気温が零下となり、夜間は-20度にまで下がる地域である。防寒対策として全ての住宅ではベランダをガラス窓で囲っている。

かつて東京や大阪の沿道住宅で実施した家屋内外のPM濃度調査の結果<sup>1-2)</sup>では、室内の濃度が屋外に比べて低い傾向が見られた。この調査の対象地域では冬季はほとんど窓を閉め切っており、アルミサッシも普及して住宅の機密性も良いと考えられることから、屋外の高いPM濃度にかかわらず室内のPM濃度は低いことも予想されたが、予想に反し室内の濃度も屋外に匹敵する高濃度になっていた。

ここで中国の大気環境基準とAPIについて簡単に紹介しておく。表3の各項目について、3種の濃度制限が定められている。一級基準は、自然保護区、風致名勝エリア、及び特殊な保護が必要な地域に適用され、二級基準は都市計画の中で確定された居住地域、商業・交通及び住民の混合地域、文化地域、一般工業地域及び農村地域に適用され、三級基準は、特定の工業地域に適用される基準である。今回の対象地域は、二級基準が適用されるため、PM<sub>10</sub>の日平均濃度の環境基準は0.15 mg/ml (150 µg/m<sup>3</sup>)である。

APIは、SO<sub>2</sub>、NO<sub>2</sub>、PM<sub>10</sub>、CO、O<sub>3</sub>の日々の濃度から、それぞれについて表4のような対応関係によって求めている。APIの対象は大都市の環境であるので、APIの100は都市域に適用する二級基準に一致している。また、中国がAPIに対応する大気の評価と健康影響、対応措置を整理しているものを表5に示す。ただし、

現在中国の国家環境保護総局のホームページなどで公表している中国国内84都市の「重点都市空気質量日報」には、日平均濃度を測定しているSO<sub>2</sub>、NO<sub>2</sub>、PM<sub>10</sub>の3種のAPIで最も大きなAPI値とその項目及び評価が記載され、個別の測定項目の濃度については公表されない。瀋陽市については、2000年

表3 中国における大気汚染物質の濃度制限値

汚染物質の名称	測定値の選定時間	濃度制限値			濃度単位
		一級基準	二級基準	三級基準	
SO <sub>2</sub>	年平均	0.02 (0.01)	0.06 (0.02)	0.1 (0.04)	mg/m <sup>3</sup> (μm)
	日平均	0.05 (0.02)	0.15 (0.06)	0.25 (0.10)	
	一時間平均	0.15 (0.06)	0.5 (0.19)	0.7 (0.27)	
TSP	年平均	0.08	0.2	0.3	
	日平均	0.12	0.3	0.3	
PM <sub>10</sub>	年平均	0.04	0.1	0.15	
	日平均	0.05	0.15	0.25	
NO <sub>x</sub>	年平均	0.05	0.05	0.1	
	日平均	0.1	0.1	0.15	
	一時間平均	0.15	0.15	0.3	
NO <sub>2</sub>	年平均	0.04 (0.02)	0.04 (0.02)	0.08 (0.04)	
	日平均	0.08 (0.04)	0.08 (0.04)	0.12 (0.06)	
	一時間平均	0.12 (0.06)	0.12 (0.06)	0.24 (0.12)	
CO	日平均	4	4	6	
	一時間平均	10	10	20	
O <sub>3</sub>	一時間平均	0.12	0.16	0.2	
Pb	シーズン平均		1.5		
	年平均		1		
B(a)P フッ化物 (Fとして)	日平均		0.01		
	一時間平均		7		
			20		μg/m <sup>3</sup>

6月の公表開始時からのデータが取得できたが、撫順市の公表は2004年6月からであったため、2003年の我々の調査測定結果との比較はできなかった。また、鉄嶺市のAPIは現時点では公表されていない。

表4 大気汚染物質濃度と空気汚染指数 (API) の対応

汚染指数	汚染物質濃度 (mg/m <sup>3</sup> )				
	SO <sub>2</sub> (日平均値)	NO <sub>2</sub> (日平均値)	PM <sub>10</sub> (日平均値)	CO (時間値)	O <sub>3</sub> (時間値)
API					
50	0.05	0.08	0.05	5	0.12
100	0.15	0.12	0.15	10	0.2
200	0.8	0.28	0.35	60	0.4
300	1.6	0.565	0.42	90	0.8
400	2.1	0.75	0.5	120	1
500	2.62	0.94	0.6	150	1.2

日本の大気中の浮遊粒子に関する環境基準であるSPMは、10 μmより大きな粒子を100%除くという規定があるので、同じ場所で測定すればPM<sub>10</sub>より低濃度になる。SPMの日平均濃度の環境基準が0.1mg/m<sup>3</sup> (100 μg/m<sup>3</sup>)であるので、中国は日本の基準と同程度であるが、この濃度も暖房期にはほとんど達成できていない状況であった。

今回同時に測定したPM<sub>2.5</sub>については、日本でもまだ環

境基準が定められていないが、微小粒子は健康影響が大きいと考えられることから米国で、年平均濃度を15 μg/m<sup>3</sup>、日平均濃度を65 μg/m<sup>3</sup>と定めている。同じPM<sub>2.5</sub>といっても、冬季は石炭燃焼のばい煙が主要因と考えられる今回の対象都市と米国では主要な発生源が異なるため、米国の基準を単純に当てはめることはできない。しかし、非暖房期でも平均濃度が米国の環境基準上限レベル、あるいはそれ以上であり、暖房期にはさらにその2倍近い濃度になっており、中国東北地方の暖房期間が5ヵ月以上続くことを考えれば、年平均濃度では米国の基準濃度をはるかに超えているといえる。PM<sub>2.5</sub>の年平均濃度は公表されていないが、APIから推定した瀋陽市のPM<sub>10</sub>濃度は、2001年が176 μg/m<sup>3</sup>、02年が171 μg/m<sup>3</sup>、03年が140 μg/m<sup>3</sup>、04年が140 μg/m<sup>3</sup>であった。瀋陽市の屋外の測定値では、PM<sub>2.5</sub>はPM<sub>10</sub>の60%前後であったことから、今回対象とした都市においては年平均でもPM<sub>2.5</sub>濃度が100 μg/m<sup>3</sup>近い濃度であることが推定された。

### 2.3 3都市の大気粉じん中多環芳香族炭化水素及び二口多環芳香族炭化水素

#### 2.3.1 目的

近年がん、なかでも肺がんによる死亡率は世界主要国で増加傾向にある。肺がん死亡率増加の代表的な要因の一つとして喫煙が挙げられるが、喫煙以外にも粉じんや煙などによって引き起こされる大気汚染も重要な要因のひとつとして挙げられる。実際、都市化とともに肺がん死亡率が増加し、農村部に対する都市部の肺がん死亡率は3~4倍と報告されている。

大気中には数万種の化合物が存在し、その中には発がん性/変異原性物質を有することが認められているものがいくつも存在する。このような有害大気汚染物質のうち、多環芳香族炭化水素 (PAH) は石炭、石油などの化石燃料の燃焼や有機物の熱分解などによって生じることが知られている。PAHの代表例として、特に強い発がん

表5 空気汚染指数と大気質の評価、及び対応する健康影響と規制の類型

空気汚染指数 API	大気質 級別	大気質 状況	健康影響	対応措置
0~50	I	優	正常活動可能	
51~100	II	良		
101~150	III1	軽微汚染	感受性の高い人には症状が出やすく、健康な人には刺激症状が出やすい。	心臓疾患と呼吸器疾患を持つ者は体力が消耗するので戸外活動を減らす。
151~200	III2	軽度汚染		
201~250	IV1	中度汚染	心臓疾患と肺疾患を持つ者は症状が現れやすくなり、運動能力が低下する。健康な人にも症状が出始める。	高齢者、心臓疾患、肺疾患を持つ者は室内で過ごし、体力を使う活動を控える。
251~300	IV2	中度重汚染		
300以上	V	重汚染	健康人の運動能力が低下し、前期の疾患を持つ人には激しい症状が出る。	高齢者と病人は室内にとどまって体力の消耗を押さえ、一般人には戸外活動を避ける。

表6 3都市の大気中PAH濃度

都市	捕集地点	調査期間	FR	Pyr	BaA	Chr	BbF	BkF	BaP	BgPe	IDP
瀋陽市	和平	2001年7月16日～(7日)	4.3	3.9	1.7	4.0	10.8	3.5	3.3	7.6	6.2
		2001年11月5日～(7日)	50.9	49.2	32.2	46.5	29.2	13.1	23.9	23.7	12.5
		2002年1月14日～(7日)	212.9	206.1	85.6	107.8	60.0	29.9	60.3	42.1	24.5
	文芸	2001年7月16日～(7日)	3.0	2.8	1.4	3.2	8.6	2.7	2.9	8.0	4.1
		2001年11月5日～(7日)	44.6	40.9	32.1	50.9	36.9	15.5	26.7	26.9	16.7
		2002年1月14日～(7日)	195.2	215.8	100.5	120.6	69.7	34.6	74.5	34.8	32.3
	泰山	2001年7月16日～(7日)	1.9	2.3	0.8	1.8	3.6	1.2	1.7	1.1	1.6
		2001年11月5日～(7日)	65.1	59.4	44.1	64.1	41.4	18.3	31.7	30.7	19.3
		2002年1月14日～(7日)	357.6	334.5	145.4	196.6	107.1	49.5	98.6	65.6	46.1
撫順市	蓋平	2002年7月21日～(2日)	65.2	50.4	56.1	199.8	305.8	92.3	75.4	111.1	71.8
		2002年10月22日～(2日)	529.1	428.3	513.6	767.9	644.6	206.3	249.7	211.3	126.4
		2002年12月9日～(2日)	300.9	348.5	224.7	260.8	215.8	75.7	135.1	129.6	71.9
		2003年4月14日～(2日)	320.2	138.9	147.7	433.2	445.9	122.3	89.3	154.0	81.7
	法庫	2002年7月21日～(2日)	38.8	34.9	47.0	119.8	188.2	59.2	55.6	82.6	54.5
		2002年10月22日～(2日)	156.5	138.6	93.3	109.1	106.4	41.9	64.9	54.1	41.3
		2002年12月9日～(2日)	711.1	640.1	244.9	249.8	218.9	80.6	151.9	145.2	79.3
		2003年4月14日～(2日)	51.6	29.3	14.3	27.6	33.8	12.9	14.4	23.3	12.5
	光明	2002年7月21日～(2日)	33.7	36.1	41.6	108.3	179.8	55.7	54.7	83.3	53.0
		2002年10月22日～(2日)	257.5	174.0	143.9	164.6	264.0	74.0	74.5	79.8	55.8
		2002年12月9日～(2日)	518.4	461.2	229.2	228.8	178.9	65.5	126.3	128.5	60.4
		2003年4月14日～(2日)	571.8	292.3	361.3	882.6	830.1	237.2	195.1	264.3	142.3
鉄嶺市	第十六	2003年7月17日～(2日)	16.1	12.6	11.5	16.2	43.5	15.1	19.8	21.9	24.1
		2003年10月17日～(2日)	38.0	42.4	37.8	43.2	44.2	22.9	35.4	30.0	34.2
		2003年12月28日～(2日)	462.3	421.1	183.8	126.9	93.0	65.9	139.6	84.4	75.6
		2004年5月12日～(2日)	10.0	9.1	9.4	13.1	19.5	8.8	11.9	15.7	15.8
	第十三	2003年7月17日～(2日)	10.8	17.0	7.0	14.6	20.4	6.8	9.4	10.9	ND
		2003年10月17日～(2日)	38.9	43.9	34.9	41.9	39.7	21.6	35.3	28.1	35.5
		2003年12月28日～(2日)	165.3	156.9	103.9	78.8	63.4	41.0	75.4	62.1	47.2
		2004年5月12日～(2日)	9.3	8.1	5.3	9.3	12.1	5.1	6.8	8.3	8.4
	第八小	2003年7月17日～(2日)	4.7	3.9	2.1	4.4	8.6	3.4	5.0	6.8	5.4
		2003年10月17日～(2日)	23.7	21.1	21.0	29.1	24.6	10.8	19.9	16.8	15.9
		2003年12月28日～(2日)	203.1	191.7	115.3	82.2	42.6	42.6	78.1	65.7	50.5
		2004年5月12日～(2日)	9.9	9.0	6.2	10.5	15.9	6.7	9.3	44.7	12.6

単位 :pmol/m<sup>3</sup>;ND: 検出限界以下

ん性をもつベンゾ [a] ピレンが知られており、大気汚染の指標のひとつとして用いられてきた。さらに大気中にはニトロ多環芳香族炭化水素 (NPAH) も存在していることが明らかになった。NPAH は発生源から一次発生するだけでなく、大気中で PAH と窒素酸化物とが反応して二次的に生成することが知られている。特に、1,3-, 1,6-, 1,8-ジニトロピレンや1-ニトロピレンは強い直接変異原性を持っており、国際がん研究機関 (IARC) では既に1,6-, 1,8-ジニトロピレン、1-ニトロピレン、6-ニトロクリセンをグループ2B (ヒトに対しておそらく発がん性があるもの) に位置付けている。また最近では、いくつかのPAH は内分泌攪乱作用があることも明らかとなっている。よって、大気中のPAH、NPAHを測定し、その濃度を監視していくことは健康影響においても、生物学的影響の考察においても必要である。

今回、都市の規模や形態の異なる中国の3都市 (瀋陽市、撫順市、鉄嶺市) で捕集した大気粉じんの一部について、9種類のPAHと10種類のNPAHを分析して比較することにより、3都市におけるこれら化合物の主要発生源、大気内挙動の特徴とその違いを明らかにすること

を目的とした。

### 2.3.2 実験方法

ローボリウムアンダセンエアサンプラーを用いて粒径別に9枚の石英繊維フィルター上に捕集した大気粉じんを粒径別にステージ1, 2 (> 7 μm), ステージ3, 4, 5 (7 - 2.1 μm), ステージ6, 7, 8及びバックアップフィルター (< 2.1 μm) の3段階に分け、所定の方法<sup>3,4)</sup>より有機成分の抽出を行った。なお、サンプリング地点の選択及びサンプリング方法については前節のとおりである。

PAHについては、アメリカ環境保護局に優先取り組み化合物としてリストアップされた16種類のPAHのうち、フルオランテン (FR)、ピレン (Pyr)、ベンゾ [a] アントラセン (BaA)、クリセン (Chr)、ベンゾ [b] フルオランテン (BbF)、ベンゾ [k] フルオランテン (BkF)、ベンゾ [a] ピレン (BaP)、ベンゾ [ghi] ペリレン (BgPe) 及びインデノ [1,2,3-cd] ピレン (IDP) の計9種類を分析対象とし、蛍光検出/HPLC法により分析した<sup>4)</sup>。NPAHについては、変異原性の強い1,3-, 1,6-, 1,8-ジニトロピレン (1,3-, 1,6-, 1,8-DNP)、1-, 2-ニトロピ

表7 3都市の大気中NPAH濃度

都市	捕集地点	調査期間	1,3-DNP	1,6-DNP	1,8-DNP	2-NP+2NFR	1-NP	6-NC	7-NBaA	3-NPer	6-NBaP	
瀋陽市	和平	2001年7月16日～(7日)	14.3	1.2	1.0	2569.5	30.8	26.2	183.8	13.0	11.1	
		2001年11月5日～(7日)	5.7	3.7	2.8	4322.9	376.0	188.0	156.1	25.6	63.4	
		2002年1月14日～(7日)	5.8	5.7	4.2	4148.2	798.5	348.9	94.4	55.8	131.1	
	文芸	2001年7月16日～(7日)	20.6	2.2	0.9	1828.6	186.4	156.6	201.2	11.7	13.1	
		2001年11月5日～(7日)	9.5	4.8	2.4	4691.1	390.9	179.4	224.7	39.7	72.2	
		2002年1月14日～(7日)	7.1	5.7	3.1	3685.4	726.0	267.6	161.2	73.4	96.7	
	泰山	2001年7月16日～(7日)	8.3	1.3	0.8	1133.1	217.9	187.8	48.5	9.9	8.8	
		2001年11月5日～(7日)	11.8	5.7	3.5	4803.1	957.6	550.2	181.5	56.0	115.0	
		2002年1月14日～(7日)	7.0	4.6	2.2	3161.9	643.7	271.9	127.1	45.4	77.3	
撫順市	蓋平	2002年7月21日～(2日)	51.9	186.6	5.8	41982.2	801.6	816.0	332.8	98.1	332.3	
		2002年10月22日～(2日)	13.3	30.2	15.1	14897.4	1666.7	894.4	254.4	83.9	316.7	
		2002年12月9日～(2日)	5.9	28.2	20.8	2098.0	1484.0	3896.6	156.4	83.9	823.7	
	法庫	2003年4月14日～(2日)	34.5	40.2	21.4	18945.5	8220.2	2897.5	429.9	456.3	1046.4	
		2002年7月21日～(2日)	55.7	184.4	6.3	36537.1	402.9	395.1	604.4	43.8	108.7	
		2002年10月22日～(2日)	6.2	10.3	5.8	12580.5	432.0	558.3	124.1	25.1	141.7	
	光明	2002年12月9日～(2日)	8.7	19.1	15.9	8451.2	1347.2	5272.6	834.2	104.5	1614.8	
		2003年4月14日～(2日)	4.3	2.9	5.3	1409.5	680.0	1071.3	202.7	72.4	295.2	
		2002年7月21日～(2日)	49.8	152.0	3.4	26404.6	402.8	358.5	393.9	44.4	82.5	
		2002年10月22日～(2日)	9.7	13.8	7.6	17345.8	709.4	508.0	225.6	68.6	170.4	
		2002年12月9日～(2日)	4.4	39.2	40.9	4371.6	904.0	4249.5	825.2	155.2	1595.6	
		2003年4月14日～(2日)	37.2	54.1	20.1	48119.6	6984.6	2782.1	853.1	274.5	1694.6	
	鉄嶺市	第十六	2003年7月17日～(2日)	10.4	ND	2.6	4920.2	327.3	230.3	20.3	12.9	122.6
			2003年10月17日～(2日)	4.1	3.0	1.2	7226.3	221.1	96.5	143.9	23.6	95.7
			2003年12月28日～(2日)	4.7	8.3	5.8	4769.5	414.5	4121.9	490.4	124.8	508.9
2004年5月12日～(2日)			6.0	4.2	5.6	3519.0	129.2	70.7	49.2	14.2	29.6	
第十三		2003年7月17日～(2日)	4.2	ND	5.0	2819.5	479.8	278.9	83.0	13.1	61.8	
		2003年10月17日～(2日)	3.0	1.9	1.7	5693.6	351.3	197.2	99.3	17.8	60.3	
		2003年12月28日～(2日)	8.2	9.7	8.2	3645.2	942.7	1061.2	206.4	60.6	302.7	
第八小		2004年5月12日～(2日)	3.5	1.3	1.8	2689.9	73.0	45.8	14.5	11.9	9.2	
		2003年7月17日～(2日)	4.5	ND	1.7	2062.1	96.1	46.7	7.2	8.5	7.2	
		2003年10月17日～(2日)	4.5	ND	2.3	5039.4	410.7	414.1	279.3	23.9	122.0	
		2003年12月28日～(2日)	4.7	8.0	16.9	6619.5	352.1	640.3	245.7	38.9	270.7	
		2004年5月12日～(2日)	2.3	1.0	1.9	2808.2	104.4	70.0	13.1	11.4	17.7	

単位:fmol/m<sup>3</sup> (fmolはpmolの1000分の1);ND:検出限界以下

レン (1-, 2-NP), 2-ニトロフルオランテン (2-NFR), 6-ニトロクリセン (6-NC), 7-ニトロベンツ [a] アントラセン (7-NBaA), 3-ニトロペリレン (3-NPer) 及び 6-ニトロベンゾ [a] ピレン (6-NBaP) の計10種類を分析対象とし、化学発光検出/HPLC法により分析した<sup>4)</sup>。

### 2.3.3 結果及び考察

#### (1) 年平均濃度

表6と表7は、それぞれ3都市の3地点、計9ヵ所の捕集地点における大気粉じん中PAH、NPAHの濃度を大気体積当りで示したものである。ここでは割愛したが、同様の表を捕集粒子重量当たりの濃度でも作成して、それらに基づいて各都市の年平均濃度及び標準偏差を計算した。図22に示したように、大気体積当りの9種のPAHの平均濃度和は、瀋陽市では、397 pmol/m<sup>3</sup> (範囲:16~1401 pmol/m<sup>3</sup>, pmol (ピコモル)は1兆分の1モル)であり、撫順市では、1695 pmol/m<sup>3</sup> (範囲:220~3777 pmol/m<sup>3</sup>)であり、鉄嶺市では、401 pmol/m<sup>3</sup> (範囲:44~653 pmol/m<sup>3</sup>)であった。瀋陽市の大気体積当りのPAH濃度は鉄嶺市と同レベルにあったが、撫順市の約

5分の1であった。一方、大気体積当りの10種NPAHの平均濃度和は、瀋陽市では、5.1 pmol/m<sup>3</sup> (範囲:1.6~11 pmol/m<sup>3</sup>)であり、撫順市では、25 pmol/m<sup>3</sup> (範囲:3.7~61 pmol/m<sup>3</sup>)であり、鉄嶺市では、5.6 pmol/m<sup>3</sup> (範囲:2.2~10 pmol/m<sup>3</sup>)であった。3都市の大気体積当りのNPAH濃度もPAHと同じ傾向が見られた。

一方、粉じん重量当りPAH、NPAHの濃度は図23に示したように、撫順市で最も高く、瀋陽市と鉄嶺市と同程度で撫順市より低かった。この順番は大気体積当り濃度の順番と同じであった。

大気中PAHについて、中国国内においてもいくつかの研究結果が報告されている。本研究で得られた結果と比較すると、瀋陽市、鉄嶺市では北京市の測定値より低い、撫順市では北京市と同レベルにあり、3都市とも杭州市より高いことが分かった。大気中NPAHについては、既にサルモネラ菌を用いたAmes試験法より、大気粉じんの有機抽出物中にNPAHの存在が推測されていたが、本研究の都市大気粉じん中NPAHの定量結果は中国では初めての報告になった。さらに、我が国の都市と比較すると、大気体積当りNPAH濃度は、撫順市では札幌

市より高く、瀋陽市と鉄嶺市では札幌市より低いが東京都（新宿区）より高かった。一方、大気体積当たり PAH 濃度は、3 都市とも札幌、東京より 1 桁以上高かった。

以上の結果より、本研究で調査した中国の 3 都市の大気体積当たり PAH, NPAH 汚染レベル、特に工業都市の撫順市は高いことが分かった。

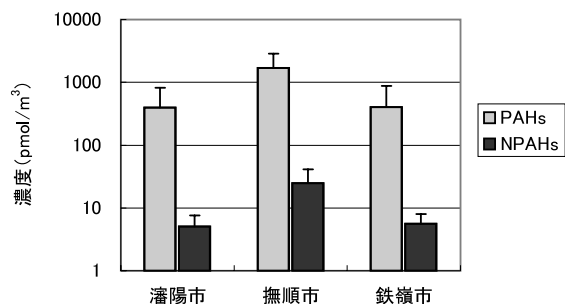


図22 3都市の大気体積当たりのPAHs, NPAHs濃度

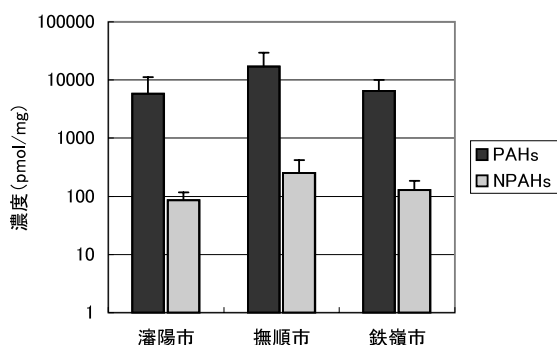


図23 3都市の粒子重量当たりのPAHs, NPAHs濃度

## (2) 季節変動

大気中 PAH, NPAH は気温や主要発生源のパタンの変化により季節変動を示すことが知られている。図24と図25はそれぞれ3都市9地点の大気体積当たり PAH 及び2次生成化合物である2-NPと2-NFを除いたNPAHの夏季と冬季の季節変動を示した。大気体積当たり PAH, NPAH 濃度は3都市とも、冬高夏低の季節変動が見られた。その原因として、既に報告されたように、冬では都市の地域暖房などから多量の PAH, NPAH を含む粒子状物質が発生することや気温逆転層が形成しやいため、高濃度の PAH, NPAH が拡散しにくいこと、夏では環数の少ない PAH は蒸気圧が高いため、気相により多く存在すること、また光反応により PAH, NPAH が分解されやすいことなどが考察されている。

夏において、3都市の大気体積当たり PAH, NPAH 濃

度は共に最も汚染されている地点（瀋陽市の和平；撫順市の蓋平；鉄嶺市の第十六）で高い傾向が見られたが、冬では、瀋陽市の大気体積当たり PAH 及び撫順市の大気体積当たり PAH, NPAH 濃度は「低濃度」（対照）地点（瀋陽市の泰山；撫順市の光明）で高い傾向が見られた。また、PAH と NPAH それぞれの夏に対する冬の濃度比を比べると、撫順市の蓋平（PAH の比 2, NPAH の比 2）、法庫（4, 5）、光明（3, 5）と鉄嶺市の第十六（9, 8）では、PAH と NPAH で違いが明確ではなく、瀋陽市（和平：18, 3；文芸：24, 2；泰山：88, 2）と鉄嶺市の第十三（8, 3）、第八（20, 9）では PAH の比が NPAH より大きかった。また、瀋陽市と鉄嶺市では、いずれの対象地域においても夏に対する冬の大気体積当たり PAH 濃度が著しく高かった。瀋陽市、鉄嶺市の対象地域は住宅団地であり、近くに幹線道路や工場もないため、2都市の冬季の高 PAH の発生源として暖房のための石炭消費の増加が大きな原因であると推測される。撫順市の対象地域の光明も住宅団地にあるが、夏に対する冬の PAH 濃度の比に大きな違いが見られなかった。地理状況により石油精練や化学工学工場に 2 km 程度しか離れておらず、上述の気候因子や冬暖房のほか、常に工場由来の汚染が影響していると推測された。ただし、前述の元素分析の結果と合わせて考察すると、光明は蓋平や法庫の PM 濃度を上昇させている工場とは異なる発生源の影響である可能性が示唆された。

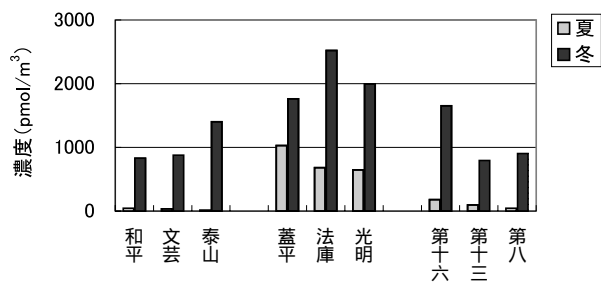


図24 3都市の大気体積当たりのPAH濃度の季節変動

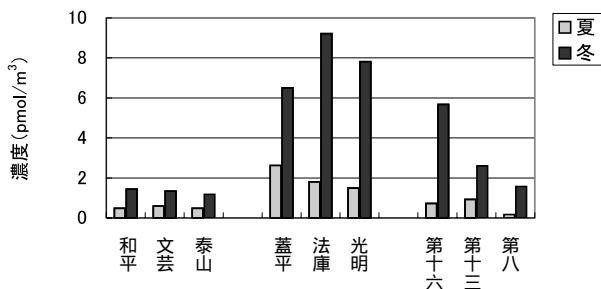


図25 3都市の大気体積当たりのNPAH濃度の季節変動

### (3) 粒径分布

大気中に浮遊している粒子状物質 (TSP) の粒径は、概ね  $1 \text{ nm}$  ( $10^6 \text{ mm}$ )  $\sim 100 \text{ }\mu\text{m}$  ( $10^3 \text{ mm}$ ) の範囲内にある。このうち、空気動力学直径が  $10 \text{ }\mu\text{m}$  以下のもの ( $\text{PM}_{10}$ ) は呼吸器に及ぼす影響が大きく、特に粒径の小さいものは呼吸により肺胞まで到着して沈着しやすいことが知られている。米国では粒径が  $2.5 \text{ }\mu\text{m}$  以下の粒子 ( $\text{PM}_{2.5}$ ) についても規制をしている。一方、中国では、急速な産業発展に伴い、石炭、石油などのエネルギーの需要量も急増している。日本などの先進国では、既に70年代から主要エネルギー源を石炭から石油、天然ガス及び原子力に転換してきたが、中国ではいまだに主要エネルギーの約75%は石炭に依存している。特に燃焼排ガスからの脱粒子や脱硫黄などの設備の装備されていない中小企業が多く存在し、さらに、冬暖房で直燃式の石炭ボイラーや石炭ストーブが多く使用されているため、大気汚染が深刻化している。一例として、調査を行った2002年、瀋陽市の年間石炭の消費量は約1000万トンにのぼり、このうち、約750万トンは暖房期に使用された。このような背景の中、中国政府は2001年よりTSPだけでなく、 $\text{PM}_{10}$ についても規制強化をスタートした。

本研究では、大気粉じんをアンダーセン式の分級装置を用いて捕集したため、大気粉じん中PAH、NPAHの存在状態をより詳細に解析することができた。図26に示したように、3都市の大気粉じん中PAH、NPAHの約80% (NPAH, 撫順市)  $\sim 90\%$  (PAH, 鉄嶺市) は、粒径が  $7 \text{ }\mu\text{m}$  以下の粒子に存在し、約55% (NPAH, 撫順市)  $\sim 80\%$  (PAH, 鉄嶺市) は、ヒトの呼吸器系へ吸入されやすい粒径  $2.1 \text{ }\mu\text{m}$  以下の細かい粒子中に存在することがわかった。

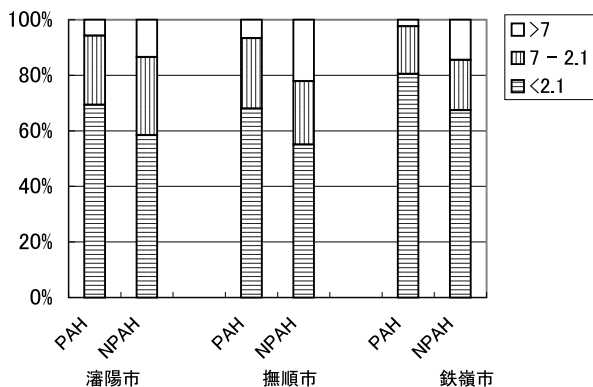


図26 3都市の大気中PAH、NPAHの粒径分布

### (4) 石炭ストーブとディーゼル車排出粉じん中PAH、NPAH

都市大気中浮遊粒子状物質の約50%は人間活動により由来して発生すると報告されている。前述のように、中国では、石炭の消費量は莫大であることから、石炭燃焼に由来するPAH、NPAHの特徴を知ることにより、中国の都市の大気汚染の実態をより詳細に把握することが期待される。そのため、中国の東北地方で使用されている4種類の典型的な石炭ストーブから排出する粉じんを瀋陽市で、また、比較のために、石油燃焼の代表とされるディーゼル車から排出する粉じんを金沢で捕集した。図27に示すように、石炭燃焼粉じんではPAHに比較し、NPAHの発生量が1000分の1程度であり、ディーゼル排気粉じんではPAHに比較してNPAHの発生量が8分の1程度であった。その原因としては、一般的に石炭ストーブの燃焼温度 (約 $900^\circ\text{C}$ ) がディーゼルエンジンの燃焼温度 (約 $3000^\circ\text{C}$ ) より低いいため、石炭ストーブの方がPAHのニトロ化反応が進行しにくいと考えられている。従って、モノNPAHとその母核であるPAHとの組成比は、大気中燃焼由来浮遊粒子状物質の主要発生源を推定する有力な指標といえる。

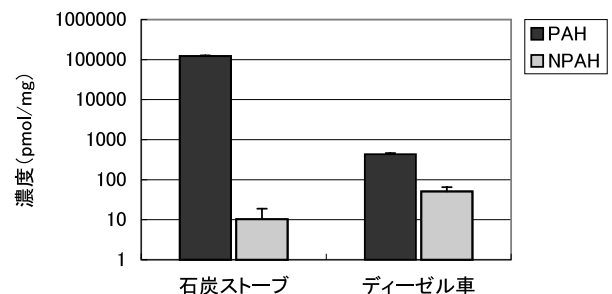


図27 石炭ストーブとディーゼル車排出粉じん中のPAH、NPAH濃度

### (5) 主要発生源解析

大気中PAHの発生源及びそれらの挙動を推定するために、いくつかのPAHの濃度比がしばしば用いられる。表8はいくつかの文献値と本研究で得られたPAHの濃度比を示した。文献値によると、 $[\text{FR}]/([\text{FR}]+[\text{Pyr}])$ 比は、工場 (0.21-0.26)  $<$  ガソリン車 (0.40)  $<$  ディーゼル車 (0.60-0.70) の順に大きく、ガソリン車 (0.21-0.22) の  $[\text{IDP}]/([\text{IDP}]+[\text{BgPe}])$ 比は、工場 (0.36-0.57) とディーゼル車 (0.35-0.70) のそれより小さい傾向が見られるが、どれも大差はない。また、ガソリン車とディーゼル車と工場との間には  $[\text{BaA}]/([\text{BaA}]+[\text{Chr}])$

比の違いがほとんどなかったとされている。一方、本研究で得られた石炭ストーブとディーゼル車排出粉じん中これらの比は、 $[BaA]/([BaA]+[Chr])$  比では、石炭ストーブ (0.50) はディーゼル車 (0.36) より大きく、 $[IDP]/([IDP]+[BgPe])$  比では、石炭ストーブ (0.33) はディーゼル車 (0.50) より小さかったが、 $[FR]/([FR]+[Pyr])$  比では、両者にほとんど差がなかった (石炭ストーブ, 0.53; ディーゼル車, 0.50)。さらに、3都市で捕集した粉じん中、 $[BaA]/([BaA]+[Chr])$  比は0.22 - 0.59の範囲で、 $[FR]/([FR]+[Pyr])$  比は0.39 - 0.56の範囲で、 $[IDP]/([IDP]+[BgPe])$  比は0.32 - 0.60の範囲内で、明確な差がなかった。以上より、これらの濃度比の違いが明確ではないため、発生源解析には妥当ではないと考えられた。

前節に述べたように、発生源により、排出された PAH の組成、NPAH の組成及びモノトロ化率が異なっている。図28は、3都市の大気粉じん中及び石炭ストーブ、ディーゼル車排出粉じん中  $[1-NP]/([1-NP]+[Pyr])$  比、 $[6-NC]/([6-NC]+[Chr])$  比、 $[7-NBaA]/([7-NBaA]+[BaA])$  比及び  $[6-NBaP]/([BaP]+[6-NBaP])$  比をパラメーターとして、早狩進氏のクラスター分析プログラム (標準化ユークリッド平方距離, ウォード法) を利用してグループ化したものである。瀋陽市の3地点の夏季は第1クラスターを、瀋陽市の3地点の冬季、撫順市、鉄嶺市の各地点の冬季と夏季及び石炭ストーブは第2クラスターを形成したが、第3クラスターにはディーゼル車しかなかった。以上より、瀋陽市の冬季及び撫順市と鉄嶺市の夏冬季とも、大気粉じん中 PAH, NPAH は主に冬暖房や

工場に使用される石炭の影響と推定された。3都市の中で、瀋陽市の自動車保有台数は約33万台で最も多いが、瀋陽市の夏季の大気粉じん中 PAH, NPAH の組成がディーゼル車と違う原因として、瀋陽市では市内へのディーゼル車の進入が制限されているためと考えられた。ガソリン車の排ガス中 PAH, NPAH のデータがないために断定的なことは言えないが、瀋陽市には排ガス量の多い欧米車が多く、しかも、道路の不整備により渋滞が激しいため、瀋陽市の夏季では、大気粉じん中の PAH, NPAH 濃度にガソリン車の排ガスも寄与していると推測された。

#### (6) 2-NP と 2-NF

3都市の大気粉じん中 NPAH の中、最も多く存在したのは2-NP と 2-NF であった (表7)。総 NPAH 濃度に対する割合は、瀋陽市では81%であり、撫順市では79%であり、鉄嶺市では78%であった。2-NP と 2-NF は大気反応で二次生成する典型的な NPAH である。2-NP と 2-NF の直接変異原性は母核の Pyr と FR よりはるかに強いため、古くから注目が集まってきた。早川らはこれまでの調査より、日本の金沢市の大気粉じん中2-NP と 2-NF 濃度が1-NP と同レベルであることを突き止めたが、表7に示したように、中国の3都市の大気粉じん中2-NP と 2-NF 濃度は何れも1-NP より1桁以上高かった。同じような結果は中国の3都市と同じく石炭暖房施設を使用するロシアのウラジオストクの冬季でも観測された。石炭燃焼による影響の1つの特徴とも考えられる。大気中で2-NP と 2-NF の生成はPyr と FR のほか、OH ラジカルと  $NO_2$  が必要とする。図29はPyr, FR, 2-NP, 2-NF の濃度比に対する2-NP と 2-NF の濃度比を示した。表8に示されたように、OH ラジカル濃度の高いと考えられる夏季において、3都市とも比較的に高い生成率が確認されたが、大気粉じん中2-NP と 2-NF 濃度は瀋陽市と鉄嶺市では冬季に高かった。撫順市の夏季に高い原因の1つとして、夏季にPyr と FR の濃度も高かったと考えられた。

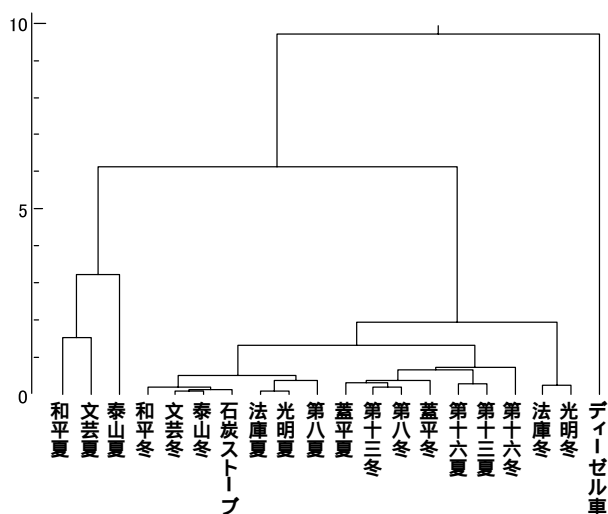


図28 クラスター分析結果

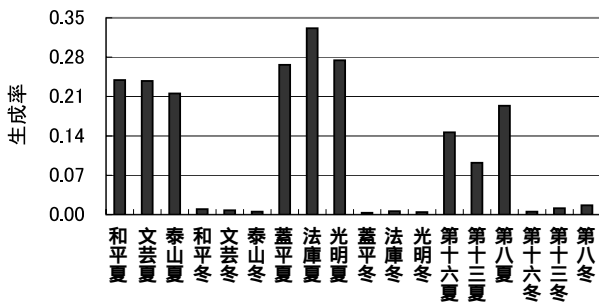


図29 3都市の大気粒子中2-NPと2-NFの生成率  
生成率は、 $([2-NP]+[2-NR]) / ([2-NP]+[2-NF]+[Pyr]+[FR])$

表8 PAHの濃度比

		[BaA]/ ([Chr]+[BaA])	[FR]/ ([Pyr]+[FR])	[IDP]/ ([BgPe]+[IDP])	
瀋陽市	和平 夏	0.26	0.54	0.42	
	和平 冬	0.44	0.51	0.37	
	文芸 夏	0.30	0.52	0.34	
	文芸 冬	0.45	0.47	0.48	
	泰山 夏	0.32	0.45	0.60	
	泰山 冬	0.43	0.52	0.41	
撫順市	蓋平 夏	0.22	0.56	0.39	
	蓋平 冬	0.46	0.46	0.36	
	法庫 夏	0.28	0.53	0.40	
	法庫 冬	0.50	0.53	0.35	
光明	光明 夏	0.28	0.48	0.39	
	光明 冬	0.50	0.53	0.32	
	鉄嶺市 第十六	夏	0.42	0.56	0.52
		冬	0.59	0.52	0.47
第十三	夏	0.32	0.39	—	
	冬	0.57	0.51	0.43	
第八	夏	0.33	0.54	0.45	
	冬	0.58	0.51	0.43	
ガソリンエンジン		0.22-0.55	0.40	0.21-0.22	
工場		0.23-0.89	0.21-0.26	0.36-0.57	
ディーゼルエンジン		0.38-0.64	0.60-0.70	0.35-0.70	
石炭ストーブ		0.36	0.50	0.50	
		0.50	0.53	0.33	

—: データなし, 斜字体の数值は文献による

## 2.4 都市大気汚染の児童の呼吸器系に対する影響

### 2.4.1 中国東北地方における冬季の大気汚染が児童の肺機能に及ぼす影響

#### (1) 目的

中国における主要なエネルギー源は石炭であるが、近年は大都市部を中心に自動車交通量が急速に増加し、石炭燃焼とともに自動車排出ガスによる大気汚染も問題となっている。中国における大気汚染物質の濃度は欧米や日本と比べて高い水準にあり、特に東北地方では冬季に石炭暖房を実施するために夏季よりも大気中粒子状物質濃度

が高濃度となり、その影響も懸念されている<sup>5,6)</sup>。

大気中の汚染物質が小児の健康に与える影響について、これまでに呼吸器症状調査や肺機能検査による疫学研究が行われてきた。急性影響では、大気汚染物質濃度の増加が呼吸器症状の有症率の増加<sup>7)</sup>や肺機能値の低下<sup>8)</sup>と関係があるとの報告が多い。慢性影響では、大気汚染物質濃度の増加が小児の肺機能の成長に負の影響を与えることが報告されている<sup>9)</sup>。これらの報告は、米国、ヨーロッパ、日本など、石油を主なエネルギー源とし、また大気汚染源が工場排ガスから自動車排ガスに移行した国々における研究が多い。一方、中国における大気汚染の健康影響については、大気汚染レベルの異なる地域間で呼吸器症状の有症率や肺機能値を比較した研究<sup>10,11)</sup>、大気汚染と地域全体の死亡率との関係を検討した研究はあるが、冬季の石炭暖房による大気汚染に着目し、その健康影響を評価した報告はほとんどない。中国東北地方における冬季の大気汚染が小児の健康に及ぼす影響を評価することは、急速な経済発展に伴う大気汚染による健康障害を予防し、小児の健康を保護する観点から、その意義は大きい。

我々は、冬季の大気汚染が児童の肺機能に及ぼす影響を評価することを目的として、中国東北地方の瀋陽市、撫順市、鉄嶺市の3都市の小学校において、同一児童を対象に、冬の暖房期を含めてそれぞれ年4回の肺機能検査を実施し、大気中粒子状物質濃度との関連を検討した(図30)。



図30 児童を対象とした肺機能検査の実施



## (2) 対象と方法

### 1) 調査対象地域

調査を行った都市は中国東北地方の瀋陽市、撫順市、鉄嶺市であり、各都市で大気汚染レベルが高濃度、中濃度、低濃度の地域よりそれぞれ1小学校を選定し、1校あたり児童約100名に検査への協力を依頼した。対象小学校と受診者数は、瀋陽市では和平（高濃度地域）、文芸（中濃度地域）、泰山（低濃度地域）の3小学校の2年生326名（8～10歳、平均9.5±0.5歳）、撫順市ではそれぞれ蓋平、法庫、光明の3小学校の3年生290名（7～11歳、平均9.5±0.6歳）、鉄嶺市ではそれぞれ第十六、第十三、第八の3小学校の5年生301名（10～13歳、平均11.3±0.6歳）である。本研究の実施に当たっては、国立環境研究所の医学研究倫理審査委員会の承認を得た。

### 2) 肺機能検査

肺機能検査は、それぞれの都市で暖房期をはさみそれぞれ4回実施した。検査を実施した時期は、瀋陽市では2001年10月、同12月、2002年4月、同6月、撫順市では2002年7月、同10月、同12月、2003年4月、鉄嶺市では2003年7月、同10月、2004年1月、同5月である。

肺機能検査は、全期間を通じて同一の電子スパイロメータ（Chest社製HI-701）を用いた。対象者には、検査に先立って検査の意義および検査方法について説明を行い、検査を受けることへの同意を確認した。また、風邪の症状、咳、鼻水、発熱、痰、喘鳴などの有無についての質問に答えてもらい、身長、体重を測定した。その後、被験者は立位でノーズクリップを使用し、再現性のある3回以上の努力性呼出曲線が得られるまで繰り返し肺機能の測定を実施した。肺機能の評価に用いた測定値は、努力性肺活量（FVC）、1秒量（FEV<sub>1.0</sub>）、1秒率（FEV<sub>1.0</sub>%）、50%FVCにおける最大呼気流量（FEF<sub>50</sub>）、75%FVCにおける最大呼気流量（FEF<sub>75</sub>）の5項目である。

努力性肺活量（FVC）：最大吸気の後、努力性呼出により肺から呼出される最大の気量

1秒量（FEV<sub>1.0</sub>）：最大吸気から努力性呼出を行うとき、呼出開始から最初の1秒間に呼出される量

1秒率（FEV<sub>1.0</sub>%）：1秒量（FEV<sub>1.0</sub>）の努力性肺活量（FVC）に対する百分率

50%FVCにおける最大呼気流量（FEF<sub>50</sub>）：努力性肺活量（FVC）の50%を呼出したときの気流の速度

75%FVCにおける最大呼気流量（FEF<sub>75</sub>）：努力性肺活量（FVC）の75%を呼出したときの気流の速度

### 3) 大気汚染データ

大気汚染のデータとしては、肺機能検査を実施した各小学校の校内に設置したローボリウム・エアサンプラー・アンダーセンタイプ（LVA）で測定した粒径別の大気中粒子状物質濃度を用いた。テフロンコーティングのガラス繊維フィルター（TX40）を使用して2日間（一部は7日間）連続で粒径別に9段のろ紙上に捕集した粒子濃度から、総浮遊粉じん（TSP）、空気動力学径が7μm以下の粒子（PM<sub>7</sub>）、2.1μm以下の粒子（PM<sub>2.1</sub>）濃度を求めた。測定はそれぞれの都市の3地点で同一日のほぼ同時刻に開始し、4回の測定時期のそれぞれにおいてサンプリングを4～7回繰り返し、その平均値を求めた。

ただし、瀋陽市においては2002年6月の4回目の肺機能検査時に大気環境測定を実施することができなかった。瀋陽市の公表している大気汚染指数（Air Pollution Index API）では、2002年6月と前年の2001年7月の指標に差が認められなかったため、2001年7月に瀋陽市の3小学校で行った環境測定の結果を用いて肺機能値との関係を評価した。

### 4) 解析方法

はじめに校区ごとに各季節の大気中粒子状物質濃度を個々の児童の曝露濃度としたデータを作成した。次に交絡因子として身長、肺機能測定時の年齢（児童の体格の指標）の影響を統計モデルで調整し、校区別に大気汚染濃度の肺機能への影響を推定した。学校別に作成した統計モデルは以下の通りである。大気中粒子状物質濃度はTSP、PM<sub>7</sub>、PM<sub>2.1</sub>のそれぞれについて解析を実施した。

$$y_{ijk} = \alpha_k + \beta_{1k} x_{1ijk} + \beta_{2k} x_{2ijk} + \beta_{3k} x_{3ijk}$$

$i$ ：個人  $j$ ：時点  $k$ ：校区  $y_{ijk}$ ：肺機能パラメータ  
 $x_{1ijk}$ ：身長  $x_{2ijk}$ ：年齢  $x_{3ijk}$ ：大気汚染濃度

なお各児童における測定項目の相関（経時的変化）を考慮する必要から、統計モデルによる効果推定には統計パッケージSASの一般化推定方程式（以下GEE: Generalized estimating equation）を用いた。GEE法の使用に際し必要となる相関行列についてはデータ構造を吟味した結果、compound symmetryを採用した。

各学校における肺機能パラメータの値（ $\beta_{ik}$ ）は、大気中粒子状物質濃度がそれぞれ10μg/m<sup>3</sup>増加あたりの肺機能値の変化量で示した。さらに、パラメータ推定値の分散の逆数を重みとした重み付き平均を用いて各都市の3小学校の結果を併合した都市別のパラメータを推定し、さらに全

体的な傾向を観察する目的で3市の結果を併合したパラメータも推定した。全ての解析は男女別に実施した。

(3) 結果

1) 大気中粒子状物質濃度

各対象都市における大気中粒子状物質濃度の測定結果を表9に示した。瀋陽市においては、TSP、PM<sub>7</sub>、PM<sub>2.1</sub>濃度ともに2001年7月は低いが、2002年4月は高くなっており、2001年10月および2002年1月はその中間であった。撫順市、鉄嶺市においては、暖房期である12月、1月は、それぞれ7月、10月に比してTSP、PM<sub>7</sub>、PM<sub>2.1</sub>濃度ともに高かった。撫順市では2003年4月のTSP、PM<sub>7</sub>濃度も高かったが、高濃度は黄砂の飛来が原因であることが確認された。鉄嶺市では2004年5月には濃度が低下していた。

2) 肺機能値の経時変化

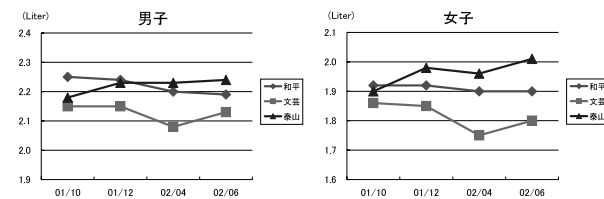
3都市における肺機能の各測定項目の平均値と標準偏差を、季節、都市ごとに男子(表10)および女子(表11)に分けて示した。

FVCの平均値の経時変化は図31に示したとおり、瀋陽市では2002年12月は10月に比べて泰山の男子を除いていずれも低下しており、和平では男女ともに2003年4月も低下したままであった。撫順市の男子では、2002年12月に法庫、2003年4月に蓋平でそれぞれ前回の値よりも低かった。女子では3校ともに経時的に増加する傾向

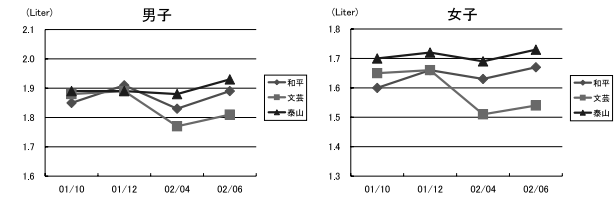
表9 大気中粒子状物質濃度

都市	学校	実施年月	TSP ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	PM <sub>7</sub> ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	PM <sub>2.1</sub> ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	
瀋陽	和平	01/07	112.6	86.4	47.6	
		01/10	150.7	114.1	54.2	
		02/01	141.0	118.2	68.9	
		02/04	205.6	182.7	115.8	
		01/07	117.1	90.1	45.6	
		01/10	212.7	161.5	74.4	
	文芸	02/01	140.5	118.8	63.3	
		02/04	182.5	152.0	96.3	
		泰山	01/07	101.5	78.1	42.5
			01/10	175.4	131.2	59.7
			02/01	168.9	142.2	76.4
			02/04	191.1	173.6	123.0
撫順	蓋平		02/07	177.5	141.3	79.5
	02/10		163.5	129.0	71.8	
	02/12	290.9	216.0	113.7		
	法庫	03/04	280.4	183.7	74.0	
		02/07	158.7	126.3	67.6	
		02/10	153.7	119.9	63.1	
光明	02/12	308.5	221.6	116.4		
	03/04	285.4	193.2	83.2		
	02/07	144.2	117.5	65.7		
	02/10	137.1	107.7	57.6		
	02/12	256.2	190.2	104.3		
	03/04	300.3	183.0	71.3		
鉄嶺	第十六	03/07	141.9	115.7	68.2	
		03/10	136.1	109.8	64.5	
		04/01	245.3	205.1	110.2	
	第十三	04/05	118.0	79.4	21.5	
		03/07	129.1	99.9	57.3	
		03/10	149.4	111.9	61.9	
	第八	04/01	235.6	184.1	80.9	
		04/05	161.2	95.3	27.7	
		03/07	113.4	89.7	54.3	
		03/10	103.3	79.6	48.1	
		04/01	162.9	128.1	73.3	
		04/05	91.5	58.3	15.3	

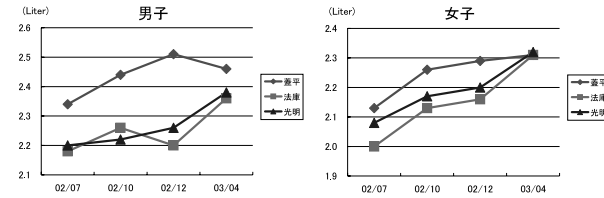
(1) 瀋陽



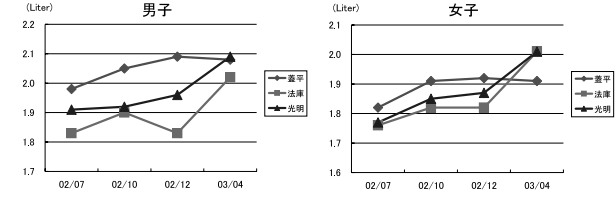
(1) 瀋陽



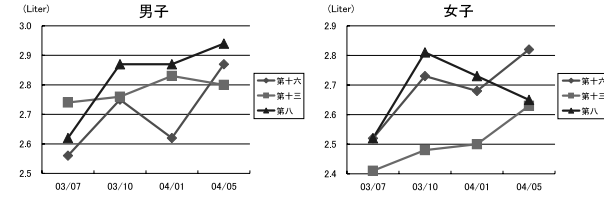
(2) 撫順



(2) 撫順



(3) 鉄嶺



(3) 鉄嶺

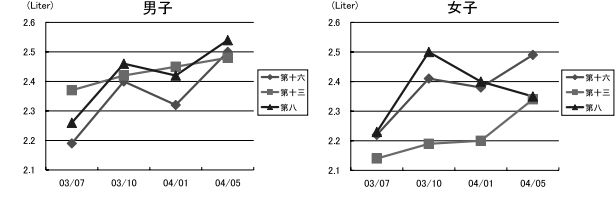


図31 測定年月別努力性肺活量(FVC)平均値の推移(都市別)

図32 測定年月別1秒量(FEV<sub>1.0</sub>)平均値の推移(都市別)

表10 測定年月別肺機能検査値（男子）

都市	学校	実施年月	対象数	身長 (cm)		努力性肺活量 (FVC) (Liter)		1秒量 (FEV1.0) (Liter)		1秒率 (FEV1.0%) (%)		FEF50 (Liter/min)		FEF75 (Liter/min)		
				Mean	SD	Mean	SD	Mean	SD	Mean	SD	Mean	SD	Mean	SD	Mean
瀋陽	和平	01/10	50	134.0	6.7	2.25	0.31	1.85	0.29	83.1	5.2	2.59	0.68	1.17	0.47	
		01/12	47	134.6	6.7	2.24	0.36	1.91	0.28	85.4	5.0	2.72	0.56	1.38	0.64	
		02/04	49	138.6	6.7	2.20	0.33	1.83	0.25	84.0	4.2	2.50	0.53	1.19	0.29	
	文芸	02/06	47	139.2	6.4	2.19	0.25	1.89	0.23	86.6	4.3	2.73	0.65	1.36	0.41	
		01/10	48	127.8	7.0	2.15	0.36	1.88	0.33	83.8	4.8	2.77	0.62	1.31	0.35	
		01/12	47	134.5	6.7	2.15	0.38	1.89	0.39	85.6	4.8	2.73	0.60	1.38	0.44	
	泰山	02/04	46	138.5	7.3	2.08	0.34	1.77	0.30	85.3	5.7	2.64	0.65	1.30	0.42	
		02/06	46	140.3	7.1	2.13	0.33	1.81	0.27	85.0	5.7	2.58	0.61	1.28	0.50	
		01/10	52	136.2	5.4	2.18	0.26	1.89	0.23	84.5	4.5	2.75	0.48	1.28	0.33	
	撫順	蓋平	01/12	53	136.1	5.7	2.23	0.31	1.89	0.25	85.0	5.5	2.81	0.61	1.35	0.48
			02/04	51	141.4	6.1	2.23	0.29	1.88	0.23	84.9	5.1	2.79	0.51	1.31	0.34
			02/06	50	144.9	5.6	2.24	0.31	1.93	0.26	85.8	4.2	2.85	0.49	1.35	0.29
法庫		02/07	47	141.4	5.5	2.34	0.35	1.98	0.25	85.3	5.1	2.98	0.54	1.50	0.39	
		02/10	44	143.1	5.6	2.44	0.37	2.05	0.27	84.5	5.2	2.89	0.56	1.42	0.37	
		02/12	44	145.5	5.8	2.51	0.40	2.09	0.28	83.7	6.4	2.95	0.58	1.45	0.40	
光明		03/04	44	146.7	5.8	2.46	0.38	2.08	0.28	85.1	5.9	2.98	0.60	1.48	0.46	
		02/07	42	138.0	7.0	2.18	0.31	1.83	0.24	84.4	5.3	2.74	0.57	1.36	0.46	
		02/10	42	139.1	7.1	2.26	0.35	1.90	0.26	84.4	5.9	2.84	0.67	1.36	0.44	
鉄嶺		第十六	02/12	42	142.9	7.2	2.20	0.39	1.83	0.27	83.7	6.3	2.49	0.50	1.28	0.41
			03/04	42	144.5	7.1	2.36	0.39	2.02	0.31	86.1	5.9	2.92	0.60	1.46	0.41
			02/07	48	138.8	6.0	2.20	0.33	1.91	0.25	87.4	5.2	3.02	0.61	1.55	0.46
	第十三	02/10	47	140.6	6.3	2.22	0.33	1.92	0.27	86.6	6.5	2.92	0.61	1.48	0.45	
		02/12	47	141.8	6.3	2.26	0.35	1.96	0.29	87.3	6.1	3.05	0.58	1.61	0.52	
		03/04	47	143.5	6.6	2.38	0.35	2.09	0.29	88.1	5.0	3.20	0.60	1.64	0.49	
	第八	03/07	52	147.0	7.9	2.56	0.56	2.19	0.49	85.8	5.2	3.25	0.85	1.75	0.61	
		03/10	50	149.2	8.1	2.75	0.59	2.40	0.50	87.2	3.8	3.64	0.78	1.81	0.56	
		04/01	48	152.2	8.6	2.62	0.56	2.32	0.52	88.4	4.9	3.54	0.93	1.95	0.68	

表11 測定年月別肺機能検査値（女子）

都市	学校	実施年月	対象数	身長 (cm)		努力性肺活量 (FVC) (Liter)		1秒量 (FEV1.0) (Liter)		1秒率 (FEV1.0%) (%)		FEF50 (Liter/min)		FEF75 (Liter/min)		
				Mean	SD	Mean	SD	Mean	SD	Mean	SD	Mean	SD	Mean	SD	
瀋陽	和平	01/10	52	131.6	6.8	1.92	0.34	1.60	0.29	83.1	5.0	2.48	0.67	1.13	0.37	
		01/12	46	131.8	7.1	1.92	0.36	1.66	0.32	86.6	4.8	2.67	0.72	1.29	0.47	
		02/04	53	136.5	7.4	1.90	0.33	1.63	0.28	85.9	4.9	2.59	0.66	1.22	0.41	
	文芸	02/06	49	137.3	7.7	1.90	0.32	1.67	0.31	87.8	5.4	2.69	0.63	1.33	0.45	
		01/10	52	125.8	5.9	1.86	0.26	1.65	0.27	85.8	5.0	2.67	0.59	1.26	0.36	
		01/12	53	131.7	5.4	1.85	0.27	1.66	0.31	86.2	4.6	2.56	0.54	1.22	0.34	
	泰山	02/04	48	135.5	5.6	1.75	0.20	1.51	0.18	86.7	4.3	2.51	0.53	1.18	0.31	
		02/06	48	137.1	5.8	1.80	0.21	1.54	0.19	85.9	6.2	2.42	0.58	1.16	0.40	
		01/10	47	132.3	6.1	1.90	0.27	1.70	0.28	86.2	4.3	2.55	0.63	1.25	0.34	
	撫順	蓋平	01/12	49	132.6	6.3	1.98	0.30	1.72	0.27	86.7	4.5	2.64	0.62	1.35	0.65
			02/04	44	139.4	7.1	1.96	0.34	1.69	0.30	86.4	5.1	2.66	0.66	1.28	0.37
			02/06	40	142.3	7.4	2.01	0.31	1.73	0.27	86.5	4.7	2.74	0.62	1.29	0.37
法庫		02/07	51	140.3	7.2	2.13	0.29	1.82	0.26	85.6	6.5	2.96	0.53	1.51	0.48	
		02/10	51	142.0	7.5	2.26	0.29	1.91	0.26	84.9	6.2	2.89	0.67	1.58	0.65	
		02/12	49	144.7	7.8	2.29	0.33	1.92	0.29	83.9	6.7	2.80	0.75	1.49	0.44	
光明		03/04	50	146.1	7.7	2.31	0.34	1.91	0.31	83.0	7.5	2.68	0.75	1.45	0.49	
		02/07	44	138.4	6.0	2.00	0.35	1.76	0.26	87.3	4.1	3.03	0.71	1.55	0.39	
		02/10	43	139.5	6.4	2.13	0.32	1.82	0.29	85.9	4.9	2.94	0.78	1.46	0.43	
鉄嶺		第十六	02/12	42	144.1	6.6	2.16	0.33	1.82	0.32	85.2	7.8	2.72	0.74	1.50	0.46
			03/04	41	146.5	6.9	2.31	0.39	2.01	0.34	86.8	3.7	3.06	0.81	1.61	0.56
			02/07	54	138.2	7.1	2.08	0.35	1.77	0.31	85.0	6.4	2.77	0.75	1.43	0.50
	第十三	02/10	52	140.5	7.6	2.17	0.34	1.85	0.30	85.3	5.6	2.76	0.72	1.45	0.51	
		02/12	54	143.0	8.6	2.20	0.38	1.87	0.33	85.2	6.8	2.77	0.67	1.52	0.55	
		03/04	52	144.2	8.0	2.32	0.42	2.01	0.39	86.4	7.0	3.03	0.83	1.64	0.62	
	第八	03/07	48	150.2	6.0	2.52	0.40	2.22	0.36	88.0	4.8	3.62	0.76	2.12	0.57	
		03/10	44	151.4	5.7	2.73	0.38	2.41	0.33	88.6	4.4	3.80	0.77	2.07	0.49	
		04/01	44	155.9	5.4	2.68	0.35	2.38	0.32	88.8	5.1	3.68	0.81	2.15	0.53	

が認められた。鉄嶺市では、2004年1月に第十六、第八で男女ともに10月よりも低下していた。

FEV<sub>1.0</sub>の平均値の経時的変化は図32に示したとおり、瀋陽市では2002年12月は10月に比べて3校の男女ともに低下

していた。撫順市では、2002年12月に法庫の男子で10月よりも低かった。鉄嶺市では、2004年1月に第十六、第八で男女ともに10月よりも低下していた。

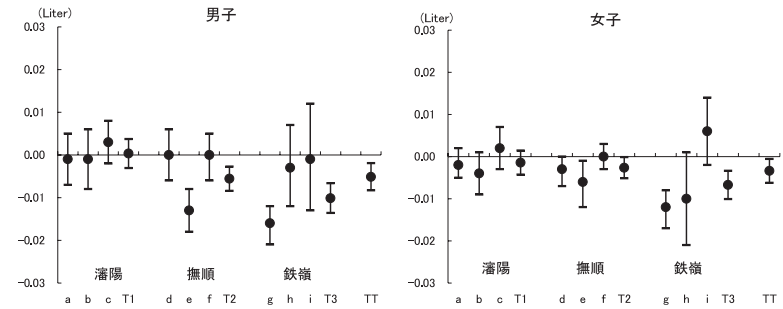
FEV<sub>1.0</sub>%の平均値は経時的に大きな変化はみられなかったが、暖房期である12月、1月には非暖房期よりも低い値を示す学校が認められた。FEF<sub>50</sub>、FEF<sub>75</sub>の平均値は、全体としては経時的に増加する傾向を示したが、12月、1月には非暖房期よりも低い値を示す学校が多く認められた。

### 3) 大気中粒子状物質濃度と肺機能値の変化

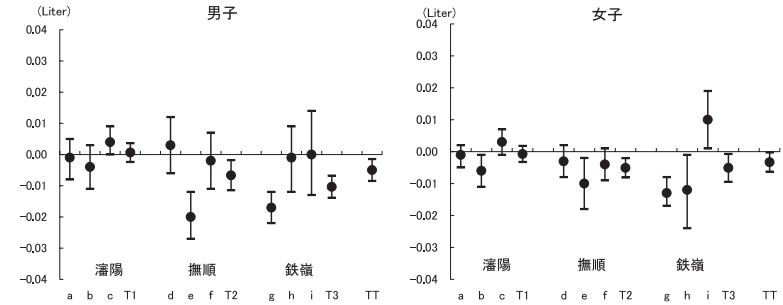
身長、年齢を調整した上で、学校別に求めた大気中粒子状物質濃度10 μg/m<sup>3</sup>増加あたりのFVCの変化量の推定値、95%信頼区間、ならびに各市の3校を併合した場合の推定値(95%信頼区間)、さらに各都市の併合結果を併合した推定値を図33に示した。学校別の結果では、男女ともに多くの学校で大気中粒子状物質濃度とFVCの間には負の関連が認められ、撫順市の法庫、鉄嶺市の第十六では男女ともにいずれの汚染物質との間にも有意な負の関連が認められた。一方、鉄嶺市の第八の女子ではPM<sub>7</sub>、PM<sub>2.5</sub>濃度の増加によりFVCが有意に増加する関係がみられた。都市別に3校の結果を併合して算出したところ、撫順、鉄嶺市では男女ともにいずれの汚染物質濃度の増加によってもFVCが有意に低下する傾向が認められたが、瀋陽市で有意であったのは女子におけるPM<sub>2.5</sub>との関連のみであった。全体的な傾向を観察するために3市の結果を併合したところ、FVCの変化は男子TSP 10 μg/m<sup>3</sup>増加あたり-0.005(95%信頼区間-0.002, -0.008)、PM<sub>7</sub> 10 μg/m<sup>3</sup>増加あたり-0.005(-0.001, -0.009)、PM<sub>2.5</sub> 10 μg/m<sup>3</sup>増加あたり-0.006(-0.002, -0.010)、女子ではそれぞれ-0.003(-0.001, -0.006)、-0.003(0.000, -0.006)、-0.005(-0.002, -0.009)であり、いずれも大気中粒子状物質濃度の増加によりFVCが有意に低下する傾向が示された。

大気中粒子状物質濃度10 μg/m<sup>3</sup>増加あたりのFEV<sub>1.0</sub>の変化量を図34に示した。学校別の結果では、多くの学校で男女ともに大気汚染物質とFEV<sub>1.0</sub>の間に有意

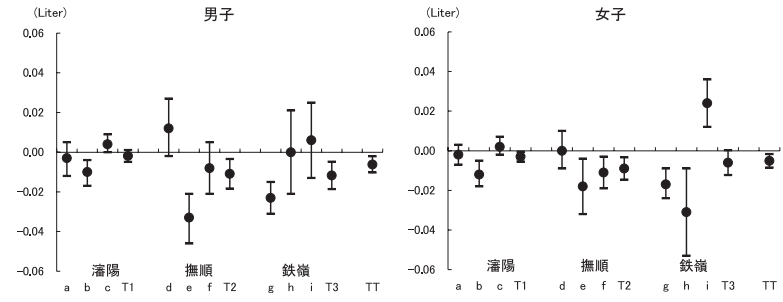
(1) TSP濃度との関連(10μg/m<sup>3</sup>増加あたりのFVC変化量)



(2) PM<sub>7</sub>濃度との関連(10μg/m<sup>3</sup>増加あたりのFVC変化量)



(3) PM<sub>2.5</sub>濃度との関連(10μg/m<sup>3</sup>増加あたりのFVC変化量)



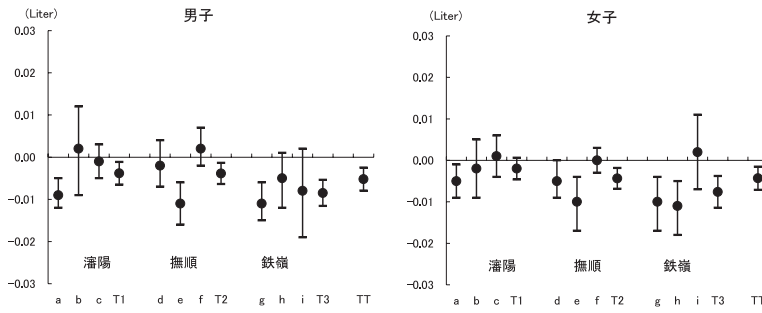
瀋陽	a: 和平小学校	撫順	d: 蓋平小学校	鉄嶺	g: 第十六小学校	3市	TT: 3市9校計
	b: 文芸小学校		e: 法庫小学校		h: 第十三小学校		
	c: 泰山小学校		f: 光明小学校		i: 第八小学校		
	T1: 瀋陽市3校計		T2: 撫順市3校計		T3: 鉄嶺市3校計		

図33 努力性肺活量(FVC)と大気汚染濃度との関連

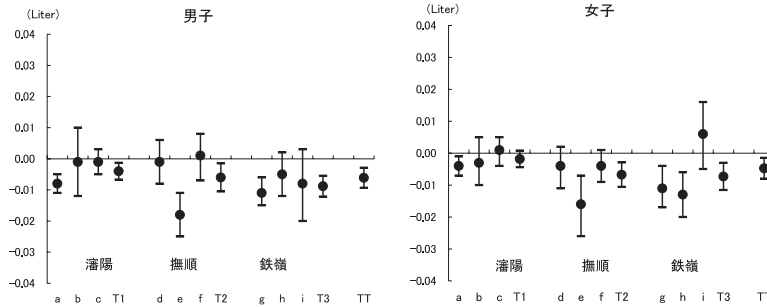
な負の関連が認められたが、鉄嶺市の第八の女子ではPM<sub>2.5</sub>濃度の増加によりFEV<sub>1.0</sub>が有意に増加する関係がみられた。都市別に3校の結果を併合したところ、男女ともにいずれの汚染物質濃度の増加によってもFEV<sub>1.0</sub>が有意に低下する傾向が認められた。3市を併合した結果では、FEV<sub>1.0</sub>の変化は男子TSP 10 μg/m<sup>3</sup>増加あたり-0.005(95%信頼区間-0.003, -0.008)、PM<sub>7</sub> 10 μg/m<sup>3</sup>増加あたり-0.006(-0.003, -0.009)、PM<sub>2.5</sub> 10 μg/m<sup>3</sup>増加あたり-0.009(-0.005, -0.012)、女子ではそれぞれ-0.004(-0.002, -0.007)、-0.005(-0.001, -0.008)、-0.007(-0.003, -0.010)であり、いずれも大気中粒子状物質濃度の増加によりFEV<sub>1.0</sub>が有意に低下する傾向が示され、観察された低下量はFVCよりも大であった。

同様に、大気中粒子状物質濃度とFEV<sub>1.0</sub>%との関連を検討したところ、都市別には瀋陽市の男子ではすべての汚染物質との間に有意な負の関連が認められた。瀋陽市

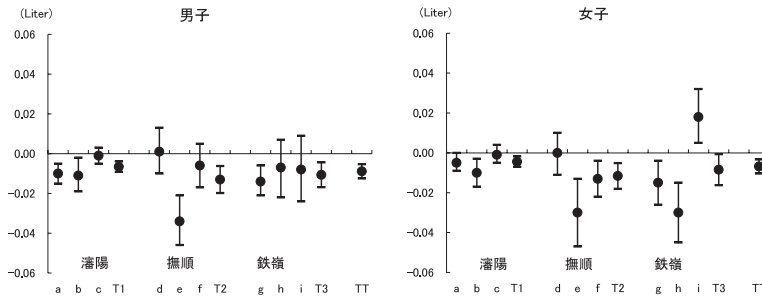
(1) TSP濃度との関連(10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 増加あたりのFEV<sub>1.0</sub>変化量)



(2) PM<sub>7</sub>濃度との関連(10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 増加あたりのFEV<sub>1.0</sub>変化量)



(3) PM<sub>2.5</sub>濃度との関連(10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 増加あたりのFEV<sub>1.0</sub>変化量)



瀋陽 a: 和平小学校	撫順 d: 蓋平小学校	鉄嶺 e: 第十六小学校	3市 TT: 3市9校計
b: 文芸小学校	e: 法庫小学校	h: 第十三小学校	
c: 泰山小学校	f: 光明小学校	i: 第八小学校	
T1: 瀋陽市3校計	T2: 撫順市3校計	T3: 鉄嶺市3校計	

図34 1秒量 (FEV<sub>1.0</sub>) と大気汚染濃度との関連

の女子、撫順市、鉄嶺市ではいずれも有意ではなかった。3市を併合した結果では、FEV<sub>1.0</sub>%は男女ともにいずれの汚染物質との間にも有意な関連はみられなかった。

FEF<sub>50</sub>については、都市別には瀋陽市の男子はTSP, PM<sub>7</sub>, PM<sub>2.5</sub>濃度との間、撫順市の男子はPM<sub>2.5</sub>濃度との間、撫順市の女子はTSP, PM<sub>7</sub>, PM<sub>2.5</sub>濃度との間、鉄嶺市では男女ともにTSP, PM<sub>7</sub>濃度との間に有意な負の関連が認められた。3市を併合した結果は、女子ではTSP濃度、男子ではPM<sub>2.5</sub>濃度との間には有意な負の関連が認められたが、その他の関連は有意ではなかった。

FEF<sub>75</sub>については、都市別には瀋陽市の男子はTSP濃度との間、撫順市の女子、鉄嶺市の女子はTSP, PM<sub>7</sub>濃度との間に有意な負の関連が認められた。3市を併合した結果では男女ともにいずれの汚染物質との間にも有意な関連はみられなかった。

#### (4) 考察

今回の研究は、中国東北地方3都市における冬季の石炭暖房による大気汚染が児童の肺機能に及ぼす影響を評価するため、同一児童を対象として、暖房期をはさんで年4回の肺機能検査を繰り返して実施し、それぞれの時期における大気中粒子状物質濃度との関連を検討した。その結果、暖房を使用する冬季には全ての都市で大気中粒子状物質濃度が高く、多くの学校でFVC, FEV<sub>1.0</sub>をはじめとする肺機能指標が非暖房期に比して低下を示した。

大気汚染が児童の呼吸器症状や肺機能に対して急性および慢性の影響をもたらすことはこれまでに数多く報告されている。急性影響について、Scarlettら<sup>8)</sup>は児童の肺機能値と大気汚染物質濃度を連続31日間にわたって毎日測定し、PM<sub>10</sub>の増加がFVC, FEV<sub>0.75</sub>の低下と関係があることを報告している。慢性影響について、Horakら<sup>9)</sup>は児童に対して3年間にわたって年2回(春と秋)の肺機能検査を実施し、PM<sub>10</sub>がFVC, FEV<sub>1.0</sub>, MEF<sub>25-75</sub>の成長に負の影響をもたらすことを報告している。

しかし、中国東北地方のように、冬季の石炭暖房に伴って生じる季節性大気汚染が

小児の肺機能に及ぼす影響について、同一対象者の肺機能を繰り返し測定することにより検討した報告はない。

今回は暖房期とその前後に4回の肺機能検査を実施したものであり、調査の頻度や期間は上記の先行研究の中間に相当する。小児の肺機能は環境因子だけでなく、性、年齢、身長などの個人属性による影響を受けるため、大気汚染が肺機能に及ぼす影響を正しく評価するためには、これらの要因の関与について考慮しなければならない。今回の対象は小学校の同学年の者に限定したが、同学年であっても年齢が異なっていたため、身長と年齢の影響を統計モデルで調整し、学校別に大気中粒子状物質濃度が肺機能値に及ぼす影響を推定した。

その結果、ほとんどの学校で男女ともに大気中粒子状物質濃度とFVC, FEV<sub>1.0</sub>をはじめとする多くの肺機能値との間に負の関連が認められ、先行研究の結果に一致するものであった。大気中粒子状物質の増加に伴う低下量

はFVCよりもFEV<sub>1.0</sub>のほうが大きかった。一方、鉄嶺市の低汚染地域（第八）では逆に有意な正の関連が認められた肺機能指標もみられた。この理由は明らかではないが、この学校の周辺は大気汚染濃度が低い田園地帯であり、他の地域とは環境が大きく異なっていたことが関係しているのかもしれない。

都市別に3校の結果を併合して解析した結果でも、いずれの都市でも男女ともに大気中粒子状物質濃度の増加に伴って多くの肺機能指標が低下する関係が認められた。さらに全体的な傾向を観察する目的で3都市の結果を併合したところ、男女ともに大気中粒子状物質濃度とFVC、FEV<sub>1.0</sub>の間には有意な負の関連が認められた。この結果は先行研究の結果に矛盾するものではないが、解釈の上ではいくつかの制約がある。いずれの都市においても、冬季は石炭暖房の使用により大気中粒子状物質濃度は増加していたが、石炭暖房以外の大気汚染源は都市によって異なり、粒子状物質の構成成分にも差があると考えられる。また、今回は都市によって調査実施時期が異なっていたことにも留意しなければならない。

今回の結果には以上のようにいくつかの制約はあるが、石炭暖房に伴って冬季の大気汚染濃度が増加する中国東北地方において、冬季の大気中粒子状物質の増加が小児の肺機能に対して負の影響を及ぼしている可能性が示された。いずれの地域においても観察された影響は大きなものではなかったが、これらの影響が短期的なものであるのか、長期に及ぶものであるのかは明らかではない。今回の対象が成長期にある児童であることから、小児の成長に与える影響の有無についてさらに長期的に観察を行うことが必要と考えられる。

粒子状物質の粒径別（TSP、PM<sub>7</sub>、PM<sub>2.5</sub>）に検討したところ、3都市を併合した結果ではFVCとFEV<sub>1.0</sub>はいずれの汚染物質との間にも有意な負の関連が認められ、その程度は閉塞性指標であるFEV<sub>1.0</sub>のほうが大きかった。10 $\mu$ g/m<sup>3</sup>増加あたりのFEV<sub>1.0</sub>変化量はTSP < PM<sub>7</sub> < PM<sub>2.5</sub>であり、粒径が小さい粒子ほど肺機能値に与える影響が大きい可能性が示唆された。大気中の粒子状物質による呼吸器への健康影響を粒径別に比較した研究として、Schwartzら<sup>12)</sup>はこれまでの疫学研究を再解析し、呼吸器症状および肺機能に及ぼす影響は微小粒子の方が粗大粒子よりも大きいことを報告している。Wardら<sup>13)</sup>は、PM<sub>2.5</sub>が呼吸器症状に及ぼす影響はPM<sub>10</sub>に比べて大きいことを報告している。これらの研究は自動車の排ガスが主要な大気汚染源となってい

る地域において行われたものである。今回の結果より、自動車排ガスとならんで石炭燃焼が主要な大気汚染源である中国における粒子状物質の影響についても粒径別に検討する必要性が示された。

冬季に大気中の粒子状物質が増加した背景としては、暖房の使用などによる石炭燃焼だけでなく、黄砂による影響も考慮しなければならない<sup>5)</sup>。黄砂は粗大粒子の占める割合が大きく、微小粒子は少ないとされるが、その健康影響についてはほとんど知られていない。また、今回測定を行った粒子状物質以外にもガス状大気汚染物質の影響についても検証する必要がある。

#### (5) まとめ

石炭暖房に伴って冬季の大気汚染物濃度が増加する中国東北地方の3都市において、大気中の粒子状物質の増加が、小児の肺機能に対して負の影響を及ぼすことが示された。また、粒子状物質の粒径が小さいほど肺機能値に与える影響が大きい可能性が示唆された。観察された影響は比較的小さいが、これらの影響が短期的なものであるのか、長期に及ぶものであるのかは明らかではない。小児の成長に与える影響についてさらに長期的な観察が必要と考えられた。

### 2.4.2 呼吸器症状調査票による慢性影響の評価

#### (1) 目的

中国における大気汚染問題としては、工場からの排出ガスを中心とした大気汚染に加えて、近年自動車排ガスによる大気汚染が懸念されている。一方で、中国東北地方においては、これらの汚染に加えて、都市暖房を石炭燃焼による集中暖房方式に頼ることから、冬期を中心とした浮遊粒子状物質や二酸化硫黄などによる大気汚染が問題となっている。またその濃度も、我が国の環境基準をしばしば大きく超える状況となっている。しかし、その健康被害の状況に関しては、必ずしも十分な情報が得られていない。そこで本研究では、主に冬期暖房による大気汚染の健康影響、特に慢性影響を調べるために、中国東北地方の3都市において質問紙を用いた呼吸器症状調査を実施した。

#### (2) 方法

##### 1) 対象地域

児童を対象とした呼吸器症状調査は、肺機能検査と同

様に、瀋陽市、撫順市、鉄嶺市内において、大気汚染レベルが異なると考えられている3つの小学校に通う児童を対象として行った。小学校名と大気汚染レベルはそれぞれ以下の通りである。ただし、大気汚染レベルは、これまでの大気汚染観測データがないため、各都市の中で比較した場合の区分である。

瀋陽市：和平二小（汚染地域）、文芸一小（中程度）、泰山小（低汚染地域）

撫順市：蓋平小（汚染地域）、法庫小（中程度）、光明小（低汚染地域）

鉄嶺市：第十六小（汚染地域）、第十三小（中程度）、第八小（低汚染地域）

瀋陽市の調査は、2002年1月および2004年秋期に実施した。また撫順市は2002年12月、鉄嶺市は2003年12月に実施した。

## 2) 調査方法

呼吸器症状調査には、ATS-DLD呼吸器症状調査票の中国語版を用いた。調査票に含まれていた質問項目は、児童の呼吸器症状、保護者の呼吸器症状、居住歴、喫煙歴（家庭内喫煙の有無も含む）、暖房方法・燃料などである。

調査実施方法であるが、2001年の瀋陽市の調査と、それ以外では異なっている。2001年瀋陽市では、保護者が学校に集合する機会を利用し、調査員が各学校を訪問して各クラス単位で調査票の質問文を読み上げて、その都度調査票に記入していただいた。

しかし、調査の際の時間的な制約や人的資源の配置などの問題点が指摘されたことから、撫順以降の調査では、保護者の呼吸器症状に関する質問は省くとともに、児童が自宅に持ち帰って保護者が記入し、記入済みの調査票を学校に持ってきてもらって回収するといった方法に変更した。

## 3) 解析方法

以下の定義に基づき、持続性せき、持続性ゼロゼロ・たん、ぜん鳴症状、ぜん息様症状の4症状の有無を求め、各都市間の呼吸器症状有症率を比較する。そして都市の汚染レベルと呼吸器症状との関連性を比較検討する。また、各都市内の小学校間の有症率を比較することで、地域汚染のみならず、局所汚染の影響をも考慮することとした。

瀋陽市内では2回の調査を実施していることから、症状の変化とその要因に関する検討を行う。

統計解析には、統計パッケージSAS (Ver. 8) を用いた。

### 症状の定義

#### 持続性せき：

年に3ヵ月以上も毎日のように（週に4日以上）せきがでる

#### 持続性ゼロゼロ・たん：

年に3ヵ月以上も毎日のように（週に4日以上）胸がゼロゼロしたりたんがでる

#### ぜん鳴症状：

息をするとき、ゼーゼーとかヒューヒューという音がすることがある

#### ぜん息様症状：

医師にぜん息、またはぜん息性気管支炎と言われたことがあり、呼吸困難を伴う発作が過去に2回以上あり、最近2年間の間に発作があるか、または治療を受けたことがある。

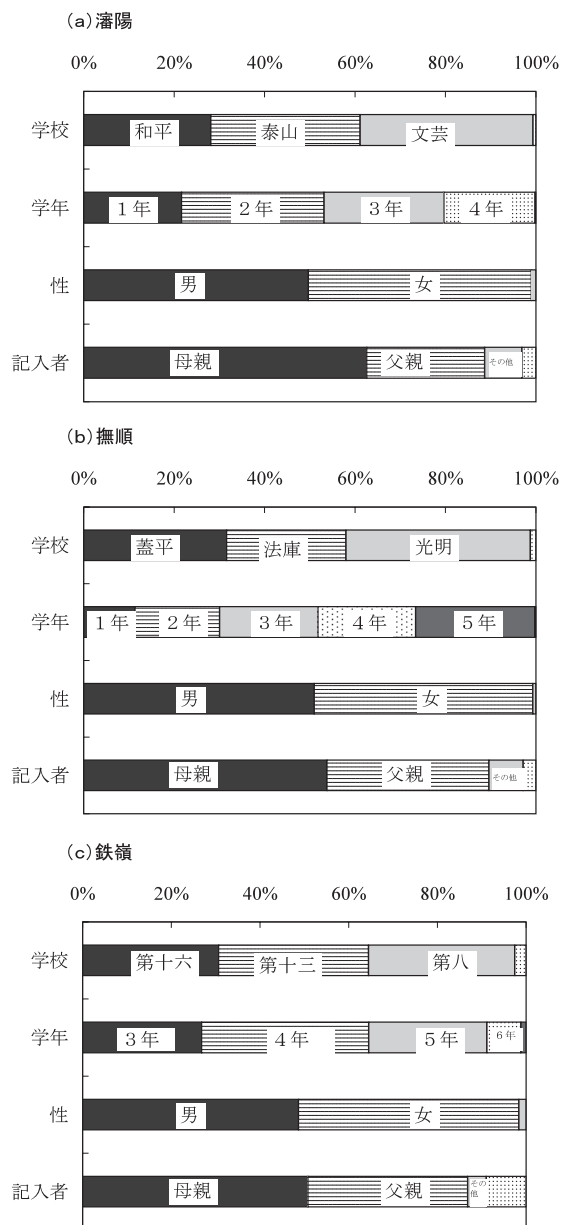


図35 対象者の属性

### (3) 結果と考察

#### 1) 対象者の属性

本報告書作成時点では、まだデータ入力およびデータチェックが十分には終了していない。2004年実施の2回目の瀋陽での調査に関しては、ようやく入力が始まったばかりである。従って、本報告書では2002年1月の瀋陽市から2003年12月の鉄嶺までの入力データを使用した解析結果を報告する。また掲載されている結果・数値は暫定的な集計に基づくものであり、今後、数値が変わる可能性があることを申し添えておく。

各都市の属性集計結果を図35に示す。各都市、各学校ともほぼ全員から調査票を回収することができた。瀋陽市内の調査に関しては、1～4年生の1230名が回収・解析対象者となった。学校別の内訳では、和平二小が28.1%、文芸一小が38.2%、泰山小が33.0%であった。学年別では1年が21.6%、2年が31.5%、3年が26.5%、4年が20.2%であった。性別は、男が49.7%、女が49.3%であった。記入者は母親が62.6%となっていた。

撫順市に関しては、1～5年生の1745人分が回収できた。学校別では蓋平小が31.6%、法庫小が26.4%、光明小が40.8%であった。学年別では1年生が11.3%、2年生18.7%、3年生21.7%、4年生21.6%、5年生26.4%であった。性別では男が51.0%、女が48.3%であった。記入者は53.8%が母親であった。

鉄嶺市に関しては、3～6年生1464人分の調査票が回収できた。学校別では、第十六小が30.7%、第十三小が33.8%、第八小が33.0%であった。学年は、3年生が26.8%、4年生が37.7%、5年生が26.6%、6年生が7.7%であり、性別では男が48.7%、女が49.7%であった。記入者に関しては、50.8%が母親であった。

都市により、対象となる学年に若干の差が認められていた。また各都市内では、それぞれの学校の規模が異なるため、学校ごとの調査参加児童数に差が認められていた。瀋陽では自宅に持ち帰らず、保護者に学校に来てもらって記入したことが原因と考えられるが、瀋陽調査票の記入者の母親の割合が他に比べて高かった。

#### 2) 呼吸器症状の有症率

図36に各都市ごとの呼吸器症状有症率を示す。持続性せきについては瀋陽3.2%、撫順5.3%、鉄嶺1.8%、持続性ゼロゼロ・たんについては瀋陽1.8%、撫順3.0%、鉄嶺0.8%であった。ぜん鳴症状は瀋陽が4.2%、撫順6.6%、鉄嶺1.4%、ぜん息様症状は瀋陽が0.7%、撫順が1.6%、鉄嶺が

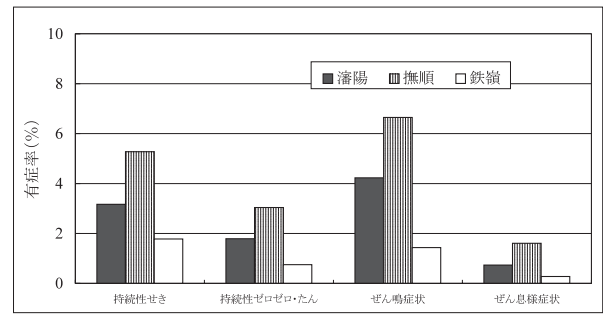


図36 都市別呼吸器症状有症率

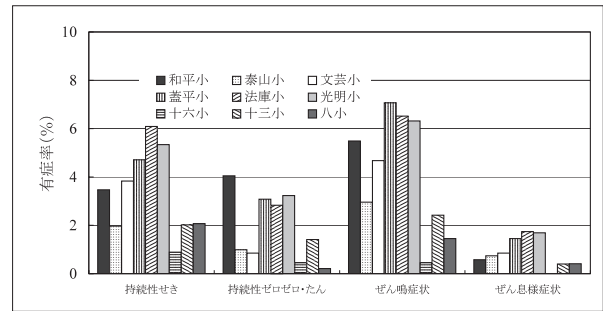


図37 学校別呼吸器症状有症率

0.3%であった。いずれの症状に関しても、呼吸器症状有症率は撫順、瀋陽、鉄嶺の順であった。3都市に設定した調査地域の大气汚染レベルも、ほぼこの順であることから、大气汚染と呼吸器症状との関連性が疑われる。

図37には、学校別に有症率を示した。撫順の3つの小学校における呼吸器症状有症率が常に高い値を示しているが、瀋陽の和平二小の有症率が撫順の3小学校とほぼ同等であることも見受けられる。一方で瀋陽の非汚染地域と考えられる泰山小の有症率は、鉄嶺の有症率とほぼ同じ値を示すことも認められる。瀋陽市内においては、市内の大气汚染度と学校別の呼吸器症状有症率はほぼ同じ一致をしているが、他の都市では、必ずしも大气汚染度と有症率の大きさは対応していなかった。

表12は、都市別・喫煙の有無別に呼吸器症状有症率を比較したものである。瀋陽においては家庭内喫煙がない児童の方が呼吸器症状有症率は高い傾向が認められたが、その他の都市については、ほぼ同じくらいか、喫煙のある児童の方が、有症率が高くなっていた。

表12 都市別・家庭内喫煙状況別呼吸器症状有症率

		持続性せき	持続性ゼロゼロ・たん	ぜん鳴症状	ぜん息様症状
瀋陽	喫煙有	2.0	1.7	3.7	0.7
	喫煙無	3.6	2.0	6.0	1.1
撫順	喫煙有	5.0	3.1	7.0	1.7
	喫煙無	5.8	3.0	6.6	1.5
鉄嶺	喫煙有	1.8	1.2	1.8	0.4
	喫煙無	1.0	0.2	1.2	0.2

単位：%



表13 都市・家庭内喫煙を共変量としたロジスティック回帰分析結果（調整済みオッズ比）

	持続性せき	持続性ゼロゼロ・たん	ぜん鳴症状	ぜん息様症状
瀋陽 vs 鉄嶺	2.01 (1.11-3.62)	2.66 (1.23-5.74)	2.40 (2.00-5.75)	3.10 (0.95-10.09)
撫順 vs 鉄嶺	3.89 (2.35-6.45)	4.24 (2.14-8.40)	4.81 (2.97-7.79)	5.55 (1.93-15.95)
家庭内喫煙有 vs 無	0.89 (0.63-1.28)	1.25 (0.77-2.01)	0.95 (0.70-1.30)	1.09 (0.56-2.10)

かつこ内は95%信頼区間

各呼吸器症状の有無を目的変数とし、都市（瀋陽、撫順、鉄嶺）と家庭内喫煙の有無を共変量とするロジスティック回帰分析を行ったところ、表13のような結果が得られた。ロジスティック回帰分析によると、家庭内喫煙の影響はほとんど認められず、都市間での有症率の差が認められていた。特に撫順と鉄嶺の間では各症状ともオッズ比で4～5程度の値、かつ有意差が認められ有症率に大きな差があることが示唆された。

中国東北部における主たる大気汚染源は地域暖房のための石炭燃焼であり、暖房期である冬季の大気汚染度は、日本に比べてひどいものと考えてよい。しかし、島ら（2003）が我が国で児童を対象に行った調査（追跡調査の1年目）では、ぜん息様症状有症率は沿道部で8.5%、非沿道部で7.9%、田園部で6.1%、またぜん鳴症状はそれぞれ8.5%、7.1%、3.9%と報告している<sup>14</sup>。さらには Nicolai らが ISAAC 質問票を用いてドイツ児童を対象に調査では、ぜん息様症状5.1%、ぜん鳴症状8.8%と報告されており、今回の結果よりも高い有症率が得られている<sup>15</sup>。これらの調査結果と比べると、中国では高い汚染レベルにもかかわらず、現状の呼吸器有症率は全般的にさほど高いものではなく、ぜん息に関してはかなり低い値であると考えられる。有症率が低いことに加えて、都市間で調査方法に違いが認められることなどから、呼吸器症状の有無、さらには都市間での違いをもたらしたものが大気汚染であるかに関しては、さらなる調査の必要性もあると考える。

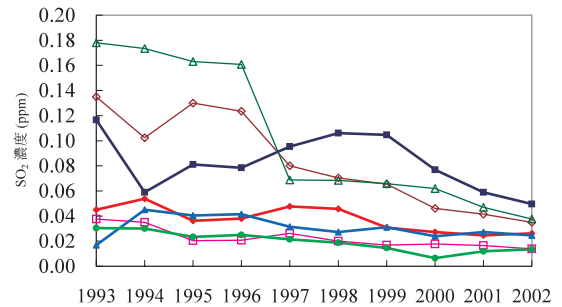
また、瀋陽市では最終年度（2005年1月）に2回目の呼吸器症状調査を実施したが、まだデータ処理が終わっていないため、本報告書では検討できていない。この2回目の結果を加えることにより、今後横断的な都市間比較だけではなく、呼吸器症状有症率が増えているのかどうか、さらには瀋陽市内の大気汚染レベルの変化との関連性はどうか、といった点について検討し、中国東北部における大気汚染と呼吸器症状の関連性を、縦断的な観点からもさらに検討していきたい。

## 2.5 まとめ（対策への提言）

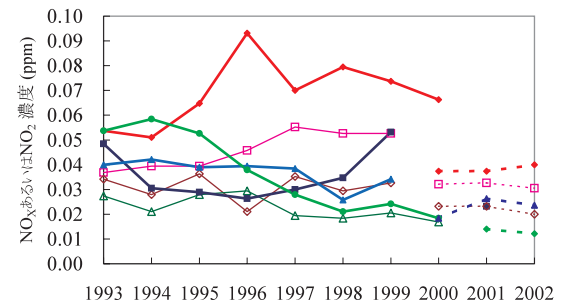
中国東北部地方の3都市における調査の結果、いずれの都市においても高濃度のPM<sub>10</sub>、PM<sub>2.5</sub>濃度が確認され、特に冬季には石炭による集中暖房のためにさらにPM<sub>2.5</sub>濃度が上昇している実態が明らかになった。PMの高濃度は、屋外環境だけではなく、地域住民の家屋内の濃度と個人曝露濃度に反映し、特に冬季のPM<sub>2.5</sub>曝露が高くなっていったことが明らかになった。

浮遊粒子中に含まれる有害成分であるPAHや、中国では初めて定量されたNPAH濃度は微小粒子側に多く含まれることが確認された。暖房期には粒子重量当たりのPAH濃度が増加するため、大気体積当たりのPAH濃度は相乗的に増加した。また、大気浮遊粒子のPAH、NPAH

(1) 二酸化硫黄(SO<sub>2</sub>)濃度



(2) 窒素酸化物(NO<sub>x</sub>)濃度



(3) 総浮遊粒子(TSP)濃度

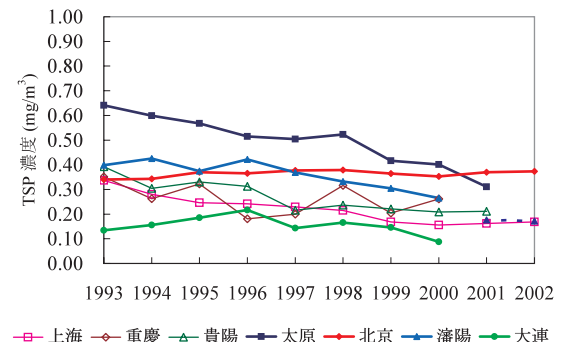


図38 中国大都市における大気汚染物質年平均濃度の変化  
(2) の2000年以降の破線は二酸化窒素(NO<sub>2</sub>)濃度  
(3) の2001年以降の破線はAPIから算定した瀋陽のPM<sub>10</sub>濃度

成分の分析や元素分析の結果から、冬季のPM濃度上昇が石炭燃焼由来であること、撫順市においては暖房用の燃焼とは異なる発生源があることなどが明らかになった。

こうした現状の大気汚染による健康影響について、児童を対象に調査した結果、年に4回繰り返して行った継続的な肺機能検査では結果から全体的な傾向としてわずかではあるが暖房期に肺呼吸機能値の低下が観察され、特に閉塞性の指標であるFEV<sub>1.0</sub>の低下量が大きかった。また、症状調査から大気汚染による呼吸器症状に慢性的な影響が出ていることも示唆された。ただし、各対象都市内に大気汚染レベルが異なると想定して設定した3地域間でのPM濃度の差は小さく、影響についてもはっきりした差は見られなかった。

図38に、中国環境年鑑に公表されている大都市の大気汚染濃度の年平均値から、いくつかの都市の経年的な推移を示した（二酸化硫黄濃度と窒素酸化物濃度はppm表示に変更した）。今回対象とした瀋陽市の大気汚染のレベルはこれらの中国の大都市の中ではほぼ中間的なレベルといえる。全体的にはSO<sub>2</sub>濃度とTSP濃度は低下傾向にあるといえるが、窒素酸化物濃度は、貴陽市や大連市で低下傾向が見られる以外は横ばいか上昇傾向が見られる。北部の太原市、北京市、瀋陽市、大連市は、暖房用石炭燃焼により冬季はTSP濃度とともにSO<sub>2</sub>濃度が上昇するため、上海市、重慶市、貴陽市など南部の都市に対して、年平均濃度もその分高くなる。重慶市、貴陽市、太原市は中国の中でも高濃度大気汚染の都市として有名であるが、いずれも内陸にあり、工場から無処理で排出される煤じんが主な大気汚染源とされる。このうち、重慶、貴陽、大連では、環境モデル都市として日本の資金援助や技術支援も受けて主要な汚染源対策やモニタリング・システムの構築が進められており、90年代後半からSO<sub>2</sub>濃度は急速に低下してきたが、2002年においても上海市と大連市以外は、中国の環境基準（濃度制限値）である0.06mg/m<sup>3</sup>（ほぼ0.02ppm）を上回っている。

この研究で対象とした3都市のPM<sub>10</sub>濃度は、非暖房期においても0.05~0.10 mg/m<sup>3</sup>レベルと高濃度であるが、暖房期はさらに上昇しており、健康への影響も確認された。さいわい現在確認された症状や影響は小さなものであったが、今後は影響をこれ以上大きくさせない対策を進めることが重要である。瀋陽市のPM<sub>10</sub>濃度の年平均濃度の推定値は2.2.4項で示したように、まだ中国の環境基準を超えているものの年々低下してきている。こ

れには、年間市内の小規模な煙突を1000本以上取り壊して集中暖房用の施設の集中化、大型化を進めている効果が考えられる。今後も暖房は石炭に依存するため、燃焼施設の集中化と同時に煤じんを除去する装置（集じん装置）の設置を進めてもらいたい。また、撫順市では工場地帯からの煤じんでは非暖房期でもPMは高濃度となり、児童の呼吸器系への影響も3都市の中では一番危惧される結果となった。環境モデル都市の先例に倣って早急に集じん対策を進めることが望まれる。

3都市の中では最も自動車交通量が多く市内で渋滞が常態化している瀋陽市でも、PMの測定結果からは地域の大気汚染濃度を明らかに上昇させるまでにはなっていないことが分かった。瀋陽市では市中心部のトラック進入を禁止しているの、市内を走行するディーゼル車はバスと一部の乗用車だけである。また、調査開始から今日までの数年間に、信号機の設置、一方通行規制、バス・タクシー専用路線の確保など、道路交通の大きな改善が見られた。しかし、こうした基盤の整備を超えて、中国の多くの都市では自家用車等の急速な普及が進み、さらにエタノール混入ガソリンの普及も計画されている。今後は特に沿道に焦点を当てた大気汚染の自動モニタリング体制の整備が望まれる。

また、中国においても都市大気環境への国民の関心が高まっており、国家としても日々的大都市の大気汚染指標（API）をインターネットで公開するまでになっている。現在のAPIは、各都市内に複数ある測定地点の平均濃度から計算しているが、今後はそれぞれの地点の各測定項目の測定値を詳細に提示することで、さらに国民の関心を高め、大気環境の改善の推進力とすることを期待したい。

## 謝辞

本研究の実施に当たっては、肺機能検査などを担当いただいた中国医科大学医務部鄭全美教授をはじめとするスタッフ、同大学公共衛生学院の大学院生、対象都市の環境測定を担当いただいた瀋陽市、撫順市、鉄嶺市疾病預防控制中心（CDC）のスタッフ、さらに各小学校関係者、地域住民の皆様にも多大な協力をいただきました。また、試料の分析やデータ解析に協力いただいた金沢大学、千葉大学の大学院生の皆様に対し、ここに感謝致します。

## 引用文献

- 1) Tamura K., Ando M., Sagai M., Matsumoto Y. (1996) Estimation of levels of personal exposure to suspended particulate matter and nitrogen dioxide in Tokyo, *Environ. Sci.*, 4, 37-51.
- 2) Funasaka K., Miyazaki T., Tsuruho K., Tamura K., Mizuno T., Kuroda K. (2000) Relationships between Indoor and Outdoor Carbonaceous Particulate at Roadside Households, *Environ. Pollution*, 110, 127-134.
- 3) Tang N., Oguri M., Watanabe Y., Tabata M., Mishukov V.F., Sergienko V., Toriba A., Kizu R., Hayakawa K. (2002) Comparison of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons in Vladivostok, Toyama and Kanazawa, *Bull. Japan Sea Res. Inst., Kanazawa Univ.*, 33, 77-86.
- 4) Hayakawa K., Murahashi T., Butoh M., Miyazaki M. (1995) Determination of 1,3-, 1,6-, and 1,8-dinitropyrenes and 1-nitropyrene in urban air by high-performance liquid chromatography using chemiluminescence detection, *Environ. Sci. Technol.*, 29, 928-932.
- 5) Chen B., Hong C., Kan H. (2004) Exposures and health outcomes from outdoor air pollutions in China. *Toxicology*; 198, 291-300.
- 6) Xu Z., Yu D., Jing L., Xu X. (2000) Air pollution and daily mortality in Shenyang, China. *Arch Environ. Health*, 55, 115-20.
- 7) Jalaludin BB., OToole BI., Leeder SR. (2004) Acute effects of urban ambient air pollution on respiratory symptoms, asthma medication use, and doctor visits for asthma in a cohort of Australian children. *Environ. Res.*, 95, 32-42.
- 8) Scarlet JF., Abbott KJ., Peacock JL., Strachan DP., Anderson HR. (1996) Acute effects of summer air pollution on respiratory function in primary school children in southern England. *Thorax*; 51, 1109-14.
- 9) Horak F. Jr, Studnicka M., Gartner C., Spengler JD., Tauber E., Urbanek R., *et al.* (2002) Particulate matter and lung function growth in children: a 3-yr follow-up study in Austrian schoolchildren. *Eur. Respir. J.*, 19, 838-45.
- 10) Gauderman WJ., Avol E., Gilliland F., Vora H., Thomas D., Berhane K., *et al.* (2004) The effect of air pollution on lung development from 10 to 18 year of age. *N. Engl. J. Med.*, 351, 1057-67.
- 11) Zhang JJ., Hu W., Wei F., Wu G., Korn LR, Chapman RS. (2002) Children's respiratory morbidity prevalence in relation to air pollution in four Chinese cities. *Environ. Health Perspect*, 110, 961-7.
- 12) Schwartz J., Neas LM. (2000) Fine particles are more strongly associated than coarse particles with acute respiratory health effects in schoolchildren. *Epidemiology*, 11, 6-10.
- 13) Ward DJ., Ayres JG. (2004) Particulate air pollution and panel studies in children: a systematic review. *Occup. Environ. Med.*, 61, e1.3.
- 14) Shima M., Nitta Y., Adachi M. (2003) Traffic -related air pollution and respiratory symptoms in children living along trunk roads in Chiba Prefecture, Japan. *J. Epidemiol.*, 13, 108-119.
- 15) Nicolai T., Carr D., Weiland SK., Duhme H., von Ehrenstein O., Wagner C., von Mutius. (2003) Urban traffic and pollutant exposure related to respiratory outcomes and atopy in a large sample of children, *Eur Respir J*, 21, 956-963.

**[ 資 料 ]**

## 研究の組織と研究課題の構成

### 1 研究の組織

#### [A 研究担当者]

環境健康研究領域

領域長 高野裕久

疫学・国際保健研究室

田村憲治

新垣たずさ

村上義孝

小野雅司

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 西川雅高

NIES ポスドクフェロー 森 育子

PM2.5・DEP 研究プロジェクト

主任研究官 松本幸雄

NIES ポスドクフェロー 山崎 新

#### [B 客員研究員]

島 正之 (千葉大学, 兵庫医科大学) (平成13~16年度)

中井里史 (横浜国立大学) (平成13~16年度)

早川和一 (金沢大学) (平成13年度)

櫻井四郎 (大妻女子大学) (平成13~16年度)

孫 貴範 (中国医科大学) (平成13年度)

#### [C 共同研究員]

唐 寧 (金沢大学) (平成13年度)

### 2 研究課題と担当者 (\*客員研究員)

#### (1) 都市大気中粒子濃度の季節変動と粒径分布

田村憲治・森 育子・西川雅高・唐 寧・孫 貴範\*

#### (2) 3都市住民の生活環境におけるPM曝露

田村憲治・新垣たずさ・唐 寧・櫻井四郎\*

#### (3) 3都市の大気粉じん中多環芳香族炭化水素及びニトロ多環芳香族炭化水素

早川和一\*・唐 寧

#### (4) 学童に対する都市大気汚染の呼吸器影響

島 正之\*・中井里史\*・櫻井四郎\*・村上義孝・山崎 新・孫 貴範\*

## 研究成果発表一覧

### 1 誌上発表

発表者・題目・掲載誌・巻(号)・頁・刊年

Sun X., Sun G., Tamura K., Tang N., Dong L., Zhang X. : Monitoring analysis on concentration of atmospheric particle and PAHs/NPAHs in Shenyang, Chinese J. Public Health, 19 : 800-802, 2003

Tang N., Taga R., Hattori T., Tamura K., Toriba A., Kizu R., Hayakawa K. : Determination of atmospheric nitrobenzanthrones by high-performance liquid chromatography with chemiluminescence detection, Anal. Sci., 20 : 119-123, 2004

Taga R., Tang N., Hattori T., Tamura K., Sakai S., Toriba A., Kizu R., Hayakawa K.: Direct-acting mutagenicity of extracts of coal burning-derived particulates and contribution of nitropolycyclic aromatic hydrocarbons, Mutat. Res., 581:91-95, 2005

Lin G., Sun G., Tamura K., Tang N., Song L., Zhai W. : Analysis on concentrations of atmospheric particles and PAHs/NPAHs in Fushn, P.R.China, Chinese J. Public Health , 21: 604-606, 2005

Tang N., Hattori T., Taga R., Tamura K., Kakimoto H., Mishukov V. F., Toriba T., Kizu R., Hayakawa K. : Study on composition of polycyclic aromatic hydrocarbons and nitropolycyclic aromatic hydrocarbons in urban airborne particulates and their sources in the Pan-Japan Sea countries, Atmos. Environ., 39: 5817-5826, 2005

## 2 口頭発表

発表者・題目・学会等名称・開催都市名・年月

- 田村憲治, 中井里史, 中西亮大: 微小粒子状物質の健康影響に関する疫学研究 ー新しいPM2.5個人サンプラーによる測定法の検討 ー, 第42回大気環境学会年会, 北九州, 2001. 10
- 島 正之, 安藤道子, 田村憲治, 中井里史: 微小粒子状物質の健康影響に関する疫学研究 ー病院内における PM2.5濃度と喘息症状との関連の予備的検討 ー, 第42回大気環境学会年会, 北九州, 2001. 10
- 中西亮大, 中井里史, 田村憲治: 微小粒子状物質の健康影響に関する疫学研究 ー個人曝露測定に対する予備的検討 (1) 調査方法に関する検討 ー, 第42回大気環境学会年会, 北九州, 2001. 10
- 中井里史, 中西亮大, 田村憲治: 微小粒子状物質の健康影響に関する疫学研究 ー個人曝露測定に対する予備的検討 (2) 共存汚染物質も含めた検討 ー, 第42回大気環境学会年会, 北九州, 2001. 10
- 田村憲治, 島 正之, 中井里史: 中国都市大気汚染による健康影響研究 (1) 研究計画および呼吸器影響を中心とした調査概要, 第43回大気環境学会, 府中, 2002. 9
- 唐 寧, 早川和一, 田村憲治: 中国都市大気汚染による健康影響研究 (2) PM の粒径別評価と個人曝露に関する研究概要, 第43回大気環境学会年会, 東京, 2002. 9
- 田村憲治, 新垣たずさ, 櫻井四郎, 島 正之, 中井里史, 早川和一, 唐 寧, 孫 貴範: 中国における都市大気汚染の健康影響 ー瀋陽市における都市大気汚染調査の概要, 第73回日本衛生学会総会, 大分, 2003. 3
- 島 正之, 笠松淳也, 田村憲治, 新垣たずさ, 孫 貴範: 中国における都市大気汚染の健康影響 ー瀋陽市における学童の肺機能の変化, 第73回日本衛生学会総会, 大分, 2003. 3
- 唐 寧, 田村憲治, 服部哲幸, 多賀里奈, 鳥羽 陽, 木津良一, 早川和一: 中国瀋陽における大気中多環芳香族炭化水素及びニトロ多環芳香族炭化水素の由来について, 第44回大気環境学会年会, 京都, 2003. 9
- 田村憲治, 中井里史: 微小粒子状物質の健康影響に関する疫学研究 ー個人曝露評価のための家屋内外濃度測定 (1) 調査概要, 第44回大気環境学会, 京都, 2003. 9
- 五十幡大, 中井里史, 田村憲治, 村上義孝, 山崎 新, 松木秀明: 微小粒子状物質の健康影響に関する疫学研究 ー個人曝露評価のための家屋内外濃度測定 (2) 結果報告, 第44回大気環境学会, 京都, 2003. 9
- 島 正之, 田村憲治: 微小粒子状物質の健康影響に関する疫学研究 ー微小粒子が小学生の呼吸器に及ぼす急性影響の検討 ー, 第44回大気環境学会, 京都, 2003. 9
- Tang N., Tamura K., Hattori T., Taga R., Sun G.F., Mishukov V. F., Sergineko V., Toriba A., Kizu K., Hayakawa R, K. : Characteristics of Atmospheric Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Nitropolycyclic Aromatic Hydrocarbons in Shenyang, Vladivostok and Kanazawa, 2nd International Workshop on Sandstorms and Associated Dustfall, Nagoya, 2003. 11
- 唐 寧, 田村憲治, 多賀里奈, 服部哲幸, 鳥羽 陽, 木津良一, 早川和一: 中国瀋陽の大気中における多環芳香族炭化水素及びニトロ多環芳香族炭化水素の発生源について, 10th Asian International Symposium on Ecotechnology (ASET10), 富山, 2003. 11
- Tang N., Taga R., Hattori T., Toriba A., Kizu R., Hayakawa K., Tamura K., Kakimoto H.: Comparison of composition of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons and nitropolycyclic aromatic hydrocarbons in east Asian cities, Kanazawa University COE-IICRC International Symposium International Symposium on Environmental Management -Air pollution and urban waste management and related policy issues-, kanazawa, 2004. 2
- Tamura K., Shima M., Tang N., Hayakawa K., Sun G.: Air pollution and its health effects in China, Kanazawa University COE-IICRC International Symposium International Symposium on Environmental Management -Air pollution and urban waste management and related policy issues-, kanazawa, 2004. 2
- 唐 寧, 田村憲治, 多賀里奈, 服部哲幸, 鳥羽 陽, 木津良一, 早川和一: 東アジアの都市における大気中多環芳香族炭化水素及びニトロ多環芳香族炭化水素の特徴, 日本薬学会第124年会, 大阪, 2004. 3
- 田村憲治, 櫻井四郎, 島 正之, 中井里史, 早川和一, 唐 寧, 孫 貴範: 中国における都市大気汚染の健康影響 ー撫順市における大気粉じんの状況 ー, 第74回日本衛生学会総会, 東京, 2004. 3
- 島 正之, 笠松淳也, 田村憲治, 孫 貴範: 中国における都市大気汚染の健康影響 ー撫順市における学童の肺機能の変化 ー: 第74回日本衛生学会総会, 東京, 2004. 3
- Tang N., Hattori T., Taga R., Tamura K., Toriba A., Kizu R., Hayakawa K. : Study on Composition of Aromatic Hydrocarbons and Their Contributors in Shenyang, Fushun and Kanazawa. China-Japan Joint Symposium on Environmental Chemistry, 2004, Beijing, China. 2004. 10

服部哲幸, 唐 寧, 田村憲治, 鳥羽 陽, 木津良一, 早川和一: 東アジアの都市における大気中多環芳香族炭化水素及びニトロ多環芳香族炭化水素の組成と主要発生源について, フォーラム2004: 衛生薬学・環境トキシコロジー, 千葉, 2004. 10

田村憲治, 中井里史: 微小粒子状物質の健康影響に関する疫学研究 一個人曝露評価のための家屋内外濃度測定 (3) 春季・冬季調査結果, 第45回大気環境学会, 秋田, 2004. 10

田村憲治, 村上義孝, 山崎 新, 中井里史: 微小粒子状物質の健康影響に関する疫学研究 一個人曝露評価のための家屋内外濃度測定 (4) 個人曝露予備調査結果, 第45回大気環境学会, 秋田, 2004. 10

多賀里奈, 唐 寧, 服部哲幸, 五十嵐一彦, 酒井茂克, 田村憲治, 鳥羽 陽, 木津良一, 早川和一: 大気中変異原性への多環芳香族炭化水素及びニトロ多環芳香族炭化水素の寄与, 第33回日本環境変異原学会, 長崎, 2004. 11

Hattori, T., Tang, N., Tamura, K., Toriba, A., Kizu, R., Hayakawa, K.: Compositions and Main Contributors of Atmospheric Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Nitropolycyclic Aromatic Hydrocarbons in East Asian Cities, 11th Asian International Symposium on Ecotechnology (ASET11) Toyama, 2004. 12

服部哲幸, 唐 寧, 銚田朱里, 田村憲治, 鳥羽 陽, 木津良一, 早川和一: 中国3都市における大気中多環芳香族炭化水素及びニトロ多環芳香族炭化水素の組成と主要発生源について, 日本学術振興会科学研究費補助金基盤研究岩井正雄研究班主催公開学術フォーラム「多環芳香族炭化水素 (PAHs) とニトロ多環芳香族化合物 (N-PAHs) の大気化学と反応」, 富山, 2005. 3

服部哲幸, 唐 寧, 銚田朱里, 田村憲治, 鳥羽 陽, 木津良一, 早川和一: 中国3都市における大気中多環芳香族炭化水素及びニトロ多環芳香族炭化水素の比較, 日本薬学会第125年会, 東京, 2005. 3

島 正之, 田村憲治, 孫 貴範: 中国における都市大気汚染の健康影響 一鉄嶺市における学童の肺機能の変化 一, 第75回日本衛生学会総会, 新潟, 2005. 3

田村憲治, 新垣たずさ, 櫻井四郎, 島 正之, 中井里史, 早川和一, 唐 寧, 孫 貴範: 中国における都市大気汚染の健康影響 一鉄嶺市における大気粉じんの状況 一, 第75回日本衛生学会総会, 新潟, 2005. 3

新垣たずさ, 田村憲治, 中井里史: 生活環境における微小粒子状物質の個人曝露評価, 第75回日本衛生学会総会, 新潟, 2005. 3

服部哲幸, 唐 寧, 田村憲治, 鳥羽 陽, 早川和一: 中国3都市における大気中多環芳香族炭化水素及びニトロ多環芳香族炭化水素の比較, 第14回環境化学討論会, 大阪, 2005. 6

唐 寧, 田村憲治, 服部哲幸, 楊 小陽, 鳥羽 陽, 早川和一: 東アジアの都市における大気粉じん中多環芳香族化合物の分布と主要発生源, 第46回大気環境学会, 名古屋, 2005. 9

島 正之, 村上義孝, 山崎 新, 田村憲治: 中国東北地方における大気汚染が学童の肺機能に及ぼす影響 (1) 大気汚染濃度を統計モデルに取り入れた解析, 第46回大気環境学会, 名古屋, 2005. 9

村上義孝, 山崎 新, 島 正之, 田村憲治: 中国東北地方における大気汚染が学童の肺機能に及ぼす影響 (2) 季節パラメータと大気汚染濃度の相関分析, 第46回大気環境学会, 名古屋, 2005. 9

服部哲幸, 唐 寧, 田村憲治, 五十嵐一彦, 楊 小陽, 鳥羽 陽, 早川和一: 東アジアの都市大気粉じん中多環芳香族炭化水素及びニトロ多環芳香族炭化水素及び主要発生源について, フォーラム2005, 徳島, 2005. 10



REPORT OF SPECIAL RESEARCH FROM  
THE NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES, JAPAN

**国立環境研究所特別研究報告**

SR - 64 - 2005

---

平成17年12月28日発行

**編 集 国立環境研究所 編集委員会**

**発 行 独立行政法人 国立環境研究所**

〒305-8506 茨城県つくば市小野川16番2  
電話 029-850-2343 (ダイヤルイン)

---

**印 刷 株式会社コームラ**

〒501-2517 岐阜市三輪プリントピア3

Published by the National Institute for Environmental Studies  
16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305-8506 Japan  
December 2005

---

**無断転載を禁じます**

