

(13) 大気汚染常時監視測定局のNO_x 測定値を用いた
札幌市におけるディーゼル排気微粒子に起因する発ガンリスクの推定

Estimation of Cancer Risk from Diesel Exhaust Particle (DEP)
Based on NO_x Data at Air Monitoring Stations in Sapporo, Japan

加藤 秀樹*, 村尾 直人*, 山形 定*, 太田 幸雄*
KATO Hideki*, MURAO Naoto*, YAMAGATA Sadamu*, OHTA Sachio*

Abstract; Cancer risk from diesel exhaust particle (DEP) was estimated using data collected at ambient and roadside air monitoring stations in Sapporo. DEP concentrations were calculated based on the three assumptions: i) 90% of ambient elemental carbon (EC) originate from DEP, ii) 40% of DEP consists of EC, and iii) Human exposed DEP concentration is 80% of ambient DEP concentration. The cancer risks from polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and nitro-polycyclic aromatic hydrocarbons (NPAHs) were compared to the cancer risk from DEP (1.3×10^{-3} in summer and 1.5×10^{-3} in winter). The sum of the cancer risks from five PAHs and three NPAHs (1.1×10^{-7} in summer and 4.1×10^{-7} in winter) was much less than that from DEP. The correlation between EC and available data (NO_x and SPM) at the air monitoring station in Sapporo was examined. EC and NO_x showed higher correlations ($R^2=0.583$ (summer), 0.775 (winter)) than EC and SPM. DEP cancer risks were calculated for each air monitoring stations with the regression between EC and NO_x. The risks for the ambient air monitoring stations and roadside air monitoring stations ranged from 8.4×10^{-4} to 1.5×10^{-3} and 1.4×10^{-3} to 2.5×10^{-3} , respectively.

KEYWORDS; Diesel Exhaust Particle (DEP), cancer risk, EC, NO_x, PAH

1. はじめに

ディーゼル排気微粒子 (DEP) に起因する健康影響が懸念されている。DEP を直接評価することが難しいために、岩井、内山¹⁾ や脇野ら²⁾ によって、全国に設置されている大気汚染測定局の浮遊粒子状物質濃度 (SPM) を用いた日本全国のディーゼル排気微粒子による肺ガンリスク試算が行われた。岩井、内山¹⁾ によると日本の年間リスクは、平均寿命を 75 歳と仮定したとき、年間 5,277 (1,143~21,109) 人と推定され、1996 年の全国肺ガン死亡数の 11.5 (2.5~46.2) %に相当するとされている。

しかし、SPM 濃度から DEP 暴露量を推定する際に全国一律の回帰式を適用した場合、特に SPM が低濃度の地域では回帰直線から偏った値を示すことがあることから、気象条件や発生源の状況をふまえて地域別に DEP 暴露量評価を検討する必要がある。

また、California-EPA の報告によると³⁾ DEP の発ガンユニットリスクは、 3.0×10^{-4} とされているが、DEP に含まれている多環芳香族炭化水素 (PAH) やニトロアレーン (NPAH) にも高い発ガンユニットリスクを持つ物質が報告されている。例えば Benzol[a]pyrene は 1.1×10^{-3} 、1,6-dinitropyrene は 1.1×10^{-2} と高いユニットリスクを持つ。したがって DEP 中の個々の有害物質に起因する健康影響も検討する必要がある。

*北海道大学大学院工学研究科環境資源工学専攻 (Division of Environmental Resources Eng., Graduate school of Eng., Hokkaido University)

そこで本研究では、人口 180 万人を越える大都市でありながら市内に大きな工業地帯をもたないために自動車からの排出物質が主要な大気汚染物質であると考えられている札幌市を研究対象とし、まずはじめに、夏期、冬期の 2 期にわたって PM_{2.0}、エレメンタルカーボン (EC)、PAH、NPAH の観測を行い、DEP に起因する発ガンリスクと PAH、NPAH に起因する発ガンリスクについて比較検討を行った。次に、札幌市内に設置された大気汚染測定局のデータと本研究の観測結果を用いて、測定局データから DEP 暴露濃度を算出する方法について検討を行い、札幌市における DEP に起因する発ガンリスクの分布を試算した。

2. 観測と分析

2. 1 観測

北海道大学工学部 (6 階建) 屋上に観測地点を設置し、平成 14 年 7 月 10 日から 9 月 23 日まで (夏期)、平成 14 年 12 月 16 日から平成 15 年 2 月 17 日まで (冬期) の 2 期に分けて観測を行った。測定対象成分は、PM_{2.0}、EC、PAH 9 種 (Fluoranthene、Pyrene、Benz[a]anthracene、Chrysene、Benzo[b]fluoranthene、Benzo[k]fluoranthene、Benzo[a]pyrene、Benzo[ghi]perylene、Coronene)、NPAH 4 種 (1,6-dinitropyrene、1,8-dinitropyrene、1,3-dinitropyrene、1-nitropyrene) とし、いずれも同一のフィルター試料から分析を行った。サンプリングではサイクロンを用いて PM_{2.0} を 47mm 径の石英フィルター (東京ダイレック 2500AT-UP) に捕集した。流速は夏期、冬期それぞれ 20L/min、15L/min とし、サンプリング粒径を PM_{2.0} とするために各期の流速にあわせたサイクロンを使用した。夏期は 1 週間ごとにフィルター交換を行い期間中 10 試料を得た。冬期は 4 日間、または 1 週間ごとにフィルター交換を行い期間中 11 試料を得た。

2. 2 フィルターの前処理及び重量分析

サンプリングにあたりフィルターを 800℃で 1.5 時間加熱処理して炭素成分を取り除いた。また、サンプリングの前後にフィルターを室温 20℃、湿度 50%の状態に 2 日間以上放置して電子天秤で秤量し PM_{2.0} を得た。サンプリング及び秤量後、EC、PAH 及び NPAH の分析までフィルターを -30℃で冷凍保存した。

2. 3 EC 分析

10mm ポンチでフィルターを 2ヶ所切り抜き EC 分析用試料とした。空気中で 300℃、30 分間加熱して有機炭素成分を除去したものを燃焼法⁴⁾を用いて分析を行い EC 濃度を得た。

2. 4 PAH 及び NPAH 分析

EC 分析用試料を切り抜いた残りのフィルター全量を PAH 及び NPAH 分析用試料とした。試料フィルターを約 8mm 角に細かく切断しジクロロメタン 10ml とともに 20ml 試験管へ投入し 15 分間の超音波照射を行った。抽出液を共栓付き試験管に移したのち、再度ジクロロメタン 8ml を加えて超音波抽出を行い測定対象成分の 90%以上を抽出した。2 回の抽出操作で得られた抽出液を合わせて窒素気流でジクロロメタンを気散させたのち、ベンゼン：エタノール (3:1) 混液 4ml に測定対象成分を溶解させた。このうちの 1ml をアセトニトリルに溶媒転換し HPLC-蛍光検出器で 9 種の PAH を測定した。PAH 分析装置の詳細や運転条件は分析マニュアル⁵⁾にしたがった。残りの 3ml は 2-fluoro-7-nitrofluorene (FNF: 10⁻⁶mol/L) 内標準物質 500 µl とともに 40ml ベンゼンに混合し、分液漏斗を用いて酸、アルカリ、IEW によるクリーンアップ処理を行った。ベンゼンからエタノールバッファ溶液 500 µl に溶媒転換しオンライン還元カラム-HPLC-化学発光検出器を用いて 4 種の NPAH を分析した。分析装置の詳細や運転条件は文献^{6) 7) 8)}にしたがった。

3. 結果と考察

3. 1 DEP、PAH 及び NPAH の発ガンリスク比較

測定した9種の NPAH 及び4種の PAH のうち、California-EPA からユニットリスクが公表されている PAH 5種、NPAH 3種について、夏期・冬期の平均濃度を求め、各期の濃度にユニットリスクをかけて各成分の季節別発ガンリスクを算出した。また、岩井、内山¹⁾の試算と David⁹⁾の報告に基づき、環境中 EC 濃度の 90%が DEP に由来し、DEP 組成の 40%を EC が占めると仮定して EC 濃度から DEP 濃度を推定した。夏期、冬期の DEP 推定濃度にユニットリスクをかけて観測地点における季節別発ガンリスクを算出した。(表1)

DEP による発ガンリスクは、夏期で 1.3×10^{-3} 、冬期で 1.5×10^{-3} と推定され、ベンゼンの環境基準値が 10^{-5} の発ガンリスクから設定されたことと比較しても2桁ほど高い値となった。また、雨谷ら¹⁰⁾が行った冬期の東京都における PAH 測定では、1週間捕集を行った場合は1日捕集を7日間行って得られた平均値に比べて、PM2.5 中の Benz[a]anthracene、Chrysene、Benzo[b]fluoranthene、Benzo[k]fluoranthene、Benzo[a]pyrene について 45%から 27%の損失が報告されている。したがって、表1の PAH リスクは過小評価となっている可能性があるので PAH、NPAH の平均捕集効率を 50%と仮定し安全側にもリスクを見積もった場合でも、夏期・冬期の発ガンリスクは、最も高い発ガンリスクを示した benzo[a]pyrene でそれぞれ $6.8 \times 10^{-8} \sim 1.4 \times 10^{-7}$ 、 $2.6 \times 10^{-7} \sim 5.2 \times 10^{-7}$ となり、PAH、NPAH の発ガンリスク合計でも $2.2 \times 10^{-7} \sim 2.6 \times 10^{-7}$ 、 $4.1 \times 10^{-7} \sim 8.2 \times 10^{-7}$ にとどまった。

表1 DEP、PAH 及び NPAH 測定結果とそのリスク

DEP	夏期濃度	冬期濃度	unit risk ^{*2}	夏期リスク	冬期リスク
EC	2.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	2.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$			
DEP ^{*1}	4.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	5.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	3.0E-04	1.3E-03	1.5E-03
PAH,NPAH	夏期濃度	冬期濃度	unit risk ^{*2}	夏期リスク	冬期リスク
Benz[a]anthracene	0.04ng/ m^3	0.28ng/ m^3	1.1E-04	4.7E-09	3.1E-08
Chrysene	0.07ng/ m^3	0.53ng/ m^3	1.1E-05	7.9E-10	5.8E-09
Benzo[b]fluoranthene	0.17ng/ m^3	0.68ng/ m^3	1.1E-04	1.9E-08	7.5E-08
Benzo[k]fluoranthene	0.06ng/ m^3	0.21ng/ m^3	1.1E-04	6.8E-09	2.3E-08
Benzo[a]pyrene	0.06ng/ m^3	0.24ng/ m^3	1.1E-03	6.8E-08	2.6E-07
1,6-dinitropyrene	0.10pg/ m^3	0.16pg/ m^3	1.1E-02	1.1E-09	1.7E-09
1,8-dinitropyrene	0.08pg/ m^3	0.14pg/ m^3	1.1E-03	9.1E-11	1.5E-10
1-nitropyrene	89pg/ m^3	117pg/ m^3	1.1E-04	9.8E-09	1.3E-08
PAH,NPAH リスク合計				1.1E-07	4.1E-07

*1 大気中 EC の 90%が DEP 由来であり、DEP の組成として EC は 40%を占めていると仮定

*2 California EPA の値を使用

3. 2 EC と SPM、PM2.0、NO_x の相関

札幌市内の大気汚染常時監視測定局データから DEP 濃度を推定するために、観測地点に近い国設札幌大気汚染測定局(採気口は3階)の SPM、NO_x データを観測で得られた各サンプルのサンプリング期間にあわせて平均した値と、観測で得られた PM2.0 について EC 濃度との関係を調べた(図1、図2、図3)。観

測期間中の EC 濃度は夏期、冬期でそれぞれ $1.1 \sim 3.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 $2.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$)、 $1.5 \sim 3.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 $2.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$) と冬期が多少高くなったものの大きな違いは見られなかった。

SPM と EC (図 1) : SPM 濃度は夏期、冬期でそれぞれ $10.3 \sim 27.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 $16.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$)、 $10.2 \sim 24.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 $14.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$) と夏期が多少高くなったものの大きな違いは見られなかった。回帰直線は夏期において $R^2=0.345$ とあまり良い相関は得られなかったが、冬期において $R^2=0.754$ との良い相関が得られた。札幌市において冬期は積雪により土壌粒子などの巻き上げが抑制される¹⁾ ために自動車や暖房等の影響が卓越して EC と SPM の相関が高くなると考えられる。

PM2.0 と EC (図 2) : PM2.0 は夏期、冬期それぞれ $7.5 \sim 15.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 $9.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$)、 $9.5 \sim 24.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 $14.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$) となった。SPM に比べて土壌粒子や堆積物などの粗大粒子の影響が押さえられたために夏期は冬期に比べて低い濃度を示し、夏期と冬期では明らかに異なる回帰直線を示した。冬期において $R^2=0.795$ と良い相関を示し、夏期において $R^2=0.488$ と SPM に比べて改善が見られた。また、冬期の SPM と PM2.0 は平均濃度が等しくなったことから冬期は SPM 中に微小粒子が卓越していることが示され、この結果は前述の冬期は積雪のために土壌粒子などの巻き上げが抑制されることから説明できる。

NO_x と EC (図 3) : NO_x は夏期、冬期それぞれ $14.1 \sim 32.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 $23.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$)、 $30.1 \sim 85.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 $48.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$) となった。冬期は夏期の 2 倍近い高濃度になり、さらに夏期と冬期で明らかに異なる回帰直線が求められた。冬期は $R^2=0.775$ と良い相関が得られ、夏期も $R^2=0.583$ と SPM、PM2.0 と比較して最も良い相関関係が得られた。したがって、常時監視測定データから EC 濃度を推定する場合、季節別 NO_x 濃度を用いる方法が SPM 濃度を用いるよりも EC 濃度を推定するのに適していると考えられる。

3. 3 SPM 及び NO_x を用いた EC 濃度推定

平成 14 年度の札幌市内の一般大気測定局 (一般局)、自動車排ガス測定局 (自排局) の SPM、NO_x の月平均値から図 1 及び図 3 で求めた SPM、NO_x それぞれの回帰直線を用いて環境中の EC 濃度を推定した (表 2)。SPM 濃度から EC 濃度を求める際は、図 1 の夏期と冬期をあわせた回帰直線: $\text{EC}=0.083 \times \text{SPM}+0.921$ を適用し、NO_x 濃度から EC 濃度を求める際は、NO_x が低濃度となっている 4 月～8 月には夏期の回帰直線: $\text{EC}=0.079 \times \text{NO}_x+0.204$ を、NO_x が高濃度になっている 9 月～3 月には冬期の回帰直線: $\text{EC}=0.030 \times \text{NO}_x+0.752$ を適用した。環境中 EC 濃度は、SPM 濃度から推定した場合は $1.8 \sim 2.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 $2.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$) と一般局、自排局を含めて測定局間の違いがあまり見られなかったが NO_x 濃度から推定した場合は $1.5 \sim 4.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均 $2.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$) となり、一般局と自排局の交通量の違いをより反映した値を得ることができた。

3. 4 DEP 暴露濃度の推定と発ガンリスク

NO_x 濃度を用いて推定した大気環境中の EC 濃度からヒトが暴露されている DEP 濃度を算出し、ユニットリスクを乗じて各測定局での DEP に起因する発ガンリスクを推定した (表 2)。DEP 暴露濃度の算出は、i) 大気環境中の EC の 90% が DEP に由来している。¹⁾ ii) DEP の成分組成のうち 40% を EC が占めている。⁹⁾ iii) 室内での濃度を考慮して大気環境中の DEP のうち 80% がヒトに暴露される。¹⁾ という 3 つの仮定に基づいて行った。ユニットリスクは、California-EPA による 3.0×10^{-4} を適用した。

自排局においては、 $1.4 \sim 2.5 \times 10^{-3}$ とベンゼンの環境基準における発ガンリスクの 140～250 倍の高い発ガンリスクとなった。特に、札幌の中心部の北 1 条局 (2.5×10^{-3}) や交通量の激しい国道沿いの月寒中央局 (2.1×10^{-3}) が最も発ガンリスクの高い 2 地点となった。一般局においては、 $8.4 \times 10^{-4} \sim 1.5 \times 10^{-3}$ と発ガンリスクが算出され自排局に比べて低い値となったが、最も発ガンリスクが低い札幌市郊外の住宅地に位置している東月寒局 (8.4×10^{-4}) や篠路局 (8.5×10^{-4}) においても、ベンゼンの環境基準に比べて約 85 倍の高い発ガンリスクを持つことがわかった。

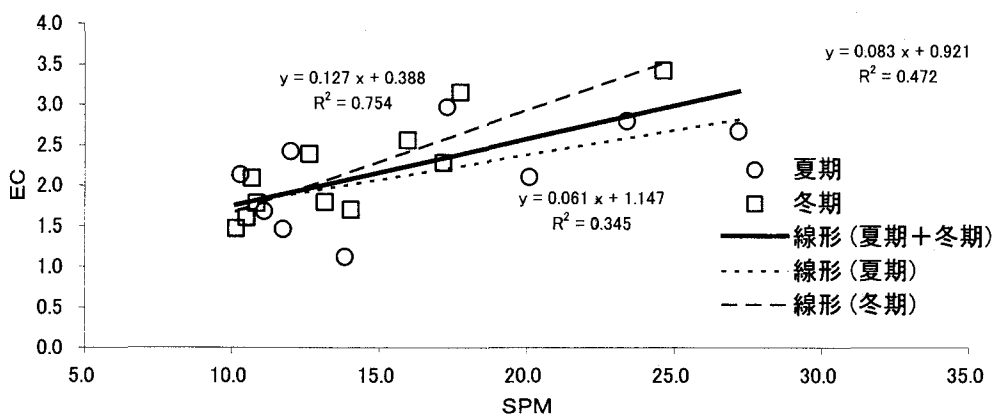


図1 SPMとECの相関

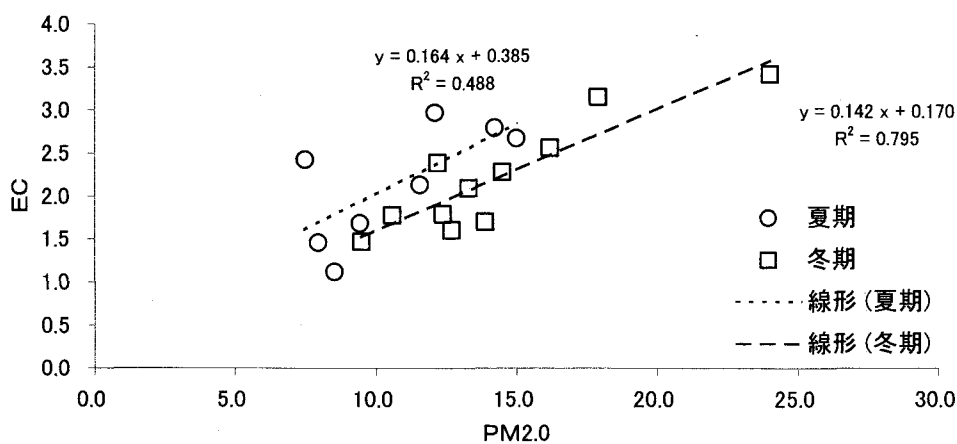


図2 PM2.0とECの相関

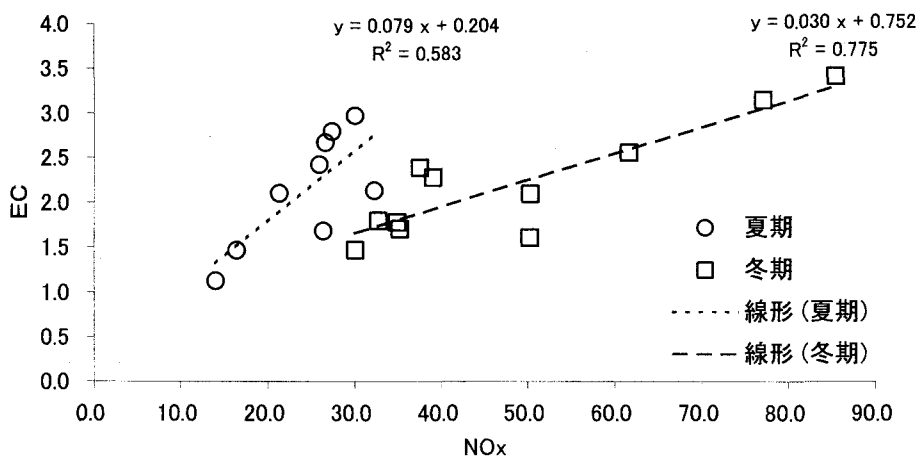


図3 NOxとECの相関

表2 EC推定値及びDEP暴露濃度とリスク

測定局名	局種別	行政区	EC年平均値		DEP暴露濃度 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	リスク -
			(SPM)	(NO _x)		
			$\mu\text{g}/\text{m}^3$	$\mu\text{g}/\text{m}^3$		
センター	一般局	中央区	1.9	2.7	4.9	1.5E-03
伏見	一般局	中央区	1.8	1.9	3.4	1.0E-03
北1条	自排局	中央区	2.3	4.5	8.2	2.5E-03
南23条	自排局	中央区	2.5	3.0	5.3	1.6E-03
篠路	一般局	北区	1.8	1.6	2.8	8.5E-04
国設札幌	一般局	北区	2.2	1.9	3.4	1.0E-03
北19条	自排局	北区	2.0	2.6	4.7	1.4E-03
東	一般局	東区	2.1	2.3	4.1	1.2E-03
東18丁目	自排局	東区	2.2	2.7	4.9	1.5E-03
北白石	一般局	白石区	-	2.0	3.7	1.1E-03
東月寒	一般局	豊平区	1.8	1.5	2.8	8.4E-04
月寒中央	自排局	豊平区	2.4	4.0	7.2	2.1E-03
西	一般局	西区	2.0	2.3	4.2	1.3E-03
発寒	一般局	西区	1.9	1.8	3.3	1.0E-03
厚別	一般局	厚別区	2.1	2.2	3.9	1.2E-03
手稲	一般局	手稲区	1.9	2.4	4.3	1.3E-03

4. おわりに

北海道大学工学部屋上において観測を行った結果、大気環境中の DEP 推定値から試算される発ガンリスクは $1.3 \sim 1.5 \times 10^{-3}$ であることが推定された。また、PAH、NPAH による発ガンリスクは、benzo[a]pyrene が最も高い値を示したが、測定対象とした成分の発ガンリスクを合計しても 10^{-6} に満たないことがわかった。

EC と SPM、PM_{2.0}、NO_x のそれぞれについて相関関係を調べた結果、夏期と冬期に NO_x を用いて EC 濃度を推定する方法が測定地点の交通量の状況を反映する最も良い方法であることを見いだした。

札幌市内の大気汚染測定局の NO_x 月平均値から EC 濃度及びヒトへの DEP 暴露濃度を推定し各測定局における発ガンリスクを試算した結果、自排局においては $1.4 \sim 2.5 \times 10^{-3}$ 、一般局においても $8.4 \times 10^{-4} \sim 1.5 \times 10^{-3}$ という高い発ガンリスクを持っていることが明らかとなった。

本研究で得られた NO_x - EC の関係は、近傍に工業地帯のような大きな固定発生源を持たない札幌市の 2002 年から 2003 年の現状を反映したものであるといえるが、他の地域、特に自動車以外の大きな発生源を持つ地域や過去に遡って EC 及び DEP 濃度を推定する場合には、各地域の特性や過去の状況を考慮した推定方法が必要である。また、リスク推定には様々な仮定が用いられており、DEP に占める EC の割合や EC - NO_x 関係の時間的・地理的な適用可能範囲についてはさらに詳細な研究が必要となる。

しかし、各地域の特性を考慮して全国に張り巡らされた常時大気汚染測定局のデータを用いた DEP による発ガンリスク推定は、コスト・実現可能性の面からも非常に有効な方法であり今後の活用が期待できると考える。

謝辞

PAH、NPAH の分析をさせていただいた北海道環境科学研究センターの酒井科長はじめ環境保全部のみなさまには貴重なご意見・ご指導をいただきました。心より感謝申し上げます。

参考文献

- 1) 岩井和郎、内山巖雄：ディーゼル車排出粒子による人肺癌リスク試算＜予測＞、大気環境学会誌、35(4) 229-241 (2000)
- 2) 脇野真一、岸本充生、中井里史、中西準子：ディーゼル車の PM 対策に関する費用効果分析、大気環境学会年会講演要旨集、577 (2002)
- 3) California Environmental Protection Agency : Air Toxics Hot Spots Program Risk Assessment Guidelines Part II Technical Support Document for Describing Available Cancer Potency Factors (2002)
- 4) Sachio Ohta, Toshiichi Okita : A chemical characterization of atmospheric aerosol in Sapporo, Atmospheric Environment, 24 (4) 815-822 (1994)
- 5) 公健協会：生活環境中の汚染物質測定マニュアル、Ⅱ-1 高速液体クロマトグラフ (HPLC) を用いた室内外空気中の粒子状多環芳香族炭化水素 (PAH) の多成分分析法、37-56
- 6) 野路和重：オンラインクリーンアップ-還元-濃縮カラムを導入したニトロ多環芳香族炭化水素分析システムの開発、金沢大学大学院 修士論文 (2001)
- 7) 唐寧、野路和重、鳥羽陽、木津良一、早川和一：化学発光検出 HPLC によるニトロアレーンシステム、大気環境学会年会講演要旨集、394 (2000)
- 8) Kazuichi Hayakawa, Kazushige Noji, Ning Tang, Akira Toriba and Ryoichi Kizu : A high performance liquid chromatographic system equipped with Pt/Rh reducer and concentrator columns for the determination of trace level nitropolycyclic aromatic hydrocarbons in extracts from diesel-engine exhaust particulates, Luminescence, 15, 85 (2000)
- 9) David B. Kittelson : ENGINES AND NANOPARTICLES : A REVIEW, Journal of Aerosol Science, 29 (5/6) 575-588 (1998)
- 10) 財団法人日本環境衛生センター：生活環境中の粒子状物質等による個人暴露測定手法の開発に関する研究報告書 2001 年度、37-128
- 11) Hitoshi Kakimoto, Hitoshi Yokoe, Yutaka Matsumoto, Shigekatsu Sakai, Fumio Kanoh, Tshuyoshi Murahashi, Kazuhiko Akutsu, Akira Toriba, Ryoichi Kizu and Kazuichi Hayakawa : Considerations of Atmospheric Behaviors of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons, Nitropolycyclic Aromatic Hydrocarbons and Inorganic Pollutants Based on Their Interrelationships, Journal of Health Science, 47 (4) 385-393 (2001)