

B-11 大気汚染物質の曝露量評価におけるパッシブサンプリング法の有効性の検討

東京大学大学院 工学系研究科 都市工学専攻 ○大野 浩一
工業技術院 資源環境技術総合研究所 蒲生 昌志
関東学院大学 工学部 建設設備工学科 川本 克也
東京大学 環境安全研究センター 山本 和夫

1 はじめに

これまでの大気汚染物質の個人曝露量の測定は、沿道住民に対する疫学調査に関連したものや調理器具や暖房用具など室内汚染源を特定する目的のものが主流であった。しかし近年、微量有害大気汚染物質が問題となるにつれて、大気汚染物質の規制や管理は定量的なリスク評価に基づいて行われるべきだという考え方が有力になってきており、大気汚染物質に対する個人曝露量の把握も重要な課題になっている。その際、曝露量の平均値だけではなく、標準偏差なども含めた曝露量の分布形を把握することが重要になる。

個人曝露量を直接測定するには、ポンプを使って大気の吸入を行うアクティブサンプリング法と分子拡散の性質を利用してポンプを使わずに物質を吸着させるパッシブサンプリング法がある。パッシブサンプリング法は携帯性や経済性の面で優れているが、捕集の再現性や感度が比較的劣ると言われている。

そこで本研究では、実測によりある地域住民の曝露量分布を統計的に把握するという観点から、パッシブサンプリング法の有効性について検討した。使用したサンプラーは揮発性有機化合物(VOCs)用のものとNO₂用のものの2種類である。VOCs用サンプラーについては、サンプラー間のばらつきやs/n比について検討を行った。NO₂用サンプラーに対しては、自動測定器との比較、5×5km²メッシュ地域内における濃度分布の測定、学生の個人曝露量分布の測定を行った。

2 使用したサンプラーと分析方法

2.1 VOCs用サンプラー

分析対象として代表的な芳香族系 VOCs であるベンゼン・トルエン・エチルベンゼンおよび o,m,p-キシレンの6化合物を選択した。サンプラーはステンレス鋼製チューブ(φ5mm、90mmL、パーキンエルマー(株)製)に、吸着剤として Tenax TA を 0.25g 充填したものを使用した。チューブの両端は Oリングを介したテフロンキャップによって封をした。パッシブサンプリングは、一方のキャップを解放することにより行った。

サンプリングを行ったチューブは、チューブ加熱・脱離方式の試料導入装置 ATD400(パーキンエルマー(株)製)によって、GC-MS に導入し分析を行った。GC は HP5890 シリーズII、カラムには HP-5MS を用い、MS は CG-Mate((株)日本電子製)を用いた。

2.2 NO₂用サンプラー

サンプラーとして、東洋濾紙(株)製フィルターパッジ NO₂(5×4×1cm、15g)を用いた。このパッジ型サンプラーはパッジケース・吸収ろ紙・プレフィルターの3部分から構成されており、吸収ろ紙には20%TEA(トリエタノールアミン)が含まれてある。また、はっ水性のプレフィルターにより風雨の影響を軽減する工夫がなされている。

分析手順の概要としては、まず吸収ろ紙を発色液に浸し 40 分程度放置した。その後、薄紫色に発色したところで、波長 545nm における吸光度を測定した。

3 VOCs用サンプラーを用いた検討

VOCs チューブによる測定を行う際には、事前に 300℃で2時間程度の空焼きを行い、吸着している VOCs を追い出してはいるが、完全にはブランクをなくすことはできなかった。そこで、ブランクチューブと室内に 24 時間曝露させたチューブとの s/n 比（ここでは（曝露による捕集量）／（ブランクの捕集量））について検討を行った。

表1 VOCs 用サンプラー間のばらつき、および曝露量とブランクの s/n 比

	ベンゼン	トルエン	エチルベンゼン	o-キシレン	m,p-キシレン
ブランクの変動係数(%) (n=11)	12.5	28.1	46.1	58.2	47.0
24h 曝露したチューブの 変動係数(%) (n=3)	6.8	2.9	1.1	1.7	0.9
s / n 比	1.6	2.3	31.9	14.3	19.6

表1によると、エチルベンゼン・キシレン類においてはブランクのばらつきが大きくなっているが、これはブランクの絶対値が小さいためであり、曝露後の捕集量のばらつきや s/n 比をみるとブランクによる影響はほとんどない。一方、ベンゼンとトルエンについては、ブランクのばらつきは比較的小さいものの s/n 比が小さく、ブランクが測定値に与える影響が大きい。今回測定した室内のベンゼン濃度は、川本ら¹⁾ による捕集量と大気中濃度との変換係数を用いると $7.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。一般環境大気中の平均濃度²⁾ が $4.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であることを考慮すると、s/n 比を2以上にするためには 24 時間曝露の捕集量では不十分であり、分析感度の点から 48 時間以上の曝露が望ましいことが示唆された。

4 NO₂用サンプラーを用いた検討

NO₂ 用サンプラーにおいては、横浜国立大学環境科学研究センターにある NO_x 自動測定器の近くに、1 日あたり数個のサンプラーを設置し、自動測定器との相関およびサンプラー間のばらつきについて検討を行った。なお、NO₂ 用サンプラーのブランク値は十分に小さかった。結果は図1および表2のようになった。

比較の結果、測定時の気象条件により多少のずれはあるものの、同一気象条件下においては、両者の測定値に良好な一致を見ることができた。また、同日に測定したバッジ間の変動係数も最大で 8.7%と低かった。

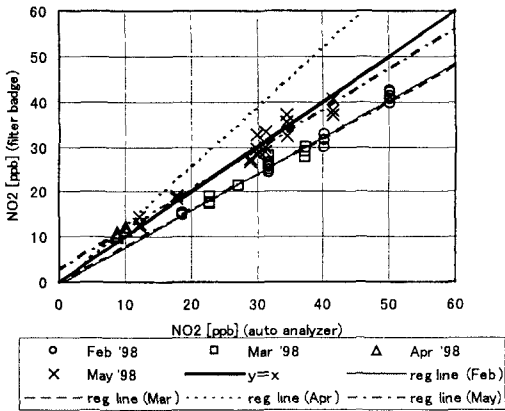


図1 自動測定器とサンプラーとの比較

表2 自動測定器とフィルターバッジとの測定値の比較

測定期間	測定時平均 気温(℃)	測定時平均 湿度(%)	測定時平均 風速(m/s)	1日あたり設置バッジ個数 [バッジ間変動係数(CV%)]	回帰直線 (相関係数)
2/9~13 (4日間)	6.5	51.2	2.1	5個 [1.4~4.0%]	$y=0.82x-0.76$ ($r^2=.985$)
3/4~6, 9~11 (4日間)	6.9	58.3	2.9	3個 [0.3~5.2%]	$y=0.81x-0.19$ ($r^2=.914$)
4/22~24 (2日間)	22.9	70.2	4.3	3個 [3.2~4.7%]	$y=1.33x-1.18$ ($r^2=.847$)
5/13-16, 18-22 (7日間)	22.3	59.9	2.2	3個 [1.2~8.7%]	$y=0.89x+2.66$ ($r^2=.957$)

5 NO₂用サンプラーを用いた実測例

5.1 5×5km²メッシュ地域内における濃度分布の測定

5×5km²メッシュ地域内部での大気中濃度のばらつきをみるために、つくば市南部の5×5km²メッシュ地域を1×1km²メッシュに区切り、各小メッシュの広い道路から離れたところ25カ所(一般環境とする)にNO₂用サンプラーを設置した。それと同時に比較的交通量の多い交差点6カ所にもサンプラーを設置した測定期間は4月22日～23日の24時間である。

図2より、一般環境と交差点の間にはNO₂濃度に大きな隔たりがあることが示された。また、一般環境中の濃度は図中の曲線のような対数正規分布によって表現できることが示唆された。一般環境中濃度の幾何平均値は14.0ppb、幾何標準偏差は1.23と計算された。

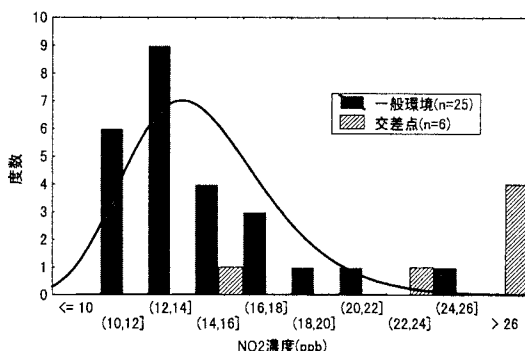


図2 5×5km²地域内部での大気中濃度のばらつき

5.2 学生を対象とした個人曝露量の測定

東京大学都市工学科の学生ら24名を対象としたNO₂個人曝露量の調査を行った。全員が同じ日に調査を行うことが望ましかったが、調査の都合上、6月から7月の3回にわたり各々8人ずつ24時間の曝露調査を行った。なお、調査当日のタバコへの曝露は1人を除いてほとんど皆無、また調理器具を使用したものも1人だけであった。

調査結果に対し分散分析を行ったところ、測定日による平均曝露濃度に明らかな違いが見られたため、各調査日の平均曝露濃度を引くことで補正を行った。補正を行った後の個人曝露量の分布は図3のように対数正規分布によって表現できることが示唆された(幾何標準偏差=1.22)。

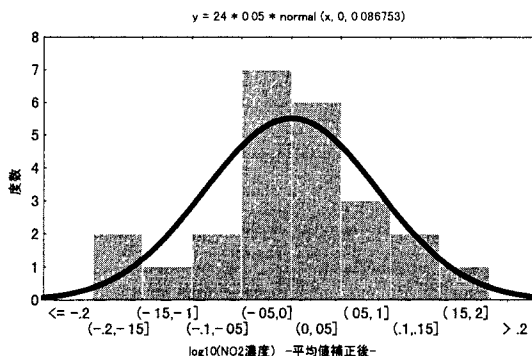


図3 個人曝露量(NO₂)のばらつき

6 結論

今回の一連の測定により、VOCs用サンプラーにおいては、さらなる検討が必要であるものの2日程度の曝露期間を持てばパッシブサンプリングによる個人曝露量の調査が可能であろうと思われた。またNO₂用サンプラーについては、自動測定器と良好な一致を示し、また、一般環境中や個人曝露量の濃度分布を推定するのに十分な性能を持つことが示された。

謝辞

自動測定器との比較測定に協力頂いた横浜国立大学中西研究室、および個人曝露量調査に協力頂いた東京大学都市工学科荒巻講師および学生の皆様に感謝いたします。

参考文献

- 1) 川本克也ら：第6回環境化学討論会講演要旨集, 89-90, 1997
- 2) 環境庁：平成9年度有害大気汚染物質モニタリング調査結果について, 98.07.16 報道発表資料