特集・大気汚染における簡易測定法

パーソナルサンプラーによる
曝露の測定と影響の評価

新 田 裕 史 *

1. はじめに

大気汚染の人間集団に対する健康影響を明らかにしようとする意図のもとに、これまで多くの疫学的研究が実施されてきた。このような疫学的研究においては、曝露の評価及び影響の評価、さらに両者の関連性を検討することが研究の計画・実施・解析において最も本質的なものである。

大気汚染が健康に及ぼす影響については、1948年のドノラ事件や1952年のロンドンスモッグ事件などの大気汚染エピソードを契機として、広く知られるようになり、また研究も進展してきた。大気汚染度の評価方法は分析手法の発達に伴って、降下煤塵量、大気酸性度の測定が可能となり、さらに SO_2 や NO_2 などの物質の濃度を直接測定することも可能となった¹⁾。このように、大気汚染度の評価方法は分析化学的により精密な手段を適用しようという方向で進んできた。また、これらの方法とは別に、スモッグの発生日数、視程、石炭使用量、汚染源からの距離などが大気汚染度の指標として用いられることもあった。これらのいずれの尺度で大気汚染度を評価するにせよ、高濃度曝露による急性影響を把握することが調査研究の主眼であった状況では、住民の大気汚染物質への曝露と居住地域の大気汚染度は比例していると仮定することは、ある程度妥当性を持っていたと考えられる。

一方、室内空気汚染の問題は1960年代からその重要性が指摘されていた²⁾。室内空気汚染の実態が明らかにされていく過程で、大気汚染の健康影響に関する疫学研究においても、室内空気汚染を無視し、ないしは単に攪乱要因と考えることがむずかしいという認識が一般化してきた。特に、二酸化窒素のように室外にも室内にも発生源が存在する汚染物質の場合には、固定

測定局における測定値を測定局周辺の地域住民の曝露の代表値とするには不十分であることが次第に明らかになり、曝露濃度評価の重要性が認識されるようになってきた。大気汚染の疫学においてパーソナルサンプラーを利用する最大の意義はまさしくその曝露濃度評価を可能にする点にある。

2. 大気汚染物質に対する曝露の評価方法

評価方法について述べる前に、「曝露」という用語について整理しておきたい。曝露は exposure に対応する言葉であるが、これと関連するものに dose がある。exposure は人体表面と接触している（もしくは、極く周辺の呼吸域の）汚染物質濃度であり、dose とは実際に体内に吸入された量を示すものとする。dose を曝露量と表現しているものも見受けられるので、以下では exposure を曝露濃度、もしくは単に曝露と表現し、区別することにする。パーソナルサンプラーで測定できるのは、普通 dose ではなく、exposure である。個人の呼吸パターンに連動して呼吸域の空気を捕集し、より dose に近いものを測定するように設計されたパーソナルサンプラーも存在するが、一般的ではない。

疫学の研究では集団間の曝露と影響の比較が基本となっているので、曝露評価も第一義的には集団を対象にしたものである。しかしながら、通常の疫学研究では、曝露と影響に関するデータは個人を単位として収集され、そのデータに基づいて集団レベルでの比較が行われる。このような方法が曝露と影響の関連性を検出する上で最も有効であるとされている。これに対して、大気汚染の疫学研究では、ある限定された地域の住民を対象者として、その地域内にある固定大気測定局の汚染物質濃度を対象者の曝露レベルの代表値とすることが行われてきた。このような曝露に関する考え方は集団的なものである。

* 国立公害研究所環境保健部主任研究員（前東京大学医学部）
Hiroshi NITTA

ここで、population exposure と individual exposure という曝露に関わる二つの概念を区別しておく必要がある。individual exposure は文字通り集団を構成する個々人の曝露を示すものである。一方、population exposure はある特定の集団における要約された曝露を示す概念である。それは、その集団の構成員個々の曝露ではなく、全体の分布を示す。一般にはその分布の代表値やばらつきの尺度（通常は、平均値や分散）によって表現されるものである。したがって、明らかに individual exposure からは population exposure を計算することができるが、逆に population exposure から individual exposure を推定することはできない。通常用いられる個人曝露 (personal exposure) という言葉は両者の意味で使われているようである。

3. 曝露の構成要素と表現方法

曝露に含まれている情報はいくつかの要素に分解できる。ひとつは曝露のレベルである。これは通常、平均曝露レベルとして表される。曝露の要素としては曝露の長さも重要である。例えば、1 ppm のレベルが1時間継続したのか、1日継続していたのかを区別しなければならない。したがって、平均曝露レベルを述べる場合には1時間平均、日平均、年平均など、平均化時間を明記する必要がある。また、曝露レベルは時間的に変動するものであるから、ある曝露レベルを超えた時間数や日数、ピーク濃度などの変動の大きさを表現することも重要である。

大気汚染物質への曝露は絶え間なく連続的に起こり、時間的変動も大きい場合が多いので、パーソナルサンプラーも曝露レベルを連続的に記録できるものが望ましい。しかしさまざまな制約から、累積曝露ないし平均曝露のみを測定できるものも多い。累積曝露はある人が曝露された濃度を曝露時間で積分したものである。また、平均曝露はその累積曝露をその時間で平均化したものである。累積曝露は（濃度）×（時間）の次元を持っており、平均曝露は（濃度）の次元を持っている。

これらの要素は環境大気汚染度を評価する場合と基本的に変わるところはない。しかし、曝露にはこれに、人間の「行動」という要素が加わる。どんな場所で曝露を受けているかが、リスクアセスメントのうえからも重要である。

以上のことを整理すると、曝露とは「ある人がある時刻にある位置に居て、かつ「その時刻に、その位

置で、ある大気汚染物質の濃度がある値となっている」ことであるといえる。曝露評価の方法としては、以上示した曝露の内容をすべて把握することができるものが理想と言える。つまり、理想のパーソナルサンプラーとは、「ある個人の居る空間上の位置及び時刻と、その位置及び時刻での汚染物質濃度を連続的に記録できるもの」ということができる。

現実には、このような条件をすべてみたすサンプラーはいかなる大気汚染物質についても存在しない。したがって、研究の目的に応じて、曝露の構成要素のうちのどれか重点をおいてサンプラーを選択しなければならない。

4. 曝露の評価方法

(1) パーソナルサンプラーを用いた直接法

曝露評価の第一の方法は、パーソナルモニターを用いて直接に曝露を測定することである。これは基本的に individual exposure の評価方法である。大気汚染物質のサンプリング法や分析方法により、いくつかのタイプがある。サンプリング法には、一般の簡易測定法と同様に passive 型と active 型の二種類が用いられている。passive 型はその原理から、累積曝露レベルないし平均曝露レベルのみを測定できる。active 型の場合には、累積曝露レベルないし平均曝露レベルを測定するタイプと、連続的な曝露レベルを測定できるタイプの二種類ある。

(2) モデルを用いた間接法

曝露評価の第二の方法は、時間加重モデルによる間接的推定である。これは累積曝露レベルの推定方法である。これは individual exposure の評価方法の場合と、population exposure の評価方法の場合の両者があり得る。

このモデルのひとつは次式で表される。

$$E_i = \sum C_j \cdot t_{ij} \dots\dots\dots (1)$$

E_i はある個人 i のある時間の累積曝露レベルの推定値である。 C_j はある微小空間 j における汚染物質濃度、 t_{ij} はその個人 i が微小空間 j で過ごした時間の合計である。このモデルである微小空間の濃度 C_j はある個人 i に依存しない、つまり、(1)式はつぎの(2)式において、 $C_{ij} = C_j$ とおいたものである。厳密には、(1)式は individual exposure の推定式ではない。

$$E_i = \sum C_{ij} \cdot t_{ij} \dots\dots\dots (2)$$

(1)式に基づいて推定するか、(2)式に基づいて推定す

るかは、同一カテゴリの空間の濃度の個人間変動をどのようにみなすかに依る。このモデルで推定をする場合には、ある微小空間（例えば、居間、寝室、台所）の濃度を測定する必要がある。このために、パーソナルサンプラーを用いることができる。また、このような測定のために簡易測定器を用いることも有用である。

このモデルでは、ある人がどこにどのくらいの時間過ごしていたかを評価することも必要である。生活行動時間調査から得られるデータは曝露の要素のひとつである「ある人がある時刻にある位置に居る」という情報に当たる。「ある人の居る位置と時刻」を記録できるような装置は存在しないので、別の手法が必要となる。このようなデータは従来から time budgets や time activity patterns として、社会学・生態学などの分野で調査・研究が行われていたものである。曝露評価の場面においても同様の調査方法を適用して、この生活行動時間調査を実施しているものがいくつか報告されている。

(3) 生物学的モニタリング

曝露評価の第三の方法は、生物学的モニタリング biological monitoring と呼ばれるものである。これは、汚染物質が体内に入った後に組織中や体液中の汚染物質ないしそれらの代謝産物・反応物質を測定するものである。例えば、血中COヘモグロビン濃度はCOへの曝露の指標として用いられている。生物学的モニタリングは厳密には曝露 exposure ではなく、dose の評価方法である。このような生物学的モニタリングの手法を確立する過程においては、パーソナルサンプラーによって曝露を直接評価することが妥当性検証のために必要となる。

5. パーソナルサンプラーの要件

表1にKhanらが示したパーソナルモニターの望ましい性能を紹介している³⁾。パーソナルサンプラーは元々労働衛生の分野で開発され、使用されてきた。作業環境中の汚染物質濃度は一般大気環境中の濃度に比べて通常遙かに高く、労働衛生の分野で開発されたパーソナルサンプラーをそのまま用いることは、まず第一に感度の点で問題がある。また、測定時間も8時間を基準にして設計されている場合が多く、その点でも一般住民を対象とした調査に適用するには不十分である。一方、労働衛生の分野とは別に開発されてきた一般大気環境測定用の簡易測定器を利用することも考えられる。そのなかには大きさやその他の点で一般住

表1 パーソナルモニターの望ましい性能・特性

性能・特性	内 容
感 度	環境濃度限界の $1/10$ から $1/2$
再現性	変動係数 $<25\%$
干渉作用・物質	既知でかつ、量的に評価されていること
電 源	不要、もしくは24時間以上のバッテリー駆動
騒音・振動	≤ 10 dBA
重 量	50-500 g
堅牢性	被験者に害を与えない、 ほぼ破壊不能であること、
費 用	\$50-\$100
分析の容易さ	分析不要、もしくは蓄積データが直読できる
保守・校正	不要もしくは1週間に1度
貯蔵有効期間	無制限、もしくは一年から二年
捕集効率	95-100%
捕集サンプルの安定性	無制限、もしくは少なくとも1-2カ月

民を対象とした調査に用いることが可能なものもある。また、パーソナルサンプラーとしては大きさ・重量などの点で不適当である場合でも、先に述べたように室内環境の測定などに用いることによって、間接的に曝露評価の手段として使用することができる。

パーソナルサンプラーについても、測定機器が備えるべき測定精度や再現性などの基本性能を満たしていなければならないことはもちろんであるが、実際上は標準自動測定器よりもその点である程度劣っていることもしかたがない。大気汚染の疫学研究においてパーソナルサンプラーを使用する最大の意義は曝露評価にある。したがって、測定誤差の問題は対象集団の曝露濃度推定に伴う全般的な誤差との比較の上で評価する必要がある。例えば、屋外に設置された極く小数の標準測定器によってその周辺地域に住む対象集団の曝露を評価する場合と、対象者各個人がパーソナルサンプラーを身につけることによって曝露を評価した場合のどちらが真の曝露を代表しているかを十分に検討しなければならない。短期的な曝露評価を目的とするか、長期的なものを目標とするかという点も考慮しなければならない。パーソナルサンプラーでは月・年の単位に測定を行うことが不可能であるが、標準測定器ではそのような長期間の測定も可能である。したがって、

曝露評価に伴う誤差要因としては、時系列的なサンプリング誤差も考慮しなければならない。

パーソナルサンプラーは日常生活を妨げることなく携帯することができなければならない。したがって、小型・軽量で、かつ騒音・振動の発生ができる限り少ないことは最も重要な条件である。この条件は労働衛生の分野で要求されるものよりも格段に厳しく、現在のところ条件を満たしているポンプユニットは皆無と思われる。この点では分子拡散型の passive sampler は理想的なものといえる。

次に、passive sampler にせよ active sampler にせよ、最低24時間の測定が可能でなければならない。一般の人々の行動パターンから考えて、最低1日間は測定する必要がある。もちろん、高濃度曝露時の状況を調べる場合には、数時間単位の曝露測定にも意味がある。データ・ロガーを備え、濃度の時間変動の記録 (exposure profile) が可能な装置では測定時間が長くできるものほど良い。累積曝露濃度のみを求めるサンプラーでは研究目的によって測定時間に関する条件は変化するが、慢性影響に興味がある場合には長期間の累積曝露濃度を求められる方が良い。

研究実施に伴う条件としては価格の問題が挙げられる。疫学的研究の対象は数百から数千、ときには数万にも及ぶ。対象の一部について曝露調査を実施するとしても、最低数百個のパーソナルサンプラーを必要とする。したがって、性能や諸条件が満たされていても、高価なものは使用不可能である。また、調査実施上で忘れてはならないことに安全性の問題がある。この種の調査では幼児や学童を対象とすることも多いので、毒性の強い物質が使われているものは避けなければならない。小型・軽量という条件に矛盾する面もあるが、容易に壊れないというような強度を持っていることも安全性の点から重要である。さらに、一度に大量のパーソナルサンプラーを分析しなければならないことが多いので、分析方法が簡便であることも条件の一つに挙げられるかもしれない。

6. 大気汚染の疫学におけるパーソナルサンプラーの役割

ある集団における大気汚染の健康影響を調べようとする疫学的研究において、パーソナルサンプラーを使用することの最大の意義は先に述べたように、曝露濃度を直接に推定できるところにある。対象集団全体のある大気汚染物質への曝露濃度の分布、すなわち pop-

ulation exposure を明らかにすることは、量・反応関係の確立にとって極めて有益なことである。さらに、複数の大気汚染物質への曝露濃度の同時分布を明らかにすることができれば、いわゆる複合汚染状況下での疫学調査結果の解釈を大きく進展させるであろう。また、曝露濃度の分布が明らかになれば高濃度曝露群を同定することが可能となり、大気汚染物質への曝露に関するリスク評価に役立てることができる。

曝露濃度の間接的推定方法として示した時間加重モデルは、見方を変えたと曝露濃度に対する各生活行動空間の寄与の大きさを示すモデルとみなすことができる。もし、妥当なモデルが確立されれば大気汚染防止効果を人間の側から評価することが可能となる。つまり、大気中の汚染物質を一定濃度低下させた時に集団の曝露濃度はどれだけ低減するかという問いに答えることができるようになる。このモデルの妥当性を検討するにはパーソナルサンプラーを用いた曝露濃度調査は不可欠なものである。

パーソナルサンプラーを用いることのもう一つの意義は固定測定局の測定値と個人曝露濃度との関連性を明らかにすることである。固定測定局の測定値が周辺地域住民の曝露濃度を代表していないのではないかとこの疑問は、大気汚染の疫学の分野にパーソナルサンプラーが持ち込まれる動機にもなったものである。固定測定局の地域代表性が論じられることがあるが、この場合の問題はそれをさらに人間の側に広げたものといえる。大気汚染の疫学における研究の基本的デザインは、高濃度汚染地域と低濃度汚染地域で影響の差を比較することであり、これによって数多くの疫学的知見が蓄積されてきた。高濃度汚染地域と低濃度汚染地域は固定測定局の資料に基づいて分けられており、もし固定測定局の測定値と個人曝露濃度との関連性が明らかとなれば既存の疫学的知見を再評価するのに役立つであろう。

7. パーソナルサンプラーの将来

この十年来、大気汚染の疫学の分野で個人曝露濃度を評価する必要性が叫ばれてきた。しかしながら、現状は曝露を評価する際の補助的資料に用いられているにすぎない。最近関心が持たれている室内空気汚染の問題と大気汚染の問題を、総合的に取り扱うことのできる個人曝露濃度評価に基づいた大気汚染の健康影響に関する疫学を構築するためには今後多大な努力が必要とするであろう。

一方、疫学研究とは別に、影響の評価を切り放した形で各種汚染物のパーソナルサンプラーの利用も増加すると思われる。現在その重要性が叫ばれている環境リスクアセスメントでは当該物質への人の曝露に関するデータが必須である。このようなデータ収集のための調査が今後実施されて行くと考えられる。

いずれの場合でも、パーソナルサンプラーを用いた曝露濃度の評価には多大の労力と資源を必要とする。したがって、調査研究の計画にあたっては、その目的を明確にし、費用-効果のバランスを十分に検討する

必要があろう。

参考文献

- 1) National Research Council: Epidemiology and Air Pollution, National Academy Press, Washington, D. C., 1985.
- 2) Biersteker, K. et al.: Indoor Air Pollution in Rotterdam Homes, Int. J. Air Water Poll., 1965, 9, 343-350.
- 3) Khan, T. R. and Meranger, J. C.: Recent Advances in SO₂, NO_x, and O₃ Personal Monitoring, Environmental International, 1983, 9, 195-206.

海外環境情報

石炭大気汚染防止技術の将来性

What will be the fate of clean-coal technologies?
H23121632

既存のスクラバ排煙脱硫装置に替わる石炭大気汚染防止の新技術(クリーンコールテクノロジー)が開発されている。実用化までまだ時間がかかるが、21世紀の要求に対応するには、これらの最新技術を正しく評価して採用していくべきである。しかし、当面の法規制によっては、不十分な既存技術を採用せざるを得ない可能性もある。

米国では発電の半分以上は石炭火力で、しかも21世紀半ばまでに、産炭量は3倍になるとみられている。1970年の大気汚染防止法では、新設の石炭ボイラにスクラバ式排煙脱硫装置(FGD)の設置が規定されたが、いま、これに替わる新しい大気汚染防止技術が登場し始めている。この新しい技術は、FGDよりコスト安で、脱硫効果は同等以上であり、窒素酸化物を発生せず、二酸化炭素の発生も少ない。

米石炭審議会の予測では、今後20年間にこれらの技術は、17万MWの新設および再稼働施設、14万MWの現在稼働中の施設に採用の可能性があり、その場合、スクラバ設置に比べての経費節減は50億ドル/Yにもなる。

最新技術のうち特に有望なのは、ガス化組み合わせ複合法(IGCC)と流動床方式(FBC)である。

(日本科学技術情報センター許可第文0222号)

IGCCは、石炭をガス化してガスタービンで燃料発電し、その排ガスをボイラに利用するものである。初めは天然ガスを使用し、将来ガス価格が上がったら石炭に転換できるのも利点である。FBCは石炭石を混合して流動床で燃焼するもので、硫黄分は炉内で石炭に吸収される。燃焼温度が低いので窒素酸化物の発生が抑制される。200~250MWの施設での推定電力コストは、FBCが10~10.6、IGCCが9.3、ターボチャージ式加圧FBCは9.1セント/kWhである。

これらの最新技術開発のために、米エネルギー省は'89年9月に16の研究計画を選定し、民間側の負担8億ドルに加えて5億4,000万ドルの補助金支給を決定した。補助金総額は、前回分と、'89年12月に決定される第三次分を合わせて15億ドルが予定されている。これらの技術の実用化の時期は、法規制と関連する。酸性雨関連規制が強化されれば、優れた技術が先に見えていても待ち切れずに既存のものを採らざるを得なくなる。いま開発中の技術が実用可能になるのは、早くても'90年代末のことであろう。'88年6月に発表された大気汚染防止計画では、最新技術を採用した施設は排出基準に適合するのに3年間の猶予を与えるとしているが、電力会社としては'95年には決心しなければならない。

CRUVER P C

B839A Environ Sci Technol 23 [9] 1059-1060 ('89)