

日本の室内塵の元素組成と鉛の起源

中村有希, 高木麻衣, 吉永淳, 田中敦, 瀬山春彦, 柴田康行

Elemental Composition of Japanese House Dust and the Source of Lead

Yuki NAKAMURA, Mai TAKAGI, Jun YOSHINAGA, Atsushi TANAKA, Haruhiko SEYAMA and
Yasuyuki SHIBATA

室内環境 第11巻第1号

Reprinted from
Indoor Environment Vol. 10, No. 1
June 1, 2008. Japan

日本の室内塵の元素組成と鉛の起源

中村有希¹⁾, 高木麻衣²⁾, 吉永淳²⁾, 田中敦³⁾, 瀬山春彦³⁾, 柴田康行³⁾¹⁾北里大学医療衛生学部 〒228-8555 神奈川県相模原市北里1-15-1²⁾東京大学新領域創成科学研究科 〒277-8563 千葉県柏市柏の葉5-1-5³⁾国立環境研究所 〒305-8506 茨城県つくば市小野川16-2

Elemental Composition of Japanese House Dust and the Source of Lead

Yuki NAKAMURA¹⁾, Mai TAKAGI²⁾, Jun YOSHINAGA²⁾, Atsushi TANAKA³⁾, Haruhiko SEYAMA³⁾ and Yasuyuki SHIBATA³⁾¹⁾Allied Health Sciences, Kitasato University, Kitasato 1-15-1, Sagami-hara, Kanagawa 228-8555, Japan²⁾Department of Environmental Studies, The University of Tokyo, Kashiwanoha 5-1-5, Kashiwa, Chiba 277-8563, Japan³⁾National Institute for Environmental Studies, Onogawa 16-2, Tsukuba, Ibaraki 305-8506, Japan

要 旨

室内塵の非意図的摂取によるPb等重金属の摂取量を低減化するための対策に向けた基礎的調査として、首都圏の一般家庭10軒から提供された掃除機ごみの2mm以下の粒径の粒子を室内塵とし、それ以下の粒径毎(2-1mm; 1mm-500 μ m; 500-250 μ m; 250-100 μ m; 100-53 μ m, <53 μ m)に20元素(Al, Ba, Ca, Cd, Cr, Cu, Fe, K, Mg, Mn, Mo, Na, Ni, P, Pb, S, Sr, Ti, V, Zn)の濃度をICP発光法とICP質量分析法によって測定した。室内塵を構成する%オーダー以上の主要元素としてはCa, Al, Feがあり、ついでアルカリ、アルカリ土類元素濃度が高かった。多くの元素は地殻存在度レベルであったが、Cd, Cu, Pb, S, Znなどは地殻に比べて10~30倍濃縮しており、室内塵にはこれら元素の人為汚染があることが示唆された。一般に粒径が小さくなるほど元素濃度は増大する傾向があったが、Pbなどは最小粒径では最大濃度を示さず、汚染形態が粒子表面への吸着によるものだけではない可能性を示していた。因子分析の結果、室内塵の元素組成は土壌、汚染、塗料、アルカリ金属の4因子によってその70%以上が説明可能で、わが国の室内塵中Pbの起源として塗料が示唆された。

Abstract

Element concentrations in house dust samples collected from 10 households in Metropolitan Tokyo, Japan, were measured with ICP atomic emission spectrometry and ICP mass spectrometry to obtain general information on elemental composition of house dust in Japan as well as to get an insight into the source of Pb in it. Calcium (median, 3.6%), Al (2.4%), and Fe (1.2%) were the major elements and alkali and alkaline earth elements followed. Enrichment of Cd, Cu, Pb, S, and Zn compared to the crustal abundance indicated anthropogenic pollution of house dust with these metals. Particle size generally inversely correlated with element concentration: smaller particles likely to be ingested by hand-to-mouth activity contained more pollutant metals. Factor analysis revealed large loading of Pb, together with Ba, Cr, S and Ti, on one of four factors extracted and this result indicated that Pb in house dust was from paint. Since unintentional ingestion of house dust can be significant source of Pb for Japanese children, search for Pb-containing paint in indoor environment and removal of it was suggested to be an effective countermeasure to reduce Pb exposure level of children.

Key words: 室内塵(house dust), 元素組成(element composition), 鉛(lead (Pb)), 起源(source), 因子分析(factor analysis)

1. はじめに

わが国で化学物質による室内環境問題というと、揮発性有機化合物による室内空気汚染が注目されてきた。一方で重金属、農薬、臭素系・リン系難燃剤などの揮発性の低い化学物質による室内汚染は、その物理的性質から、室内空気よりも室内塵がより重

要な曝露媒体となる。とくにhand-to-mouth行動などによる室内塵の非意図的経口摂取は微小粒子の吸入曝露とならんで難揮発性化学物質の曝露に大きな寄与をする可能性がある。

欧米においてこれまでもっとも重点的に調査研究されてきた室内塵中の化学成分は鉛(Pb)である。かつてPbを含有するペンキを住居の塗装に使用していた欧米各国では、塗装面の劣化に伴って剥離し

受付: 2007年9月2日(Received: 2 September 2007)

受理: 2008年1月29日(Accepted: 29 January 2008)

たペンキ片が室内に直接落下・粉末化する、あるいは住居外壁等から剥離したペンキ片が建物周辺の土壌を汚染し、その土壌が室内に持ち込まれる、などの経路によって室内塵がPbによって汚染され、それが特に小児のPb曝露源として大きな寄与をするという認識から、室内塵中Pbの調査研究が充実していた経緯がある。たとえばLanphear et al.は、小児の血中Pb濃度と室内塵中のPb濃度の間には正の関連があることを示し、小児にとって室内塵は重要なPb曝露源であることを示唆している¹²⁾。こうしたことから室内塵中Pbは重要な室内環境問題として調査・研究・対策が行われてきた。

一方、住居にペンキを塗る習慣があまりなく、したがって含鉛ペンキによる被害が顕在化しなかったわが国においては、室内塵由来のPb曝露への関心はこれまでまったくなかった。また、わが国では世界に先駆けてガソリンの無鉛化が達成されたために、一般環境からのPb曝露レベルも低いと信じられてきている。しかしながら、最近の疫学研究によると、Pbは以前考えられていたよりもずっと低いレベルで小児の認知機能の発達に影響を及ぼすことが明らかとなってきており³⁾、その影響には閾値があるように見えないと考えられている⁴⁵⁾。上記のように、もともと一般環境や住居からのPb曝露レベルが低く、Pbによる古典的な健康影響(脳炎、腎臓障害、貧血など)の懸念がなかったわが国においても、小児のPb曝露状況の現状調査が必要となってきた。

Aung et al.は食物、大気、土壌、室内塵を主要なPb曝露源として想定し、それぞれのPb濃度の実測値や文献値と摂取量をかけ、各々を足しあわせ、仮想的な日本人小児の一日Pb摂取量をはじめ推定した⁶⁾。その結果、平均的な一日Pb摂取量は21.5 μ gであり、そのうち50%以上が室内塵に由来すること、残りの約50%を土壌と食物が半分ずつ占め、大気からの吸入はほとんど寄与しないことなどを報告した。このように、住居を塗装する習慣のないわが国においても、室内塵が小児のPb曝露レベルに比較的大きな寄与をする可能性が示された。これは室内塵のPb濃度(平均値117mg/kg)が土壌(46.4mg/kg)や食物(0.0044mg/kg)に比べて高いことに起因している。

住居にペンキを塗る習慣がないわが国でなぜ室内塵のPb濃度が高いか、室内塵を構成する何がPbを多く含んでいるのか、などについては、現在のところほとんどわかっていない。そもそもわが国では室

内塵の組成や元素濃度などに関する基礎的な調査は佐藤によるもの⁷⁾を除くと、これまで行われていない。そこで本研究では、一般家庭から収集した室内塵について基礎的情報を得る目的で多元素分析を行って元素組成を調べ、その結果に基づいて室内塵のPbの起源について考察した。

2. 方法

2.1 サンプル

2006年5月から11月の期間に、首都圏の10軒の一般家庭に依頼し、掃除機にたまったごみを提供してもらった。使用されていた掃除機は紙パック式、サイクロン式の両方あり、紙パック式の場合は紙パックごと提供してもらい、サイクロン式の場合はダストケース内容物のみを提供してもらった。提供されたごみは、家庭ごとにごみの蓄積期間(最後に紙パックを交換、あるいはダストケース内容物を排出してから本研究用サンプル提供までの期間)は異なった。

2.2 粒径分画

掃除機ごみは全量をステンレス製ふるいと電磁式ふるい振とう機(AS200, レチェ)を使用して2-1mm, 1mm-500 μ m, 500-250 μ m, 250-100 μ m, 100-53 μ m, <53 μ mの6粒径に分画した。これまで室内塵の粒径に関する明確な定義はないので、本研究では便宜的に2mm以下を室内塵とし、2mm以上の部分は以下の分析から除外した。ふるい前の掃除機ごみの総重量とふるい後の各粒径分画の重量を測定して記録した。

2.3 元素分析

各粒径分画の室内塵は、約100mgをテフロンピーカーにとり、硝酸(電子工学用, 関東化学), 過塩素酸(有害金属測定用, 関東化学), フッ化水素酸(AA-100, 多摩化学)を用い、ホットプレート上で加熱して、開放分解を行った。分解後、過塩素酸の白煙を生じさせながら乾固直前まで加熱した後、冷却して、0.3mol/L硝酸をもちいて50gに希釈した。10家庭中9家庭からの室内塵については、各粒径分画から2試料とって併行分析し、分画内の均一性を検討した。分解試料とは異なる一定量を用いて、50 $^{\circ}$ Cの電気オーブン内で1晩加熱し、加熱後の減量を水分含量として乾燥重量あたりの濃度の算出に使用した。

混酸分解し50gに希釈した分解液の一部を0.45 μ m

のメンブランフィルター(ミニザルト, ザルトリウス)でろ過し, ICP発光分析法(ICPAES)(ICAP-750, 日本ジャレルアッシュ)でAl, Ba, Ca, Cr, Cu, Fe, K, Mg, Mn, Mo, Na, Ni, P, S, Sr, Ti, Zn, Vの濃度を, この分解液をさらに40倍希釈してICP質量分析法(ICPMS)(Agilent 7500ce, アジレントテクノロジー)でCd, Pb濃度を測定した。なお本研究で用いた分析の工程における各種機器(天秤, ICPAES, ICPMS)の測定精度等を考慮し, 測定値は有効数字3桁で表記することとした。それに合わせ, 元素の濃度レベルによって%とmg/kgを使い分けて表記する。

以上の分析は, 1家庭の室内塵6粒径からそれぞれ2試料の併行分析で計12試料, ブランク1試料, 米国National Institute of Standard and Technology(NIST)が頒布する室内塵の認証標準物質(CRM)SRM 2583 Indoor Dustを1試料入れ, 計14試料を1バッチとし, 10家庭分の計10バッチについて分析を行った。

2.4 統計解析

元素濃度が検出下限以下の場合, 検出下限値の1/2を代入して統計計算を行った。元素濃度は大きなばらつきを持っていたため, 代表値としては中央値を用いた。因子分析(主因子法)は対数変換した元素濃度をもとに行った。記述統計量の算出, 因子分析はSPSS for Windows(Ver 12.0J)を用いて行った。

3. 結果

3.1 粒径分画

提供された10家庭の掃除機ごみの粒径別重量分布をTable 1に示した。2mm以上の粗大粒子が掃除機ごみ全体の重量の50%以上を占めていた(中央値)。目視による観察では, 小石, 植物片, 紙, おもちゃ, 文具をはじめとする, きわめて雑多な物質の混合物であった。以下, 53-100 μ mまでは2.5~5%程度では

Table 1 Particle size distribution of vacuum cleaner trash (wt %)

Particle size	Median	Min-Max
>2000 μ m	54.3	38.7-70.9
1000-2000 μ m	2.5	0.9-8.7
500-1000 μ m	2.8	1.5-8.2
250-500 μ m	3.5	1.5-5.7
100-250 μ m	5.0	2.1-7.5
53-100 μ m	2.8	1.4-7.8
<53 μ m	8.1	2.4-17.7
Unknown	12.9	6.3-19.8

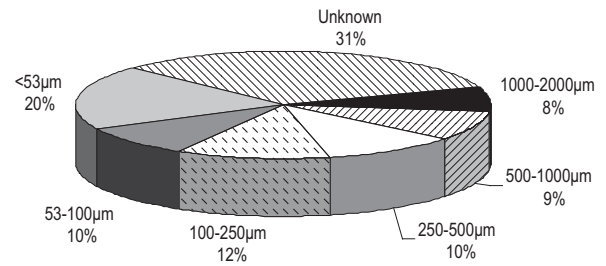


Fig.1 Median weight % of 6 size fractions of house dust samples (particle size <2mm). "Unknown" in this figure is the weight of fibrous matters.

ば一定, <53 μ mだけほかの分画の2倍程度の存在度であった。表中で「不明(Unknown)」としたのは, 53 μ mよりも大きな開き目のふるい上に直径5~10mm程度の毛玉状になって回収されたもので, 観察によると繊維状物質が絡み合ったものであった。繊維状のために「粒径」という概念には合致しないので, 回収されたふるいの開き目にかかわらずすべてを一括して「粒径不明な分画」ということで別にした。なおこの毛玉状のものは, 53 μ m以下の分画には見いだされなかった。

本研究では, 便宜的に2mm以下を室内塵としたので, Fig.1は2mm以下の分画(室内塵)の重量を100%としたときの各粒径(不明を含む)の重量比率を示した。「不明」が室内塵全体の重量の1/3を占めた。53 μ m以上の5分画はどれもほぼ10%で, 53 μ mより小さい粒径の分画のみが20%であった。室内塵には繊維状物質と53 μ m以下の微小粒子が合計して全体の半分の重量を構成しており, あとの粒径分布はほぼ均等である。

3.2 元素分析

3.2.1 精度管理

Table 2にCRMの分析結果を示した。実際に測定を行った20元素中, このCRMが認証している元素はCd, Cr, Pbの3元素のみであるが, 分析の精度を示すために, 他元素の分析値もこの表には含めてある。認証値のある3元素について, 著者らの分析値は認証値の不確かさの幅の中にあり, 著者らの測定の真度は満足できることを示している。測定精度を相対標準偏差で表すと, 元素によって3~>10%であり, 通常のICPAESの測定精度(1~3%)よりは劣った。認証値の不確かさの幅はCr, Cd, Pbそれぞれ認証値の25, 51, 8.4%と, 他の多くのCRMにくらべると突出して大きい。これはこのCRMの不均一性が高い

Table 2 Analytical results of NIST SRM 2583 Indoor Dust

Element	unit	Measured	Certified value
		Mean ± SD (n=10)	
Al	%	1.95 ± 0.06	
Ba	mg/kg	258 ± 12	
Ca	%	3.28 ± 0.11	
Cr	mg/kg	63.4 ± 5.2	80 ± 20
Cd*	mg/kg	7.87 ± 1.13	7.3 ± 3.7
Cu	mg/kg	245 ± 28	
Fe	%	0.963 ± 0.031	
K	%	0.848 ± 0.023	
Mg	%	0.898 ± 0.033	
Mn	mg/kg	225 ± 9	
Mo	mg/kg	<15	
Na	%	9.70 ± 0.26	
Ni	mg/kg	97.6 ± 7.1	
P	%	0.209 ± 0.007	
Pb*	mg/kg	83.2 ± 3.9	85.9 ± 7.2
S	%	4.76 ± 0.13	
Sr	mg/kg	104 ± 6	
Ti	%	0.214 ± 0.011	
V	mg/kg	23.0 ± 0.9	
Zn	mg/kg	944 ± 44	

* Determined by ICP mass spectrometry. Others were by ICP atomic emission spectrometry.

ことを表しており、われわれの測定値の精度がやや劣るのはこのためであると考えられる。

3.2.2 分画内均一性

本研究で対象とした室内塵試料の各粒径分画ごとにn=2の併行分析をした結果をもとに、各分画内の試料の均一性の検討をした。濃度レベルの高いAl, Caおよびレベルの低いPb, Cdの結果をそれぞれFig. 2a~dに示す。これらの図の縦軸は、併行分析の結果の得られた2つの測定値の差を、2つの測定値の平均値で除したものを%表示したものである。なお、10家庭中1家庭については併行分析を行わなかったので、このデータは各粒径分画ごとに、n=9である。

AlやCaのような%オーダー以上の主成分元素の場合でも、2-1mm分画の測定値の差はそれぞれ80%, 30%(中央値)と大きい、粒径が小さくなるにしたがって差も小さくなり、<53μmでは1%台まで落ちる(Fig.2a, 2b)。すなわち粒径が微細化するとともに試料としての均一性がよくなる。一方、Pb, Cdでも同様に2つの測定値の差は粒径が小さくなるとともに小さくなる傾向はあるが(Fig.2c, 2d), Al, Caほど直線的に下がらなかった。250μm以下くらいになると20%以下程度でほぼ安定した。

3.2.3 元素組成

室内塵試料にはある程度の不均一性があり、また粒径によって濃度変動がある元素もある(後述)が、わが国の室内塵の元素組成の概略を示すために、以下の計算を行った。併行分析した結果は、併行測定値の差の大小に係わらず、それぞれすべて平均をとり、その分画の元素濃度とした。10家庭×6粒径分画の、計60のデータをもとに、中央値を示したのがTable 3である。なおMoはすべての試料で不検出であった(検出下限: 15mg/kg)

測定対象元素の中で最大濃度を示したのはCaで3%台、以下Al, Feまでが%オーダー、Na, K, Mg, S, Ti, Pが0.1%(1000mg/kg)オーダー以上の比較的濃度レベルの高い元素であった。以下Zn, Mn, Ba, Cuなどの重金属が100mg/kgを超え、PbはCr, Niとほぼ同じく、数十mg/kgレベルであった。Cdは1mg/kg以下の微量レベルであった。

3.2.4 Enrichment Factor(EF)

Table 3に示した室内塵の元素組成の概要からみると、アルカリ、アルカリ土類元素に加え、Al, Fe, Tiなどの地質関連元素濃度が高く、室内塵を構成する物質として土壌などの寄与が大きいことが推測される。そこで下記の式によって元素濃度をEnrichment Factor(EF)で表すこととした。

$$EF_e = \frac{[Me/Al]_{indoor_dust}}{[Me/Al]_{crustal}}$$

ここでEF_eはある元素eのEF、Meは室内塵中のその元素の濃度あるいは地殻存在度⁸⁾、Alは室内塵中Al濃度あるいは地殻Al濃度である。すなわち地殻存在度に近い元素はEF≒1になり、EF>1の元素は地殻中に比べると室内塵中により濃縮して存在していることを表す。なおEFの基準元素としてAlを選定したのは、比較できるデータが多いこと、本研究でAlが精度良く測定できていること、等を考慮してのことである。

Fig.3に各元素のEFを図示した。Table 3と同じくn=60のEFを計算し、その中央値を図示したものである。室内塵中でEFが大きかったのはS(32), Zn(31), Cd(24), Cu(22), Pb(19)などで、P(9.6), Ca(2.9), K(2.2)がやや大きかった以外は、ほとんどの元素がEF=1付近の値(0.87~1.7)をとった。

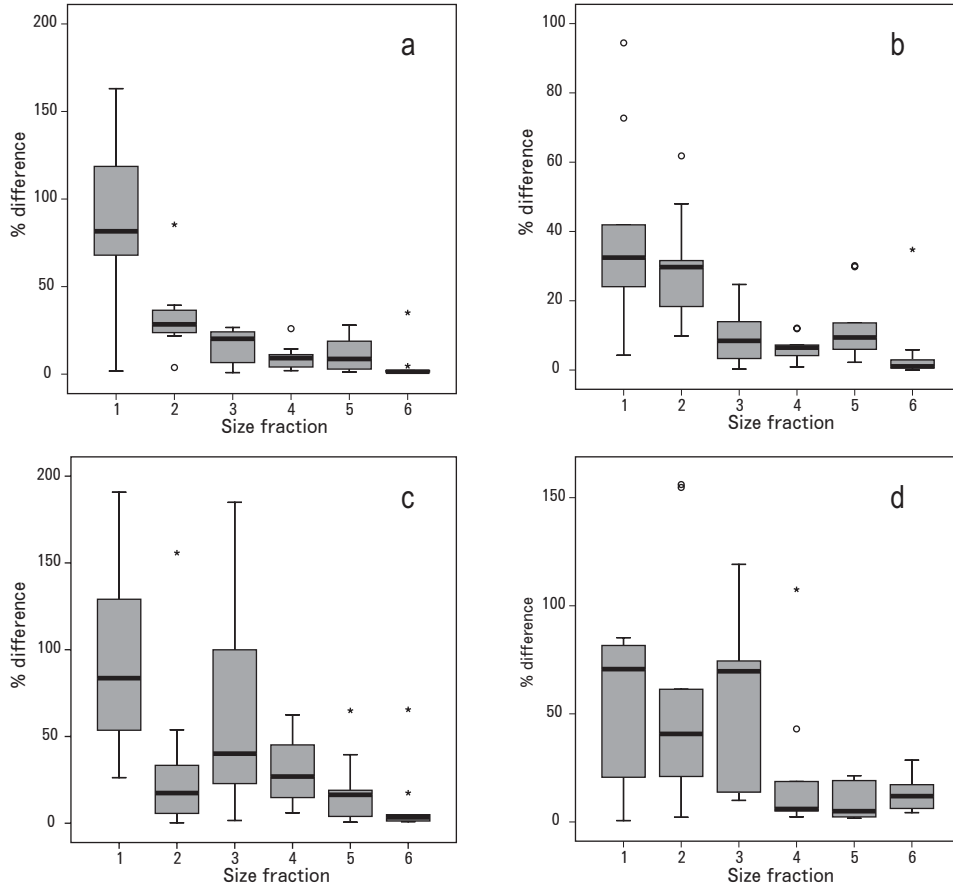


Fig.2 Box and whisker plot of homogeneity of element concentrations within size fraction as a function of particle size of house dust samples. a, Al; b, Ca; c, Pb; d, Cd. Vertical axis denotes % difference in element concentrations of duplicated analysis. Size fraction 1 to 6 on the horizontal axis denotes 2-1mm, 1 mm-500µm, 500-250µm, 250-100µm, 100-53µm, and <53µm, respectively. Open circle and asterisk denotes sample with % difference exceeding 1.5 times and 3 times of interquartile range respectively.

Table 3 Element concentrations in indoor dust from households in Japan*

Element	Unit	Median	Element	Unit	Median
Al	%	2.44	Mo	mg/kg	<15
Ba	mg/kg	218	Na	%	0.974
Ca	%	3.56	Ni	mg/kg	36.2
Cd	mg/kg	0.432	P	%	0.126
Cr	mg/kg	34.9	Pb	mg/kg	58.5
Cu	mg/kg	151	S	%	0.330
Fe	%	1.19	Sr	mg/kg	94.7
K	%	0.833	Ti	%	0.174
Mg	%	0.523	V	mg/kg	35.9
Mn	mg/kg	313	Zn	mg/kg	506

* Median concentration of 6 particle size fractions of indoor dust collected from 10 households.

3.2.5 粒径による変動

室内塵中のほとんどの元素は、粒径が小さくなると濃度が上昇する傾向があった。唯一の例外がPで、

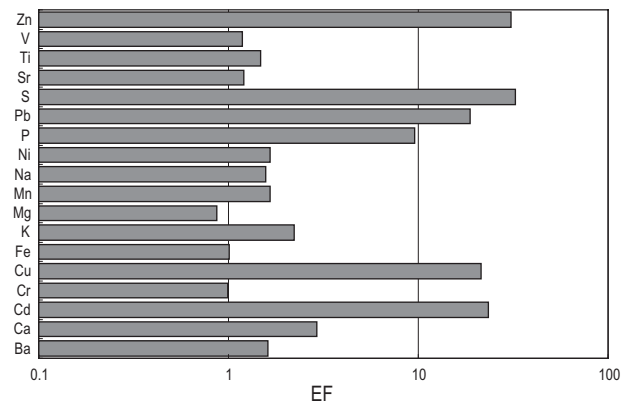


Fig.3 Enrichment factor (EF) of element concentration in house dust samples. For the definition of EF, see text.

最大粒径で最も高濃度で500-250µm以下はほぼ一定濃度であった。全体としては粒径が小さくなると上昇傾向ではあるが、250-100µmあるいは100-53µmが

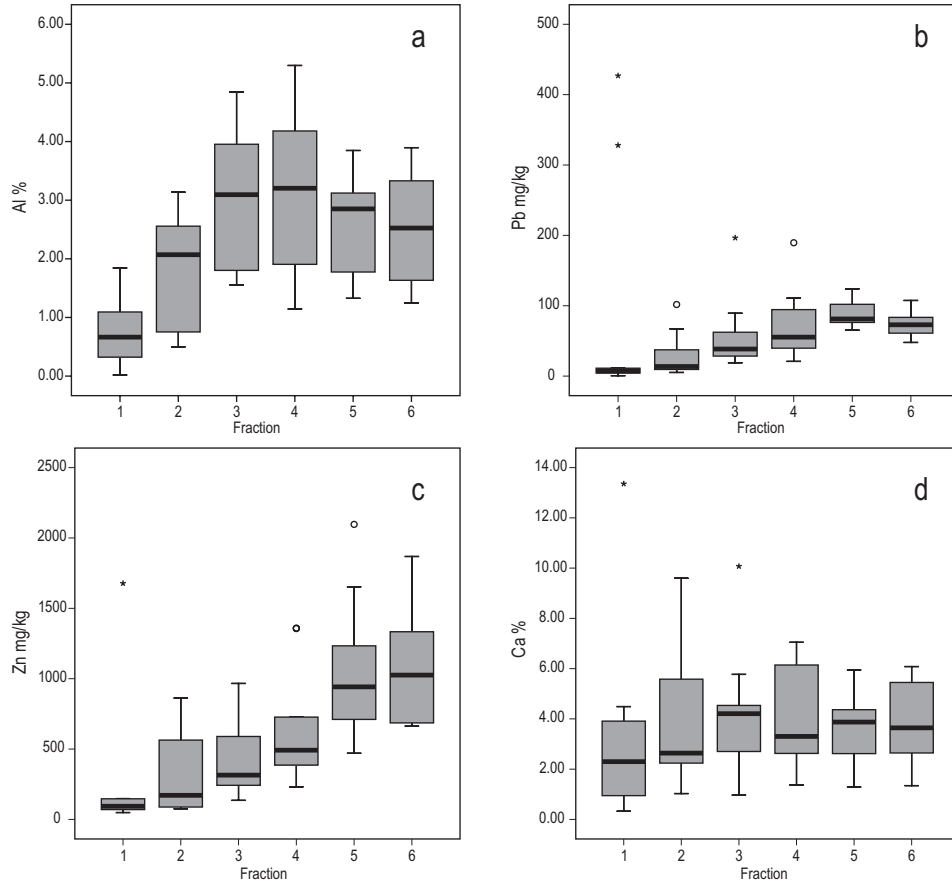


Fig.4 Box and whisker plot of element concentrations on size fractions of house dust samples. a, Al; b, Pb; c, Zn; d, Ca. Size fraction 1-6 and marks in the figure denote as in the footnote to Fig. 2.

ピークでそれより小さい粒径だと濃度がやや低下する元素の例をFig.4a(Al), 4b(Pb)に示した。このタイプに属する元素がもっとも多く、Al, Pbの他、Ba, Cu, Fe, Mg, Mn, Sr, Ti, Vがあった。粒径が小さくなるにしたがい濃度がほぼ単調に増加したのはCd, Cr, Ni, S, Zn(Fig.4c)であった。粒径によらずほぼ一定の濃度を示したのはCa, K, Naであった(Fig.4d)。

元素濃度のかわりにEFと粒径の関係を見ると、粒径が小さくなるとEFが上昇したのはCr, Cu, Ni, Znで、その他はすべて粒径によらないか、2-1mmのEFが大きく、それ以下はほぼ一定のEFを示した。

3.2.6 因子分析

元素同士の関連を調べるために室内塵中元素濃度について相関分析を行った。その結果多数の元素-元素ペア間に有意な相関が見いだされた。その相関関係をもとに因子分析を行った結果をTable 4に示した。バリマックス回転後の因子負荷量平方和が1を超える因子は4つあり、この4因子で説明可能な分

Table 4 Result of factor analysis

	Factor 1	Factor 2	Factor 3	Factor 4
Al	0.779	0.301	0.233	0.439
Ca	0.674	-0.020	0.144	-0.186
Fe	0.860	0.328	0.149	0.221
Mg	0.858	0.078	-0.066	0.107
Mn	0.819	0.403	0.064	0.283
Sr	0.877	0.130	0.020	0.199
Ti	0.735	0.144	0.455	0.036
V	0.860	0.349	0.068	0.122
Cd	0.139	0.786	0.280	-0.059
Cu	0.288	0.850	0.163	0.100
Ni	0.217	0.732	0.098	0.114
Zn	0.184	0.786	0.280	-0.059
Ba	0.385	0.289	0.552	0.474
Cr	0.408	0.544	0.612	0.129
S	-0.270	0.308	0.516	0.167
Pb	0.318	0.306	0.719	0.148
K	-0.011	0.239	0.211	0.869
Na	0.287	-0.231	0.047	0.588
P	-0.454	-0.186	-0.230	-0.029
Square Loading	6.219	3.635	2.154	1.843
% variance	32.7	19.1	11.3	9.70
Cumulative %	32.7	51.9	63.2	72.9

散は73%であった。全体の分散の約30%を説明する因子1はAl, Fe, Mn, Tiなど、土壌関連元素の因子負荷量が大きく、土壌の因子であると考えられた。因子2はCd, Cu, Ni, Znに負荷量が大きく、汚染元素の因子、因子3はBa, Cr, S, PbおよびTiの負荷が大きい。これらの元素は、塗料に多く含まれるもので、塗料の因子と考えられた。因子4はNa, Kに負荷量が大きく、アルカリ金属の因子とした。

4. 考察

4.1 粒径分画

これまで日本の室内塵の組成等に関する基礎的な調査研究は少なく、本研究で得られた粒径毎の重量比率の結果(Table 1およびFig.1)と比較可能なデータは佐藤⁷⁾のみである。この研究では国内12軒の一般家庭の掃除機ごみを対象とし、ふるいを使用して粗塵(>1mm)、細塵(75 μ m-1mm)、微塵(<75 μ m)に分画して重量分布を測定したところ、それぞれの平均重量比率は、21.0, 26.3, 52.7%であったことが報告されている。本研究結果(Table 1)を佐藤の結果と比べると、本研究のほうが粗塵に相当する分画の重量比率(約57%)が多く、細塵に相当する分画(約13%)はやや少なく、微塵に相当する分画(約10%)が大幅に少なかった。本研究で粒径不明とした繊維状物質(13%)は粗塵か細塵に振り分けられると考えられるので、細塵に相当する分画の差は多少小さくなるが、微塵の差(52.7%と10%)は明白である。双方のデータとも、対象家庭数が10軒程度とサンプル数が少なく、さらに家庭毎のばらつきは大きいものではあったが、こうしたことを考慮しても両者の重量分布の違いは大きい。この原因は不明である。

なお今回対象とした試料は掃除機ごみであるために、非常に微細な粒径の室内塵粒子は掃除機の排気フィルターを経て、一部は室内空気中に再度排出されてしまったと考えられる。掃除機の紙パックあるいはサイクロン式の場合はダストケースに残留する最小粒径は、紙パック式かサイクロン式か、あるいはそれぞれメーカーによっても多少異なると予想されたが、各メーカーへの聞き取り調査の結果、概ね5 μ m以上の粒子は紙パック・ダストケース内にほぼ100%捕捉されることがわかった。したがって本研究の最小粒径分画は5-53 μ mと考えるのがより適切である。

4.2 元素組成

Table 3に示したように、本研究では室内塵中の20元素の分析を行った。Table 5はこの20元素の濃度について、外国のデータ^{9,10)}と比較したものである。この表の中で本研究のデータは、比較対象の1つのカナダのデータにあわせて100-250 μ m分画の中央値を示した。なおFig.4aに示したように、室内塵を粒径別に分画・元素分析した中では、この分画で中央値が最高濃度を示した元素が多かった。Al, Feなど、土壌関連元素濃度が本研究の方がカナダやイギリスに比べてやや高かったが、これは分析法によるものであると考えられる。カナダおよびイギリスの室内塵の分析では、どちらも前処理として硝酸・塩酸による試料分解を行っているが、これでは試料中のケイ酸塩を分解することはできない。Al, Fe, Mn, Tiなどの元素は土壌や大気粉塵等のケイ酸塩中にも多く含有されるので、本研究のようにフッ化水素酸を併用した分解を行わないと濃度は実際よりも低値を示す。それ以外の元素の測定値は分解法の影響はあまり受けないと考えられる。これら元素濃度の文献値は本研究での測定値とほぼ同じか、本研究の方がやや低い濃度のものが多かった。とくにCd(0.432mg/kg)はカナダ(4.3mg/kg)より一桁低かっ

Table 5 Comparison of element concentrations in house dust in Japan and other countries

Element	This study (n=10)*	Canada (n=48)*	UK (n=32)**
Al %	3.20	2.29	0.741
Ba mg/kg	235	442	-
Ca %	3.30	4.53	-
Cr mg/kg	45.7	69.2	-
Cd mg/kg	0.432	4.30	1.1
Cu mg/kg	199	157	326
Fe %	2.05	1.32	0.828
K %	0.884	1.01	-
Mg %	0.809	0.929	-
Mn mg/kg	453	267	501
Mo mg/kg	<15	1.70	-
Na %	1.18	1.80	-
Ni mg/kg	46.9	51.5	53.3
P %	0.101	0.127	-
Pb mg/kg	55.4	222	178
S %	0.225	-	-
Sr mg/kg	114	249	-
Ti %	0.225	-	-
V mg/kg	59.3	22.0	-
Zn mg/kg	492	633	665

* Element concentrations in 100-250 μ m fraction and ** in <63 μ m fraction.

た。Pbもカナダやイギリスに比べて濃度が低く、日本の室内塵の重金属汚染レベルは低いことがうかがわれた。

Table 3に示した元素組成からも、室内塵にはかなりの土壌等地質由来の粒子が混入していると考えられ、したがって室内塵中の元素濃度の少なくとも一部は、土壌などに含まれている元素に由来すると考えられる。この影響を除外するために、本研究ではAl濃度を基準としたEFを算出した(Fig.3)。EF=1付近の元素(Ba, Cr, Fe, Mg, Mn, Na, Ni, Sr, Ti, V)は、土壌等の混入によって室内塵中に存在することを強く示唆している。すなわち室内塵中のこれら元素の起源は室外にあり、室内には汚染源がないか、あっても土壌等室外由来に比べて寄与が大きいことを示している。一方、EFが1よりも有意に大きい元素(Cd, Cu, Pb, S, Zn)は、これらの元素で汚染された土壌や大気粉塵などの微粒子の混入がある可能性を示している。Furuta et al.は東京都内で採取した大気粉塵の元素分析に基づき、EFを算出している¹¹⁾。本研究で分析対象とした元素のうち、 $>11\mu\text{m}$ の粒径の大気粉塵でEFが10~50の元素は、Cr, Cu, Ni, Pb, V, EFが50~100はZn, 100を超える元素にはCdがあった。その他の元素のEFは5未満であったので、こうした大気中の粉塵が混入することで室内塵中のPbをはじめCd, Cu, ZnなどのEFが上昇した可能性がある。また、東京都内の公園の表層土壌の中には、明らかにCd, Cu, Pb, Znなどによって汚染されたものが見出されており¹²⁾、このような土壌が混入すると室内塵のこれら元素のEFが上昇する可能性がある。

一方、汚染土壌、大気粉塵など室外汚染源以外にも、室内に汚染源があって室内塵のこれら元素濃度が高い可能性も否定できない。住居の室内塵と、その周辺の土壌、降下煤塵、道路粉塵等の室外環境試料に含まれる鉛濃度との相関を調べた研究の中には、室内塵と室外ソースの間に相関がない場合が報告されている^{9,13,14)}。カナダやアメリカにおける調査では、室内塵中鉛は暖房用燃料の種類、住居の築年数、最後にペンキを塗ってからの年数などによって変動することから、室内に由来する鉛汚染もあるものと考察している。

4.3 室内塵の粒径とヒト化学物質曝露

粒子状物質の場合には一般的に粒径が小さいほど

汚染化学物質の濃度が高くなることが知られている。これは粒径が小さいほうが比表面積が大きくなり、粒子表面に吸着する形で汚染を起こす成分は、粒子の比表面積の増大とともに単位重量あたりの吸着量が増え、結果的に濃度が高くなるからであると考えられる。室内塵についても粒径が小さくなるとともに濃度が増大する傾向のある元素があった。本研究で分析対象とした20元素のうち、粒径が小さくなるとともに濃度が直線的に上昇する傾向があったのはCd, Cr, Ni, S, Znであった(Fig.4c)。このうちCd, S, Znは室内塵中EFが10以上と人為起源の汚染があることが明白であり、こうした元素は室内塵の表面に汚染として吸着するかたちで存在している可能性がある。因子分析の結果で、これら元素が第2因子に大きな負荷量を持っていた(Table 4)のは、このような汚染の存在形態が類似していることによるものかもしれない。一方、Pbは最も小さい粒径で濃度がやや低下し(Fig.4b)、Znなどとやや異なり、Al, Fe, Tiなどと類似した傾向であった。EFで検討すると、Zn, Cdなどは粒径が小さくなるとともにEFも直線的に大きくなったが、PbのEFと粒径の間には特に何の関連もなかった。しかし室内塵中PbのEFは10より大で、人為的な汚染があることは確実である。これらのことから、粒子の比表面積と関係ない、すなわち吸着でない形で室内塵を汚染しているPbも多く存在しているものと考えられる。

室内塵がhand-to-mouthで実際にヒトに取り込まれるためには、手に付着するという段階を経る必要がある。手に付着するのは比較的微小な粒子であると考えられる。Yamamoto et al.は、保育園児の手に付着した粒子の粒径分布をレーザー粒度分布計を用いて測定し、40~50 μm を最頻値とし、おおむね250 μm 以下の粒子が付着していることを報告している¹⁵⁾。本研究の結果、多くの元素が100-250 μm あるいは53-100 μm の分画で最高濃度を示したことから、手に付着しやすい粒径の粒子は室内塵のなかでも濃度の高い粒子であることが確認された。したがってhand-to-mouthによる室内塵の非意図的摂取にともなう化学物質曝露を評価するには、250 μm 以下の分画の濃度を求めることが不可欠であると結論できる。さらにこの分画より小さい粒径の場合、Fig.2に示したように試料の均一性も良くなるので、分析上の問題が少ないという特徴がある。ただし、前述のように、掃除機の紙パックを通過する、あるいは捕集

効率の低い5 μm 以下の微粒子は今回の室内塵サンプルの中には含まれない。もし汚染元素の場合に粒径とともに元素濃度が増大する傾向があるとすれば、汚染元素の非意図的摂取による摂取量を評価するにあたって、掃除機ごみを室内塵サンプルとすることでやや過小評価している可能性は否めない。

4.4 室内塵中Pbの起源に関する考察

Aung et al.がはじめてわが国の室内塵中Pb濃度を報告し(算術平均117mg/kg)⁹⁾、その結果をもとに日本人小児のPb摂取量に占める室内塵の寄与が大きい可能性を指摘したが、本研究で得られた室内塵中Pb濃度はAung et al.よりやや低い(粒径250 μm 以下の各分画の算術平均値は71-88mg/kg)ものの、大きな差はなかった。室内塵がhand-to-mouth等により小児に取り込まれるとすれば、Aung et al.が推定した室内塵のPb摂取量への寄与の大きさを支持する結果である。

Table 4に示した因子分析の結果は、室内塵中のPbの起源について示唆を与えている。Pbは第3因子の負荷量ももっとも大きかった。この因子に負荷量が高い元素はBa, Cr, SおよびTiで、これらの元素は塗料に特徴的な元素でもある。日本国内では欧米と異なり、家屋にペンキを塗って飾る習慣が一般的でないことから、かつての欧米で問題になった含鉛塗料の剥離片による室内環境汚染問題はないと考えられている。しかも国内では塗料のPb含有量は現在の欧米並み(0.06%未満)の自主規格(日本塗料工業会)がある。しかし本研究の因子分析の結果は、室内塵中Pbは塗料と何らかの関係があることを示唆している。欧米における現行の塗料の基準やわが国の自主規格に適合しない塗料が塗られた物品が室内に持ち込まれ、それからの剥離片による室内塵汚染の可能性がある。Table 4に示した「塗料の因子」は、全分散の11%を説明する因子であるから、Pbのみならず、わが国の一般家庭の室内塵の元素組成に塗料がかなりの大きな影響力を持っていることを示している。

もし室内塵中のPbが塗料片に由来するものも多いとすれば、粒径が小さくなるにつれてほぼ単調に濃度が高くなるCd, Znなどの元素と異なり、粒径との関連があまり明白でないことも説明がつく。すなわちPbが塗料片として室内塵中に混入しているとすれば、Pbの存在量は室内塵粒子の比表面積とは

無関係であるから、Pb濃度と粒径の間に関連が見出せないはずである。

ただしPbは第1因子(土壌の因子)や第2因子(汚染元素の因子)もそれぞれ0.318, 0.306と中程度の負荷量を持っていた(Table 4)が、これはPb汚染した土壌の混入による寄与もあることを示している可能性がある。前述のように、東京都内の公園表層土壌にはPb汚染が明らかなケースがあることを著者らは報告しており¹²⁾、こうした汚染土壌の混入が室内塵中Pb濃度の増大に多少なりとも寄与しているために、土壌の因子と汚染元素の因子への負荷量がやや大きいのかもしれない。

5. 結論

首都圏の一般家庭から提供された掃除機ごみをもとに、室内塵の元素組成を調べ、粒径毎の構成比率、各元素の濃度レベル、粒径との関連などの基礎的な情報を提供するとともに、因子分析に基づき室内塵中Pbの起源について考察した。その結果、室内塵のPbレベルは地殻存在度より大きく、人為汚染があることは明らかであった。またその起源については、室内塵中Pbは塗料に由来するものが主で、そのほか汚染土壌の混入も多少の寄与をしている可能性が示唆された。Hand-to-mouth行動などによる室内塵の非意図的摂取に伴うPb曝露レベルを低減化するためには、室内塵中Pb濃度レベルを低下させることが必要で、そのためには室内でPbを多く含む塗料の使用の有無を確認し、もし使用していた場合には剥離片が落下しないよう適切な方法(塗り替え、重ね塗りなど)をとることなどが対策として考えられる。一方、汚染土壌等の混入による室内塵のPb汚染は、表層土壌の入れ替えなどが必要で、室内環境だけでなく室外環境に対するアプローチも必要である。

引用文献

- 1) B.P. Lanphear, M. Weitzman, N.L. Winter, S. Eberly, B. Yakir, M. Tanner, M. Emond, T.D. Matte: Lead-contaminated house dust and urban children's blood lead levels. *Am. J. Public Health*, 86, 1416-1421 (1996)
- 2) B.P. Lanphear, R. Hornung, M. Ho, C.R. Howard, S. Eberle, K. Knauf: Environmental lead exposure during early childhood. *J. Pediat.*, 140, 40-47

- (2002)
- 3) R.L. Canfield, C.R. Henderson, D.A. Cory-Slechta, C. Cox, T.A. Jusko, B.P. Lanphear: Intellectual impairment in children with blood lead concentrations below 10 micrograms per deciliter. *N. Eng. J. Med.*, 348, 1517-1526 (2003)
 - 4) J. Schwartz: Low-level lead exposure and children's IQ: A meta-analysis and search for a threshold. *Environ. Res.*, 65, 42-55 (1994)
 - 5) B.P. Lanphear, R. Hornung, J. Khoury, K. Yolton, P. Baghurst, D.C. Bellinger, R.L. Canfoeld, K.N. Dietrich, R. Bornschein, T. Greene, S.J. Rothenberg, H.L. Needleman, L. Schnaas, G. Wasserman, J. Graziano, R. Roberts: Low-level environmental lead exposure and children's intellectual function: An international pooled analysis. *Environ. Health Perspect.*, 113, 894-899 (2005)
 - 6) N.N. Aung, J. Yoshinaga, J. Takahashi: Exposure assessment of lead among Japanese children. *Environ. Health Prevent. Med.*, 9, 257-261 (2004)
 - 7) 佐藤泰仁：室内塵(ハウスダスト)の性状とその挙動に関する調査, 東京衛研年報, 45, 159-164(1994)
 - 8) 松久幸敬, 赤木右：地球化学概説, 培風館, p.75(2005)
 - 9) P.E. Rasmussen, K.S. Subramanian, B.J. Jessiman: A multi-element profile of housedust in relation to exterior dust and soils in the city of Ottawa, Canada. *Sci. Total Environ.*, 267, 125-140 (2001)
 - 10) A. Turner, L. Simmonds: Elemental concentrations and metal bioavailability in UK household dust. *Sci. Total Environ.*, 371, 74-81 (2006)
 - 11) N. Furuta, A. Iijima, A. Kambe, K. Sakai, K. Sato: Concentrations, enrichment and predominant sources of Sb and other trace elements in size classified airborne particulate matter collected in Tokyo from 1995 to 2004. *J. Environ. Monitor.*, 7, 1155-1161 (2005)
 - 12) 高岡路枝, 吉永淳, 田中敦：都内公園土壤中重金属の相関関係, 環境化学, 17, 629-634(2007)
 - 13) S.T.Y. Tong: Indoor and outdoor household dust contamination in Cincinnati, Ohio, USA. *Environ. Geochem. Health*, 20, 123-133 (1998)
 - 14) Y. Ishibashi, J. Yoshinaga, A. Tanaka, H. Seyama, Y. Shibata: Lead in indoor dust in Japanese houses and relationship with outdoor sources. *Environ. Int.* (投稿中)
 - 15) N. Yamamoto, Y. Takahashi, J. Yoshinaga, A. Tanaka, Y. Shibata: Size distribution of soil particles adhered to children's hands. *Arch. Environ. Contam. Toxicol.*, 51, 157-163 (2006)