

C-3 東アジアにおける酸性雨原因物質排出制御手法の開発と環境への影響評価に関する研究

(2) 酸性雨原因物質排出制御の実施に伴う環境影響評価に関する研究

① 酸性雨原因物質排出制御の実用化と健康影響・評価に関する研究

研究代表者 国立公衆衛生院労働衛生学部 内山 巖雄

厚生省国立公衆衛生院

労働衛生学部	部長	内山 巖雄
	主任研究官	荒川 はつ子
	職業性疾患室	村山 留美子
地域環境衛生学部	環境評価室	渡辺 征夫
	環境健康影響室	後藤 純雄
(委託先)	仏教大学社会学部	溝口 次夫
	埼玉大学工学部	坂本 和彦

平成9～11年度合計予算額 30,776千円

(平成11年度予算額 10,051千円)

[要旨] 酸性雨原因物質の排出抑制のため、重慶市において脱硫効果が高く燃焼効率の良いバイオブリケットが実用化を推進している。その効果を評価するためには、地域や家庭の大気環境、室内環境の改善状況を評価するのみでなく、住民の健康状況の改善を調査して評価することが重要である。本研究では平成10年3月から12月まで9ヶ月間バイオブリケットを実際の家庭で使用し、その前後に室内外の汚染物質の測定、および健康調査を行った。

健康調査は上記龍井村の81世帯をバイオブリケット使用群、同興村の95世帯を従来の石炭を使用する対照群として、バイオブリケットを9ヶ月間使用してもらい、使用前と使用後の2回行った。鼻咽喉検診では、特に屋内にいる時間が長い成人女性において陽性所見数はバイオ使用群では著しく減少したのに比較して、対照群では一部を除きほとんど変化がなかった。肺機能検査では特に変化は認められなかった。

対象地域の南岸区龍井村、北陪同興村の室内外の汚染物質の測定では、二酸化硫黄、粒子状物質濃度が著しく高く、しかもいずれも室内濃度が室外濃度よりも高かった。粒子状物質のイオン濃度は $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NH}_4^+$ の濃度が著しく高く、酸性度が高いことが示唆された。以上より、重慶市の住民の大気汚染物質の曝露は調理用石炭による屋内汚染からの寄与も大きく、バイオブリケット使用による対策が急務であると思われた。バイオブリケット導入による汚染物質の低減効率の計算や低減効果の評価を行い $\text{SO}_2$ の低減率は85%と有効であったが、塩化水素はバイオマスの種類によって低減効果はばらつきがあった。またバイオブリケット使用により、屋内の $\text{SO}_2$ 濃度は $5.08\text{mg}/\text{m}^3$ から $0.79\text{mg}/\text{m}^3$ に低下し有効性が確かめられた。

以上よりバイオブリケット使用により、屋内空気の汚染状況は著明に改善し、成人女性の鼻咽喉の炎症所見は著明に改善したが、子供は改善傾向が認められたものの有意差はなかった。また肺機能も変化がなかった。これは観察期間が9ヶ月と短かったことが大きな要因と考えられる。

短期間の観察とはいえ、バイオブリケット使用により、屋内汚染、炎症所見は改善することが明らかであり、バイオブリケット普及のために健康影響の改善も十分な動機付けとなると思われた。

[キーワード] 重慶市、酸性雨、バイオブリケット、二酸化硫黄、健康影響

## 1. はじめに

重慶市は中国最大の重工業都市として人口約 1,500 万人を有し、過去 5 年間の経済成長を見ると GNP で年率 10 % を越える伸びを示している大都市である。地形的には、四川盆地の長江および嘉陵江の合流する狭い盆地の底辺部にあり、年間を通じて風が弱く逆転層が形成されやすい。また工場の燃料は硫黄分の多い石炭が主力であり、家庭の調理用燃料やビルの中小ボイラーも同様に石炭が主で、二酸化硫黄、煤塵を中心とした大気汚染、室内汚染が著しい。

わが国は中国の酸性雨原因物質排出抑制のための援助の一つとして、石炭にバイオマス（おがくずや稲わら等）と石灰を加えて圧縮加工し、燃焼効率が良く脱硫効果のある民生用のバイオブリケットの実用化を目指した援助を行っているが、周辺の大気環境の改善のみでなく、身近に使用する一般住民の健康影響の改善が期待されている。しかし価格が従来の豆炭より 20% 程度高くなるのが難点であり、普及のための市民の啓発が必要である。本グループでは、健康調査を行うグループと屋内外の環境測定を行うグループ、及び癌変異原物質を測定するグループが共同して研究を行った。また、現地の調査は主に重慶医科大学予防医学系周燕栄教授を中心に行われた。以下にそれぞれの 3 年間の成果を報告する。

## I. バイオブリケット使用による健康影響の改善に関する調査

### 1. 序

酸性雨原因物質の排出制御のため、重慶市においてバイオブリケットが日本の技術援助で実用化され普及を目指しているが、従来このような技術協力の効果の評価は、主に大気汚染の改善のみが評価され、最終的な目標であるはずの住民の健康が改善されたか否かの評価はほとんど行われてこなかった。バイオブリケットは燃焼効率が良く、硫黄酸化物の発生が少ない優れた特性を持つが、従来の加工炭よりは 20 % 程度価格が上昇するという欠点がある。燃焼効率の改善から価格の上昇分は相殺されるはずであるが、もしバイオブリケットの使用によって健康影響が改善されることが確かめられれば、普及のための動機付けの重要な要素となりうると考えられる。そこで重慶医科大学の協力で、バイオブリケットを使用した前後で、住民の健康影響の改善の有無を評価し、普及のための動機付けの 1 つを得る目的で行われた。

### 2. 研究目的

重慶市郊外農村地域における大気汚染および屋内汚染の状況を明らかにすると同時に、バイオブリケット使用による健康影響の改善を検討し、バイオブリケット普及の動機づけの 1 つとすることを目的としたが、今回は主に屋内汚染の改善が見込まれたので、生活時間の大部分を家庭内で過ごし、調理を行うために、汚染の影響を最も受けていると思われる成人女性と日中は学校で

過ごし、調理に直接関与しない児童に分けて解析を行った。また今回は短期間の調査であり、十分な影響改善が認められないことも考えられたので、現地の重慶医科大学予防医学系周燕栄教授を中心とした現地スタッフとの交流を深め、今後も継続して同様な調査が行える様に配慮した。

### \*成人女性の鼻咽喉所見、呼吸機能に与える影響

#### 3. 研究方法

1) 対象：対象は重慶市郊外の調理や暖房に石炭を使用している2村に居住する住民で、龍井村89世帯（バイオブリケット使用群、以下BB群）及び同興村110世帯（従来型石炭使用群、以下対照群）を選定し協力の得られた成人女性を対象とした。

2) 健康調査：バイオブリケット使用前の1998年3月に健康調査（問診、内科、耳鼻科検診）、呼吸機能検査および居住環境調査を行った。また使用9ヶ月後の1998年12月に健康調査、呼吸機能検査を行った。

3) 環境測定：2家庭においてバイオブリケット使用前後の屋内、屋外の大気汚染物質濃度（二酸化硫黄、二酸化窒素）度測定とハンディ・ソノックスサンプラー（グリーンブルー社製）を用いて個人曝露量を推定した。

4) 解析方法：3月と12月の2回の健康調査を受けた女性（B群90人、C群67人）を解析の対象とした。また呼吸機能検査は同じくそれぞれ56人、36人を対象とした。解析はB群とC群及びバイオブリケット使用前後の健康調査、呼吸機能検査の比較をカイ二乗検定で行い、5%未満を有意差ありとした。

#### 4. 結果と考察

対象者の平均年齢はB群  $41.5 \pm 12.6$ 、C群  $38.1 \pm 8.8$  才であった。

##### 1) 鼻咽喉検査

BB群、対照群の鼻咽喉検査での陽性所見者の割合を図1（使用前、3月）と図2（使用后、12月）に示した。使用前の検査ではいずれの項目もBB群の方が多く、咽頭後壁の炎症、扁桃の腫大、拡大所見の陽性者が多かった。何らかの所見を有していた者はBB群85.5%、対照群68.6%であった。

これに対してバイオブリケット使用9ヶ月後の12月の同様の検査では、逆にほとんどの項目でBB群の方が対照群に比べて陽性所見を示す者の率が少なくなり、最終的に鼻咽喉に何らかの疾患ありと診断された者はBB群が23.7%から9.5%に半減したのに対して、対照群は9.2%と6.2%であり変わらなかった。

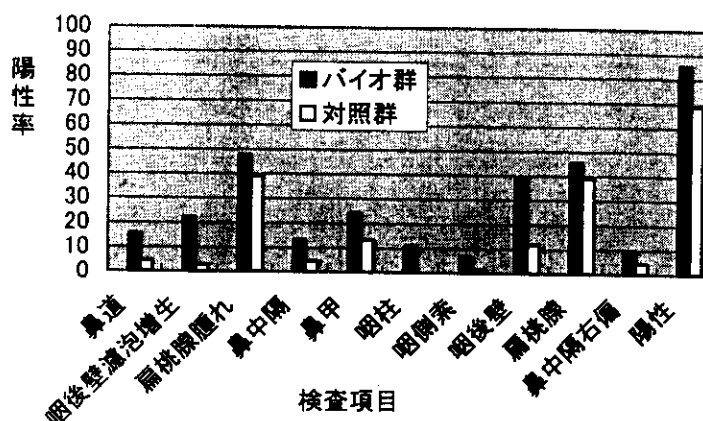


図1 バイオブリケット使用前の鼻咽喉陽性率

## 2)呼吸機能検査

バイオブリケット使用前の呼吸機能検査では肺活量、1秒率、最大呼気流量とも、対照群の方がやや値が良かったが両群間に差はなく、使用後では最大呼気流量はC群の方が値が良かった他は大きな改善傾向は認めなかった(図3, 4)。

## 3)屋内と屋外の汚染物質の濃度と個人曝露

バイオブリケット使用前のA、B家庭の二酸化硫黄濃度平均値はそれぞれ屋内1.27、4.09mg/m<sup>3</sup>、屋外0.17、0.22mg/m<sup>3</sup>で屋内濃度が著しく高かった。しかし、バイオブリケット使用時は屋内濃度はそれぞれ1.69、1.36 mg/m<sup>3</sup>、屋外濃度は0.10、0.08 mg/m<sup>3</sup>で屋内濃度は1/2から1/3に減少した。また、個人曝露濃度はA家庭の女性は1.24から0.79 mg/m<sup>3</sup>に、B家庭の女性は1.17から0.23 mg/m<sup>3</sup>へと著明に減少した。

農村地帯では昼間は男性は農作業に出ることが多く、調査協力者の人数が少なかったために、今回は女性のみを解析対象とした。従来の石炭を使用した時の屋内の二酸化硫黄の濃度は重慶市の屋外年平均値の約14倍、全国平均値の約65倍に達していた。しかし、バイオブリケット使用は、屋内濃度を1/2から1/3に低下させることがわかった。バイオブリケット使用前の鼻咽喉の陽性所見者の率が

B B群の方が対照群より高かったのは、対照群の地域の方が多少暖かく、石炭使用量、石炭暖房が少なかったためと思われる。また3月は厳しい冬の間に風邪様症状を訴える人が多く、対照群でも12月は陽性率が減少したと思われる。以上の様な条件の制約あり、使用期間が9ヶ月間と短かつたにもかかわらず、ほとんど屋内において調理を行う女性の鼻咽喉の炎症症状の陽性率は著明に減少し、バイオブリケットの使用が健康の改善に有用であることが示唆された。屋内のみでなく、屋外の大気汚染の改善も重要であるが、郊外で屋外の汚染源が存在しない地域での民生用バイオブリケットの普及は当面の対策として有効と思われる。

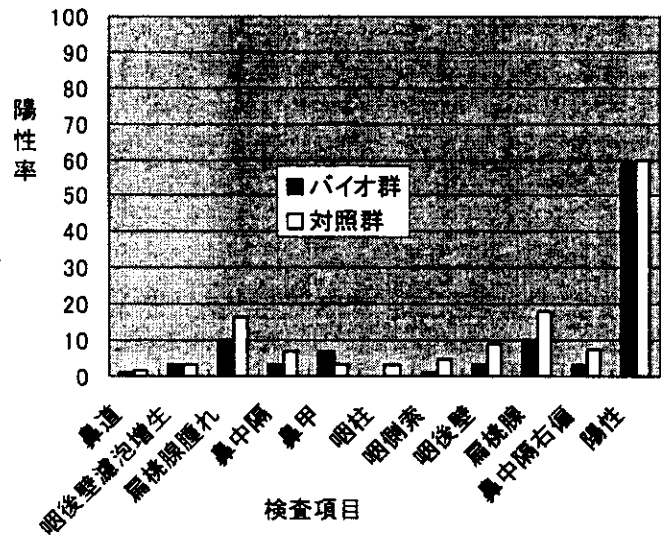


図2 バイオブリケット使用後の鼻咽喉陽性率

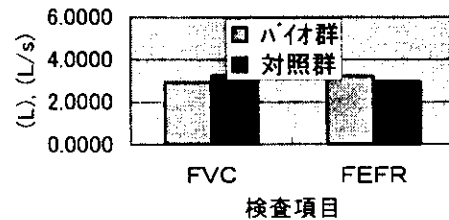


図3 バイオブリケット使用前の呼吸機能検査

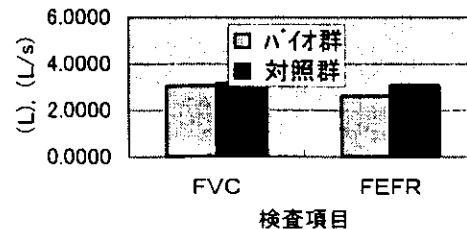


図4 バイオブリケット使用後の呼吸機能検査

## \*児童の鼻咽喉所見に与える影響

### 3. 研究方法

#### 1) 調査対象

前記調査対象と同様家庭の中で協力の得られた北陪区龍井村88人(81世帯、バイオブリケット使用群、以下BB群)と南岸区同興村106人(95世帯、従来型石炭使用群、以下対照群)を対象とした。バイオブリケット使用前(平成10年度3月)と使用后(平成10年度12月)に調査を行った。家庭選択条件としては家族に主に小学校4・5年生～中学1年生がおり、BB群で調査中にバイオブリケットを使うこと、対照群では従来の普通の石炭を使うことを約束できることとした。

#### 2) 調査内容

子供の属性、居住環境、康調査及び専門検査。

#### 3) 調査方法

アンケート調査は両親の面接により調査を行い、専門検査は専門医が行った。

### 4. 結果と考察

#### 1) 子供の属性

子供の年齢は6歳～17歳であり、7～9歳、11～14歳最大が多く、平均年齢では両群はそれぞれ10.0±2.7歳、12.1±2.6歳である。男女約半数で両群で年齢、性別に有意差がなかった。

#### 2) アンケート調査

「風邪を引いてないときでも咳がよく出る」、「最近3年間の間に風邪や呼吸器の病気で続けて3日以上寝込んだりして学校を休んだこと」がある人がそれぞれ4.2%と10.3%を占めていた。「医者に次の病気があると言われたことがある」で両群は蕁麻疹18.5%、鼻腔炎は8.7%、湿疹6.7%、肺炎と気管支炎においてそれぞれ9.2%と6.7%であった。

#### 3) 居住環境と鼻咽喉の関係

居住環境調査の中で暖房の取り方、石炭の月平均使用量、石炭の種類において両群に差を認めしたが、いずれの項目も鼻咽喉検診の陽性率には関係がなかった。平時に石炭炎の匂いがすると答え「はい」と「いいえ」において、両群は全体として鼻前庭の陽性率が21.4%と3.8%で「平時に石炭煙の匂いがする」の方が高率で有意差があった。

#### 4) 受動喫煙と鼻咽喉検診の関係

BB群と対照群の受動喫煙数がそれぞれ84.3%と86.8%としてほぼ同じだった。また「部屋の中で吸う」という答えが88.8%と86.8%を占めており、有意差がなかった。タバコを吸う群と吸わない群でも児童の鼻咽喉陽性率においては有意差が認められなかった。

#### 5) 鼻咽喉検診

表1にバイオブリケットを使用前後のBB群と対照群の鼻咽喉炎症所見の陽性率を示した。3月鼻咽喉検診では鼻道、扁桃、鼻前庭炎陽性率はBB群の方が有意に高かった。しかし12月のBB使用後の検査では両群の鼻咽喉陽性率でいずれも有意差が認められなかった。一方、BB群内ではBB使用后陽性率減少が著しく、鼻道、鼻甲、咽喉壁、扁桃、鼻前庭炎などの項目で陽性率が50%以上下がっており、統計的な有意差を認めた(図5)。しかし、対照群でも鼻甲、咽喉壁、扁桃の陽性率が下がって有意差を認めた。またBB群の中でバイオブリケットの使用前後

で、同じ児童の鼻咽喉改善の変化を見ると、鼻咽喉陽性率好転は扁桃が47.7%、鼻道と咽喉が29.3%、鼻甲が14.8%、鼻前庭が11.4%といずれも改善し、悪化した児童はほとんどいなかった(表2)。

SO<sub>2</sub>は粘膜に対する刺激作用が強く、主に呼吸器の疾患を来す。環境汚染地域の中国児童呼吸器

の80%の有訴率及び有病率がいずれの項目でも中国の方が日本より高く、石炭燃焼による環境汚染が中国の児童健康に与える影響は非常に大きいと言える。]

居住環境の要因調査から平時にも

室内に石炭の匂いがする等の要因は鼻前庭の陽性率を高めることがわかった。これらの石炭の匂いは燃焼により生じるSO<sub>2</sub>に起因すると考えられる。

受動喫煙が児童鼻咽喉の陽性率にある程度影響を及ぼすと予想されたが、受動喫煙率が両群でほぼ同じであり、またバイオブリケットの使用前後

で両群の受動喫煙率が変わっていないことから受動喫煙が本研究目的でのバイオブリケット使用後の鼻咽喉陽性数の好転率に対してはあまり大きな影響を及ぼしていないと思われる。また石炭燃焼によるSO<sub>2</sub>の影響の方があまりにも多く受動喫煙の影響がマスクされてしまった可能性がある。

表1からバイオブリケット使用前の検査ではBB群の方がいずれの項目でも陽性率が高く、特に鼻道、扁桃、鼻前庭では有意差があった。しかし、使用9ヶ月後ではほとんどの項目で陽性所見はBB群の方が少なくなった。これはBB群の陽性所見の減少が対照群より著しかったからと思われる。すなわちBB群ではバイオブリケットの使用後鼻咽喉の陽性所見は大きく減少し、使用前と統計的差を呈していて、その陽性率は1/2～1/5になった。その主な原因はバイオブリケットの使用中はSO<sub>2</sub>の濃度が下がっているためであると考えられる。

表1. BB群と対照群の鼻咽喉陽性率の比較(%)

		BB群(N=88)	対照群(N=106)
3月 使用前	鼻道	33(37.5)	21(19.8)*
	鼻甲	13(14.6)	11(10.4)
	咽後壁	25(28)	22(20.8)
	扁桃	64(72.2)	62(58)*
	鼻前庭炎	10(11.2)	3(2.89)*
12月 使用后	鼻道	12(13.5)	11(10.4)
	鼻甲	2(2.2)	0
	咽後壁	0	6(5.7)
	扁桃	23(27)	24(22.7)
	鼻前庭炎	2(2.2)	1(0.9)

(\*p<0.05)

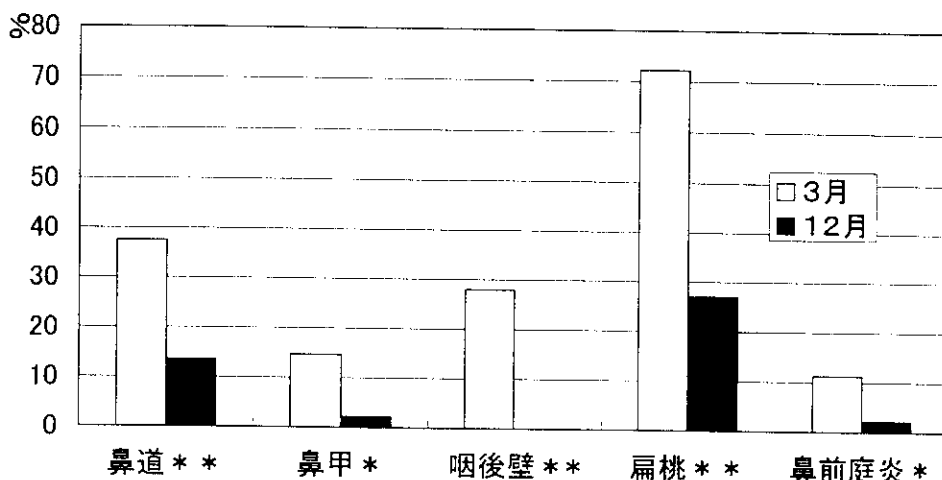


図5 BB群(児童)の使用前後の鼻咽喉所見陽性率の変化(%)

表2. BB群のバイオブリケット使用による所見の変化(%)

	好転	変化なし	悪化
鼻道	26(29.3)	57(64.8)	5(5.7)
鼻甲	13(14.8)	73(83)	2(2.3)
咽後壁	24(29.3)	64(72.2)	0(0)
扁桃	42(47.4)	44(50)	2(2.3)
鼻前庭炎	8(9.1)	80(90.9)	0(0)

## 5. 本研究により得られた成果

(1) バイオブリケット使用により、屋内の汚染濃度は著明に改善されることがわかった。中国の地方都市では、民生用の石炭の使用が多いことから、バイオブリケットの普及は酸性雨原因物質排出抑制の効果も大きいと考えられる。

(2) 健康調査の結果では、9ヶ月間の使用と短い期間の観察ではあるが、鼻咽喉検診によって炎症所見の改善率が認められた。特に家庭内にいる時間が長く、直接調理を行う成人女性で著明であった。また児童でも対照群に比べて改善率は高く、同一人についての分析では、使用後に炎症所見が悪化していた者はいなかった。

(3) 以上からバイオブリケットの使用は屋内汚染、健康影響の改善が明らかとなり、これらのデータを住民に知らせることによりバイオブリケット普及の動機付けの1つと成りうることが期待された。

## 6. 参考文献

- 1) 中国国家環境保護局：中国環境状況公報,1997
- 2) 坂本和彦：中国の大気汚染と酸性雨，MACRO REVIEW,5,49-56 (1992)
- 3) 溝口 次夫：中国環境ハンドブック，サイエンスフォーラム，PP88-93(1997)

### [国際共同研究の現状]

健康影響に関しては、重慶医科大学予防医学系衛生統計学教室の周燕栄教授のグループと共同研究の形で行っており、日本側スタッフが3年間で4回現地を訪問した。平成10年度STAフェローの短期招聘で教室スタッフの曾講師を2ヶ月間日本に招聘し、来日後は国立公衆衛生院で日本側スタッフと健康調査の分析、および意見交換を行うなど活発な国際協力が行われた。

(研究成果の発表状況)

#### (1) 口頭発表

- ①周 燕栄：第15回エアロゾル科学・技術研究討論会(1998)

「中国重慶市における酸性雨原因物質による健康影響とその抑制対策」

- ②溝口 次夫、坂本和彦他：第15回エアロゾル科学・技術研究討論会(1998)

「大気エアロゾル簡易サンプラーの研究—中国工業都市での利用—」

## II. バイオブリケット使用室内の PAH 分析法の検討

### 1. はじめに

バイオブリケットを燃料としてコンロを使用した場合の室内空気中の癌変異原物質による汚染レベルを調べるためミニポンプを用いて浮遊粉粒子を採取し、これに含まれるベンゾ[a]ピレン等の PAH を分析した。

### 2. 研究方法

#### 1) 試料採取

1999 年 12 月 23、24、25 日の 3 日間、重慶市重慶医科大学において、動物曝露室内でバイオブリケットを燃料としてコンロを使用し、この室内の空気中の浮遊粉粒子を捕集した。また、比較のため、バイオブリケットの替りに家庭で通常用いられている石炭を燃料としてコンロを用意し、同様の動物曝露室内で空気中の浮遊粉粒子を捕集した。則ち、スチール製コンロで薬缶の湯を湧かしながら曝露室内でミニポンプ (MP-15CF, 柴田科学 (株)) を稼働させ、1L/min の通気速度で室内空気を 23.3 ~ 25 時間ずつ吸引した。ミニポンプには石英繊維フィルター (Pallfex 2500QAT, Gelman Science をベルトポンチで直径 25mm に打ち抜いたもの) をセットしたフィルターホルダーを取り付けこのフィルター上に浮遊粒子を捕集した。

捕集した試料は採取直後にアルミ箔で包み、冷蔵 (+4 °C) した。

#### 2) 抽出及び分析

粒子試料フィルターは細切し、これを共栓試験管 (10mL) に入れ、ジクロロメタン 10.0mL (残留農薬試験用、和光純薬 (株)) を加えて 15 分間超音波を照射し、有機成分を抽出した。そのジクロロメタン抽出液 4.0mL をスクリュウキャップ試験管 (8mL) に分取し、これに窒素気流を弱く吹き付けて溶媒を留去した。得られた残渣にアセトニトリル 2.0mL (残留農薬試験用、和光純薬 (株)) を加えて再溶解し、3000rpm で 15 分間遠心分離した。上澄み液 5  $\mu$  L を分光蛍光検出器付き高速液体クロマトグラフ (HPLC) 装置に注入して 8 種の PAH を分析した。HPLC 装置は、システムコントローラー、ポンプ、オートインジェクター及び分光蛍光検出器等 (いずれも (株) 島津製作所) で構成され、自動的に一連の分析を行うことが可能である。

### 3. 結果および考察

分析結果のうち、バイオブリケットを燃焼した 12 月 25 日の試料のクロマトグラムを図 1 に示す。この図から pyrene, benz [a]anthracene, benzo[k]fluoranthene, benzo[a]pyrene, dibenz[a,h]anthracene, benzo[b]chrysene 及び benzo[g,h,i]perylene, dibenzo[a,e] pyrene に相当するピークが認められた。また、この様なクロマトグラムのピーク高さからこれら PAH の空気中濃度を求め、その値を表 1 に示した。表 1 から PAH 濃度は、東京に於ける大気中のレベル (benzo[a]pyrene の例では 0.8ng/m<sup>3</sup>) に比べてかなり高い値を示していることが判った。また、今回はバイオブリケットを燃焼した曝露室と比較のため通常石炭を燃焼した曝露室についても同様に採取を行った。その結果を表 1 に併せて示した。これらより 3 日ともバイオブリケットを燃焼した曝露室内の方が高い PAH 濃度を示すことが認められた。この点に関しては、燃焼条件を変えるなどし



でももう少し詳しい検討を行う必要があると思われる。

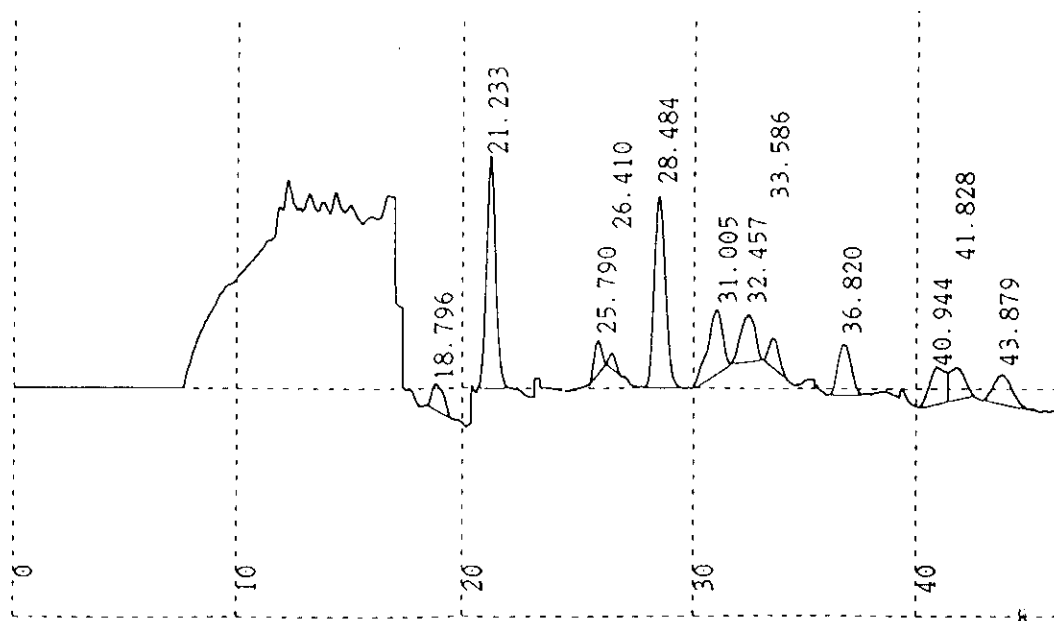


図1 室内空気浮遊粉粒子抽出液のクロマトグラム

(燃料;バイオブリケット、12月25日採取)

Pyrene;18.8min, benz [a]anthracene;21.2min, benzo [k]fluoranthene;26.4min, benzo [a]pyrene;28.5 min, dibenz [a,h] anthracene;31.0min, benzo [b]chrysene;32.5 min, benzo [g,h,i]perylene;36.8min, dibenzo [a,e] pyrenen;41.8 min

表1 動物曝露室内空気浮遊粒子中PAH濃度

燃料	採取日	通気 時間	空气中PAH濃度 (ng/m <sup>3</sup> )							
			Pyrene	BaA	BkF	BaP	dBahA	BbC	BghiP	dBaeP
1999年										
バイオブリケット	12月23日	24.0	12.1	57.6	9.9	53.7	24.9	16.1	67.5	31.0
バイオブリケット	12月24日	25.0	34.3	122.2	13.6	86.0	54.6	29.3	146.1	16.8
バイオブリケット	12月25日	23.3	7.1	27.6	5.2	29.9	14.2	8.8	43.2	14.8
石炭	12月23日	24.0	11.7	21.5	8.2	27.5	4.7	6.4	22.2	7.9
石炭	12月24日	25.0	12.1	30.3	6.2	27.4	13.8	9.4	35.7	5.4
石炭	12月25日	23.3	8.8	17.2	6.7	22.3	7.2	6.4	26.4	3.3

### Ⅲ. モデル地域における室内外の汚染物質濃度の測定と汚染特性の把握

#### 1. はじめに

欧米や日本とは異なり、東アジア地域では急激な経済発展が続いているにもかかわらず石炭から石油の燃料転換は進んでいない。特に中国では、石炭の生産、消費量が急ピッチで増加し、1997年の二酸化硫黄の排出総量は年間2000万トンを超えている<sup>1)</sup>。中国の大気汚染は依然として工業用並びに民生用石炭燃焼による「煤煙型」<sup>2)</sup>であり、その主要な汚染物質は酸性雨原因物質であるSO<sub>2</sub>と煤塵であるため、最近それらによる人体への健康被害なども報告されている<sup>3)</sup>。中国では、多くの石炭は高硫黄分、高灰分にもかかわらず、未処理のまま利用され、深刻な大気汚染源となっている。民生に密接に関連している石炭からの亜硫酸ガス、VOC類、粉塵、フッ化物の排出による環境濃度への影響は大きい。特に西南地域の都市部(重慶市や貴陽市)では、森林枯損、農業被害、建造物の腐食などの経済的な損失に加えて、呼吸系疾患の発症率も極めて高く、大気汚染との関係が憂慮されている<sup>3)</sup>。

本研究では、実験室でバイオブリケット導入による汚染物質の低減効率の計算や低減効果の評価を検討し、汚染物質別の低減効果の予測および室内外汚染物質の評価方法を検討した。さらに、重慶において原炭とバイオブリケット燃焼排気ガスの暴露実験を行い、その現場で汚染物質濃度を測定し、バイオブリケットの導入による汚染物質暴露量の低減効果の評価した。石炭を使用した場合に、選択した民家における室内のSO<sub>2</sub>濃度は1997年重慶市のSO<sub>2</sub>年平均値の約13倍に達していたが、バイオブリケット化により、室内のSO<sub>2</sub>濃度が1/2~1/3に低下した。個人暴露量の測定結果からも、石炭バイオブリケット化によりSO<sub>2</sub>の排出抑制効果が明らかにされた。SO<sub>2</sub>とNO<sub>2</sub>の個人暴露量はそれぞれ原炭燃焼時の37mg/day, 0.34mg/dayよりバイオブリケット燃焼時の16mg/day, 0.23mg/dayになっていた。

燃料使用量に比較して、低煙源から排出される民生用石炭燃焼からの汚染物質は、住民住居地域における亜硫酸ガス、VOC類、粉塵、フッ化物などに大きく寄与するため、それらの排出抑制は環境対策、住民の健康保護の立場からも急務である。それに、バイオブリケットの一般家庭への普及を考えた場合、実際の使用現場(室内)での有害汚染物質低減効果を明らかにする必要があるために室内外での暴露量評価を意図した測定法の確立が重要である。

そこで、バイオブリケット化による室内外における環境汚染レベルの変化の測定ならびにその低減効果を定量的に評価するために、濃縮捕集方法ならびにパッシブサンプラーにより現場での汚染物質を測定し、個人暴露量推定を行った。また、動物実験用に設定されたチャンバー内外の汚染物質濃度の測定を行い、モデル地域での環境汚染物質への個人暴露量の推定を試みた。さらに、検討してきた測定方法並びに評価方法を現地の実測に応用し、大気汚染の現象解析、対策効果の評価予測への利用可能性を明らかにしたいと考えている。

## 2. 実験方法

### 2.1 燃焼実験

本研究では、石炭及びバイオブリケット燃焼による  $\text{SO}_2$ ,  $\text{HCl}$ ,  $\text{NO}_x$  及びアルデヒド類等の汚染物質を測定するため、燃焼装置により燃焼実験を行った。Fig. 1 のように燃焼実験装置を組み立て、石炭及びそれらから試験製造されたバイオブリケットの燃焼時に排出される汚染物質を、濃縮捕集法と簡易測定法により測定し、バイオブリケット化により汚染物質の排出抑制の効果を評価した<sup>4)</sup>。実験方法と捕集液の分析条件などは既報<sup>5)</sup>と同様であった。

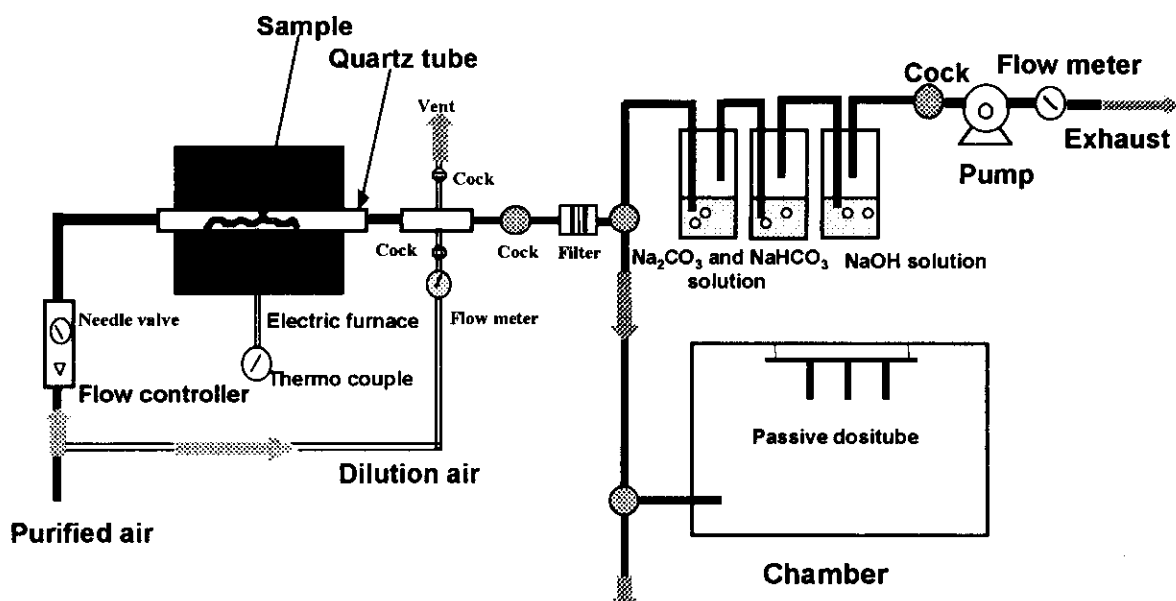
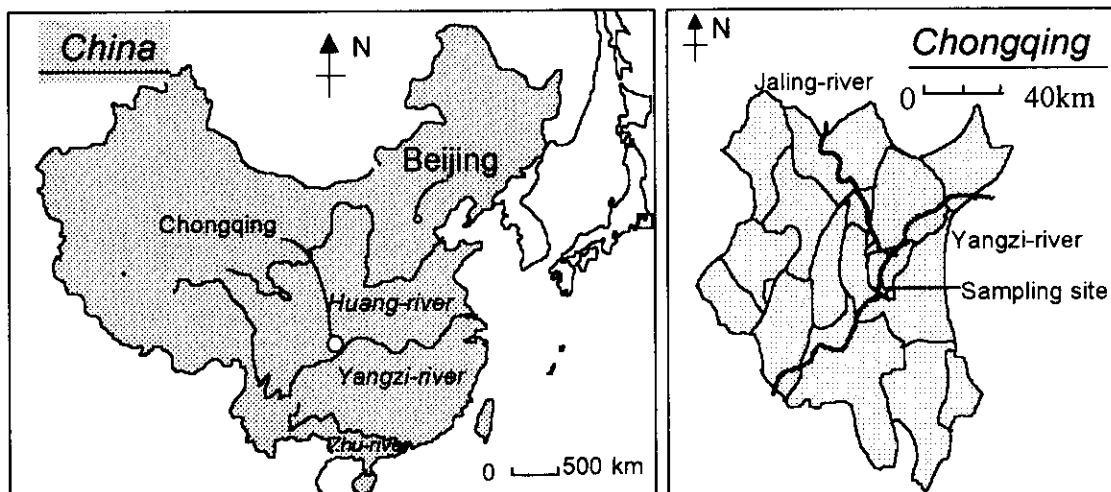


Fig. 1. Experimental equipment for combustion test.

### 2.2 酸性ガスの測定

大気汚染物質の捕集を行う前に、含浸フィルターを準備した。2% KOH(1:1 MeOH/H<sub>2</sub>O)溶液に入れたビーカーに、25mmΦにくり抜いた石英繊維フィルターを浸す。十分試薬を含浸させた後、重ならないように減圧デシケータ内のテフロンチューブ上に並べた。含浸フィルターは減圧デシケータ内で 48 時間程度乾燥させた後、チャック付きポリ袋内に 2 重に密封し、サンプリング時まで保存した。

試料の採取地点は Fig. 2 に示した重慶郊外にある龍井村と重慶医科大学の動物実験用暴露チャンバー(Fig. 3 に示す)(二部屋, 奥行き: 3 m, 幅: 1.5 m, 高さ: 2.5 m, 一般家庭の炊事場に相当)であり, 試料採取期間は 1999 年 12 月 21 日~26 日の間である。



**Fig. 2.** Map of sampling sites of Chongqing in China.

労研個人サンプラー(PS-33 型, 柴田科学機械工業株式会社)を用い, 1.5 l/min の流速で酸性ガスを捕集した。その試料フィルタを, 15 分間イオン交換水により超音波抽出を行い, 孔径 0.45 $\mu$ m のメンブレンフィルタ(No. 5B)でろ過した。抽出溶液をイオンクロマトグラフ(DIONEX 社製, DX-100 型)により分析した。陰イオンの分析にはプレカラム Ionpac AG12A, 分析カラム Ionpac AS12A, 溶離液 2.7 mM- $\text{Na}_2\text{CO}_3$ +0.3 mM- $\text{NaHCO}_3$ を用いた。

### 2.3 アルデヒド類の測定

本実験では, 酸性ガスを捕集した地点で, 石炭またはバイオブリケットの燃焼排出ガス中の粒子をテフロン濾紙により除去し, DNPH 含浸カートリッジ(Waters 社製)に 0.50 l/min の捕集流量でガスを捕集した。試料捕集後のカートリッジは分析するまでの間冷暗所に保存した。試料捕集後の DNPH 含浸カートリッジからのヒドラゾンの抽出はガス捕集方向と逆方向からアセトニトリル( $\text{CH}_3\text{CN}$ , 99.7%, 和光製)を用いて抽出した。抽出液中のヒドラゾン誘導体の濃度を HPLC-UV(LC-9A, 島津製作所製)で測定し, それらの濃度を排ガス中の RCHO 濃度に換算した。なお, HPLC-UV(カラム恒温槽 CTO-6A, UV 検出器 SPD-6A, 島津製作所製)の分析条件は既報<sup>5)</sup>と同様であった。

### 2.4 個人暴露濃度と暴露量の測定

簡易型の大気汚染測定器ハンディ・ソノックスサンプラー(グリーンブルー社製)を用い, 選択した A 家と B 家の主婦が胸ポケットに付け, 24 時間携帯し, 暴露量を調査した。暴露後のサンプラーからろ紙を取り出し, 個別に 0.3 %過酸化水素で酸性ガスを酸化した後, 各陰イオンについてイオンクロマトグラフ法で定量した。定量した

濃度を用い、個人暴露量を推定した<sup>6,7)</sup>。

## 2.5 バイオブリケットの調製

本研究で使用したバイオブリケットは原炭：大木屑：稲藁：生石灰＝72:13:13:2 の割合でバイオブリケット製造機により調製された。原炭とバイオマスの基礎分析結果を **Table 1** に示したが、石炭中の硫黄と灰分の含有量は非常に高かった。そのまま燃焼させれば、排出ガス中の高濃度の SO<sub>2</sub> は当地域における厳しい大気汚染を一層深刻にしてしまう。一方、バイオブリケット化を硫酸型酸性雨汚染防止対策の一つと考えた場合、副原料としてのバイオマスの最も重要な特性は、燃焼性硫黄含有率の低いことであるが、選択されたバイオマスの硫黄含有率はともに低かった。この二種類のバイオマスは発熱量も高く、大木屑や農作物の稲藁などの廃棄物は未利用資源として豊富であるため、当地域における民生用のバイオブリケット製造は十分に適合性が高いと考えられる。なお、生石灰中の CaO の含有率が 45.51 % であった。

**Table 1.** Analytical results of coal and biomass used in production of bio-briquette (%)(dry basis).

Sample	Ash	Volatile matter	Fixed carbon	Sulfur	Calorific capacity (J/g)	Moisture content
Coal	38.37	10.46	48.98	3.13	19,870	2.19
Rice straw	17.00	69.59	12.01	0.019	14,460	1.40
Woody dust	2.32	80.99	15.21	0.006	17,420	1.48

## 3. バイオブリケットによる汚染物質別低減効果の予測

### 3.1 低減効率の計算

バイオブリケットによる汚染物質の低減効果を評価するために、低減効率を式 (1) により算出した。式 1 の分母はバイオブリケット 1 g 中に含まれる石炭とバイオマス相当量をそれぞれ単独で燃焼させた場合の S 排出量、分子はそれとバイオブリケット 1 g を燃焼させた場合の S 排出量の差である<sup>4)</sup>。式(1)では、石炭とバイオマスの質量比が 75:25 である場合を示している。なお、式中 74 と 32 はそれぞれ Ca(OH)<sub>2</sub> と S の

$$E_{SF}(\%) = \frac{(0.75 \times S_0 + 0.25 \times S_B) / (1 + \alpha_s \times M \times 74 / 32) - S_{BB}}{(0.75 \times S_0 + 0.25 \times S_B) / (1 + \alpha_s \times M \times 74 / 32)} \times 100 \quad (1)$$

式量である。

$E_{SF}(\%)$  : 汚染物の低減率

$S_0$  : 石炭の燃焼性汚染物の排出率(g/g)

$S_B$  : バイオマスの燃焼性汚染物の排出率(g/g)

$M$  : 添加した  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  と石炭中の硫黄分含有率のモル比

$\alpha_s$  : 石炭の硫黄分含有率

$S_{BB}$  : バイオブrikettesの燃焼性汚染物の排出率(g/g)

### 3.2 バイオブrikettes導入による汚染物質の低減効果の評価

Fig. 1 に示した燃焼措置を用い、燃焼実験を行った。原炭及びそのバイオブリケットの燃焼排ガス捕集液中の  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{SO}_3^{2-}$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度より石炭燃焼により排出される  $\text{HCl}$ ,  $\text{SO}_2$  量を求めた。また、採取したフィルター重量の増加をダストの排出量として求めた。重慶と成都産の石炭及びそのバイオブリケットの燃焼実験を行い、式(1)より汚染物質の低減率を計算し、その結果を Table 2 にまとめた。重慶と成都産原炭の燃焼に比べ、そのバイオブリケット燃焼からの  $\text{HCl}$ ,  $\text{SO}_2$ , ダストの排出量は著しく低減され、本研究の燃焼条件下でそれぞれの低減率は 26~61%, 82~87%と 55~83%の範囲であった<sup>4)</sup>。また、有煙炭では、ダストの低減効果は無煙炭より顕著であった。なお、 $\text{HCl}$  の固定率はあまり高くなかった原因として、バイオマスの燃焼は石炭より多く  $\text{HCl}$  を排出し、かつ塩化物は高温で分解しやすいためと考えられる。さらに、Table 2 より、バイオマスの違いにより  $\text{HCl}$  の低減率は一致していなかったのに対して、 $\text{SO}_2$ , ダストの排出量の低減率は安定していた。石炭のバイオブリケット化により燃焼排ガス中の  $\text{SO}_2$  などの汚染物質が効果的に抑制されるので、バイオブリケット化は硫酸型酸性雨汚染防止対策の一つとして有効であると期待できる。

**Table 2.** Emission of the air pollutants from coal and their bio-briquette combustion, and reduction efficiency of pollutants by bio-briquetting (dry basis)

Sample	Emission (mg/g-coal)			Combustible S%	Reduction efficiency (%)		
	HCl	$\text{SO}_2$	Dust		HCl	$\text{SO}_2$	Dust
Chengdu raw coal 1 <sup>1)</sup>	0.05	8.01	0.69	0.40			
B.B <sup>3)</sup> (coal +sawdust)	0.04	1.02	0.31	0.05	30	83	55
Chengdu raw coal 2 <sup>1)</sup>	0.20	40.62	2.37	2.03			
B.B <sup>3)</sup> (coal +sawdust)	0.10	4.16	0.90	0.21	35	85	62
Chengdu raw coal 3 <sup>1)</sup>	0.15	52.83	2.82	2.64			
B.B <sup>3)</sup> (coal +sawdust)	0.06	6.65	1.02	0.33	49	82	64
Chongqing raw coal 1 <sup>1)</sup>	0.39	49.49	2.25	2.47			
B.B <sup>3)</sup> (coal +sawdust)	0.11	5.48	0.79	0.27	61	84	65
Chongqing refined coal 2 <sup>2)</sup>	0.30	22.20	8.93	1.11			

B.B <sup>3)</sup> (coal+sawdust)	0.12	2.06	2.18	0.10	54	87	76
B.B <sup>3)</sup> (coal+rice bran)	0.28	1.93	1.60	0.10	26	88	82
B.B <sup>3)</sup> (coal+maize stalk)	0.12	2.67	1.59	0.13	31	83	82
B.B <sup>3)</sup> (coal+tofu dregs)	0.14	2.99	1.51	0.15	50	82	83

1) Anthracite coal; 2) Bituminite coal, 3) Bio-briquettes (B. B.) were produced from 75 wt% of raw coal and 25 wt% of biomass by the addition of sulfur-fixation agent (Ca(OH)<sub>2</sub>)(Ca/S=2.0).

したがって、石炭のバイオブリケット化により、SO<sub>2</sub>の発生量が大幅に低減され、着火性や燃焼性も良く、未燃分損失も少なく、さらに燃焼効率を向上させるため、大気汚染の抑止及び酸性雨防止対策技術として、重慶や成都などの四川省地域だけではなく、幅広く普及させることにより、大きな効果が期待できる。

#### 4. 室内外汚染物質の評価方法の提案

最近は大気の高濃度汚染による急性影響的なものから、低濃度の長期暴露の影響がどのようであるか、疫学的な面まで調査研究が進められている<sup>8,9)</sup>ため、大気汚染或いは環境条件と呼吸器疾患などの疫学調査には、人が実際に生活する場の空気汚染濃度を調査し、即ちそれらの室内外濃度比(Indoor/Outdoor 比)と個人暴露量(Personal exposure)に重点をおいて考えることが重要である。

##### 4.1 現場の室内外汚染物質の測定

重慶郊外にある龍井村で二軒の一般家庭(A家とB家)を選んで、石炭とその石炭より作られたバイオブリケットを用いて燃焼させ、能動的サンプリング装置と受動サンプラー(簡易サンプラー)をFigs. 4, 5に示したように設置し、室内外の汚染物質を測定し、調査結果をTables 3~5に示した。強制的に吸引捕集して測定した(active method)濃度(Table 4)と簡易法(passive method)の測定濃度(Table 3)と比べた所、両方法による測定値はある程度の差が存在していた。Tables 3, 5より、調査地域の大気汚染は非常に厳しい状態を呈していることが分かる。特に、健康影響に密接に関係する室内の汚染物質濃度がかなり高かった。A家とB家で石炭を使用した場合に、室内のSO<sub>2</sub>濃度はそれぞれ1997年の重慶市大気中のSO<sub>2</sub>年平均値<sup>1)</sup>(321 µg/m<sup>3</sup>(121 ppb(v/v)))の約13.3倍と13.7倍に、1997年全国の大気中SO<sub>2</sub>年平均値<sup>1)</sup>(66 µg/m<sup>3</sup>(25 ppb(v/v)))の約65倍と67倍に達していた。一方、A家とB家の室外のSO<sub>2</sub>濃度は1997年重慶市大気中のSO<sub>2</sub>年平均値(321 µg/m<sup>3</sup>)以下であることが分かった。これは調査した時期が真冬であり、ドアや窓などを閉めたままの状態、さらに民家の炊事場で使用されている炉には煙突がなく、燃焼ガスは室内に広がる状態になっており、室内の汚染物質濃度が室外より高くなっていたためであると推定される。

一方、その石炭により作製したバイオブリケットを使用した場合に、室内の汚染物質濃度ははるかに低くなっていた。室内のSO<sub>2</sub>濃度はそれぞれ1997年重慶市のSO<sub>2</sub>年平均値(321 µg/m<sup>3</sup>(121 ppb(v/v)))の約5.2倍と4.2倍に、1997年全国のSO<sub>2</sub>年平均値(66 µg/m<sup>3</sup>(25 ppb(v/v)))の約25倍と21倍に達していたが、石炭を使った場合より、室内

のSO<sub>2</sub>濃度が1/2~1/3に低下していた。よって、室内の汚染物質濃度をさらに低下させるためには、燃料転換だけでなく、炉の使い方や炊事場の改造等が重要であると考えられる。

**Table 3.** Measurements of indoor and outdoor air pollutants in the suburbs of Chongqing by passive samplers.

Sampling site	Fuel	Sampling time (h)	Indoor		Outdoor	
			NO <sub>2</sub>	SO <sub>2</sub>	NO <sub>2</sub>	SO <sub>2</sub>
			μg/m <sup>3</sup>	mg/m <sup>3</sup>	μg/m <sup>3</sup>	mg/m <sup>3</sup>
A	Coal	24(1999,12,21 10:00~22, 10:00)	31.2	5.08	13.8	0.03
	B.B**	24(1999,12,22 15:00~23, 15:00)	10.4	0.79	10.6	0.07
B	Coal	/	/	/	/	/
	B.B**	24(1999,12,22 15:00~23, 15:00)	11.0	0.60		

\*\* : B.B is the bio-briquette.

**Table 4.** Measurements of indoor and outdoor aldehyde using coal and B.B in Chongqing (μg/m<sup>3</sup>).

Sampling point		Indoor			Outdoor		
		HCHO	CH <sub>3</sub> CHO	CH <sub>3</sub> CH <sub>2</sub> CHO	HCHO	CH <sub>3</sub> CHO	CH <sub>3</sub> CH <sub>2</sub> CHO
A	Coal	165.6	239.5	118.0	40.5	59.3	8.8
	B.B**	134.8	180.3	77.9	27.5	42.6	8.1
	*	82.0	109.5	74.3	23.51	24.0	7.8
B	Coal	55.4	67.2	12.8	45.3	54.9	12.2
	B.B**	64.3	88.1	58.3	17.4	43.8	9.5

\* : It is dinner time. \*\* : Refer to Table 3



**Table 5. Measurements of indoor and outdoor air pollutants in the suburbs of Chongqing.**

Sampling point	Indoor				Outdoor				
	HF	HCl	NOx*	SO <sub>2</sub>	HF	HCl	NOx*	SO <sub>2</sub>	
	μg/m <sup>3</sup>				μg/m <sup>3</sup>				
Coal	Breakfast time <sup>1)</sup>	9.5	9.1	1.5	4.40	4.5	5.4	3.7	0.13
	Lunch time <sup>1)</sup>	21.1	14.0	2.8	4.40	nd	nd	5.6	0.21
	Dinner time <sup>1)</sup>	26.6	33.2	11.0	4.00	/	/	/	/
	Average value <sup>2)</sup>	19.1	18.8	5.1	4.27	2.2	2.7	4.6	0.17
B.B**	Breakfast time	4.3	6.4	1.2	1.68	3.3	3.0	2.5	0.09
	Lunch time	9.8	12.8	0.6	1.70	1.6	7.6	0.5	0.10
	Average value <sup>2)</sup>	7.0	9.6	0.9	1.69	2.4	5.3	1.5	0.10
	Breakfast time	2.9	6.2	1.5	4.09	/	/	/	/
Coal	Lunch time	13.0	15.0	5.2	5.08	/	/	/	/
	Dinner time	23.5	25.1	5.1	4.02	nd	5.7	1.0	0.22
	Average value <sup>2)</sup>	13.1	15.4	3.9	4.40	5.7	5.7	1.0	0.22
	Breakfast time	2.0	12.8	1.2	1.60	4.7	nd	1.0	0.08
B.B**	Dinner time	1.6	17.6	0.5	1.12	nd	2.3	0.8	0.08
	Average value <sup>2)</sup>	1.8	15.2	0.8	1.36	2.3	4.0	0.9	0.08

\*: NOx presents the sum of NO<sub>2</sub> and NO. \*\*: Refer to Table 3.

1) Breakfast time is 8:00~10:00, lunch time is 10:00~13:00, and dinner time is 16:00~19:00 in this study.

2) Geometrical mean value.

さらに、Tables 3, 5より、A家とB家のNOx濃度が室内も室外も1997年全国のNOx年平均値(45 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )より低く、国で設定した二級基準以下であるが、室外のNOx濃度が室内より高かった。これは、A家とB家が幹線道路の側にあるため、自動車や大型トラック等から排出されたNOxも関係しているためかもしれない。

Table 5により、A家室内のホルムアルデヒド濃度は高く、WHOで設定したホルムアルデヒドの室内濃度の基準値<sup>10)</sup>0.08 ppm (96  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )を超えたが、B家室内外のホルムアルデヒド濃度は基準値よりかなり低かった。これはA家とB家で使用した炉の構造や換気条件を異なっていたためと推定される。

#### 4.2 動物実験室内外の汚染物質濃度の測定

重慶では呼吸系疾患の発症率も極めて高く、大気汚染と肺ガンの発生の関係も、各種の原因が複雑に絡みあっている。その原因を解明する一助とするために、同一条件の二室(床面積4.5 (3m $\times$ 1.5m) m<sup>2</sup>, 高さ2.5 m)で、石炭とバイオブリケットを用い、Fig. 3に示したControl室(Coal)とTest室(Bio-briquette)に分け、動物(うさぎ)への燃焼排気の暴露実験を行い、Fig. 6に示したように汚染物質(酸性ガス類とアルデヒド類)を採取し、それらの濃度を測定した。その結果をTables 6, 7に示した。

**Table 6.** Indoor and outdoor air pollutant concentrations in chamber for exposure experiment of animals to coal and bio-briquette burning exhausts.

Sampling time	Coal				Bio-briquette			
	HF	HCl	NOx	SO <sub>2</sub>	HF	HCl	NOx	SO <sub>2</sub>
	$\mu\text{g}/\text{m}^3$			$\text{mg}/\text{m}^3$	$\mu\text{g}/\text{m}^3$			$\text{mg}/\text{m}^3$
Breakfast time <sup>1)</sup>	32.0	35.5	1.3	7.49	17.2	92.7	48.9	4.40
Lunch time <sup>1)</sup>	18.0	52.8	9.0	7.35	14.4	205.0	83.2	1.75
Dinner time <sup>1)</sup>	8.1	30.8	20.7	3.36	4.1	80.6	17.1	1.59
Average value	19.4	39.7	10.3	6.07	11.9	126.1	49.7	2.58
Outdoor								
	HF	HCl		NOx	SO <sub>2</sub>			
		$\mu\text{g}/\text{m}^3$			$\text{mg}/\text{m}^3$			
Breakfast time	5.8	9.0		12.0	0.28			
Lunch time	8.6	10.6		36.4	0.37			
Dinner time	3.1	1.4		13.5	0.29			

Average value	5.8	7.0	20.6	0.31
---------------	-----	-----	------	------

1): Refer to Table 4.

Table 6 より Control 室の SO<sub>2</sub> 濃度が Test 室より 2 倍以上高く、その濃度範囲と平均値は 3.36~7.49 mg/m<sup>3</sup> と 6.07 mg/m<sup>3</sup> であった。バイオブリケットを使用した Test 室の SO<sub>2</sub> 濃度の方が低く、バイオブリケットの SO<sub>2</sub> 固定効果は明らかである。室外の SO<sub>2</sub> 濃度が 0.28~0.37 mg/m<sup>3</sup> であり、重慶市の SO<sub>2</sub> 年平均値とほぼ同様であった。

また、Table 7 より、Test 室のアルデヒド類濃度が Control 室より高く、WHO で設定したホルムアルデヒドの室内濃度の基準値 0.08 ppm (96 µg/m<sup>3</sup>) を超えた。バイオブリケットの中に約 25 % のバイオマスが含まれ、かつバイオブリケットの不完全燃焼と推定された。室外のアルデヒド類の濃度は非常に低い状態であった。

**Table 7.** Indoor and outdoor aldehyde concentrations in chamber for exposure experiment of animals to coal and bio-briquette were burning exhausts (µg/m<sup>3</sup>).

Sampling time	Coal			B.B		
	HCHO	CH <sub>3</sub> CHO	CH <sub>3</sub> CH <sub>2</sub> CHO	HCHO	CH <sub>3</sub> CHO	CH <sub>3</sub> CH <sub>2</sub> CHO
Breakfast time <sup>1)</sup>	48.0	19.1	19.2	215.2	222.1	95.1
Lunch time <sup>1)</sup>	28.3	30.0	21.8	303.4	452.9	204.3
Dinner time <sup>1)</sup>	69.2	31.2	28.4	127.2	178.5	110.9
Outdoor						
	HCHO	CH <sub>3</sub> CHO		CH <sub>3</sub> CH <sub>2</sub> CHO		
Breakfast time	1.0	1.8		26.5		
Lunch time	6.3	35.7		37.9		
Dinner time	4.1	11.7		15.4		

1): Refer to Table 4.

#### 4.3 個人暴露量の推定(PE)

前に述べたように調査家庭の室内の汚染物質が高濃度を呈していたが、それらは個人暴露濃度ではないため、ここでは上記とは別途個人携帯用のハンディ・ソノックスサンプラーを用い、個人暴露濃度を測定した。個人暴露量(PE)の計算式<sup>6,7)</sup>を以下に示す。調査家庭における個人暴露量の上式による計算結果を Table 8 にまとめて示した。

$$PE(\text{mg/day}) = \text{TWA} \times 8(\text{l/min}) \times t(\text{min}) \times M/24 \times 1/10^3$$

ここに、TWA(ppm)：個人暴露濃度；8(l/min)：人の1分間当たりの呼吸量；t:1日の暴露時間(min)；M：汚染物質の分子量

Table 8. Personal exposure to the air pollutants in Longjing of Chongqing.

Sampling site	Fuel	Sampling time (h)	TWA*				PE**			
			NO <sub>2</sub>	HCHO	CH <sub>3</sub> CHO	SO <sub>2</sub>	NO <sub>2</sub>	HCHO	CH <sub>3</sub> CHO	SO <sub>2</sub>
			μg/m <sup>3</sup>			mg/m <sup>3</sup>	mg/day			
A	Coal	24***	14.8	/	/	1.24	0.31	/	/	38.09
	B.B	24***	10.4	/	/	0.79	0.22	/	/	24.26
B	Coal	24***	18.0	6.9	4.9	1.17	0.38	0.10	0.1	35.94
	B.B	24***	11.5	34.6	30.1	0.23	0.24	0.50	0.64	7.06

\*: Time weight average; \*\*: personal exposures; \*\*\*: Refer to Table 3.

Table 8に示したように、今回調査したA家とB家の主婦の石炭使用時のSO<sub>2</sub>とNO<sub>2</sub>の個人暴露量はほぼ同じで、特にSO<sub>2</sub>の個人暴露量は約40 mg/m<sup>3</sup>に達していた。一方、バイオブリケット使用の場合は、SO<sub>2</sub>とNO<sub>2</sub>の個人暴露量が大幅に低減されていた。しかし、HCHOとCH<sub>3</sub>CHOの濃度が少し増えていたがWHOの基準0.08 ppm (96 μg/m<sup>3</sup>)以下であるため、それらの暴露量も健康影響をもたらす恐れはないと推定される。よって、高硫黄や高灰分石炭を使用している地域では、石炭バイオブリケット化により汚染物質の低減効果が明らかにされた。経済発展の途上にある中国にとって、特に都市郊外や農村部では資源と財力の制約から根本的なエネルギー構成の改善は困難であり、当面は石炭の燃焼効率の改善と燃焼による汚染物質排出抑制対策を優先する必要があるため、ブリケット化の推進は現段階において採用し得る主な過渡的な措置と考えられる。

##### 5. まとめと今後の課題

本研究では、実験室でバイオブリケット導入による汚染物質の低減効率の計算や低減効果の評価を検討し、汚染物質別の低減効果の予測および室内外汚染物質の評価方法を検討した。さらに、重慶において原炭とバイオブリケット燃焼排気ガスの暴露実験を行い、その現場で汚染物質濃度を測定し、バイオブリケットの導入による汚染物質暴露量の低減効果の評価した。

これまでに中国への適正化研究の実績があるバイオブリケット化技術の広域普及には、燃焼後に発生する廃棄物である燃焼灰の有効利用に関する研究は欠かせない。さらに、酸性雨発生地域では土壌の酸性化やそれによる栄養塩の溶出等による農林産

物の収量減少などの被害が発生しつつあり、酸性土壌の修復とともに栄養塩欠乏土壌への栄養塩供給に関する研究が今後重要な課題であると考えられる。

参考文献：

- 1) 中国国家環境保護総局：中国環境状況公報，(1997)。
- 2) 坂本和彦：中国の大気汚染と酸性雨，*MACRO REVIEW*, **5**, 49~56 (1992)。
- 3) 溝口次夫：中国環境ハンドブック，サイエンスフォーラム，pp. 88~93(1997)。
- 4) X. Dong, S. Gao, K. Sakamoto, S. Hatakeyama, Q. Wang, Y. Hashimoto, R. Luo and Z. Yang: Studies on Emission Control for Precursors Causing Acid Rain (III) Chemical components of coal and bio-briquette combustion aerosols and its relationship to acid rain. *J. Aerosol Res. Jpn*, **15**, 000~000 (2000)。
- 5) 董旭輝，坂本和彦， 畠山史郎 (1999): 東アジアにおける酸性雨物質排出抑制と影響評価に関する研究—モデル地域における室内外の環境汚染評価に関する共同研究. *Eco- Frontier Fellowship in 1998*, pp.201~212.
- 6) 村松学：室内空気汚染に関する研究，*大気汚染学会誌*，**21**， 236~252 (1993)。
- 7) 松村年郎，長田英二，小嶋茂雄：冬季一般家庭における室内汚染について，*大気汚染学会誌*，**28**， 140~152 (1993)。
- 8) 宮本昭正，可部順三郎，前田和浦：大気汚染と呼吸器疾患(新訂)，ぎょうせい，pp. 43~55 (1984)。
- 9) 松村年郎:室内空気汚染の現状について，*大気汚染学会誌*，**26**， A99~A109 (1991)。
- 10) S. Alm and A. Reponen：Personal exposures of preschool children to carbon monoxide: Roles of ambient air quality and gas stoves, *Atmospheric Environment*, **28**(22), 3577-3580 (1994)。

[研究成果の発表状況]

(1)口頭発表

- ① S. Gao, K. Sakamoto, X. Dong, S. Hatakeyama and Q. Wang (1999): Chemical components of coal and bio-briquette combustion aerosols and its relationship to acid rain. First Asia aerosol conference abstracts, pp.328~329 (Nagoya, Japan).
- ② S. Gao, K. Sakamoto, X. Dong, W. Wang, S. Hatakeyama and Q. Wang (1999): Studies on emission control for precursors causing acid rain: Studies on coal-biomass briquetting in Chongqing, China. Proceedings-CD of the 4th international symposium on coal combustion, session 2-6 (4p.) (Beijing, China).
- ③ 董旭輝, 坂本和彦, 高世東, 畠山史郎, 内山巖雄: 重慶地域における室内外の環境汚染物質の測定と暴露量の推定, 第40回大気環境学会年会講演要旨集, pp.573 (1999).
- ④ 坂本和彦, 磯部友護, 董旭輝, 石谷治: バイオブリケット燃焼灰の有効利用に関する基礎的研究, 第40回大気環境学会年会講演要旨集, pp.267 (1999).
- ⑤ 董旭輝, 坂本和彦, 石原日出一, 横島勝男, 畠山史郎: 低濃度 HF の発生及び石炭バイオブリケット燃焼ガス中フッ化物の測定, 第39回大気環境学会年会講演要旨集, pp.369 (1998).
- ⑥ J. Wang, K. Sakamoto, X. Dong, S. Gao, K. Yokosima, O. Ishitani: Study on control of Acid Rain of Chongqing Area: Fixation of Sulfur Dioxide, Proceeding of the 39th Annual meeting of the Japan Society for Atmospheric Environment, pp.367 (1998).
- ⑦ 高世東, 坂本和彦, 董旭輝, 王軍, 畠山史郎: 重慶市の酸性雨原因物質制御のための低灰分のバイオブリケット製造に適したバイオマスの選定, 第39回大気環境学会年会講演要旨集, pp.368 (1998) .
- ⑧ 高世東, 坂本和彦, 王軍, 董旭輝, 畠山史郎, 全浩, 松本光弘: 石炭エアロゾルの化学特性及びその酸性雨への関与, 第15回エアロゾル科学・技術研究討論会, pp.281~283 (1998).

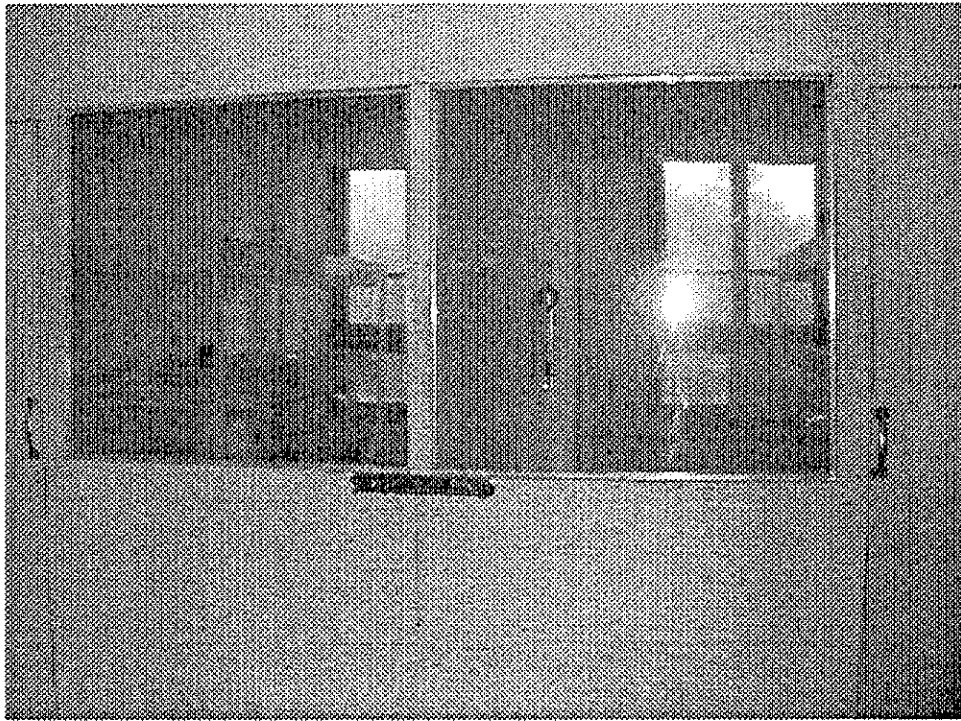


Fig. 3. Exposure chamber of coal or bio-briquette combustion exhaust to experimental animal at Chongqing University of Medical Science.

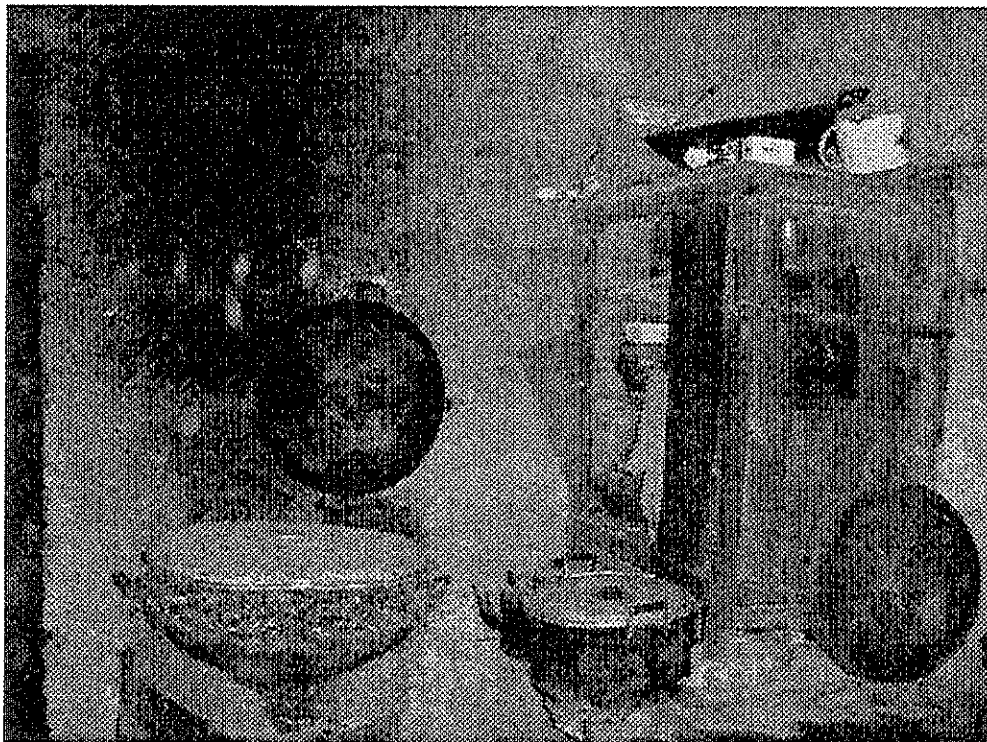
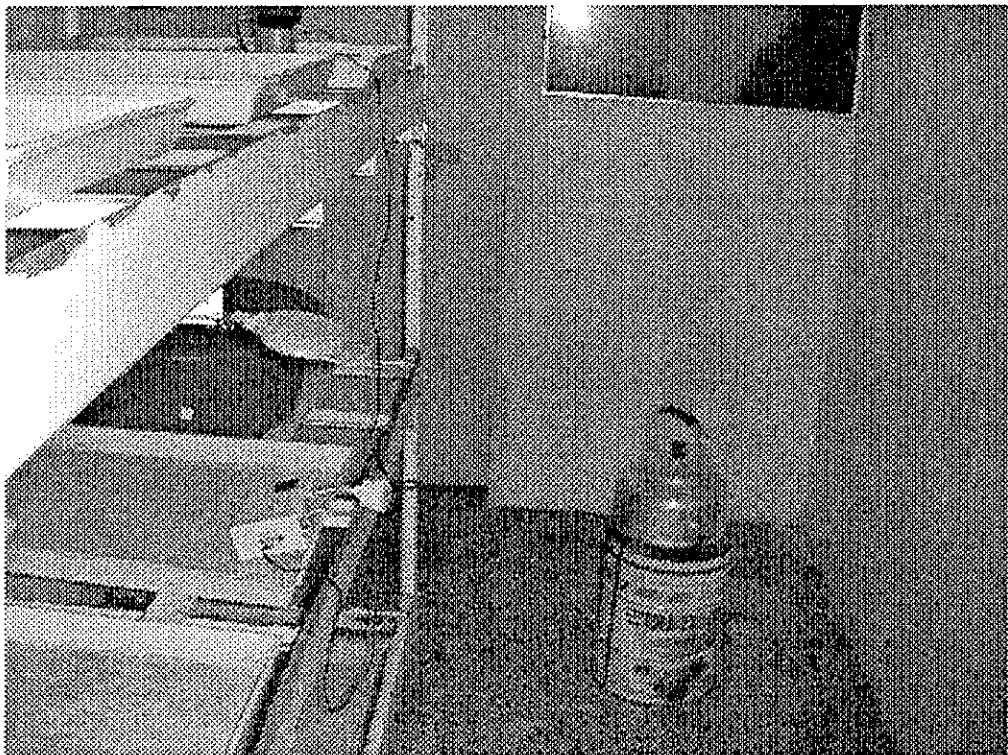


Fig. 4. The sampling of indoor air pollutants in the suburbs of Chongqing by passive samplers and acid gas sampler.



**Fig. 5.** The sampling of outdoor air pollutants in the suburbs of Chongqing by passive samplers and acid gas sampler.



**Fig. 6.** The sampling of indoor pollutants in chamber for exposure experiment of animals to coal and Bio- briquette burning exhausts.