

総粉じん、インハラブル粒子の定義及び捕集方法に関する文献等

はじめに

呼吸域の濃度が濃度基準値以下であることを確認するための測定（確認測定）において、レスピラブル粒子の粒径指定がない濃度基準値の確認測定における対象粒子として、総粉じんとインハラブル粒子の関係をどのように整理すべきか、また、適切なサンプラーをどのように選択すべきかを把握するため、関係文献をレビューした。

第1 政府機関関係文献のレビュー

1 ISO 7708 によるインハラブル、ソラシック、レスピラブル粒子の定義

- (1) エアロゾル粒子の種類については、レスピラブル粒子(respirable aerosol fraction)に関する英国医学研究所(BMRC)の定義（ $5\mu\text{m}$ 50%カットオフ）が国際的に最初に認知され(Orenstein (1960)、1989年に新たな粒子径の分類が提案され（Soderholm (1989)）、その後、inhalable, thoracic, respirableの3つの粒径分布が国際的に認知され、ISO 7708 (1995)に規定された。ISO 7708 が規定する3つの粒径分布のうち、代表的なものは Fig.1 のとおり。

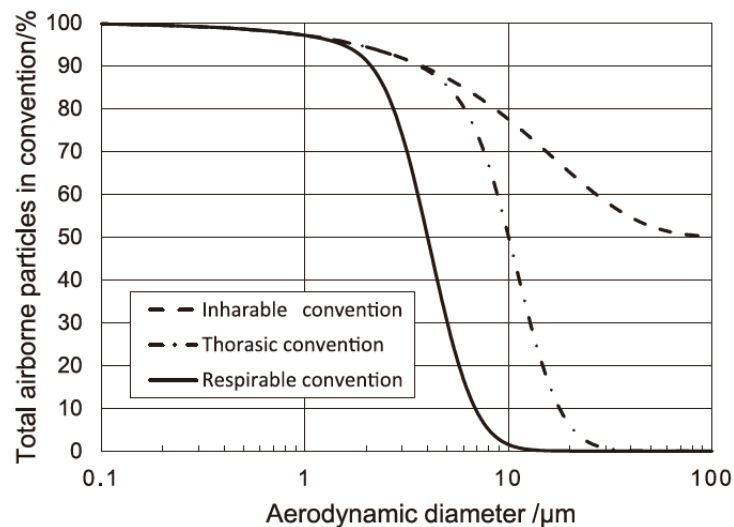


Fig. 1 Airborne particles conventions for air samplers defined in ISO 7708:1995.

- (2) ISO 7708(1995)では、インハラブル粒子(inhalable fraction)は、鼻や口から吸入される空気中の全ての粒子(total airborne particles)の合計質量部分(Mass fraction of total airborne particles which is inhaled though the nose and mouth)と定義されており、呼吸数などによる空気の移動速度及び方向に依存するとしている(para 2.2)。ISO 7708 (1995)では、インハラブル(inhalable)という用語を採用した理由として、

インハラブル粒子の定義(inhale)を最も自然に記述している用語であるためとしている。”inhalable”については用語の使用方法に混乱があり、1970年代後半の欧州の英語論文誌は、”inhalable”がISOの定義と同じ意味として使われていた一方、米国環境保護庁(EPA)では、いわゆるPM₁₀を”inhalable”としていたため、混乱を避けるため、ISO/TR 7708(1983)では”inspirable”という用語を使用していた。その後、EPAが”inhalable”をそのような意味では使わなくなったため、”inhalable”という用語を採用したとしている(Annex A)。

- (3) インハラブル捕集特性(inhalable convention)は、インハラブル粒子を測定しようとする場合のサンプラーの仕様(specification)であるとされ(para 2.4)、全ての方向の風速が4m/s未満の場合に捕集された粒子の%分布として、次の式で表される。ここで、Dは空気力学的粒径(AED)であり、E_Iは、粒子径ごとの%分布である。実験データによれば、風速が4m/s未満では100μmよりも粒子径の大きいインハラブル粒子は存在しないため、インハラブル捕集特性は100μmより大きい値には適用しない、とされている(para 5)。

$$E_I = 50 (1 + \exp [-0.06D])$$

- (4) 風速が4 m/s以上の場合には次の式が暫定的に推奨されている。ここで、uは風速であり、D > 90 μm 又は u > 9 m/s の場合には適用しないとしている(para 5, NOTE 4)。

$$E_I = 50 (1 + \exp [-0.06D]) + 10^{-3} u^{2.73} \exp [0.055 D]$$

- (5) ソラシック捕集特性(thoracic convention)は、中央値が11.64μmで幾何標準偏差が1.5の累積幾何正規分布で定義される。この分布では合計粒子の50%は粒子径が10μmにある(10 μm 50%カットオフともいう。)(para 6)。
- (6) レスピラブル捕集特性(respirable convention)は、2種類定義されており、有病者や子供に対しては、中央値が2.5μmで幾何標準偏差が1.5の累積幾何正規分布で定義される(いわゆるPM_{2.5})(para 7.1)。健康な成人を対象とした定義は、中央値が4.25μmで幾何標準偏差が1.5の累積幾何正規分布で定義される。この分布では合計粒子の50%は粒子径が4μmにある(4 μm 50%カットオフともいう。)(para 7.2)。以下、本稿では、健康な成人向けの定義をレスピラブル捕集特性として使用する。

2 米国における粒子状物質のばく露限度での粒径に関する規定

- (1) 米国 OSHA 規則 CFR 29.1910.1000 の Table Z-1 (Limits for Air Contaminants) においては、物質別に限度値(PEL)を列記し、このうち、いくつかの物質については、レスピラブル粒子(respirable fraction)、総粉じん(total dust)の基準値を規定し、それぞれの粒径別の限度値について、労働者のばく露がいかなるときもこの限度値を超えてはならないと規定されている。インハラブル粒子の基準値が明示的に規定されている物質はない。米国労働安全衛生研究所(NIOSH)が推奨しているばく露限度(REL)においても、同様である。
- (2) ACGIH(2018)は、”inhalable, thoracic, 又は respirable 粒子”という記載がないば

く露限界値 (TLV) については、総粉じん (total particulate matter) として規定されている、としている。さらに、ACGIH の意図としては、総粉じんによる TLV を inhalable, thoracic か respirable の TLV に置き換えていく、としている(p.72)。ただし、インハラブルという粒径の注記のある TLV が設定されている物質は、約 30 物質に限られ、ソラシックという注記はない(ACGIH 2021)。

- (3) ACGIH(2018)の Appendix C においては、inhalable fraction, thoracic fraction, respirable fraction の捕集特性の定義が示されているが、これは、ISO 7708: 1995 と同じものである(pp.80-83)。
- (4) 米国労働安全衛生研究所 (NIOSH) は、分析マニュアル NIOSH 0500 (1994) において、総粉じんを測定する方法として、37mm サンプラーにポリ塩化ビニル(PVC)フィルタをクローズドフェース型フィルタカセット(CFC)に装着して使用する方法を定めていたが、フィルタ以外のカセット内壁に付着する粒子が多いため、測定結果が過小評価されることが問題となり、2015 年に NIOSH 0501 として、カセットの中にフィルタカプセル(Accu Pad)を挿入する方法を提案した。レスピラブル粒子のサンプリング方法については、NIOSH 0600(1998)で規定されている。
- (5) NIOSH 0501 は、総粉じんの測定法として提案されているが、O'Connor et al (2015) は、NIOSH 0501 のバックデータとして、37mm CFC サンプラーに Accu Pad 装着したものと、IOM サンプラーの比較のため、鋳物工場で二つのサンプラーを併行測定した結果、Accu-Cap/IOM の平均の比は 89%(±9%)であり、NIOSH 0501 と IOM との互換性が示された、としている。

3 英国安全衛生庁 (HSE) における粒子状物質のばく露限度での粒径に関する規定

- (1) 英国安全衛生庁 (HSE (2020)) では、インハラブル粒子(inhalable dust)は、呼吸時に鼻と口から入り、呼吸器に沈着する空気中の物質の部分(fraction)を近似したものであるとしている(p.25 para 43)。
- (2) 粒子状物質に関する職場のばく露限度 (WEL) は、特記のない場合、インハラブル粒子を指すとしている(p.9 para 16)また、WEL の目的を踏まえ、定められた方法(MDHS 14/4)に従って測定した際に捕集される空気中粒子は、レスピラブル粒子とインハラブル粒子である、としている(HSE (2020) p.8, para 13)。
- (3) MDHS 14/4 (HSE (2014))においては、インハラブル粒子の定義として ISO 7708 を引用するとともに(p. 1, para 4)、付属書において、インハラブル粒子のサンプラーとして、IOM (2L/min)、コニカル・インハラブル・サンプラー(CIS, 3.5L.min)、Button サンプラー(4L/min)と multi-orifice sampler (2L/min)が典型的なものとしている(p.9, Appendix para1)。その上で、IOM サンプラーがインハラブル粒子の定義(捕集測定)に最も合致するサンプラーであり、最も好ましいサンプラーであるとしている(p.9 para 2)。ただし、測定において、インハラブル粒子ではないとされる 100µm を超える粒子が捕集される場合があり、そのようなサンプルの妥当性を評価すべきとしてい

る(para 44, 64)

4 ドイツの短時間基準と8時間基準の関係

- (1) ドイツ研究振興協会(DFG (2021))が勧告している職場の最大濃度(MAK)では、レスピラブル粒子(respirable fraction)とインハラブル粒子(inhalable fraction)の定義として、EN 481 (ISO 7708 と同じもの)を示している。(p.179)。
- (2) DFG (2021)においては、一部の物質について、インハラブル粒子 (inhalable fraction)、レスピラブル粒子(respirable fraction)に関する MAK を示している。インハラブル粒子の MAK は、約 20 物質が示されているが、基本的にレスピラブル粒子との対比が必要な場合に限定されている。それ以外の物質の MAK には、粒子径の限定は附されていない。
- (3) DFG においては、総粉じん (total deposited fraction) を吸引され、排出されないエアロゾル粒子(aerosol fraction which is inhaled but then not exhaled)と定義している(p.182)。その上で、インハラブル粒子 (inhalable fraction) とレスピラブル粒子 (respirable fraction)の定義は、1996 年まで使用されていた、総粉じん(total dust)、微粒子(fine dust)に対応するとし、1996 年から、国際的に認められているインハラブル粒子 (inhalable fraction) とレスピラブル粒子(respirable fraction)の定義を使用しているとしている(p.183)。一方で、DFG がいう総粉じん(total dust fraction)とインハラブル粒子(inhalable fraction)は、各種文献で幅広く使用されている「総粉じん (total dust)」とは必ずしも一致しない可能性があり、サンプリング機器を検証することが必要である、としている。
- (4) DFG は、サンプラーについては、EN 481 の粒子分類に適合するものを求めているが、具体的なサンプラーの種類の記事はない (p.183)。

第2 関係法令等

1 作業環境測定基準及び作業環境評価基準

- (1) 作業環境評価基準が定める管理濃度には、粒径を指定した管理濃度は規定されていないが、作業環境測定基準(昭和51年労働省告示第46号)では、粉じんやマンガンの一部の物質について、分粒装置を用いるろ過捕集方法を規定しており、分粒装置の性能は、ISO 7708 で定めるレスピラブル粒子に適合するものを指定している。その他の粒子状物質の捕集方法は、ろ過捕集方法と規定されているのみで、粒径の指定はない。
- (2) 作業環境評価基準の一部を改正する件等の施行等について(平成21年3月31日付け基発0331024号)においては、ニッケル化合物について、「オープンフェース面速約19cm/秒での捕集とする。」という記載があるが、これは、定置式の測定(A・B測定)を前提にしたものであり、個人サンプリング法への適用は想定していない。

2 作業環境測定の関係文献

- (1) 個人サンプリング法の捕集方法を記載している日本作業環境測定協会のマニュアル（日本作業環境測定協会(2020)）によれば、個人ばく露測定の捕集方法について、分粒装置の指定がないる過捕集方法の試料採取機器としては、呼吸で体内に入りうる粒子径の粒子をすべて捕集するインハラブルの特性を有するサンプラーもしくは、分粒装置を有さない試料捕集機器を使用する、とされている。サンプラーは、37mm と 25mm のものが多く、材質としては、セルロース混合エステル(MCE)メブランフィルターが主に使用されるとしている(p.46)。明記されていないが、写真(p.44)で紹介されている「分粒装置のないサンプラー」は、フィルタカセット (CFC) サンプラーである。
- (2) 鷹屋(2019)は、インハラブルサンプラーとしてもっとも広く使用されているものとして IOM サンプラーを示し、25mm 径のフィルタを用い、2L/min で捕集するとしている。これにより、フィルタ上の捕集空気の面速は約 19cm/s となるとしている。定点でのインハラブル粒子の測定については、IOM サンプラーと同等の面速 19cm/s としたオープンフェースサンプラーでインハラブル相当のサンプリングが行われているとしている。また、その他の個人サンプラーとしてフィルタカセット(CFC)サンプラーを紹介している。

第3 関連学術文献のレビュー

1 インハラブル粒子のためのサンプラーについて

- (1) 空気中粒子のサンプラーに関して 22 本の文献の比較を行ったレビュー論文 (Hanlon et al (2021)) によれば、インハラブル粒子の測定に用いられるサンプラーとしては、11 種類が報告されているが、IOM サンプラーが 15 本の文献で用いられ、Button サンプラーが 5 本、37mmCFC サンプラー (ACCU CAP 付き) が 2 本、GSP サンプラーが 2 本の文献で用いられていたとしている。
- (2) 総粉じんのサンプラーについては、37mm CFC が 12 本、Dual IOM サンプラーが 4 本の文献で用いられていたとしている (Hanlon et al (2021))。

2 IOM サンプラーと 37mm CFC サンプラーの比較

- (1) 青銅鋳物工場、はんだ製造工場、鉛鉱石選鉱、鉛電池リサイクル工場、銅精錬工場における鉛粉じんについて、Chisholm et al (2012)が、IOM と 37mmCFC で併行測定して捕集したサンプラーの内壁とフィルタの試料を走査式電子顕微鏡 (SEM) で質量加重粒径分布を解析して比較したところ、72 サンプルのうち 3 サンプルだけが統計的な違いがあった。IOM と 37mm CFC をペアで比較した 33 組のサンプルのうち、4 組だけが統計的に有意な違いが認められたとしている。さらに、粒径分布は、粒径が 20 μ m 以下であれば、IOM と 37mmCFC の内壁、フィルタのいずれについても、粒径分布に有意な違いはないとしている (Fig.2 参照)。

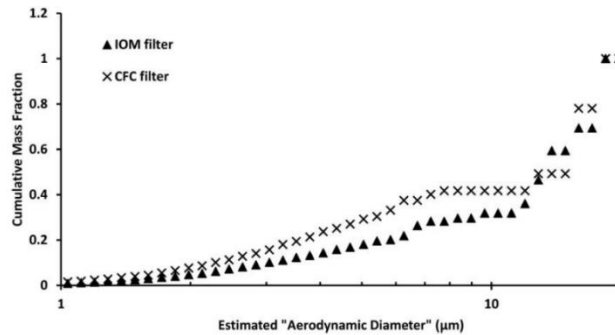


FIG. 2. Example of normalized mass distributions of an IOM and CFC filter pair that were not significantly different (according to Mann-Whitney statistical analysis.)

- (2) 鋳物工場や精錬施設におけるベリリウム(Be)のばく露分析のため、Dufresne et al (2009)は、IOM, 37mmCFC, 8段 Sierra カスケードインパクトを使って測定を行った。呼吸域の粒子濃度の比は、IOM (1.00), Sierra (0.56), 37mmCFC (0.35)であり、Be の濃度の比は、IOM (1.00), Sierra (0.66), 37mm CFC (0.48) であったとしている。
- (3) 畜産業における有機粉じん測定については、Reynolds et al (2009)が、IOM と 37mm CFC と Button を比較したところ、IOM が一番高く、37mm CFC, Button の順だったとした。ただし、CFC/IOM 比は、豚、鶏、七面鳥ではばらつきが大きく、風速0で、それぞれ 0.59, 0.44, 0.48 であり、風速が大きくなるにつれて、CFC/IOM 比は減少した (豚については、0.59 から 0.13)。Button/IOM 比も同様の傾向を示し、風速0でそれぞれ 1.09, 0.88, 0.66 であり、豚については、風速により Button/IOM 比は 1.09 から 0.26 に減少した。
- (4) セメントプラントでは、Noto et al 2016 は、cyclone (respirable), 37mm CFC (total), IOM(inhalable)を比較したところ、Inhalable/Total 比の中央値は 2.2 だったと報告している。
- (5) 道路舗装工事では、Kriech et al (2004)は、IOM/37mm CFC 比は、作業内容によって異なり、アスファルト舗装の上塗りでベンゼン可溶物(BSM)のヒューム (0.68 μm) ばく露のケースでは、IOM/37mm CFC 比は 1.02 で、統計上の有意な違いは見られなかった (Fig.4 参照)。一方、舗装の粉碎や砂利へのアスファルト舗装のように、粒子径の大きいダストの影響がある場合は、IOM/37mm CFC 比は、1.37～1.41 となり、統計上の有意差があったとしている。

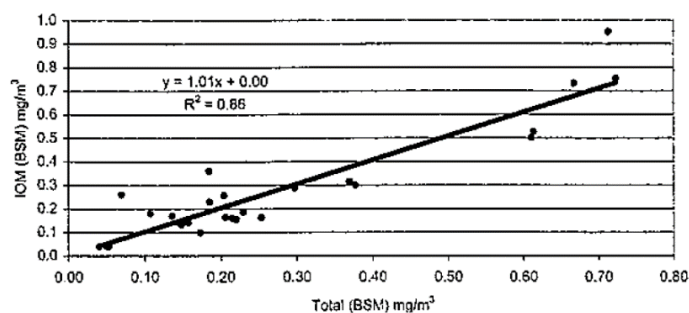


Fig. 4 Overlay sight BSM (mg m^{-3}) data. IOM vs. 'Total' samplers. Slope of the line is 1.01 ($r^2 = 0.86$). One outlier is noted and was not included in this calculation.

- (6) Deygout et al (2010)は、同様に、道路舗装工事での IOM/37mmCFV 比の幾何平均比率は、粉じん(mineral fraction)では 1.82 であり、ベンゼン可溶物(BSM)と蒸気(vapor fraction)については、それぞれ、1.02 と 0.96 であり、BSM と蒸気の合計については、IOM と 37mmCFV に統計上の有意差はなかった($p=0.92$)としている。興味深い点として、粉じん量については、37mmCFC は、粒子径が $20 \mu\text{m}$ を上回ってくると、インハラブル曲線から離れ始めるとの記載があり、IOM と 37mmCFC の粒子捕集量の違いは、この点にあると推定される。
- (7) 造船所におけるマンガン含有粒子の測定では、Jeong et al 2016 が、37mm CFC(total)と 8 stage impactor によるインハラブル粒子の濃度比較では、両者はよい相関関係を示し($r=0.964$)(Fig.2 参照)、37 mmCFC のインハラブル粒子の濃度に対する 86 サンプル全ての幾何平均値の比は、0.59 ($108 \mu\text{g}/\text{m}^3/196 \mu\text{g}/\text{m}^3$)であったと報告している。なお、この比は、IOM と 37mm CFC の比ではない。

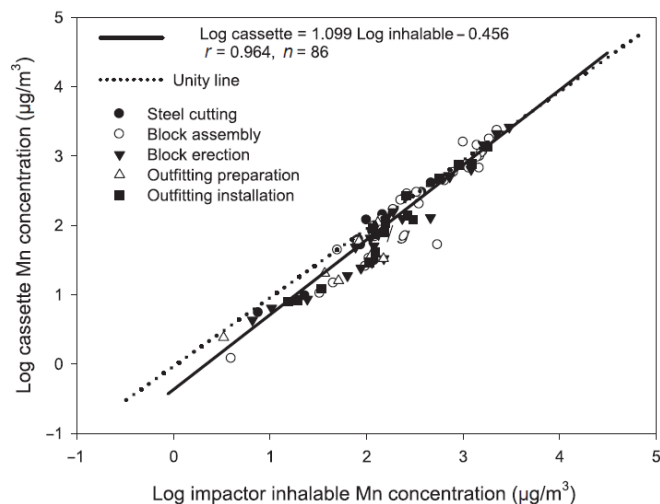


Fig. 2. Airborne manganese concentration measured using 37-mm cassette samplers relative to the inhalable fraction estimated using impactor samplers.

- (8) 木材加工では、Lee et al 2011 が、37mm CFC(ACCU CAP 装着)、Button、CIP10-I、GSP と IOM の結果をペアにして比較した結果を統計分析したところ、いずれのペアも統計上有意な差は見られなかったとしている。それぞれのサンプラーの測定

結果の統計分布を Fig.3 に示すが、それぞれのサンプラーの測定結果に大きな違いは見られない。また、それぞれのペアによる比の統計的な分布を Fig.4 に示す。他のサンプラーの IOM に対する比の中央値は、いずれも 1 を下回っており、IOM が全てのサンプラーの中で相対的に最も大きな測定値を示していることがわかる。

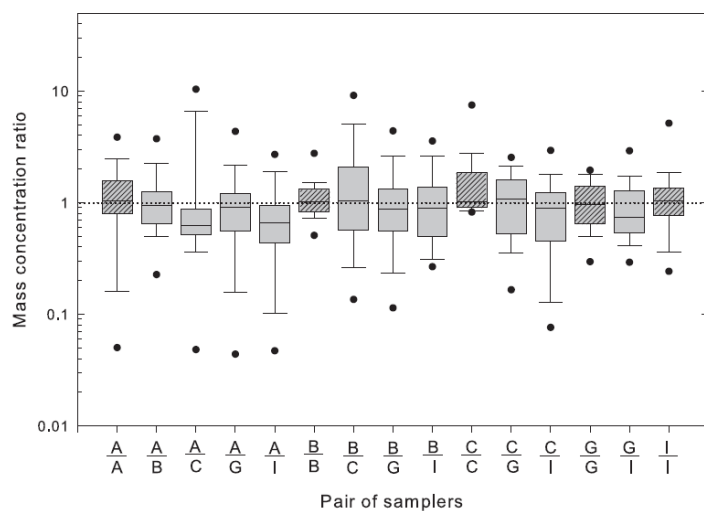


Fig. 4. Box plot of wood dust mass concentration ratios between the pairs of the samplers without outliers. The horizontal lines in the box plot from bottom to top indicate 10th, 25th, 50th (median), 75th, and 90th percentiles. The circles indicate the 5th (lower circle) and 95th (upper circle) percentiles. A is ACCU-CAP™, B is Button sampler, C is CIP10-I, G is GSP sampler, and I is IOM sampler (total number of pairs is 444).

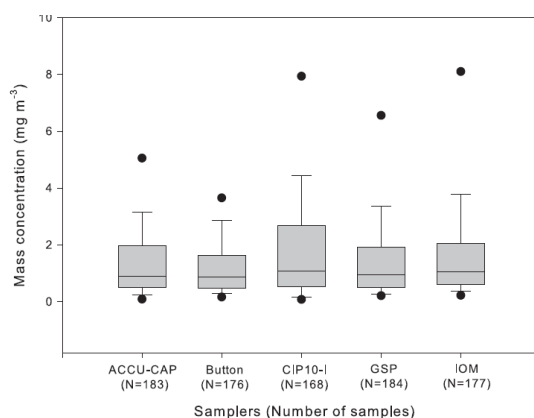


Fig. 3. The box plot of wood dust mass concentration (milligrams per cubic meter) by different samplers without outliers. The horizontal lines in the box plot from bottom to top indicate 10th, 25th, 50th (median), 75th, and 90th percentiles. The circles indicate the 5th (lower circle) and 95th (upper circle) percentiles. *N* is the number of samples for each sampler, and the total sample number is 888 when all samplers combined.

- (9) 木工加工業において、Kauffer et al 2010 は、IOM, CIP 10v1, 37mm CFC (ACCU CAP)と Button の併行測定を行い、その結果を比較したところ、統計的に有意な違いはみられず(それぞれ、1.12, 0.94, 0.80)、Button サンプラーの結果は、ACCU-PAD とほぼ同じ(0.86)であったとしている (Table 4 参照)。一方、ACCU-PAD を装着していない 37mm CFC とそれ以外のサンプラーを比較したところ、系統的に CFC の測定値よりも大きい値が得られたとしている (CFC に対する比は、IOM で 2.0, CIP 10-I v1 で 1.84、ACCU-CAP で 1.68、Button で 1.46) (Table 7 参照)。

Table 4. Ratio of sampler-based measured concentration to CALTOOL system mouth-based measured concentration (factories B, D, E, and F)

Sampler	Number of measurements	Ratio R: sampler concentration/CALTOOL mouth concentration				
		Mean	SD	Lower limit	Upper limit	Variation coefficient (%)
IOM	12	1.12	0.17	0.86	1.43	15.3
CIP 10-I v1	12	0.94	0.11	0.78	1.15	12.2
ACCU-CAP™	12	0.80	0.14	0.64	1.17	17.1
Button	12	0.86	0.08	0.74	0.97	8.9
CFC	12	0.62	0.13	0.42	0.88	21.5

Table 7. Regression line slope for different sampler and sampling types: combined data, static, and personal samples

Sampler	Sampler/CFC regression line slope		
	All points (CI)	Static (CI)	Personal (CI)
IOM	2.02 (1.83–2.22)	2.01 (1.78–2.26)	2.09 (1.75–2.47)
CIP 10-I v1	1.84 (1.67–2.01)	1.76 (1.57–1.97)	2.01 (1.73–2.34)
ACCU-CAP™	1.68 (1.53–1.84)	1.74 (1.54–1.95)	1.57 (1.34–1.83)
Button	1.46 (1.32–1.62)	1.54 (1.34–1.77)	1.36 (1.16–1.59)

The 95% confidence intervals (CIs) are given for the data.

(10) 木工加工業における木質粉じんについて、Harper et al 2004 は、37mm CFC, IOM, Button で相互に近接して捕集された 200 試料について、重量濃度測定に加え、光学顕微鏡により粒子径を測定した。木質粉じんの質量の主要な部分としては、10~70 μm の空気力学的等価直径(AED)の粒子であったが、100 μm を超える粒子により、相当数の試料が一定の影響を受けていた。100 μm を超える粒子は、IOM 試料中 65%、CFC 試料中 42%、Button 試料中 32%で見つかったとしている。これらの粒子による質量への貢献度は平均で 53% (10~95%) であった。Table1 に、粒子径に応じた質量の違いを示す。粒子径に応じた捕集特性を比較したところ、IOM と CFC は、30~40 μm より小さい粒子については、捕集量はほぼ同じであるが、これを上回る粒径の CFC の捕集特性は、IOM と比較して大幅に小さいとしている。Button サンプラーの粒子径に応じた捕集特性は、IOM や CFC と大きく異なるとしている (Table 2 参照)。

Table 1 Comparison of sampler means for all samples, samples not containing ultra-large particles, and samples containing ultra-large particles. Note that these values are about a factor of ten higher than normal workplace measurements

	All samplers		Samplers with particles < 100 μm AED only		Samplers with particles > 100 μm AED	
	<i>n</i>	Geometric mean/ mg m^{-3}	<i>n</i>	Geometric mean/ mg m^{-3}	<i>n</i>	Geometric mean/ mg m^{-3}
IOM	65	48.0	23	14.1	42	94.0
CFC	62	22.2	36	11.8	26	53.1
Button	59	14.0	40	7.1	19	58.3

Table 2 *p* values for size-range comparisons from mixed model

Sampler comparison	Aerodynamic equivalent diameter size-range/ μm										
	<10	10.1–20	20.1–30	30.1–40	40.1–50	50.1–60	60.1–70	70.1–80	80.1–90	90.1–100	>100
Button/CFC	0.9877	<.0001 ^a	<.0001 ^a	0.0002 ^a	1.0000	0.7779	0.5168	0.7774	0.9972	0.0504	0.6200
Button/IOM	0.9965	<.0001 ^a	<.0001 ^a	<.0001 ^a	0.0024 ^a	0.0184	0.6757	0.2889	0.3702	0.8671	0.0008 ^a
CFC/IOM	0.9970	0.7313	0.0397	0.1509	0.0020 ^a	0.0933	0.1185	0.6805	0.3987	0.1348	0.0147

^a Significant difference ($p > 0.0045$)

(11) Ashley & Harper(2013)は、37mm CFC のカセットの内壁に付着する粒子は、場合によっては、フィルタに付着する粒子より多いと指摘し(Table I 参照)、これによる過小評価を防止するため、(a)内壁を拭いた物とフィルタを一緒に分析、(b)カセット内部の洗浄、(c)カセット内部にカプセルを装着、などの方法があることを紹介している。その上で、NIOSH の示す測定手法において、次の事項を記載しているとして、(a)質量分析法については、内部に塩化ビニル(PVC)製のカプセル(Accu-Cap)を装着する手法(Table II a 参照)、(b)フィルタを使わない場合は、カプセルの内壁の洗浄等 (Table II b 参照)、(c)金属の測定については、可溶性のカプセルの使用や濡らしたフィルタで拭き取る等を示している(Table II c 参照)

TABLE I. Closed-Face Filter Cassette Internal Wall Deposits from Samples Obtained in Various Workplace Environments

Work Environment/Activity	n	Chemical Agent(s)	Maximum Wall Deposit(s) (%)	Median Wall Deposit(s) (%)
Copper smelter	17	Pb	55	21
Lead ore mill	28	Pb	35	19
Solder manufacture	30	Pb	74	29
Battery production	16	Pb	66	28
Welding	10	Cr[VI]	55	5
Electroplating	12	Cr[VI]	17	12
Paint spray	29	Cr[VI]	12	7
Foundry	9	Zn	62	53
Zinc plating	18	Zn	91	27
Cast iron foundry	18	Fe	46	22
Grey iron foundry	18	Fe	77	24
Bronze foundry	6	Cu, Pb, Zn	45, 17, 21	19, 13, 15
Cuproberyllium foundry	4	Cu, Be	40, 39	31, 12

TABLE II. NIOSH Methods Affected by the Recommendation to Account for Cassette Internal Non-Filter Deposits, and Suitable Techniques for Inclusion of All Aerosol Entering the Sampler

NIOSH Methods	Technique Recommended	Comments
(a) Gravimetric Analysis Methods		
0500 - Particles ("total") 5000 - Carbon black	Use internal capsule for sample collection, which is analytically weighed pre- and post-sampling	Suitable examples are capsules composed of PVC attached to PVC filters
0600 - Particles (respirable)	Use filter housed in static-dissipative ("conductive") cassette, or use internal capsule	Conductive or static-dissipative sampler material can minimize internal wall deposits
(b) Internal Deposits Currently Considered in Method Text		
5005 - Thiram 5011 - Ethylene thiourea 5030 - Cyanuric acid 5032 - Pentamidine isethionate	Rinse internal wall deposits with extraction solution (e.g., water, eluent, organic solvent)	Rinsate is added to sample preparation vessel (e.g., beaker) along with the filter used for sampling
5700 - Formaldehyde (textile or wood dust)	Use IOM inhalable sampler	Alternative procedure could entail CFC sampling, followed by rinsing as above
(c) Elemental Analysis Methods		
7013 - Aluminum 7024 - Chromium 7027 - Cobalt 7029 - Copper 7030 - Zinc 7048 - Cadmium 7046 - Barium 7074 - Tungsten 7082 and 7105 - Lead 7102 - Beryllium 7300, 7301, and 7303 - Elements 7900 - Arsenic 7020 - Calcium 7701 - Lead 7704 - Beryllium	1. Remove internal wall deposits with wetted wipe (e.g., filter or wipe material); wipe is then added to sample preparation vessel (e.g., beaker) along with the filter used for sampling 2. Use digestible internal capsule (e.g., cellulose acetate attached to MCE filter) for sample collection; capsule is digested and analyzed in its entirety	Alternative procedure could entail rinsing of internal sampling cassette surfaces with dilute acid solution (demonstrate effectiveness)
7600, 7605, and 7703 - Hexavalent chromium 7401 - Alkaline dusts	Remove internal wall deposits with wetted filter or wipe, which is then added to sample preparation vessel (e.g., centrifuge tube) along with the filter used for sampling	Alternative procedures involve within-cassette extraction
(d) Hexavalent Chromium and Alkaline Dusts		
7600, 7605, and 7703 - Hexavalent chromium 7401 - Alkaline dusts	Remove internal wall deposits with wetted filter, which is then added to sample preparation vessel (e.g., beaker) along with the filter used for sampling	Alternative procedures could involve rinsing or within-cassette extraction

第5 考察

1 総粉じんとインハラブル粒子の定義とばく露限界等の適用

(1) エアロゾル粒子の種類については、レスピラブル粒子に関する英国医学研究所 (BMRC) の定義 ($5 \mu\text{m}$ 50% カットオフ) が国際的に最初に認知され (Orenstein (1960)、1989 年に新たな粒子径の分類が提案され (Soderholm (1989))、その後、インハラブル、ソラシック、レスピラブルの3つの粒径分布が国際的に認知され、ISO 7708 (1995) に規定された。

(2) ISO 7708(1995) では、インハラブル粒子 (inhalable fraction) は、インハラブル粒子 (inhalable fraction) は、鼻や口から吸入される空気中の全ての粒子 (total airborne particles) の合計質量部分と定義されており、呼吸数などによる空気の移動速度及び方向に依存するとしている。"inhalable" については用語の使用方法に混乱があり、

1970年代後半の欧州の英語論文誌は、”inhalable”がISOの定義と同じ意味として使われていた一方、米国環境保護庁(EPA)では、いわゆるPM₁₀を”inhalable”としていた。その後、EPAが”inhalable”をそのような意味では使わなくなったため、”inhalable”という用語をISO 7708で採用したとしている(Annex A)。

- (3) 一方、インハラブル粒子効率(inhalable convention)は、サンプラーの仕様であり、風速が4m/s未満の場合に捕集された粒子の%分布として定義され、実験データから、この条件では、100µmよりも粒子径の大きい粒子は存在しないとしている。
- (4) 米国 OSHA 規則の限度値(PEL)は、いくつかの物質については、レスピラブル粒子、総粉じんに分けた基準値を規定しているが、インハラブル粒子の基準値が明示的に規定されている物質はない。米国労働安全衛生研究所(NIOSH)が推奨しているばく露限度(REL)においても、同様である。
- (5) ACGIH(2018)は、インハラブル粒子、ソラシック粒子、又はレスピラブル粒子という記載がない、ばく露限界値(TLV)については、総粉じんとして規定しており、インハラブル粒子等の注記のあるTLVが設定されている物質は、約30物質に限られる(ACGIH 2021 現在)。
- (6) 英国安全衛生庁(HSE(2020))では、インハラブル粒子は、呼吸時に鼻と口から入り、呼吸器に沈着する空気中の粒子を近似したものであるとしている。粒子状物質に関する職場のばく露限度(WEL)は、特記のない場合、インハラブル粒子を指すとしている。
- (7) ドイツ研究振興協会(DFG(2021))においては、総粉じんを吸引され、排出されないエアロゾル粒子と定義している。その上で、インハラブル粒子(inhalable fraction)とレスピラブル粒子(respirable fraction)の定義は、1996年まで使用されていた、総粉じん(total dust)、微粒子(fine dust)に対応するとし、1996年から、国際的に認められているインハラブル粒子とレスピラブル粒子の定義としてEN 481(ISO 7708と同じもの)を使用している、としている。職場の最大ばく露限度(MAK)については、インハラブル粒子のMAKは、約20物質、レスピラブル粒子も約20物質が示されている。それ以外の物質のMAKには、粒子径の限定は附されていない。
- (8) 作業環境評価基準が定める管理濃度には、粒径を指定した管理濃度は規定されていないが、作業環境測定基準では、粉じんやマンガンなど一部の物質について、分粒装置を用いるろ過捕集方法を規定しており、分粒装置の性能は、ISO 7708で定めるレスピラブル粒子に適合するものを指定している。その他の粒子状物質の捕集方法は、ろ過捕集方法と規定されているのみで、粒径の指定はない。
- (9) 以上を踏まえると、歴史的には、吸入される粉じんの粒径については、健康影響との関連性から、1960年代にレスピラブル粒子の定義が定められ、各国の規制に取り入れられた。一方で、粒径の限定のない、吸入される粒子の全般を示す粒径分布は、ISO 7708(1995)が定められるまで、明確な定義はされていなかった。それまでの間、欧州の英文誌(欧州英語)においては、”inhalable fraction”という用語が広く使われ、

米国の公的機関（米国英語）においては、“total dust”という用語が使われていた。つまり、よくある欧州英語と米国英語の違いであって、両者の意味するところに実質的な違いはないと解釈するのが自然である。このことは、ISO 7708 のインハラブル粒子の定義が鼻や口から吸入される「全ての粒子(total airborne particles)」とされていることから明らかである。米国政府機関(OSHA, NIOSH)が、現在においてもインハラブル粒子を使わずに総粉じん(total dust)を使い続けていること、DFGのMAKが、従来、「総粉じん」という用語を使っており、それをISO 7708に合わせて、「総粉じん」と同じ定義として「インハラブル粒子」という用語に変更したこともこの見解を補強する。

- (10) 一方で、サンプラーの仕様を定める意図で設定されたインハラブル捕集特性(inhalable convention)は、ISO 7088 (1995)で新たに定義されたものである。総粉じんの捕集特性が明示的に定められたものはないので、この点により、総粉じんとインハラブル粒子は異なる（ように見える）という考え方もありえるが、上記のとおり、総粉じんとインハラブル粒子の意味するところに違いがないのであれば、総粉じんの捕集特性もインハラブル粒子と違いはない（であるべき）と考えるのが自然である。
- (11) さらに、インハラブル捕集特性は、レスピラブル粒子やソラシック粒子の捕集特性が粒径の中央値と標準偏差を特定することにより得られる幾何正規分布で規定されているのと異なり、風速が4m/s未満であるという条件下で、粒径(AED)が100µmを超えるものはないと仮定し、近似式として示されたものにすぎない。このことは、4m/s以上の場合の一定の条件下で使用するものとして、別の式が与えられていることから明らかである。ISO 7708 (1995)の定義においても、インハラブル粒子は、呼吸速度や風の速度や方向に依存することが注記されている。
- (12) 以上から、インハラブル捕集特性は、一定の条件下における捕集特性を示しているものにすぎず、実際のばく露環境下において、呼吸器に吸入される粒子を全て包含する粒子特性を示しているものではなく、あくまでサンプラーの仕様を標準化するための規格であると理解するべきである。

2 公的なばく露限界等におけるサンプラーの規定

- (1) 米国労働安全衛生研究所(NIOSH)の分析マニュアル NIOSH 0500 (1994)は、総粉じんを測定する方法として、37mm サンプラーにポリ塩化ビニル(PVC)フィルタをクローズドフェース型フィルタカセット(CFC)に装着して使用する方法を定めていたが、カセットの内壁に付着する粒子による測定結果が過小評価への対応として、NIOSH 0501として、カセットの中にフィルタカプセル(Accu Pad)を挿入する方法を提案した。O'Connor et al (2015) は、37mm CFC サンプラーに Accu Pad 装着したものと、IOM サンプラーの比較のため、鋳物工場で二つのサンプラーを併行測定した結果、Accu-Cap/IOM の平均の比は89%(±9%)であり、NIOSH 0501とIOMとの互換性が示された、としている。これを踏まえ、NIOSH では、内壁に付着する粒子を

捕集できる方法をそれぞれの物質の測定方法で提案している (Ashley & Harper (2013) Table I 及び Table II)

- (2) 英国健康安全庁(HSE (2020))は、定められた方法(MDHS 14/4)に従って測定することを規定している。MDHS 14/4 (HSE (2014))においては、インハラブル粒子の定義として ISO 7708 を引用するとともに、付属書において、インハラブル粒子のサンプラーとして、IOM、コニカル・インハラブル・サンプラー(CIS)、Button サンプラーと multi-orifice sampler が典型的なものとしている。その上で、IOM サンプラーがインハラブル粒子の定義に最も合致するサンプラーであり、最も好ましいサンプラーであるとしている。ただし、測定において、インハラブル粒子ではないとされる 100 μ m を超える粒子が捕集される場合があります、そのようなサンプルの妥当性を評価すべきとしている。
- (3) ドイツ研究振興協会(DFG (2021))は、サンプラーについては、EN 481 の粒子分類に適合するものを求めているが、具体的なサンプラーの種類の記事はない。
- (4) 個人サンプリング法の捕集方法を記載している日本作業環境測定協会のマニュアル (日本作業環境測定協会(2020))によれば、個人サンプリング法による作業環境測定の捕集方法について、分粒装置の指定がない過捕集方法の試料採取機器としては、インハラブルの特性を有するサンプラーもしくは、分粒装置を有さない試料捕集機器を使用する、とされている。
- (5) 以上を踏まえると、欧米諸国の公的機関でのサンプラーに関する規定と、我が国における個人サンプリング法におけるサンプラーに関する対応との間に、問題となる齟齬はない。

3 適切なサンプラーの選択に関する文献

- (1) インハラブル粒子の代表的なサンプラーである IOM サンプラー (以下「IOM」という。)と総粉じんの代表的なサンプラーである 37mm クローズドフェースフィルタカセット(CFC)サンプラー (以下「CFC」という。)による測定結果を比較した文献のうち、捕集された試料の粒径分布を分析した報告は3件あり、共通して、粒子径が 20 μ m 以下であれば、IOM と CFC の捕集効率には差がないが、20~40 μ m を超えてくると、CFC は、IOM と比較して捕集効率が落ちることを報告している (Deygout et al (2010), Harper et al 2004, Chisholm et al (2012))。これを補強するものとして、金属のヒュームや蒸気を捕集するときには、二つのサンプラーによる測定値には有意な差はないが、粒径が大きい粒子を捕集する場合、IOM の値は、CFC よりも有意に大きな値を示す (Kriech et al (2004), Deygout et al (2010)) 報告がある。それと同じ傾向として、IOM は、CFC と比較して、100 μ m を超える粉じんを捕集しやすい傾向 (IOM 試料中 65%、CFC 試料中 42%、Button 試料中 32%)があり、その結果が質量に大きい影響 (平均 53% (10~95%))を与えているという報告がある (Harper et al 2004)。インハラブル粒子の測定では、100 μ m を超える

粉じんの影響は排除すべきであることから、IOM の測定値は、CFC と比較して、100 μ m を超える粒子の影響による過大評価となりやすいともいえる。

- (2) 風速と測定値の関係を報告している Reynolds et al (2009)によれば、風速が大きくなるにつれて、CFC の IOM の値に対する比は減少する傾向があり、これは、IOM が風速の影響を相対的に受けにくいことを示している。一般的に、粒径の大きい粒子は風速の影響を受けにくいことから、IOMの方が粒子径の大きいものに対する捕集効率が相対的に高いことと、この結果は矛盾しない。なお、同様の結果が Button サンプラーの IOM に対する比でも見られたことから、IOM は、Button と比較しても、粒子径の大きい粒子に対する捕集効率が高いことが示唆される。
- (3) その他の IOM と CFC を比較した報告は 2 本あり、鋳物工場や精錬施設におけるベリリウム(Be)のばく露分析のため、Dufresne et al (2009)は、IOM、CFC、8 段 Sierra カスケードインパクターを使って測定を行った結果、Be の濃度の比は、IOM (1.00)、Sierra (0.66)、37mm CFC (0.48) であったとしている。セメントプラントにおいては、Noto et al 2016 は、CFC (total)、IOM(inhalable)を比較したところ、Inhalable/Total 比の中央値は 2.2 だったと報告している。これらの結果は、いずれも粒子径の大きい粒子が多い粒径分布が見込まれる環境下での測定であり、IOM は、CFC と比較しても、粒子径の大きい粒子に対する捕集効率が高いことと矛盾しない。
- (4) CFC の測定値が IOM より小さい原因の一つとして、Ashley & Harper(2013)は、CFC のカセットの内壁に付着する粒子は、場合によっては、フィルタに付着する粒子より多いと指摘している。これによる過小評価を防止するため、(a)内壁を拭いた物とフィルタを一緒に分析、(b)カセット内部の洗浄、(c)カセット内部にカプセルを装着、などの方法があり、それらは NIOSH の示す測定手法において、すでに記載されているとしている。(a)質量分析法については、内部に塩化ビニル(PVC)製のカプセル(Accu-Cap)を装着する手法、(b)フィルタを使わない場合は、カプセルの内壁の洗浄等、(c)金属の測定については、可溶性のカプセルの使用や濡らしたフィルタで拭き取るなどの方法を示している。
- (5) CFC について、フィルタカセットの中に Accu-Cap を装着したものと、装着していないものを比較している報告もある。Kauffer et al (2010)は、IOM、CIP 10v1、37mm CFC (Accu-Cap)と Button の併行測定結果を比較したところ、統計的に有意な違いはなかった(それぞれ、1.12、0.94、0.80、0.86)としている。一方、Accu-Cap を装着していない CFC とは、系統的に CFC の測定値よりも大きい値が得られたとしている (CFC に対する比は、IOM で 2.0、CIP 10-I v1 で 1.84、Accu-Cap で 1.68、Button で 1.46)。
- (6) IOM と CFC(Accu-Cap)とその他の測定器の比較を行っている報告もある。Lee et al (2011)は、CFC(Accu-Cap 装着)、Button、CIP10-I、GSP と IOM の結果をペアにして比較した結果を統計分析したところ、いずれのペアも統計上有意な差は見られなかったとしている。また、他のサンプラーの IOM に対する比の中央値は、い

れも 1 を下回っており、IOM が全てのサンプラーの中で相対的に最も大きな測定値を示していることがわかる。Kauffer et al (2010)は、IOM, CIP 10v1, CFC (Accu-Cap)と Button の併行測定を行い、その結果を比較したところ、統計的に有意な違いはみられず(それぞれ、1.12, 0.94, 0.80)、Button サンプラーの結果は、CFC (Accu-Cap)とほぼ同じ(0.86)であったとしている。この結果でも、IOM は、他の全てのサンプラーと比較して高い値を示している。O’Conner et al (2015)も、IOM と CFC(Accu-Cap)を併行測定した結果、CFC(Accu-Cap)/IOM の平均の比は 89%(±9%)であり、両者には互換性があるとしている。これらの結果から、CFC(Accu-Cap)と IOM や他のインハラブル粒子用のサンプラーの測定値には統計上有意な違いはないことが評価される。一方、IOM は、インハラブル粒子用のサンプラーの中でも、最も高い値を示す傾向があることがわかる。この結果は、IOM が CFC や Button と比較して粒子径が大きい粒子に対する捕集効率が相対的に高いことと矛盾しない。

- (7) 以上を踏まえると、金属ヒュームや蒸気、あるいは粒径が 40 μm 以下の環境下における測定においては、IOM と CFC の測定結果に系統的な差は認められないため、サンプラーの選択に特段留意すべき事項はない。粒径が 40 μm 以上のものが多いことが見込まれる環境下における測定においては、CFC の内部フィルタは、粒径が大きい粒子の捕集効率がよくないことから、CFC を使用する場合、NIOSH 定める測定方法に沿って、CFC 内壁に付着した試料を適切に分析できるように、(a)質量分析法については、内部に塩化ビニル(PVC)製のカプセル(Accu-Cap)を装着する手法、(b)フィルタを使わない場合は、カプセルの内壁の洗浄等、(c)金属の測定については、可溶性のカプセルの使用や濡らしたフィルタで拭き取るなど、NIOSH の定める方法を実施することが望ましい。
- (8) IOM は、Button、CIP や GSP などの他のインハラブルサンプラーと比較しても高めの測定値を示す傾向があり、特に、CFC や Button と比較して 100 μm を超える粒子を捕集しやすい捕集特性を持つという報告があり、HSE が定めた測定方法である MDHS 14/4 においても、100 μm を超える粒子が捕集される場合があり、そのようなサンプルの妥当性は評価が必要としている。ISO は、インハラブル捕集特性では 100 μm を超える粒子を存在しないとしており、その上でインハラブル捕集特性を示している。このため、IOM は、100 μm を超える粒子が多いと見込まれる環境下においては、100 μm を超える粒子を捕集しやすいという意味では、ISO の定めるインハラブル捕集特性に沿っておらず、100 μm を超える粒子の影響により、IOM の測定結果が (インハラブル捕集特性の観点からは) 過大評価となるおそれが高いため、注意が必要である。

参考文献

American Conference of Governmental Industrial Hygienist (ACGIH) (2018) TLVs and

- BEIs based on the documentation of the threshold limit values for chemical substances and physical agents and biological exposure indices. ACGIH, Cincinnati, USA. pp. 3-5, pp. 7-8
- Anthony, T.R.; Cai, C.; Mehaffy, J.; Sleeth, D.; Volckens, J. Performance of prototype high-flow inhalable dust sampler in a livestock production facility. *J. Occup. Environ. Hyg.* 2017, 14, 313–322.
- Ashley, K.; Haper, M. Closed-face filter cassette (CFC) sampling – Guidance on procedure for inclusion of material adhering to internal sampler surface. *J. Occup. Environ. Hyg.* 2012, 10, D29-D33
- Chisholm, W.P.; Lee, T.; Slaven, J.E.; Nelson, J.; Harper, M. Comparison of Filter and Wall Deposits from Samplers Used to Collect Airborne Lead-Containing Dusts at Field Sites. *Aerosol Sci. Technol.* 2012, 46, 411–418.
- Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG) (2021) List of MAK and BAT Values 2021, Report 57, Bonn, Germany
- Deygout, F.; Le Coutaller, P. Field sampling investigations within the road paving industry. *J. Occup. Environ. Hyg.* 2010, 7, 103–108.
- Dufresne, A.; Dion, C.; Viau, S.; Cloutier, Y.; Perrault, G. Beryllium aerosol characteristics in the magnesium and aluminum transformation industry in Quebec: A comparison of four different sampling methodologies. *J. Occup. Environ. Hyg.* 2009, 6, 687–697.
- Harper, M.; Akbar, M.Z.; Andrew, M.E. Comparison of wood-dust aerosol size-distributions collected by air samplers. *J. Environ. Monit.* 2004, 6, 18–22.
- Health and Safety Executive (HSE) (2020) EH40/2005 Workplace exposure limits (Forth Edition 2020) TSO, Norwich UK.
- Health and Safety Executive (HSE) (2013) MDHS14/4 General methods for sampling and gravimetric analysis of respirable, thoracic and inhalable aerosols. HSE Books 2014 www.hse.gov.uk/pubns/mdhs/index.htm
- ISO. ISO 7708:1995 Air Quality: Particle Size Fraction Definitions for Health-Related Sampling; International Standards Organization: Geneva, Switzerland, 1995.
- Jeong, J.Y.; Park, J.S.; Kim, P.G. Characterization of Total and Size-Fractionated Manganese Exposure by Work Area in a Shipbuilding Yard. *Saf. Health Work* 2016, 7, 150–155.
- Kauffer, E.; Wrobel, R.; Görner, P.; Rott, C.; Grzebyk, M.; Simon, X.; Witschger, O. Site Comparison of Selected Aerosol Samplers in the Wood Industry. *Ann. Occup. Hyg.* 2010, 54, 188–203.
- Kriech, A.J.; Osborn, L.V.; Wissel, H.L.; Kurek, J.T.; Sweeney, B.J.; Peregrine, C.J.G. Total versus inhalable sampler comparison study for the determination of asphalt

- fume exposures within the road paving industry. *J. Environ. Monit.* 2004, 6, 827–833.
- Lee, T.; Harper, M.; Slaven, J.E.; Lee, K.; Rando, R.J.; Maples, E.H. Wood dust sampling: Field evaluation of personal samplers when large particles are present. *Ann. Occup. Hyg.* 2011, 55, 180–191.
- Linnainmaa, M.; Laitinen, J.; Leskinen, A.; Sippula, O.; Kalliokoski, P. Laboratory and field testing of sampling methods for inhalable and respirable dust. *J. Occup. Environ. Hyg.* 2008, 5, 28–35.
- NIOSH (1994) NIOSH Manual of Analytical Method (NMAMA) Forth edition, NIOSH 0500
- NIOSH (2015) NIOSH Manual of Analytical Method (NMAMA) Fifth edition, NIOSH 0501
- Notø, H.P.; Nordby, K.-C.; Eduard, W. Relationships between Personal Measurements of “Total” Dust, Respirable, Thoracic, and Inhalable Aerosol Fractions in the Cement Production Industry. *Ann. Occup. Hyg.* 2016, 60, 453–466.
- O'Connor et al (2015) Backup Data Report NIOSH Method No. 0501/5100, NIOSH Manual of Analytical Method (NMAMA) Fifth edition
- Occupational Safety and Health Administration (OSHA) CFR 29.1910.
- Orenstein, A.J. Proceedings of Pneumoconiosis Conference, Johannesburg 1959; J. & A. Churchill Ltd.: London, UK, 1960; pp. 610–621.
- Reynolds, S.J.; Nakatsu, J.; Tillery, M.; Keefe, T.; Mehaffy, J.; Thorne, P.S.; Donham, K.; Nonnenmann, M.; Golla, V.; O’shaughnessy, P. Field and Wind Tunnel Comparison of Four Aerosol Samplers Using Agricultural Dusts. *Ann. Occup. Hyg.* 2009, 53, 585–594.
- Soderholm, S.C. Proposed international conventions for particle size-selective sampling. *Ann. Occup. Hyg.* 1989, 33, 301–320.
- 日本作業環境測定協会(2020) 作業環境測定のためのデザイン・サンプリングの実務ーC・D測定編ー 日本作業環境測定協会
- 鷹屋光俊 (2019) 労働環境中の粒子状物質評価に使用する個人サンプラーについて. エアロゾル研究. 第 34 巻第 3 号 pp.153-158