

論文内容の要旨

論文題目: Microscopic method for airborne coarse particles: Application to a passive sampler
(顕微鏡観察を用いた空气中粗大粒子の測定:
パッシブ型捕集装置への応用)

氏名 山本 尚理

第1章 序言

1.1. 背景

比較的長期にわたり空气中に浮遊した状態で存在することの出来る粒子を浮遊粒子状物質と呼ぶ。粒径 $2.5\ \mu\text{m}$ 以下の微小粒子による健康影響が懸念される一方、粒径 $2.5\ \mu\text{m}$ 以上の粗大粒子もアレルギー疾患の原因となる吸入性アレルギー(ダニの糞: $10\text{-}40\ \mu\text{m}$ 、真菌孢子: $2\text{-}60\ \mu\text{m}$ 、スギ花粉: $25\text{-}60\ \mu\text{m}$)を含んでおり、重要な粒子種といえる。

浮遊粒子状物質の定量手法として、基質に捕集した粒子全体を秤量し、質量濃度として評価する手法がこれまで一般的であった(時間積分型)。しかしながら、これらの手法では対象物質の量が必要となることから、捕集の長期化や動力源の確保など問題点も多かった。光散乱式パーティクルカウンター(PC)など高感度な直読型の測定装置も存在するが、対象物質の保存が利かないことから、粒子種の定性が行えないなどの欠点を持つ。

顕微鏡観察法は、高感度なことから、既存手法では検出不可能な領域にて粒子の個数濃度の解析が可能である。また、観察した粒子の密度や形状係数を仮定することで質量濃度への換算も可能である。また、免疫染色などの手法を用いた後、顕微鏡観察することで粒子種の定性も行える。しかしながら、顕微鏡観察法は、手間がかかることや精度の問題が指摘されている。本研究では、ラインセンサーや画像解析機能を備えた光学顕微鏡(OPM)を用いることで、測定精度の向上や解析時間の短縮を試みることにした。

1.2. 博士論文の構成

本論文の前半部(第2-5章)では、OPMによる粒子解析手法の特徴について、既存手法であるカスケードインパクター(CI)(時間積分型)やPC(直読型)と比較することで明らかにした^{[1][2]}。本論文の後半部(第6、7章)では、OPMの特徴を活用した携帯型アレルギー捕集装置(PAAS)を開発することで^[3]、OPMの発展性について例示することにした。

第2章 OPM の概要

製紙プロセスにおける異物評価や印刷評価に用いられてきた OPM (DA-6100/LS 型, 王子計測機器株式会社) (Table 1) を、濾紙上に捕集した粒子の評価に用いることにした。リニアステージの移動とともにラインセンサーカメラにより顕微鏡画像を取り込むことから、既存の顕微鏡と比較し、観察視野の確保が容易である。顕微鏡画像は、付属の画像解析ソフトにて粒径分布の解析が可能である。

Table 1 Specifications of the OPM

Model	DA-6100/LS
Lens	Objective lens (×2.5), Relay lens (×2)
Observation range	5.5×16.2mm
Resolution	2.7μm

第3章 OPM と PC の比較

3.1. 目的

OPM による粒径分布の定量について、既存手法である PC と比較することで評価した。

3.2. 方法

PC (KC20 型, 粒径区分 10, 20, 30, 50, 100 μm, 検出感度相当 5 分間に 1 回以下の偽計数, リオン株式会社) により粒子濃度をリアルタイム測定すると同時に、粒子をフィルター捕集した。捕集フィルターは、OPM にて 170-420 mm² の範囲 (有効濾過面積の 18-44 %) をランダムに観察することで粒子数および粒径を定量した。OPM の粒径定量の真度について、標準粒子 (Duke Scientific Corp.) を観察することで評価した。

3.3. 結果および考察

両手法間に正の相関があることを確認した (Fig.1)。OPM にて定量した粒径分布は、PC にて定量したものと比較し、粗大側に位置することが分かった (Fig.2)。Mie 散乱理論により PC にて定量した粒径を補正した結果 (PC*)、PC の粒径は光散乱径として表現されることから、OPM にて得られる投影径と異なることが分かった。また、OPM 法では、フィルター1枚あたり、観察面積にも依るが、約 20-30 分程度の解析時間を要することが分かった。

3.4. 結論

OPM の特徴として、(1) PC と比較し遜色ない測定精度が可能、(2) 粒子の光散乱特性を利用して粒径定量を行う PC と比較し、粒子を直接観察することから粒径定量が正確 (Table 2)、(3) 通常の顕微鏡手法と比較し解析時間の短縮が可能、であることが分かった。

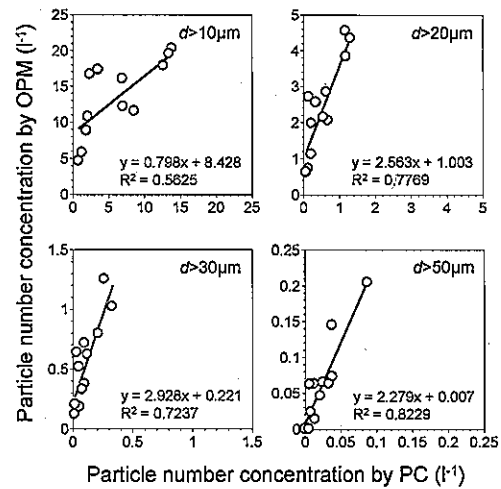


Fig.1. Particle concentrations by PC and OPM.

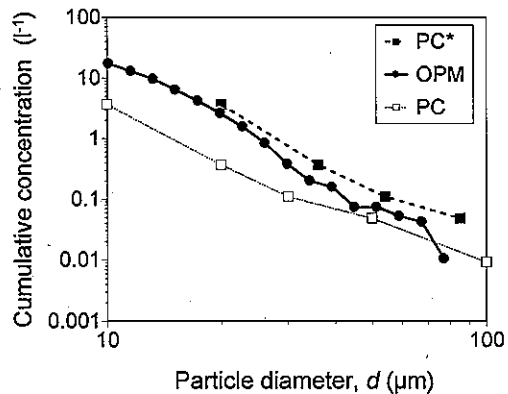


Fig.2. Particle size distributions by OPM, PC and PC*.

Table 2 Analytical results of the OPM

	Diameters of standard particles (μm)	
Measured	10.1±6.6 (n=1568)	99.0±9.0 (n=16)
Information value	10.0±0.1	100.0±1.7

第4章 OPM と CI の比較

4.1. 目的

PC は、粒径を簡易に測定可能な一方、直読式であることから、粒子の保存が利かない。したがって、粒子種の定性を行えないなどの欠点を持つ。粒子を粒径ごとに捕集し保存可能な手法として、慣性力により粒子分級を行う CI がある。ところが、慣性力の大きな粗大粒子では捕集時に基質から跳ね返るなどの問題がある。本章では、CI の分級性能および時間積分型装置 (含 CI) の測定感度について、OPM にて評価した。

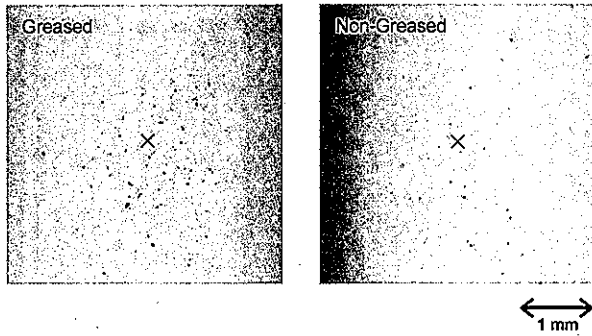


Fig. 3. Particle depositions on greased and non-greased Teflon impact plates.

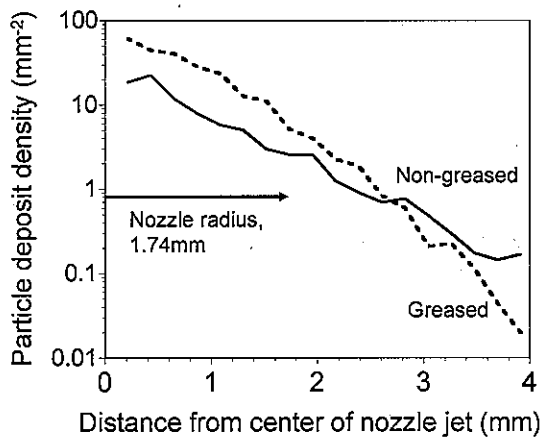


Fig. 4. Particle deposit densities on greased and non-greased Teflon impact plates.

Table 3 Specifications of the AH-600 Model

Size range, d_a (μm)	>7.0
Jets/Stage	300
Jet diameter, D_j (mm)	3.48
Nozzle velocity (m s^{-1})	3.31

4.2. 方法

ハイボリュームアンダーセンサンプラー (AH600 型, 分級範囲 <1.1, 1.1-2.0, 2.0-3.3, 3.3-7.0, >7.0 μm , 柴田科学株式会社) を使用した。捕集基質としてテフロン板をインパクトノズル (分級範囲 >7.0 μm) (Table 1) の真下に装着し、45 分間の粒子捕集を行った。基質はグリースを塗布したものとそうでないものを用いた。捕集後の基質は OPM にて解析した。

4.3. 結果および考察

基質上の捕集粒子の顕微鏡画像を Fig.3 に示す。捕集粒子の堆積密度について Fig.4 に示す。

単位密度の球形粒子を仮定した場合、5.2 μg 相当の粒子がグリースを塗布していない捕集基質から損失していることが分かる。高速ノズルにより粒子を慣性衝突捕集することから、基質上での跳ね返りによる損失が原因として考えられる。一般的に、CI の基質に捕集した粒子は、電子天秤にて定量される。電子天秤の検出感度が 10 μg 程度であることを考えると、OPM がいかに高感度な手法であるかが分かる。

4.4. 結論

CI の問題点として、(1) 粒子の跳ね返りによる分級性能の低減、(2) 不正確な粒径定量、について確認できた。OPM の特徴として、(3) 粒径定量が正確、(4) 高感度、なことが分かった。

第 5 章 OPM のまとめ

OPM の特徴として、(1) 高感度、(2) 十分な測定精度、(3) 解析時間の短縮、(4) 正確な粒径定量、について確認出来た。以上の特性を応用することで、粒子の時間分解解析やパッシブ型捕集装置への応用が期待される。

第 6 章 PAAS の開発

6.1. 背景および目的

これまでポンプなど動力を利用したアクティブ型の捕集装置が浮遊粒子状物質の個人曝露評価で用いられてきたが、重量、騒音、電力の必要性などから不便であることが指摘されてきた。そこで、ポンプを用いないパッシブ型の捕集装置を開発することにした。

6.2. 測定原理

粗大な吸入性アレルギーを捕集対象とすることから、粒子の重力沈降を捕集の駆動力として想定している。そこで、被験者の動きによらず、粒子捕集面が常に上向きとなるよう、回転可能なジャイロスコープ型の捕集装置とした。また、被験者の呼吸域近傍にて捕集可能なよう、首からぶら下げるためのステンレス鎖を取り付けた (Fig.5)。

6.3. 分析例

捕集した粒子は、OPM により定量する。粒径情報が得られることから、捕集量から空气中濃度への換算が可能となる。粒子を免疫染色した後、顕微鏡観察することでアレルギー種の定性が行える。

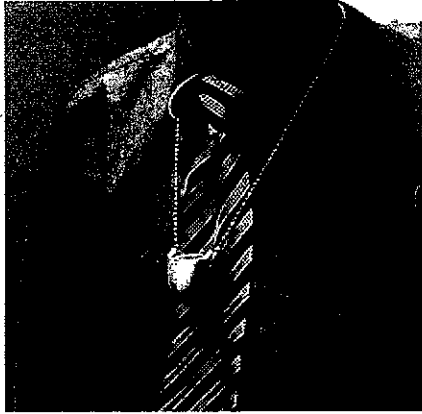


Fig. 5. Personal aeroallergen sampler (PAAS).

第7章 PAAS-OPM の評価

7.1. 目的

PAAS の粒子捕集性能について、既存のアクティブ型捕集装置と比較することで評価した。捕集粒子はOPMにて個数および粒径を定量した。

7.2. 方法

PAAS および既存のアクティブ型装置である IOM Sampler (SKC Inc.) による粒子の同時捕集を行った。捕集基質としてメンブレンフィルターを用いた。粒子捕集は、被験者が自宅や職場に滞在する時間や通勤時間を含め、6-150 hr の範囲で行った。捕集後の基質は OPM にて解析した。

7.3. 結果および考察

パッシブ型 (PAAS) の捕集粒子数はアクティブ型のものと比較し、1.8-26 % と微量ではあるが、両手法間に良い相関を得ることが出来た (Fig. 6)。PAAS による捕集粒子量から、正確な空气中濃度への換算が可能と思われる。また、PAAS の粒子捕集速度について、既存の乾性沈着モデル^[4] から予想される理論速度と比較したところ、過小な値をとることが分かった (Fig. 7)。PAAS の形状に起因するものと思われる。実験結果より、粒子の捕集速度 V_d をモデル化したところ、以下の回帰式 (式 (1)) により表されることが分かった。

$$V_d = 0.64V_g \quad (1)$$

ここで V_g : Stokes 沈降速度。

7.4. 結論

PAAS の特徴として、捕集量から空气中濃度への換算が可能なが分かった。また、PAAS-OPM の特徴とし、高感度な OPM を解析手法として用いることでパッシブ捕集した微量試料から正確に濃度定量が行えることが分かった。

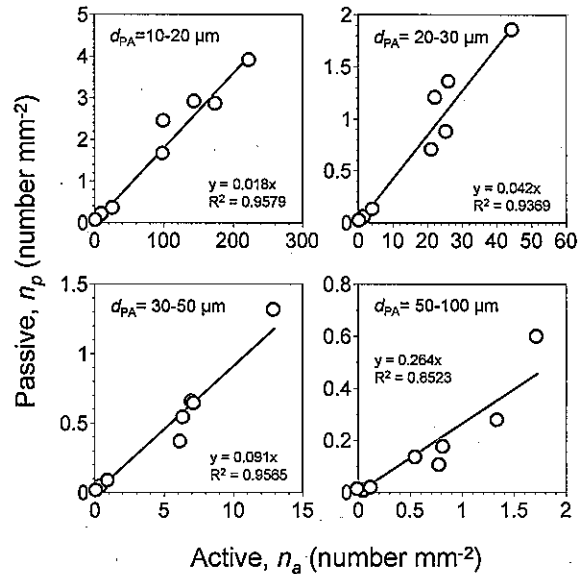


Fig. 6. Numbers of collected particles by the active and passive methods

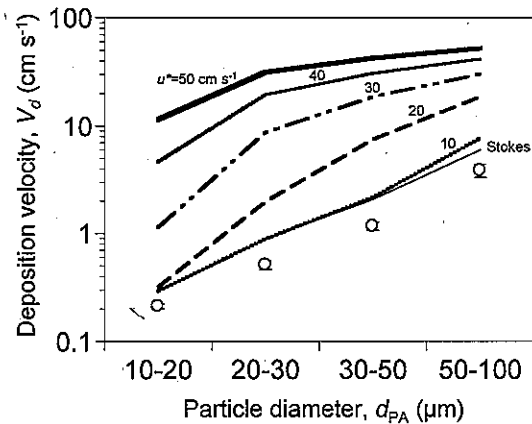


Fig. 7. Experimental and theoretical particle deposition velocities by the PAAS.

第8章 結言

OPM を応用することで、粒子 (含吸入性アレルギー) の時間分解解析が可能と思われる。また、PAAS-OPM を用いることで、正確かつ簡易な吸入性アレルギーへの曝露評価が可能である。広範かつ精緻な曝露評価を可能とすることで、未解明な部分も多かったアレルギー疾患の詳細に関し、新たな知見を付与することが期待される。

参考文献

- [1] Yamamoto et al., *J. Aerosol Sci.* **35**, 1225 (2004).
- [2] Yamamoto et al., *J. Aerosol Sci.* **33**, 1667 (2002).
- [3] 特願 2005-193740, 「被捕集物質捕集装置」.
- [4] Kim et al., *Atmos. Environ.* **34**, 2387 (2000).