

論文要旨

論文題目「大気および室内環境中の粒子状汚染物質を対象とした有害性評価手法に関する研究」

学位申請者 池田 四郎

大気中の粒子状物質は、土壌、海塩、火山などの自然発生源および燃焼・生産過程などの人為的発生源に由来する一次粒子と、ガス状物質を前駆物質とする二次粒子の混合物であり、大気中濃度および科学的組成は各発生源からの影響度合いによって変化する。粒子状物質の長期曝露はヒトの健康に影響を及ぼす可能性があることから、行政による大気中濃度のモニタリングが行われている。米国では、1971年にTSP (Total Suspended Particles, 全浮遊粒子) を対象に大気環境基準を設定した後、呼吸器への影響を考慮して1987年に粒径10 μm 以下の粒子状物質 (PM₁₀) を指標とする環境基準に改訂した。1990年代初めから、PM₁₀濃度と人の死亡率との関連性に関する疫学研究が報告され始め、より粒径の小さいPM_{2.5}濃度と人の死亡率の間に強い関連性があると報告がなされ (Pope *et al.*, 1995)、1997年よりPM₁₀に加えてPM_{2.5}の環境基準を設定した。一方、わが国では粒径10 μm 以上の粒子を除去したSPM (Suspended Particulate Matter, 浮遊粒子状物質) の大気環境基準が1972年に設定された。2009年にはPM_{2.5}の健康影響への関心の高まりを背景に、PM_{2.5}に対する環境基準が設定された。微粒子による空気質の汚染は、室内環境においても問題となる。現代社会において、我々は室外に比べて室内にいる時間のほうが圧倒的に多く、Jenkins *et al.*(1992)によると我々は1日の87%を屋内で過ごしているとされている。室内空気の主要な微粒子汚染原因として、換気に伴う室外微粒子の流入および風や人間活動によるハウスダストの再飛散が挙げられ、居住者が浮遊したエアロゾルに吸入曝露することによる健康への影響が懸念される。また小児は床近くで行動し、Hand-to-mouth等の行動特性があるため、ハウスダストに対する手を介した経口曝露が問題となる。そのため近年、ハウスダストを介した鉛など化学物質曝露によるリスク評価に関する研究が盛んに行なわれている。

従来から粒子状物質のモニタリングには粒子濃度の測定が行なわれており、重量測定法、 β 線吸収法などの物理的手法が用いられている。また必要に応じて粒子中の化学成分を測定する場合には、水、酸、有機溶媒などにより抽出後、個々の化学成分 (例えば、硫酸イオン、重金属、多環芳香族炭化水素類など) を化学的手法によって分析する。一方、粒子状物質の持つ毒性 (Toxicity) は粒径、濃度レベルだけでなく、化学組成によっても変化する。しかしながら、粒子状物質を構成する化学成分は多種多様であり、分析対象外の未知の有害成分が含まれている可能性がある。そこで、生物を用いたバイオアッセイによる大気中粒子状物質のバイオモニタリング手法を着想した。

バイオアッセイとは生物応答を利用した、未知あるいは未確認の有害物質を含む環境試料の有害性評価法である。多様な動物や植物を用いて毒性評価をし、その結果をもとにヒトや動物への毒性リスクを明確化する研究がなされている。海洋性発光バク

テリア *Vibrio fischeri* (以下 *V. fischeri*) はISO11348 (1998) によって規格化されている生物材料である。*V. fischeri*は呼吸代謝に伴うルシフェリン-ルシフェラーゼ系の酵素作用により波長490 nmの光を発するが、毒性物質などの存在化では発光強度が減少する。環境試料への応用例として、Maxam *et al.* (2000)は、土壤汚染の潜在的リスク評価に *V. fischeri*を利用したバイオアッセイが有効であることを示した報告が挙げられる。また Farre *et al.* (2008)は *V. fischeri*を用いて下水処理場の処理水に対して毒性評価を試み、廃水中の有害汚染物質濃度と毒性の大きさの間に相関関係があることを示した。

しかしながら、大気試料でのバイオアッセイの適用は、Triolo *et al.* (2008)の報告など少数に限られており、室内浮遊粒子やハウスダストへの適用も含め、未開拓の研究分野と言える。そこで申請者は、土壤汚染のバイオアッセイ用に開発された測定キットROTAS™ (英国STL製、日立化成工業㈱より販売)を用いて、神奈川県平塚市および島根県安来市で採取した大気中TSP、平塚市、海老名市の居住住宅内のTSP、および首都圏の家庭から回収したハウスダストを、ふるいを用いて分画した試料の水抽出物を *V. fischeri*に作用させた。さらに、特に東欧諸国で大気汚染物質となりうると注目されている、石炭火力発電に伴って発生する石炭フライアッシュに対しても有害性評価を試みたところ、各々の水抽出物には *V. fischeri*の生物発光を阻害する成分が含まれていたことを見出した。またハウスダスト、フライアッシュに対しては酸抽出法も試み、さらに検討を重ねた結果、例として以下のような知見を得た。

- 1) TSPの水抽出物は *V. fischeri*の生物発光を阻害し、炭素を主成分とするナノ粒子が主たる阻害要因だった。
- 2) 空気が清浄な地域(安来市)では大気中粒子濃度が低いが、夏季にTSPの生物発光阻害性が認められ、硫酸イオン (SO_4^{2-})濃度との間に関連があった。
- 3) しかし年末年始や黄砂・花粉時期ではTSP濃度が高くても生物発光阻害は起こらず、逆にバクテリアのStimulation現象が見られた。
- 4) 粒径別捕集試料を *V. fischeri*に作用させたところ、粒径2.1 μm 以下の微小粒子に強い生物発光阻害を見出した。
- 5) 換気の際に発生する気流によるハウスダストの再飛散によって、室内TSPの有害性が高くなった。
- 6) 小粒径のハウスダストほど毒性が高く、喫煙習慣のある家庭では粒径によらず高い毒性を示した。
- 7) ハウスダストの塩酸抽出法を確立し、ハウスダストに含まれる金属成分を対象としたバイオアッセイが可能となった。
- 8) フライアッシュ中の化学成分量はサンプルごとに多様で、バクテリアに対してinhibitionを示す場合とstimulationを示す場合の両方が確認された。
- 9) フライアッシュの有害性に対しては、水溶液のpHが大きく影響した。

また高濃度時にinhibitionを示したサンプルであっても、希釈により低濃度にして発光バクテリアに曝露させた場合に逆にStimulation現象が現れるケースが多く見つかった。これにより単成分だけでなく、混合物でのホルミシス効果が見出された可能性がある。

さらに本研究の遂行に際して、2011年3月11日の東日本大震災前後に神奈川県西部に飛来した大気エアロゾル粒子を捕集し、放射能の測定、急性毒性の評価も実施した。この時期の試料に福島第一原子力発電所の事故が原因と考えられる放射性物質が検出

され、事故発生直後の放射性物質の粒径分布など貴重なデータと知見を得た。