

大気中のPAHs、ダイオキシン類及びダイオキシン様毒性の粒径分布と浮遊粒子状物質規制強化による呼吸器系へのリスク削減効果の予測評価

亀田豊¹⁾、白井純子²⁾、益永茂樹¹⁾、駒井武³⁾、中西準子³⁾

(¹⁾横浜国大環情報研、²⁾横浜国大環情報学府、³⁾産総研化学物質リスク管理研究セ)

はじめに

近年、悪性新生物(がん)の部位別死亡率において肺がんが第1位になった¹⁾。この原因の一つに大気中の粒子状物質が考えられている。一方、粒子状物質にはアレルギー作用や環境ホルモン作用を持つ物質も吸着されていることが報告されている^{2,3)}。これらに関連する物質として、ポリ塩化ジベンゾ-p-ジオキシン、ポリ塩化ジベンゾフラン及びCo-PCBs(ダイオキシン類)、PAHs、その他のダイオキシン類と同様な毒性を持つ物質(Aryl hydrocarbon Receptorを介して毒性が発現する物質)が挙げられる。しかし、これらのうち、PAHsやダイオキシン様毒性物質においては基礎的な情報も少なくまた、環境基準も定められていない。

本研究では大気中のこれらの物質の規制を効果的に行うための基礎データの取得を目的とした。具体的には、大気中PAHsのリスクを把握するとともに監視すべきPAHsを抽出した。さらにPAHs、ダイオキシン類、ダイオキシン様毒性物質の粒径分布から、ヒトの呼吸器系に沈着するこれらの物質による毒性量を部位別に推定し、粒径別寄与率を明らかにした。

サンプリング及び分析方法

サンプリング: 2002年6、10月に本大学屋上(地上10.8m)にて、アンダーセンサンプラー3台を用いて大気中粒子状物質を粒径別に採取した。分級サイズは6段階とし(>7.0 µm、7.0~3.3 µm、3.3~2.0 µm、2.0~1.1 µm、1.1~0.43 µm、<0.43 µm)、<0.43 µmをPUF、その他を石英フィルターで566l/minにて捕集した。捕集は1週間ごとにフィルター、PUFを交換して1ヶ月間継続して行った。

分析方法

PAHs: 捕集したフィルター及びPUFをジクロロメタンでソックスレー抽出し、濃縮後、2種類のカラム(Wakosil-PAHs; 4.6 × 250mm、4.6 × 30mm(プレカラム)及びVydac C18 218TP54; 4.6 × 250mm)を用いて蛍光検出器付のHPLCで測定した。測定対象物質はWHOでユニットリスク⁴⁾が設定されているPAHsのうち、cyclopenta[*c,d*]pyrene及びbenzo[*j*]fluorantheneを除く22物質である。

ダイオキシン類: 高分解能ガスクロマトグラフ高分解能質量分析計(HP6890GC-Micromass Autospec Ultima)で測定した。分析条件は、PCDD/FsにDB17HT(J&W、60m × 0.32mm(id)膜厚0.15 µm)とDB-5MS(J&W、60m × 0.25mm(id)膜厚0.25 µm)、Co-PCBsにDB-5MS(J&W、60m × 0.25mm(id)膜厚0.25 µm)を使用した。全ての場合において、質量分析計はSIM法で分解能10000以上で行った。

ダイオキシン様毒性: 抽出液に対してH4Eラット肝がん細胞を用いたreporter gene assayを行った。得られた活性値は2,3,7,8-TCDDによる最大活性値を1としたときの相対活性値に変換し、20%の相対活性値に相当する試料濃度をEC₂₀として2,3,7,8-TCDD等量(pgTCDDeq/l)で表現した。

結果及び考察

大気中PAHsのリスクと主な寄与成分(Fig. 1)

大気中のPAHsのリスクを個々のPAHsの濃度とそれぞれの発がんユニットリスクを乗じ、総和して求めた(相対)
Size Distributions of Atmospheric PAHs and Dioxin-like Toxicity and Estimation of Their Depositions to Human Respiratory Tract

Yutaka Kameda¹⁾, Junko Shirai¹⁾, Shigeki Masunaga¹⁾, Takeshi Komai²⁾, Junko Nakanishi²⁾

¹⁾ Graduate School of Environment and Information Sciences, Yokohama National University, 79-7 Tokiwadai, Hodogaya-ku, Yokohama, 240-8501, Tel 045-339-4352, Fax 045-339-4373, ²⁾ Research Center for Chemical Risk Management, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, 16-1 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305-8569

加性を仮定)ところ、6月; 6.15×10^{-5} 、10月; 1.67×10^{-4} であった。この値は平成13年度の大気中ベンゼンによる発がんリスク(1.32×10^{-5})⁵⁾を上回っており、PAHsのリスクの高さが示唆された。

大気中のPAHsのリスクに大きく寄与しているPAHsとしては、B[a]P、DB[a,h]A、Ant、B[b]F、DB[a,e]Pであった。この中でB[a]Pの寄与率が約30%と最も高かったが、単独で大気中のリスクを評価するには低い値と考えられ、これらの複数成分によるリスク評価の必要性が示唆された。

PAHs、ダイオキシン類、ダイオキシン様毒性物質の粒径分布(Fig. 2)

大気中のPAHsは濃度では $<0.43 \mu\text{m}$ の分級範囲に多く存在するが、毒性では $1.1 \sim 0.43 \mu\text{m}$ に多く存在した。 $2 \mu\text{m}$ 以下の粒径による毒性は全体の85.1%(10月)を占めた。同様の傾向がダイオキシン類でも明らかになった。また、ダイオキシン様毒性物質の粒径分布においても $1.1 \sim 0.43 \mu\text{m}$ に極大を示す分布となった。

呼吸器系に沈着する粒子状物質による毒性の粒径分布(Fig. 3)

粒径分布の結果と粒子状物質の粒径ごとの沈着率データ⁶⁾を使用して呼吸器各部位における沈着物による毒性量の粒径分布を推定した。推定ではET₁;鼻孔、ET₂;咽頭+喉頭、BB;気管+気管支、bb;細気管支+終末細気管支、Al;呼吸細気管支+肺胞の部位ごとに行った。その結果、呼吸器の深部に向かうほど微小粒子による影響が大きくなった。特に肺がんが生じやすい肺胞部では、PAHsやダイオキシン類による毒性の約82~97%が $2 \mu\text{m}$ 以下の微小粒子によるものであった。

このことから、肺がんリスクを効果的に低減するには $2 \mu\text{m}$ 以下の粒子に対する対策が必要であることが示唆された。

謝辞

本研究は文部科学省産官学連携イノベーション創出事業費補助金及び文部科学省21世紀COEプログラムの支援を受けて行われました。ここに謝意を表します。

参考文献

- 1) 厚生労働省:平成13年人口動態調査、<http://www.dtbk.mhlw.go.jp/toukei/youran/data13/1-35.htm>
- 2) Veronique Bonvallot et al: *Am. J. Respir. Cell. Mol. Biol.*, **25**, 515-521 (2001)
- 3) J. H. Clemons et al.: *Environmental Science and Technology* **32**, 1853-1860(1998)
- 4) WHO: Air quality guidelines (1999)
- 5) 環境省環境管理局:平成13年度地方公共団体等における有害大気汚染物質モニタリング調査結果、http://www.env.go.jp/air/osen/mon_h13/index.html
- 6) ICRP: Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection, ICRP publication 66(1994)

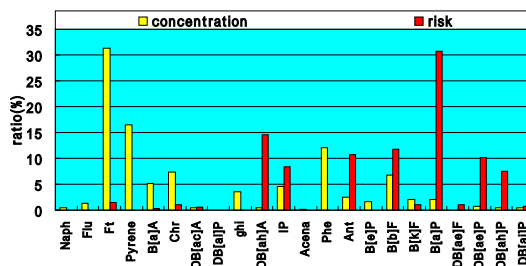


Fig. 1 Contribution of individual PAH to total risk or concentration in bulk air (October)

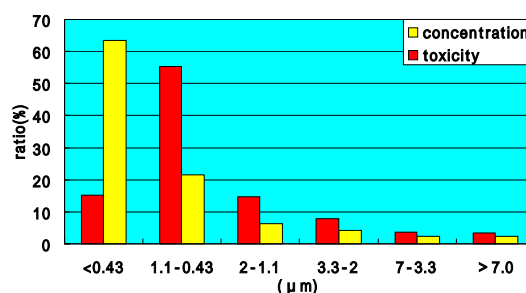


Fig. 2 Size distribution of PAHs and toxicity equivalent to B[a]P (October)

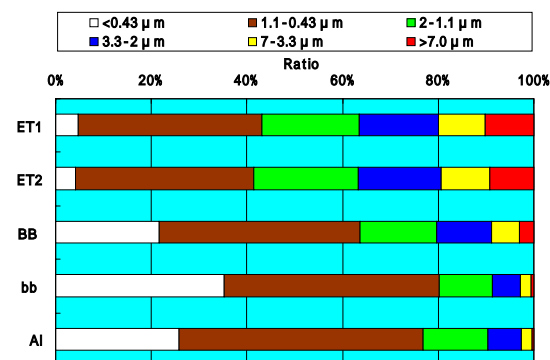


Fig. 3 Size distribution of PAHs toxicity equivalent to B[a]P deposited in human respiratory tract (October)