

環境大気の変異原性に関する研究 — 都内12地点の浮遊粉じん調査 II —

佐々木 裕子	遠藤 立一	川井 利雄
大山 謙一	仲 真晶子	渡辺 武春 (大気部)
泉川 碩雄 (大気部)	小野塚 春吉 (助成指導部)	菅 邦子 (大気部)
伊 洋昭 (大気部)	朝来野 国彦 (大気部)	川原 浩

1 はじめに

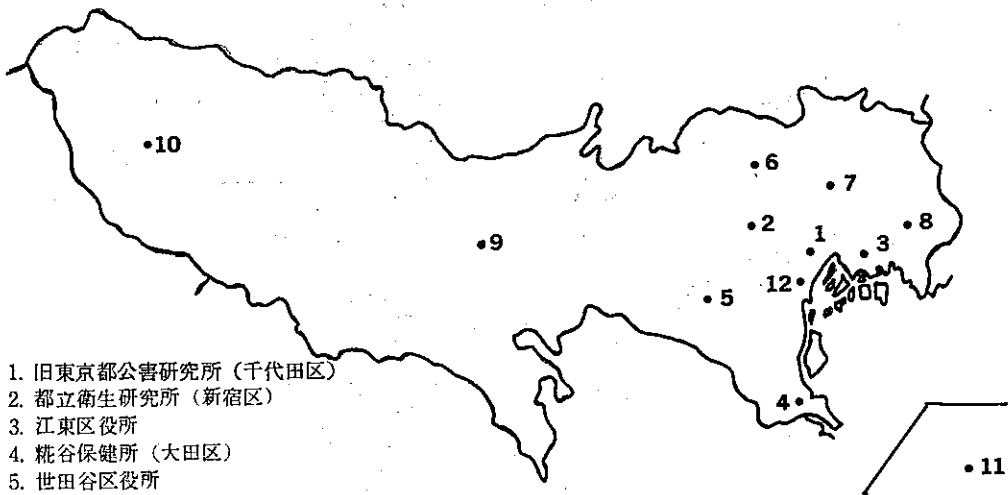
近年、癌原性と高い相関性を持つことが知られている変異原性の試験が、大気汚染の癌原性の評価にも利用されるようになってきた。微生物を用いる変異原性試験は、検体量が少なく済み、地域変動、季節変動を比較的容易に把握することができるという有用性を持っている。この変異原性試験と、当所大気部において従来より検討を行っている重金属および多環芳香族炭化水素(PAH)を組み合せ、東京都内の環境大気の調査を実施した。1984年の本報において、冬期2回の結果について報告したが、今回、計6回の調査が終了したので、都内各

地の変異原物質による汚染状況並びに季節変動などの結果について報告する。また、代表的大気中癌原物質であるベンゾ(a)ピレン(BaP)の濃度と、既知・未知の多種類の成分を全体として評価する変異原性試験結果との関連などについても、検討を行ったので報告する。

2 検討方法

(1) 検体

前報⁴⁾で報告した通り、東京都内の12地点(図1)において、1982年12月、1983年2月、8月、10月、1984年4月、6月の計6回、大気中浮遊粉じん



1. 旧東京都公害研究所(千代田区)
2. 都立衛生研究所(新宿区)
3. 江東区役所
4. 糀谷保健所(大田区)
5. 世田谷区役所
6. 板橋区産業文化会館(板橋区)
7. 荒川区役所
8. 江戸川区役所
9. 東京都立川合同庁舎(立川市)
10. 小河内貯水池(奥多摩町)
11. 小笠原支庁(父島)
12. 東京タワー(港区)

図1 測定地点

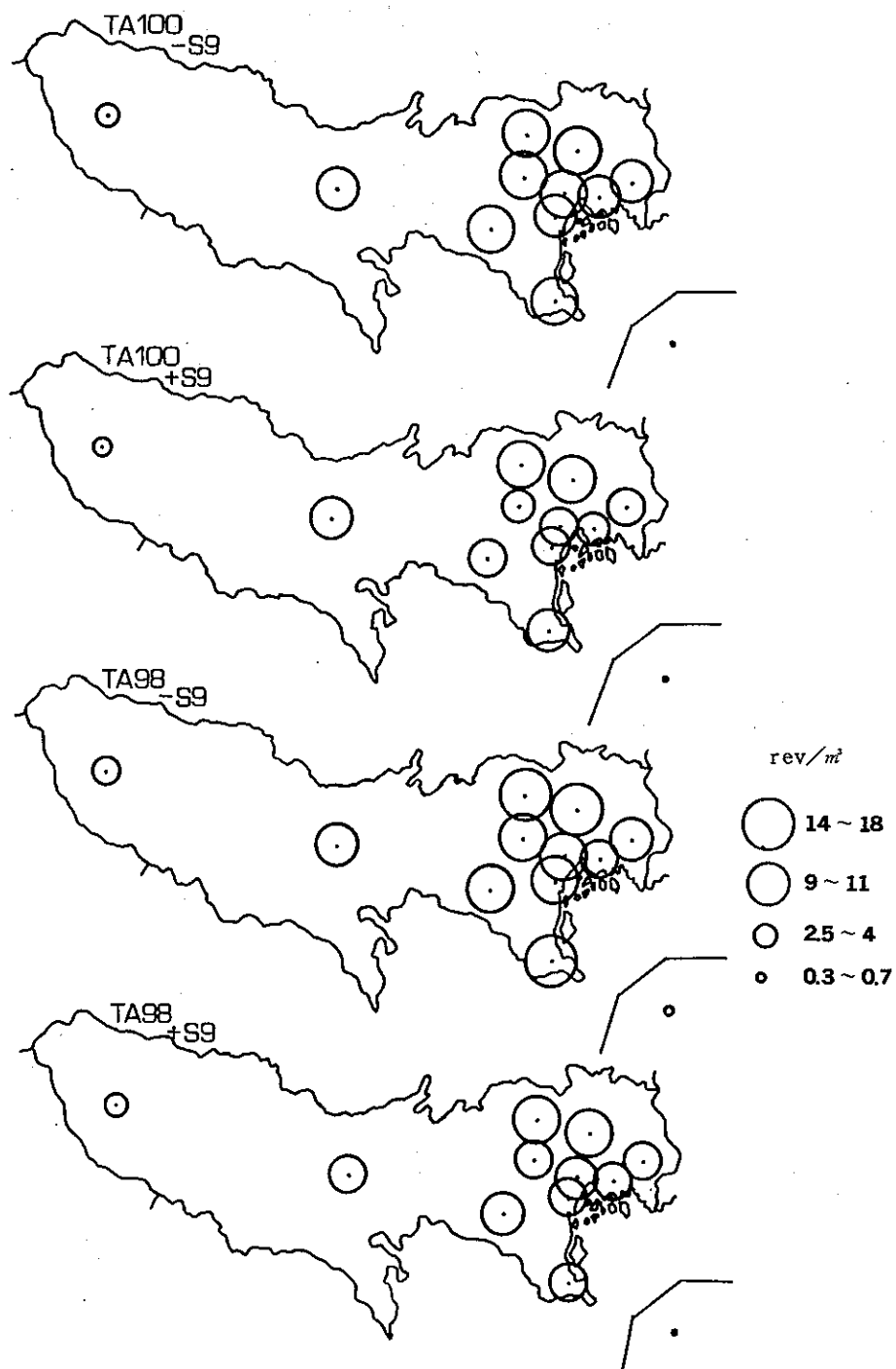


図2 都内12地点 年間平均変異原活性
(注) 測定点, 図1参照

の捕集を行った。浮遊粉じんは、ハイボリュームエアサンプラーを用い、石英濾紙 (Pallflex Type 2500) 上に、各地点 48 時間約 4600 m³ (但し、小河内、小笠原は 72 時間約 7000 m³) の環境大気を吸引して捕集した。なお、濾紙は捕集前後に 20℃、湿度 50% の恒温恒湿槽に放置 (前 24 時間、後 48 時間) した後、重量を測定し、捕集粉じん量を算出した。秤量後、濾紙を分割し、変異原性試験用は、ベンゼン-エタノール (4:1, V/V) で 30 分間超音波抽出を行った。抽出液は減圧下で溶媒留去を行い、得られたタールをジメチルスルフォキシド (DMSO) に溶解し、濾過滅菌して検体とした。PAH 分析用には、浮遊粉じんを 300℃、10⁻² ~ 10⁻³ mg/Hg の条件下で 30 分間真空昇華させ、タールを DMSO に溶解し、検体とした。重金属分析用には、浮遊粉じんを 10% HCl - 30% H₂O₂ (12:1, V/V) で 2 時間加熱分解し、検体とした。

(2) 使用菌株, 変異原性試験

Ames の *Salmonella typhimurium* TA100, TA98 株および Rosenkranz らが TA98 株から分離したニトロレダクターゼを欠損した TA98NR 株、ジニトロピレン活性化酵素を欠損した TA98/1.8 DNP₂ 株の 4 株を用いた。変異原性試験は pre-incubation 法を用い、代謝活性化には、ウィスター系ラットの肝 S9 (PCB 誘導) を用いて調整した S9 mix を用いた。

(3) PAH の分析法⁵⁾

高速液体クロマトグラフィ (JASCO TRIROTAR) を用いて分離し、けい光分光光度計 (JASCO FP-550) で BaP, ベンゾ (ghi) ペリレン (BghiP) の 2 項目を定量した。

(4) 重金属の分析法⁵⁾

カドミウム (Cd), クロム (Cr), 鉄 (Fe), マンガ

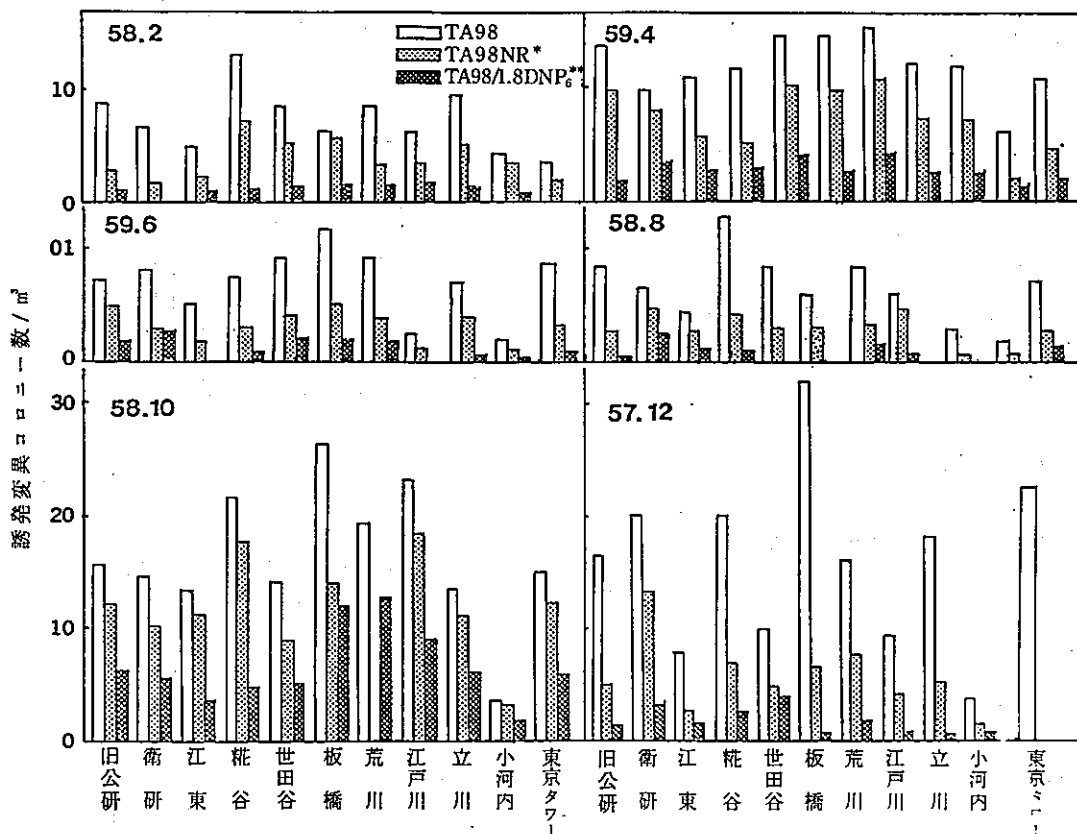


図3 都内11地点の測定月別直接変異原活性

* ニトロレダクターゼ欠損株, 同株とTA98株の活性の差からモノニトロピレンの存在を推定する。
 ** ジニトロピレン活性化酵素欠損株, 同株とTA98株の活性の差からジニトロピレンの存在を推定する。

ン(Mn), ニッケル(Ni), 鉛(Pb), 亜鉛(Zn)の7項目を, 原子吸光度計(日本ジャーレルアッシュ, A A-1. MK-II)を用い, 直接原子吸光法で定量した。

3 結果

図2に, 12の測定地点ごとの空気 m^3 当りの6回の平均変異原活性を示した。TA100, TA98両菌株間の変異原活性にあまり違いは認められなかった。一方, 代謝活性化の有無では, S9mix非存在下の変異原活性(直接変異原活性)の方は, ほぼどの地点でもわずかに高い傾向が認められた。各地点の結果を比較すると, 清浄対照地点(小河内, 小笠原)を除く10地点は, 空気 m^3 当り10 rev(誘発変異コロニー数)前後であり, 地域変動は変動係数で16%(TA100-S9)~21%(TA100+S9)と少なかった。すなわち, 都心から離れた住宅地域まで, 同程度に変異原物質による汚染が及んでいることが認められた。また, 小河内では m^3 当り2~4 rev とかなり変異原活性が低いものの, 単位重量当りでは, 区部の平均の70~90%の変異原活性を示すという前報(冬期)と同様な傾向が年間を通して認められた。一方, 小笠原では, 空気 m^3 当りのみならず, 粉じん mg 当りでも, 区部の平均変異原活性の約10%の活性しか認められず, 変異原物質による汚染が少ないことが認められた。

次に, 測定月ごと, 地点ごとのTA98-S9, TA98NR, TA98/1.8DNP₆の空気 m^3 当りの変異原活性を示した(図3)。TA98株での直接変異原活性は, 平均すると図2に見られる通り大きな違いはないが, 個々の地点は測定時毎に多少変動が見られた。月ごとには, 10月, 12月に高く, 6月, 8月に低い傾向が認められた。また, TA98株とTA98NR株, TA98/1.8DNP₆株の変異原活性を比較すると, TA98NR株で19~91%, TA98/1.8DNP₆株で検出限界以下~6.5%まで活性の減少が見られた。なお, 変異原活性の低下割合には, 明確な地域差は認められなかった。測定月では, 12月が, TA98NR, TA98/1.8DNP₆の両株共に低下割合が比較的大きい以外は, 明らかな傾向は見い出されなかった。

図4, 5に, 清浄対照地点を除く10地点の空気 m^3 当りと粉じん mg 当りの月ごとの平均変異原活性, PAH濃度を示した。その結果, 粉じん mg 当りでは, 2菌株±S

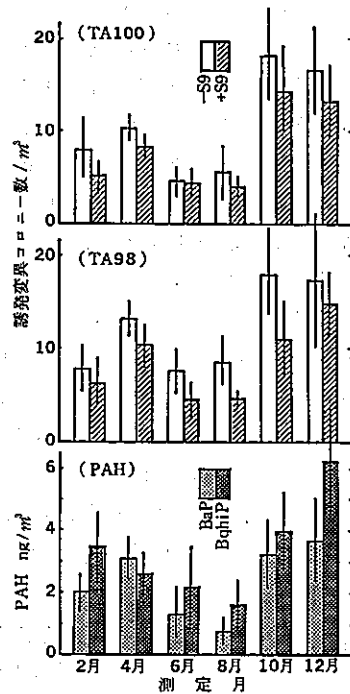


図4 都区内・立川の単位空気量当りの月別推移

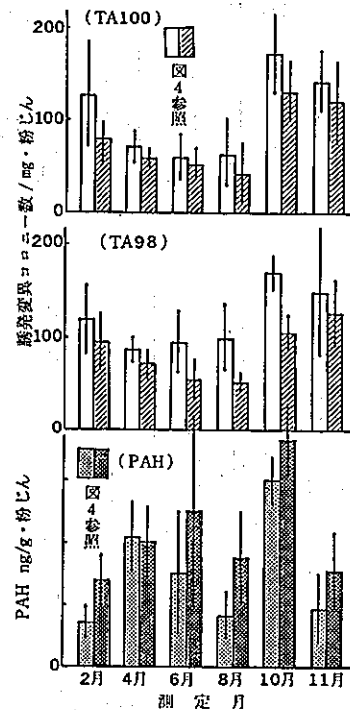


図5 都区内・立川の単位粉じん量当りの月別推移

9のいずれも春～夏に低く、秋～冬に高いという傾向が得られた。一方、空気 m^3 当りでは、似た傾向が認められるものの、冬期のうち2月のみは、4月より変異原活性が低いという結果が得られた。また、年間変動係数は、40%(TA98-S9)～56%(TA100+S9)で、季節変動がかなりあることが認められた。次に、BaP, BghiPの季節変動の結果は、空気 m^3 当りでは、夏に低く、12月にはかなり高かった。しかし、粉じん mg 当りでは、変動巾は大きいものの、明確な季節傾向は認められなかった。

変異原活性と、PAHや重金属による汚染状況の関連を、表1に示した。また、高い相関性を示したもののなかから変異原活性(TA98+S9)と粉じん, BaPの例を散布図に示した(図6)。その結果、2菌株土S

表1 都内12地点の変異原活性と浮遊粉じん,

	PAH, 重金属の相関性			
	TA100-S9	TA100+S9	TA98-S9	TA98+S9
粉じん	0.51 **	0.59 **	0.61 **	0.66 **
BaP	0.71 **	0.81 **	0.69 **	0.79 **
BghiP	0.65 **	0.74 **	0.61 **	0.74 **
Cd	0.19	0.28	0.26	0.17
Cr	0.26	0.32 *	0.35 *	0.31
Fe	0.27	0.38 *	0.39 *	0.33 *
Mn	0.30	0.39 *	0.42 **	0.41 **
Ni	0.30	0.28	0.34 *	0.38
Pb	0.57 **	0.63 **	0.63 **	0.68 **
Zn	0.19	0.25	0.23	0.24

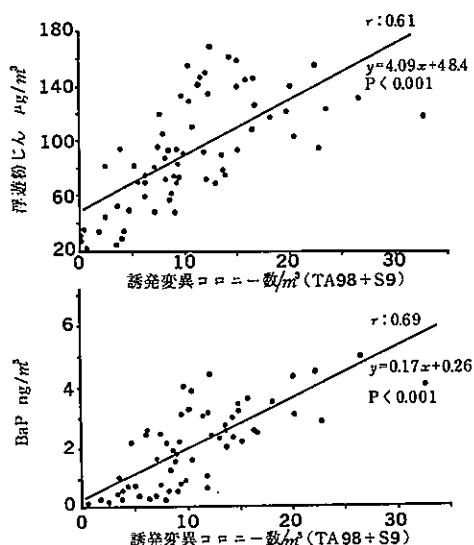


図6 変異原活性と浮遊粉じん, BaPの関係

9の変異原活性は、浮遊粉じん, BaP, BghiP, Pbと、0.1%以下の危険率で有意という相関関係が得られた。

4 考察

東京の大気中変異原物質の地域変動は、23区・立川まではほぼ同程度の変異原活性を示し、住宅地域・工業地域で変異原活性に大きな違いのある福岡県¹⁾などは異なっていた。また、山間部(小河内)も、粉じん重量当りの変異原活性が23区内とあまり変わらず、都心の浮遊粉じんがこの地域まで移流拡散してきていることを推測させた。

一方、季節変動については、前報の別の年度の結果や、後藤らの港区の結果同様に、質・量共に秋～冬に高く、春～夏に低いという結果が得られた。Daisey²⁾らは、ニューヨークの大気を検討し、冬期の変異原活性の半分は暖房用燃料消費に由来していると推論している。しかし、東京の大気では、秋にも冬に近い高変異原活性を示す点や、12月と2月の変異原活性が異なる点から、高い活性の原因を暖房だけに帰することはできない。BaP等PAHが紫外線で分解されることから、日照時間の違いや、拡散に関与する風等気象条件も関与していると考えられる。

また、大気中浮遊粉じんは、直接・間接の両変異原性を示したが、フレームシフト型(TA98)の直接変異原活性は、TA98NR株、TA98/1.8DNP₀株で活性が低下することから、ニトロアレン類によるものであることが示唆された。なお、環境レベルのNO₂, SO₂, NO₃等では、ニトロアレン類の濾紙上の生成はさほどあるとは考えられず^{6,7)}、これらニトロアレン類は、本来、環境大気中で生成もしくは存在していると推測される。また、既知のニトロアレン類は、塩基交換型(TA100)の直接変異原活性が低いことが知られている。今回、フレームシフト型と同程度の塩基交換型直接変異原活性が検出された点から、未知の高活性変異原物質の存在も予測された。

次に、浮遊粉じんと有意の相関からは、環境大気中の変異原物質を低減するには、粉じん量の削減が有効であることが強く示唆された。BaP, BghiPとの有意の相関は、S9 mix存在下の変異原活性にPAHがかなり寄与していることを推測させた。

今後、更に変異原物質の同定、発生源の特定、削減方法について、検討を続けていく必要がある。

5 謝 辞

本調査実施に当り、試料の捕集に御協力いただきました各区公害課、小河内貯水池管理事務所、小笠原支庁の関係者の皆様に深く謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) Tokiwa, H. *et al.*: Mutation and Chemical Assay of Extracts of Airborne Particulates, *Mutation Res.*, **77**, 99 (1980)
- 2) Daisey, J. M. *et al.*: Seasonal Variation in the Bacterial Mutagenicity of Airborne Particulate Organic Matter in New York City, *Environ. Sci. Technol.*, **14**, 1487 (1980)
- 3) 後藤純雄他: 大気浮遊粉じんの変異原性の経日変動, *大気汚染学会誌*, **17**, 295 (1982)
- 4) 佐々木裕子他: 環境汚染物質の変異原性に関する研究—東京都における浮遊粉じん調査—, *東京都公害研究所年報*, 249 (1984)
- 5) 東京都公害研究所: 浮遊粒子状物質等測定データ集, (1984)
- 6) Schuetzle, D.: Sampling of Vehicle Emissions for Chemical Analysis and Biological Testing, *Environ. Health Perspect.*, **47**, 65 (1983)
- 7) Tokiwa, H. *et al.*: Mutagenicity of Nitro Derivative Induced by Exposure of Aromatic Compounds to Nitrogen Dioxide, *Mutation Res.*, **85**, 195 (1981)
- 8) Rosenkranz, H. S. and R. Mermelstein: Matagenicity and Genotoxicity of Nitroarenes, All Nitro-containing Chemicals were not Created Equal, *Mutation Res.*, **14**, 217 (1983)