

# ディーゼル車排出粒子及び東京都内大気中粒子状物質の変異原性について

三矢 律子\* 木瀬 晴美\*\* 石井康一郎 飯村 文成  
 佐々木啓行 吉野 彩子\*\* 吉岡 秀俊 佐々木裕子  
 (\*現・東京都水道局 \*\*非常勤研究員)

## 要 旨

自動車排出物質の毒性を包括的に検討するため、①ディーゼル車排出ガス、②自動車専用トンネル内空気、③道路沿道大気、の各々に含まれる粒子状物質 (PM) について変異原性を測定した結果、以下のことが明らかとなった。(1) ディーゼル車走行規制に伴い使用過程車に装着された PM 減少装置は PM 中の変異原活性を低減させることが確認された。(2) 窒素酸化物(NOx)及び PM 対策を強化した、平成 15 年および 17 年規制適合車両は、平成元年～10 年規制適合車両に比べ、PM 中の変異原活性が低いことが分かった。(3)ディーゼル車走行規制開始後、トンネル内走行車の単位走行距離あたりの変異原活性は低下していた。(4) 自動車排出ガスの影響を受けている沿道環境大気中の PM 中変異原活性は後背地に比べて高かった。(5) 現在の都内環境大気中 PM の変異原性活性レベルは 1980～90 年代と比較して低下していた。

キーワード：ディーゼル車排出ガス、ディーゼル車走行規制、変異原性、エームス試験

## Mutagenicity of Diesel Exhaust Particulate and Atmospheric Particulate in Tokyo Metropolitan Area

MITSUYA Ritsuko \*, KISE Harumi \*\*, ISHII Koichiro, IIMURA Fuminari,  
 SASAKI Hiroyuki, YOSHINO Ayako \*\*, YOSHIOKA Hidetoshi, SASAKI Yuko

\* Tokyo Metropolitan Government Bureau of Waterworks,

\*\* Associate researcher

### Summary

In order to study the hazard of automotive exhaust gas comprehensively, we measured mutagenicity of the particulate matter (PM) samples from ①diesel exhaust gas, ②automotive tunnel ventilation gas and ③roadside. The following results were obtained. (1) It was confirmed that PM reducing devices equipped with many used diesel vehicles, reduced emissions of mutagenic activity of PM from diesel vehicles. (2)By testing heavy duty diesel trucks on the chassis dynamometer, mutagenic activities of PM from the diesel trucks, conforming to the 2003 year and the 2005 year exhaust gas regulations, were lower than those of the trucks conforming to from the 1989 year to the 1998 year regulations. (3) After enforcement of diesel vehicle regulation, mutagenic activity of PM (revertant/km) from vehicles traveling in Iogi tunnel had reduced. (4) Mutagenicity of PM at the roadside influenced by automotive exhaust gas was higher than that of its surrounding area. (5) Present mutagenic activity of PM in Tokyo metropolitan area has decreased compared with 1980's and 1990's.

**Key word** : diesel exhaust gas , diesel vehicle regulation , mutagenicity , Ames test

## 1 はじめに

自動車排出ガスや粒子状物質 (PM) 中には、ベンゾ(a)ピレン(B(a)P)などの多環芳香族炭化水素(PAHs)やベンゼン、アルデヒド類等、様々な発がん性物質が含まれている。特に、ディーゼル排出ガスは人への発がん性が強く示唆<sup>1)</sup>されており、自動車排出ガスの影響を強く受ける道路沿道環境における発がんリスクに着目した影響評価を行う必要性が高まっている。

わが国では、1994年にディーゼル車排出ガスにPMの重量規制が導入され、以後長期規制、新短期規制と順次規制が強化されてきた。さらに、2001年には「自動車から排出される窒素酸化物及び粒子状物質の特定地域における総量削減等に関する特別措置法」(「自動車NO<sub>x</sub>・PM法」)が施行された。また、首都圏の八都県市では、2003年10月より条例による使用過程車及び地域流入車を規制対象に含むディーゼル車走行規制が開始され、この規制に対応して多くの使用過程車に条例により指定された「PM減少装置」が装着されることとなった。

PM減少装置には、PMをろ過するタイプのディーゼル粒子除去フィルター(Diesel Particulate Filter; DPF)と、PMを酸化除去する酸化触媒(Diesel Oxidation Catalyst; DOC)がある。さらにDPFには、フィルター上に捕捉されたPMを外部熱源によって燃焼除去することでフィルター機能を再生させるアクティブタイプ(以下「a-DPF」とする)と、酸化触媒を利用して連続的にPMを酸化除去することによりフィルター機能を再生させるパッシブタイプ(以下「p-DPF」とする)とがある。これらのPM減少装置は構造の違いによって低減率は異なるが、PM、PAHsや揮発性有機化合物(VOCs)等の低減効果を有することを本研究で確認しており<sup>2,3)</sup>、ディーゼル車規制に伴うこれらPM減少装置の普及が、自動車からのPAHsやVOCs等の排出量低減に貢献していると考えられる。

自動車排出ガス及び環境大気中の発がん性物質については、シャシダイナモメータ(C/D)を用いた排出ガス測定や道路沿道における環境大気調査などにより、個別成分ごとの濃度測定を中心に多くの調査研究がなされてきた<sup>4,5,6,7)</sup>。東京都環境科学研究所では2003年及び2004年にディーゼル車排出ガス対策の効果検証として自動車専用トンネルを利用した調査を行い、規制開始後に自動車からのPM、元素状炭素、PAHs、VOCs等の排出量が実際に低下していることを明らかにした<sup>8,9,10)</sup>。

しかし自動車排出ガスには数百種以上の有機・無機成分が含まれている上、毒性や化学構造が未知の物質も多く存在することから、それぞれの成分について個別測定を行うことには限界がある。また自動車排出ガスに含まれる成分相互の複合作用による生物への毒性については明らかにされていない点が多い。これらのことから、自動車排出ガスの包括的な毒性を試験する手法としてバイオアッセイ法を用いることが有用であると考えられる。

様々なバイオアッセイ法の一つとして、化学物質の生物に対する変異原性を経済的かつ簡易に、そして比較的高い感度で試験することができるAmes(エームス)試験<sup>11)</sup>が、大気環境の分野でも利用されている<sup>12,13,14)</sup>。変異原性は、遺伝情報を担っているDNAに損傷をもたらす突然変異を引き起こす化学物質の性質であり、変異原性を有する物質の多くが発がん性をも示すことが知られている。したがって自動車排出ガス中や環境大気中の変異原性物質濃度実態を把握することは、健康被害を防止する観点から重要である。

村上ら<sup>15)</sup>は、ディーゼル車排出ガスの発がんリスクはその大部分がPMに起因していることを指摘している。そこで我々は、Ames試験法を用いてディーゼル車排出ガスや環境大気等に含まれるPMの変異原性測定を行った。環境中の変異原性物質のうち、PAHsや芳香族アミノ化合物は哺乳類の体内において代謝されてはじめてDNAと結合し、変異原性を発現することから、今回はS9mixと呼ばれる薬物代謝酵素系を導入した場合についても検討を行った。

その結果、排出ガス規制や八都県市の規制に対応した対策によるディーゼル車排出ガスの変異原活性低減効果および都内大気の変異原性物質による汚染状況等について若干の知見が得られたため、報告する。

## 2 調査方法

### (1) 概略

調査は、①C/Dを用いたディーゼル車排出ガス調査、②トンネル調査、③道路沿道調査、の3つの方法で行った。

C/Dを用いたディーゼル車排出ガス調査では、大型ディーゼル車14台のPM及び変異原性物質の排出原単位を求めた。トンネル調査では、トンネル出口と入口の大気中変異原活性の差を求めることにより、トンネル走行車両の平均的な変異原性物質排出係数を求めた。道路沿道調査では、道路近傍で大気PM中の変異原活性の測定および道路と直

交方向に設けた複数の地点における変異原性物質濃度の測定を行った。

(2) ディーゼル車排出ガス中 PM の変異原性試験

ア 試料採取

ディーゼル車排出ガスの測定に使用した車両は、排気量 4777~13074cc の大型ディーゼル車 14 台である (表 1)。D1 及び D2 は PM 減少装置装着時及び非装着時の排出ガス測定を行うことのできる実験車である。D1 については p-DPF、D2 については a-DPF 及び DOC の装着時・非装着時の排出ガス測定を行った。D3~D14 は日常的に都内を走行している使用過程車である。

試料採取は、測定対象車両を当研究所の C/D 上で走行させ<sup>16)</sup>、あらかじめ 450°C で 5 時間焼成した石英繊維ろ紙上に流量 880L/min で PM を採取した。試料採取時の走行条件は東京都実走行パターン No. 5 (平均車速 17.9km/h) を用いた。

表1 測定対象車両の主要諸元

| No. | 車種   | 規制年次 | 排出ガス対策                   | 排気量 (cc) | 等価慣性重量 (kg) |
|-----|------|------|--------------------------|----------|-------------|
| D1  | 普通貨物 | H元年  | p-DPF (後付け)              | 12503    | 10810       |
| D2  | 普通貨物 | H6年  | a-DPF (後付け)<br>DOC (後付け) | 7961     | 5785        |
| D3  | 普通貨物 | H10年 | なし                       | 5249     | 3690        |
| D4  | 普通貨物 | H10年 | なし                       | 6634     | 6345        |
| D5  | 普通貨物 | H10年 | EGR                      | 9203     | 6585        |
| D6  | 普通貨物 | H10年 | EGR                      | 7540     | 6615        |
| D7  | 普通貨物 | H10年 | EGR                      | 4985     | 4870        |
| D8  | 普通貨物 | H15年 | DOC<br>EGR               | 4777     | 4830        |
| D9  | 普通貨物 | H15年 | DOC<br>EGR               | 4777     | 3810        |
| D10 | 普通貨物 | H15年 | DOC<br>EGR               | 4985     | 5670        |
| D11 | 普通貨物 | H15年 | DOC<br>EGR               | 4985     | 4610        |
| D12 | 普通貨物 | H15年 | p-DPF<br>EGR             | 6403     | 6580        |
| D13 | 普通貨物 | H15年 | p-DPF<br>EGR             | 4899     | 5140        |
| D14 | 普通貨物 | H17年 | 尿素SCR<br>EGR             | 13074    | 18500       |

EGR: 排ガス再循環(NOx対策)

SCR: 選択還元触媒(Selective Catalytic Reduction) (NOx対策)

イ PM 測定

試料採取前後のろ紙重量を測定し、その差を採取量とした。重量測定の際の恒量条件は、温度 25°C、湿度 50%、放置時間は 24 時間 (採取前) または 48 時間 (採取後) である。

ウ 変異原性試験溶液の調製

ディーゼル車から排出される PM は大気環境試料に比べ炭素質 (元素状炭素) を多く含むため、大気中 PM の変異原性測定を行う際に一般的に用いられている超音波抽出法では抽出効率が低下する恐れがある<sup>17)</sup>。このため有機可溶成分の抽出にはソックスレー法を用い、溶媒はトルエンを使用した。なお、変異原性試験と並行して行った PAHs 測定の予備実験において、トルエンは抽出溶媒として一般的に用いられているジクロロメタンに比べて、B(a)P 抽出効率が良好であることを確認した。

抽出液をロータリーエバポレーターで 5ml 程度に濃縮後、ジメチルスルホキシド (DMSO) を 50 μL 加え、窒素気流下で抽出溶媒を揮散させ DMSO に転溶し試験溶液とした。

エ 変異原性試験

変異原性試験は、Ames らの方法<sup>11)</sup>を一部改良したプレインキュベーション法<sup>18)</sup>により行った。代謝活性化にはフェノバルビタール及び 5,6-ベンゾフラボンを用いて薬物代謝酵素を誘導したラット肝ホモジネートの 9000×g 上清 (Supernatant) から調製を行った S9 (オリエンタル酵母社製) に補酵素を混合した S9mix を用い、代謝活性化を行った場合 (+S9) 及び行わなかった場合 (-S9) の両条件下で試験を行った。

試験菌株は国立医薬品食品衛生研究所の能美健彦博士から提供を受けた *Salmonella typhimurium* TA98、YG1024、YG1041 (以下それぞれ「TA98」、「YG1024」、「YG1041」とする) を使用した。TA98 はフレームシフト型変異原を高感度で検出できる試験菌株である。YG1024 及び YG1041 はその派生株で、YG1024 は芳香族ニトロ、アミノ化合物から生じる芳香族ヒドロキシルアミンに対して、YG1041 は芳香族ニトロ化合物に対して特異的に高い感受性を示す試験菌株である<sup>19,20,21)</sup>。変異原性の評価は、試料濃度と誘発突然変異コロニー数との間に比例 (用量-反応) 関係がある場合、その部分の回帰式の傾きを利用し、採取大気量 (m<sup>3</sup>) あたりの誘発突然変異コロニー数 (rev.; revertants) として求めた変異原活性値を用いた。

(3) 自動車専用トンネル内空气中 PM の変異原性試験

ア 試料採取

1998 年に都内の自動車専用トンネル A において、また 2001 年、2003 年及び 2004 年にトンネル B (井荻) において、ハイボリュームエアサンプラーによる PM 採取を行った。変異原性測定は、PM 排出量が多いディーゼル車の混入

率が高く交通量も多い平日について行った。トンネル A、B はともに走行方向別に隔壁で仕切られており、空気の流れは来はない構造となっている。トンネル走行車両からの総排出量が把握できるよう、試料採取は走行方向に対し入口に近い地点と出口に近い地点（以降それぞれ「入口地点」「出口地点」とする）の2箇所で行い、出口側からの空気の逆流がない条件のみを選んで測定を行った。

試料採取の詳細は既報<sup>8,22)</sup>の通りである。試料採取時の交通量等の概略を表2に示す。

表2 トンネル調査時の交通量

| 調査トンネル | 調査日           | 試料採取時間帯 | 平均交通量(台/h) |      |      | 大型車混入率 |
|--------|---------------|---------|------------|------|------|--------|
|        |               |         | 小型         | 大型   | 合計   |        |
| A      | 1998.9.9(水)   | 9~16時   | 2639       | 1653 | 4292 | 38%    |
|        | 2001.3.12(月)  | 10~16時  | 822        | 386  | 1208 | 32%    |
| B      | 2003.11.10(月) | 10~16時  | 836        | 346  | 1182 | 29%    |
|        | 2004.11.15(月) | 10~16時  | 876        | 381  | 1257 | 30%    |

イ 測定方法

PM 測定、変異原性試験溶液の調製、変異原性試験の方法は、先に示したディーゼル車排出ガスの方法 ((2)イ、ウ、エ) に従って行った。

(4) 道路沿道環境大気中 PM の変異原性試験

ア 調査概要

2003年に世田谷区で、2004年及び2005年に江東区で道路沿道調査を行った。江東区での調査は南北方向に伸びる道路の直交方向である西側に複数の調査地点を設け、道路からの距離別に測定を行った<sup>10)</sup>。また江東区の調査ではビデオ撮影による交通量調査もあわせて行った。道路沿道調査の概要を表3に示す。

表3 道路沿道調査概要

| 場所   | 対象道路  | 調査日                | 地点数 | 地点<br>(道路端からの距離) |
|------|-------|--------------------|-----|------------------|
| 世田谷区 | 環状8号線 | 2003.10.16(木)      | 1   | 5m               |
|      |       | 2003.12.17(水)      | 1   | 5m               |
|      |       | 2004.1.21(水)       | 1   | 5m               |
|      |       | 2004.2.23(月)~26(木) | 1   | 5m               |
| 江東区  | 明治通り  | 2004.7.29(木)       | 4   | 5、20、35、125m     |
|      |       | 2004.10.14(木)      | 4   | 5、20、35、125m     |
|      |       | 2005.2.21(月)       | 4   | 5、20、35、125m     |
|      |       | 2005.6.6(月)        | 4   | 5、20、35、125m     |

イ 試料採取及びPM測定

ハイボリュームエアサンプラーを用い、あらかじめ450℃で5時間焼成した石英繊維ろ紙上に流量 700 ないし 1000L/min で所定の時間採取した。PM 測定方法はディーゼル車排出ガスの方法 ((2)イ) に従って行った。

ウ 変異原性試験

試験溶液の調製は、PM を採取したろ紙の一部を細断し、ジクロロメタンを使用した超音波抽出法で有機可溶成分を抽出した。抽出後の操作及び変異原性試験はディーゼル車排出ガスの方法 ((2)ウ、エ) に従って行った。

(5) PAHs 測定

ディーゼル車排出ガス、トンネル内空気、道路沿道環境大気のすべての試料について、PAHs7成分(ベンゾ(a)アントラセン、ベンゾ(b)フルオランテン、ベンゾ(k)フルオランテン、B(a)P、ジベンゾ(a,h)アントラセン、ベンゾ(g,h,i)ペリレン、インデノ(1,2,3-cd)ピレン(ただしトンネル調査ではインデノ(1,2,3-cd)ピレンは除外)の測定<sup>23)</sup>を高速液体クロマトグラフィーにより行った。試料溶液は変異原性試験用抽出溶液の一部を分取してアセトニトリルに転溶して調製した。

3 結果及び考察

(1) PM 減少装置の変異原活性低減効果

PM 減少装置の着脱が可能な大型ディーゼル車(D1、D2)の変異原性試験結果を図1に、PM 及び PAHs 測定結果を図2に示す。図2の PAHs は、測定を行った7成分の合計値を示した。

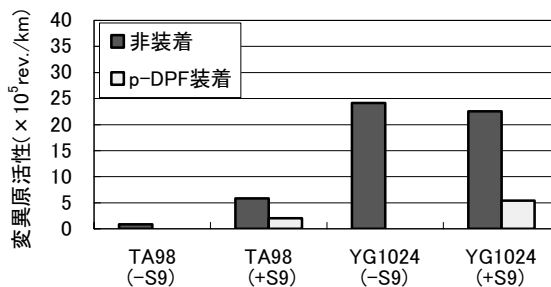


図1-1 p-DPFによる変異原活性低減効果(D1)

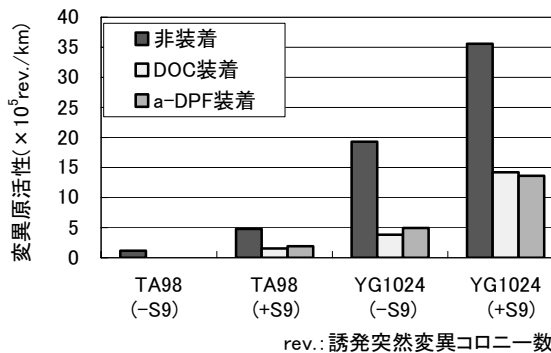


図1-2 DOC及びa-DPFによる変異原活性低減効果(D2)

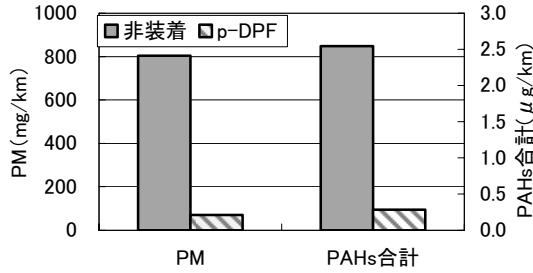


図2-1 p-DPFによるPM及びPAHs低減効果(D1)

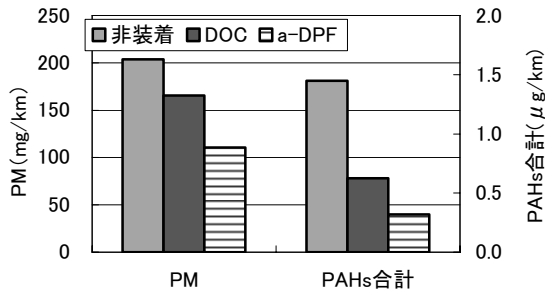


図2-2 DOC及びa-DPFによるPM及びPAHs低減効果(D2)

D1、D2とも、PM減少装置の装着により、変異原活性はYG1024(+S9)で60～80%程度低下しており、YG1024(-S9)ではそれ以上であった。変異原性試料採取時のPM低減率はp-DPFでは91%、a-DPFでは46%であったのに対してDOCは19%と低かった。しかし、DOCの変異原活性低減率はa-DPFと同程度の低減効果を示した。我々が過去に行った調査<sup>3)</sup>では、DOCよりもDPFの方がPM除去能力が高いという結果が得られ、ディーゼル車排出PM中のPAHs低減効果についてもDOCに比べDPFの方が高いという結果が得られている。しかしPM減少装置の変異原活性低減は、a-DPFとDOCとではPM除去能力の違いによる影響は特に見られなかった。この原因としては、a-DPFがPM中のECを除去するのに対し、DOCはPM中のSOFを除去するという除去対象PM成分が異なるという影響が示唆される。

(2) 平成15年および17年排出ガス規制適合車排出ガスの変異原活性

PM減少装置非装着時のD1、D2及び使用過程にある大型ディーゼル車(D3～D14)について、単位走行あたりの変異原活性及びPM排出原単位を表4に示す。なお、自動車からの排出量はエンジン出力に依存するため、表には単位走行あたりの値を各車の等価慣性重量で除した値を示した。

PM排出原単位について見ると、平成10年以前の規制車(D1～D7)は13～58mg/km/tであったのに対し、平成

表4 単位走行あたりの変異原活性とPM排出原単位

| No. | 規制<br>年次 | 排ガス<br>対策         | PM<br>(mg/<br>km/t) | TA98 |                   | YG1024 |      | YG1041            |      |
|-----|----------|-------------------|---------------------|------|-------------------|--------|------|-------------------|------|
|     |          |                   |                     | -S9  | +S9               | -S9    | +S9  | -S9               | +S9  |
| D1  | H元       | なし                | 58                  | 0.08 | 0.54              | 2.2    | 2.1  | (-)               | 0.61 |
| D2  | H6       | なし                | 27                  | 0.20 | 0.83              | 3.3    | 6.2  | 110 <sup>注)</sup> | 6.7  |
| D3  | H10      | なし                | 38                  | 0.47 | 0.54              | 0.46   | 2.4  | 34                | 4.8  |
| D4  | H10      | なし                | 13                  | 0.17 | 0.75              | 2.4    | 2.7  | 2.7               | 7.6  |
| D5  | H10      | EGR               | 17                  | 0.06 | 0.73              | 2.2    | 1.7  | 8.2               | 2.6  |
| D6  | H10      | EGR               | 45                  | 0.71 | 0.29              | 3.0    | 1.0  | 102               | 1.1  |
| D7  | H10      | EGR               | 22                  | 0.22 | 0.98              | 1.6    | 3.6  | 84                | 9.6  |
| D8  | H15      | DOC、<br>EGR       | 7.0                 | 0.19 | 0.27              | 1.5    | 1.8  | 50                | 2.1  |
| D9  | H15      | DOC、<br>EGR       | 6.3                 | 0.05 | 0.14              | 0.45   | 1.2  | 12                | 1.7  |
| D10 | H15      | DOC、<br>EGR       | 7.4                 | (-)  | 0.06              | 0.24   | 0.56 | (-)               | 0.90 |
| D11 | H15      | DOC、<br>EGR       | 17                  | (-)  | 0.5 <sup>注)</sup> | 0.24   | 0.38 | (-)               | 0.64 |
| D12 | H15      | p-<br>DPF、<br>EGR | 0.5                 | (-)  | (-)               | (-)    | 0.23 | (-)               | 0.40 |
| D13 | H15      | p-<br>DPF、<br>EGR | 4.7                 | (-)  | (-)               | (-)    | (-)  | (-)               | 0.08 |
| D14 | H17      | 尿素<br>SCR、<br>EGR | 3.5                 | (-)  | (-)               | (-)    | 0.14 | (-)               | 0.33 |
| 参考  | S52      | なし                | 70                  | 約0.4 |                   |        |      |                   |      |
|     | S54      | なし                | 112                 | 約2   |                   |        |      |                   |      |

参考値は佐々木らの調査<sup>24)</sup>によるもの (×10<sup>5</sup>rev./km/t)

(-): 陰性

注) 共存物質の影響により高濃度域では試験菌株が死滅したため、1点のみのデータから変異原活性を算出

15年以降の規制車(D8～D14)は0.5～17mg/km/tと、明らかに低い傾向が見られた。これは平成15年規制以降の車両に搭載されているPM減少装置の効果が大きいと考えられる。

単位走行あたりの変異原活性で同様の比較を行うと、平成15、17年規制車(D8～D14)は、平成元年～10年規制車(D1～D7)に比べ単位走行あたりの変異原活性が低い傾向が見られた。佐々木らの調査<sup>24)</sup>では、昭和52年規制車(小型トラック)及び昭和54年規制車(乗用車)の単位走行あたりの変異原活性(TA98、-S9)はそれぞれ、およそ2及び0.4(×10<sup>5</sup>rev./km/t)程度という結果が得られており、平成15、17年規制車(D8～D14)に比べ高い値を示していた。

新しい排ガス処理技術は、低減目的以外の成分の排出量が未知の有害物質についての検討が十分に行われていない。したがって、新技術採用車両の排出ガスの総合的な健康影響については検討が必要と考えられるが、今回調査の結果、平成15、17年排出ガス規制適合車はPMやPAHs<sup>10)</sup>の他、

変異原性も低下していることが明らかになった。

(3) ディーゼル車排出 PM 試料に含まれる直接変異原性物質

表4から、排出ガス中 PM の変異原活性は、TA98 < YG1024 < YG1041 という傾向が見られ、特に D3, D6, D7, D8 は YG1041(-S9) に対し非常に高い変異原活性を示した。前述の通り YG1041 は芳香族ニトロ化合物に特異的に高い感受性を示すことと、多くの芳香族ニトロ化合物は-S9 の条件下で強い変異原性を示す(「直接変異原性」)ことが知られていることから、D3, D6, D7, D8 の PM 試料には他の車両に比べて芳香族ニトロ化合物が多く含まれている可能性が考えられた。

そこで D1~D14 の YG1041(-S9) に対する変異原活性と、NOx 及び PAHs7 物質合計の排出原単位の関係について検討を行った(表5)。

表5 大型ディーゼル車のNOx及びPAHs排出量と YG1041に対する直接変異原活性の関係

| No. | NOx (g/km/t) | 7PAHs (μg/km/t) | YG1041(-S9) (×10 <sup>5</sup> rev./km/t) |
|-----|--------------|-----------------|--|
| D1  | 0.59         | 1.6             | (-)                                      |
| D2  | 0.48         | 1.5             | 110 <sup>注)</sup>                        |
| D3  | 0.77         | 1.0             | 34                                       |
| D4  | 0.47         | 0.31            | 2.7                                      |
| D5  | 0.59         | 0.77            | 8.2                                      |
| D6  | 0.56         | 1.7             | 102                                      |
| D7  | 0.41         | 1.5             | 84                                       |
| D8  | 0.42         | 0.42            | 50                                       |
| D9  | 0.52         | 0.51            | 12                                       |
| D10 | 0.50         | 0.13            | (-)                                      |
| D11 | 0.52         | 0.44            | (-)                                      |
| D12 | 0.37         | n.d.            | (-)                                      |
| D13 | 0.52         | 0.17            | (-)                                      |
| D14 | 0.21         | 0.23            | (-)                                      |

その結果、YG1041(-S9)に対する変異原活性と NOx 排出原単位との間には相関関係は認められなかった。一方、YG1041 株に対する直接変異原性を示した車両(ただし良好な用量-反応関係が得られなかった D2 を除く) D3~D9 について、変異原活性と PAHs7 物質の合計排出量との関係を見ると、両者には比較的強い相関が見られた(図3)。

さらに図3の回帰式では、YG1041(-S9)への変異原活性がゼロとなるのは7種の PAHs 合計排出量が 0.3 μg/km/t 程度を下回った場合であるが、実際に PAHs 合計排出量が 0.3 μg/km/t 未満の車両(D10, D12~14)は、YG1041 に対する直接変異原性が検出されなかった。

これらのことから、ディーゼル車の PM 試料に芳香族ニ

トロ化合物が含まれている場合、その含有量は当該車両の NOx 排出量よりも PAHs 排出量の影響を受けていると思われる。これはディーゼル車の NOx 排出量が PAHs 排出量に比べはるかに多く、芳香族ニトロ化合物の生成は PAHs 排出量に依存するためと考えられる。しかし、芳香族ニトロ化合物がエンジン排気中に存在しているか、PM 採取る紙上で生成<sup>25,26,27,28)</sup>したかは明らかにならない。

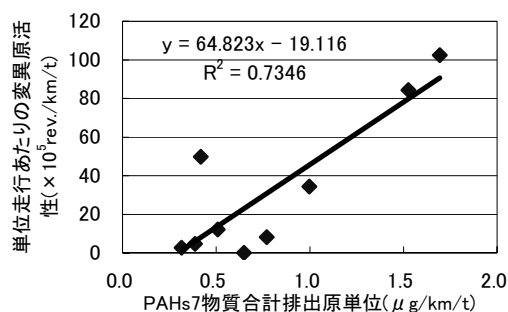


図3 PAHs排出量とYG1041直接変異原性

(4) トンネル内空気の変異原活性

1998年、2001年、2003年及び2004年のトンネル調査で得られた試料の YG1024 に対する変異原活性値を図4に示す。

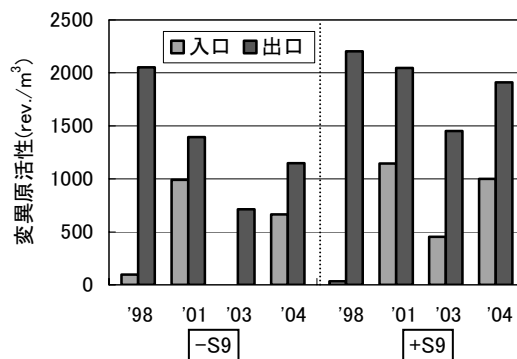


図4 トンネル入口地点と出口地点のYG1024に対する変異原活性

図4から、出口地点の値は常に入口地点の値を上回っており、この傾向は TA98, YG1041 についても共通していた。今回のトンネル調査では、試料採取時の空気の流れは常に入口地点から出口地点に向かっており、かつ風量も一定だったため、出口地点と入口地点の濃度差は、両地点間を走行した車両から変異原性物質が排出されたことによって生じたと考えられる。今回の結果から、実際に都内のトンネルを走行している車両から変異原性物質が排出されていることが示された。

次に、トンネルを走行する車両の単位走行 km あたりの

変異原活性 (EF) を算出した (表6)。この値を用いると、交通量の異なる条件下での測定結果を比較することができる。算出は下記の式により行った。

$$EF = (R_{out} - R_{in}) \times V / T / L$$

ここで、

EF: 単位走行あたりの変異原活性 (rev./km/台)

R<sub>out</sub>: トンネル出口地点の変異原活性値 (rev./m<sup>3</sup>)

R<sub>in</sub>: トンネル入口地点の変異原活性値 (rev./m<sup>3</sup>)

V: トンネル風量 (m<sup>3</sup>)

T: 交通量 (台)

L: 測定地点間長さ (km)

である。

表6 単位走行あたりの変異原活性

| 調査年                          | トンネル | TA98 |      | YG1024 |     | YG1041 |     | PM<br>(mg/km/台) | BaP<br>(μg/km/台) | 大型車<br>混入率<br>(%) |
|------------------------------|------|------|------|--------|-----|--------|-----|-----------------|------------------|-------------------|
|                              |      | -S9  | +S9  | -S9    | +S9 | -S9    | +S9 |                 |                  |                   |
| (×10 <sup>5</sup> rev./km/台) |      |      |      |        |     |        |     |                 |                  |                   |
| '98                          | A    | ---  | 3.8  | 17     | 19  | ---    | 21  | 184             | 2.6              | 38                |
| '01                          |      | ---  | 1.8  | 2.3    | 5.3 | ---    | 6.9 | 54              | 0.52             | 32                |
| '03                          | B    | ---  | 0.56 | ---    | 4.0 | ---    | 1.0 | 45              | 0.36             | 29                |
| '04                          |      | ---  | 0.51 | 0.78   | 4.1 | ---    | 4.3 | 36              | 0.29             | 30                |

---: トンネル入口あるいは出口の変異原活性が陰性または良好な用量-反応直線が得られなかったため、算出できなかった

ディーゼル車規制開始前の 2001 年に比べ、規制開始後の 2003、2004 年は B(a)P 及び PM の排出係数は、20~45% 程度低減率が低下していた。単位走行距離あたりの変異原活性についても、2001 年に対し 2003、2004 年は低い傾向が認められた。

これらのことから、条例によるディーゼル車走行規制などの効果によって、自動車から排出される変異原性物質量は 2001 年に対し 2003 年及び 2004 年は低下していると考えられた。

1998 年調査は、A トンネルで行われたため参考として掲げたが、表6のいずれの項目においても、ディーゼル車規制導入前の 2001 年調査を上回る値となっている。これは、2つのトンネルを走行する車両や大型車混入率の違いもあるが、主にこの調査以後ディーゼル車規制導入までに、最新規制車への代替が進んだためと考えられる。

(5) 道路沿道における大気中 PM の変異原性

2005 年 6 月に江東区で行った道路沿道調査における YG1024 の変異原性活性および PM 濃度の距離減衰を図5に示す。グラフには道路端からの距離別 (5、20、35、125m) に示した。

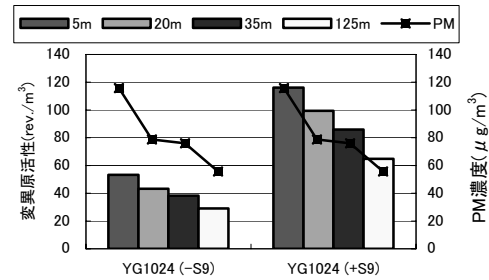


図5 沿道の変異原活性とPM濃度('05.6)

PMと同様に、-S9、+S9ともに道路からの距離に従い変異原活性が低下しており、この傾向は TA98 及び YG1041 についても認められた。このことは、沿道環境大気の変異原活性が、道路を走行する自動車排出ガスの影響を受けていることを示していると考えられた。

沿道大気中変異原活性の季節変動については、一般に知られているように秋・冬に高く春・夏に低い傾向<sup>29,30,31</sup>がある程度認められた。しかし YG1041(-S9)に限ってはまったく逆の傾向を示し、2004 年 7 月と 2005 年 6 月は YG1041(-S9)の値が突出していた (図6)。 YG1041 株は -S9 で芳香族ニトロ化合物に特異的に高い感受性を有すること<sup>20,21</sup>や、芳香族ニトロ化合物は大気中では PAHs と NO<sub>x</sub> との反応によっても生成する<sup>25,26,27</sup>ことから、2004 年 7 月及び 2005 年 6 月に採取した PM 中の芳香族ニトロ化合物濃度が高かった可能性も考えられる。今後 YG1041 に対する直接変異原性と気象条件の関係や、高温期の大気中芳香族ニトロ化合物濃度等について、詳細な検討を行う必要があると考えられた。

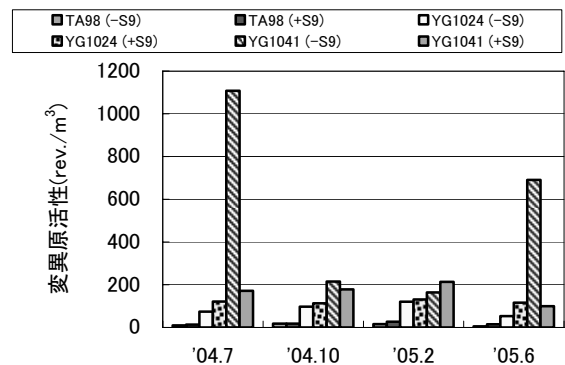


図6 道路沿道における変異原活性(5m地点)

(5) 都内大気の変異原性物質による汚染状況

東京都における沿道環境大気中 PM の変異原性物質による汚染レベルについて、今回の調査結果及び都内における佐々木<sup>32</sup>、大谷<sup>33</sup>、後藤<sup>34</sup>の調査、また他の都市における調査結果<sup>35,36</sup>などを比較した (表7)。

表7中、世田谷区と江東区は今回我々が行なった道路沿道調査の結果である。また対照地として、本州から約1,000km離れた太平洋上に位置し東京都23区内と比較して自動車走行台数が非常に少ない小笠原(父島)の大気中PMの変異原活性についても測定を行い、その結果もあわせて示した。表7の小笠原以外の調査はいずれも道路沿道で行われたものである。

表7 道路沿道地点における大気中粒子状物質の変異原活性

| 地点           | 期間                  | TA98        |               | YG1024       |             | 文献      |
|--------------|---------------------|-------------|---------------|--------------|-------------|---------|
|              |                     | -S9         | +S9           | -S9          | +S9         |         |
| 港区           | 1980.1<br>~1984.7   | 1.1<br>~70  | 0.2<br>~52    |              |             | 32),33) |
| 渋谷区          | 1996.11             | 24<br>~42   | 22<br>~73     |              |             | 34)     |
| 世田谷区         | 2003.10<br>~2004.2  | (-)<br>~8.5 | 1.0<br>~11    | 15<br>~75    | 5.1<br>~73  |         |
| 江東区          | 2004.7<br>~2005.8   | 3.9<br>~18  | 13<br>~28     | 53<br>~121   | 90<br>~145  |         |
| 仙台市          | 1983.12<br>~1985.9  |             | 13.7<br>±3.9* |              |             | 35)     |
| 北広島市         | 2001.5<br>~2000.11  | 2.4<br>~11  | 2.3<br>~10    |              |             | 36)     |
| 小笠原<br>(対照地) | 2003.11<br>~2005.12 | 0.35        | 0.32          | 0.88<br>~1.3 | (-)<br>~2.2 |         |

\*:n=22の幾何平均値 (-):陰性 (rev./m<sup>3</sup>)

1980及び90年代に都内(港区、渋谷区)で行われた調査ではTA98に対する変異原活性がかなり高かったものの、2000年代の調査(世田谷区、江東区)では値がかなり低下していた。また世田谷区と江東区の結果は、ほぼ同じ時期に北海道北広島市で行われた調査結果と同程度の値であった。

環境大気試料の採取は気象条件に大きく影響を受ける上、交通量や渋滞の有無等走行状況の違いによる規格化が困難なため単純に比較はできない。しかしこれまでに述べてきたディーゼル車排出ガス調査やトンネル調査の結果とあわせて考えると、都内大気中PMの変異原性は低下傾向にあり、それが表7の環境濃度測定の結果にも表れていると考えられる。一方、世田谷区及び江東区の調査結果を小笠原と比較すると、変異原活性値は最大で小笠原の100倍近くであった。

#### 4 まとめ

今回の調査により、以下のことが明らかになった。

- (1) ディーゼル車走行規制に伴い一部の使用過程車に装着

が義務付けられたPM減少装置は、PMと同様、もしくはそれ以上PM中の変異原活性についても低減させる効果のあることが確認された。

- (2) 14台の大型ディーゼル車の排出ガス試験により、年次の新しい平成15、17年規制車両は年次の古い平成元~10年規制車両に比べ、一般的にPM中の変異原活性が低い傾向が認められた。このことから、国の新車排ガス規制の強化によってディーゼル車からの変異原性物質排出量が低減していると考えられた。

- (3) トンネル調査の結果、ディーゼル車走行規制後、トンネル走行車の単位走行あたりの変異原活性は低下していた。これにより、ディーゼル車走行規制や国の新車排ガス規制などによる変異原性物質低減効果が、実際に都内のトンネルを走行している自動車排出ガスにも表れていることが確認できた。

- (4) 道路沿道調査の結果、沿道環境のPM中変異原活性は後背地に比べて高く、道路を走行する自動車からの排出ガスに影響を受けていると考えられた。

- (5) 現在の都内大気の変異原性物質による汚染レベルは1980~90年代と比較して低下傾向にあると考えられた。

#### 参考文献

- 1) 環境省ディーゼル排気微粒子リスク評価検討会(2002): ディーゼル排気微粒子のリスク評価について(平成13年度報告)
- 2) 横田久司ら: 連続再生式DPFの排出ガス低減効果等について、エアロゾル研究18(3), pp.185-194(2003)
- 3) 三矢律子ら: ディーゼル車の粒子状物質減少装置によるPAHsとVOCsの低減効果、第46回大気環境学会年会講演要旨集, pp.431(2005)
- 4) 松下秀鶴・林久緒・永田正信・大塚富士雄: 大気浮遊粒子に含まれる多環芳香族炭化水素と重金属の粒径分布、大気汚染学会誌、15(2), pp.45-52(1980)
- 5) 松下秀鶴・郭錦堂・今宮俊一郎: 東京、バンコクおよびチェンマイにおける大気浮遊粉じん中の発がん性多環芳香族炭化水素(3), pp.234-243(1989)
- 6) Douglas H. Lowenthal, Barbara Zielinska, Judith C. Chow, John G. Watson, Mridul Gautam, Donald H. Ferguson, Gary R. Neuroth and Kathy D. Stevens: Characterization of Heavy-Duty Diesel Vehicle Emissions, *Atmospheric Environment*, 28(4), pp.731-743(1994)



- 7) 溝畑朗・伊藤憲男・楠谷義和：道路沿道における大気浮遊粒子状物質の物理的・化学的特性、大気環境学会誌、35(2), pp.77-102(2000)
- 8) 上野広行ら：自動車用トンネル調査による排出ガス規制の評価、東京都環境科学研究所年報, pp.27-32(2004)
- 9) 石井康一郎、月川憲次：ディーゼル車走行規制と大気汚染の改善効果について、国際交通安全学会誌 29(2), pp.45-41 (2004)
- 10) 三矢律子ら：ディーゼル車走行規制による自動車排出ガス中多環芳香族炭化水素等の低減効果について、東京都環境科学研究所年報, pp.55-63(2005)
- 11) D.M.Marion and B.N.Ames : Revised Methods for the Salmonella Mutagenicity test, *Mutation Research*, 113, pp.173-215 (1983)
- 12) Y . Kawanaka , E . Matsumoto , K . Sakamoto , N . Wang and S . Yun : Size distributions of mutagenic compounds and mutagenicity in atmospheric particulate matter collected with a low-pressure cascade impactor , *Atmospheric Environment* ,38, pp.2125-2132(2004)
- 13) T . Kameda , S . Sanukida , K . Inazu , Y . Hisamatsu , Y . Maeda , N . Takenaka and H . Bandow : Association of the mutagenicity of airborne particles with the direct emission from combustion process investigated in Osaka , Japan , *Atmospheric Environment* , 38 , pp.6937-6945(2004)
- 14) M . Cerna , D . Pochmanova , A . Pastorkova , I . Benes , J . Lenicek , J . Topinka and B . Binkova : Genotoxicity of urban air pollutants in the Czech Republic Part I . Bacterial mutagenic potencies of organic compounds adsorbed on PM10 particles , *Mutation Research* , 469 , pp.71-82(2000)
- 15) 村上雅彦ら：自動車排出ガス中の炭化水素類の排出実態及びリスク評価試算、東京都環境科学研究所年報, pp.97-104 (2003)
- 16) 泉川碩雄ら：ディーゼル車からの多環芳香族炭化水素類の排出量調査、東京都環境科学研究所年報, pp.27-34(1995)
- 17) 天野冨子・星純也・佐々木裕子：粒子状物質に含まれる多環芳香族炭化水素 (PAHs) の抽出法の検討と高速溶媒抽出装置 (ASE) の適用の可能性、東京都環境科学研究所年報, pp.161-168(2003)
- 18) T. Yahagi , M. Nagao , Y. Seino , T. Matsushima , T. Sugimura , M. Okada : Mutagenicities of N-nitrosoamines of Salmonella , *Mutation Research* , 48 , pp.121-130(1977)
- 19) 能美健彦・渡辺雅彦：変異機構と新しい高感受性菌株の開発、変異原性試験、2(2) , pp.107-113(1993)
- 20) 能美健彦：微生物を用いる変異原性試験：環境モニタリングへの応用と改良、水環境学会誌、Vol.19 No.10 , pp.764-769 (1996)
- 21) 能美健彦：遺伝子工学的手法を用いた新しい遺伝毒性試験法の開発、*Bull.Natl.Inst.Health.Sci.*, 118 , pp.1-20(2000)
- 22) 石井康一郎ら：自動車用トンネルを利用した排出ガス調査 (I)、東京都環境科学研究所年報 , pp.40-45(1999)
- 23) 天野冨子ら：都内環境大気における多環芳香族炭化水素類について、東京都環境科学研究所年報, pp.94-98(2004)
- 24) 佐々木裕子ら：環境汚染物質の変異原性に関する研究、東京都環境科学研究所年報 , pp.290-292(1983)
- 25) J.N.Pitts, Jr., KAV. Cauwenberghe, D. Grosjean , J.P. Schmid , D.R. Fitz , W.L. Belser , Jr., G.B. Knudson and P.M. Hynds : Atmospheric reactions of polycyclic aromatic hydrocarbons ; facile formation of mutagenic nitro derivatives, *Science*, 202 , pp.515-519(1978)
- 26) H.Tokiwa , R. Nakagawa , K. Morita and Y. Ohnishi : Mutagenicity of nitro derivatives induced by exposure of aromatic compounds to nitrogen dioxide, *Mutation Research* , 85 , pp.195-205(1981)
- 27) 松下秀鶴・久松由東・後藤純雄：大気不均一反応による変異原生成に関する研究、環境保全研究成果集、環境庁企画調整局編、昭和 55 年度 (II) , 9・1~9・9(1980)
- 28) 河合昭宏・後藤純雄・塩崎卓哉・松下秀鶴：多環芳香族炭化水素の変異原性に及ぼすディーゼル排ガス暴露の影響、大気汚染学会誌、(18) 6 , pp.496-507(1983)
- 29) 後藤純雄・加藤幸彦・折井章子・田中一幸・久松由東・松下秀鶴：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(4) , pp.295-303(1982)
- 30) 北森成治・堀川和美・片岡恭一郎・常盤寛：最近の都市大気汚染物質における変異原性、日本公衛誌、29 , pp.37-42(1982)

- 31) 大江 武：大気浮遊粉じん中タールの突然変異性に関する研究—*Salmonella typhimurium* TA98 および TA100 による年間を通じての測定結果—、日本公衛誌、29, pp.261-272 (1982)
- 32) 佐々木裕ら：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—、東京都環境科学研究所年報, pp.249-254(1984)
- 33) 大谷仁己・嶋田好孝・氏家淳雄・西村哲治・松下秀鶴：大気浮遊粉じんの変異原性—前橋市と東京都港区との比較—、大気汚染学会誌、20(6), pp.463-469(1985)
- 34) 後藤純雄ら：大気浮遊粒子、河川水および土砂の変異原ニタリング、*Environ. Mutagen Res.*、22, pp.45-54(2000)
- 35) 玉川勝美・相原良之・高橋陽子・関敏彦：大気浮遊粉塵の変異原性の季節変動、大気汚染学会誌、23(3), pp.143-150(1988)
- 36) 芥川智子・酒井茂克・松本寛：道内 3 地域の大气中及び土壤中変異原活性、北海道環境科学研究センター所報、(29), pp.29-32(2002)