

学位論文題名

ディーゼル排気微粒子の健康影響リスク評価に関する 基礎的研究

学位論文内容の要旨

大都市を中心に環境基準の達成率が低い二酸化窒素や浮遊粒子状物質は、自動車が主な発生源であるが、特にディーゼル自動車からの排出がその濃度変動に大きく寄与していると考えられている。国は環境基準の達成率向上のために、自動車排出ガスに対する規制や低公害車の普及等を進めているが、前者については中央環境審議会が本年2月にディーゼル車の粒子状物質と窒素酸化物の排出をガソリン車と同程度まで減らす案をまとめており、規制はさらに厳しくなる方向にある。また大都市地域では自動車NO_x・PM法(2002年)に基づく「車種規制」も実施されている。

二酸化窒素や浮遊粒子状物質による呼吸器系への健康影響に加えて、ディーゼル排気微粒子(以下、DEP)の発ガン影響が危惧されている。長期暴露によって発ガンなどの影響を及ぼすベンゼンやジクロロメタンなどの物質は、「有害大気汚染物質」として環境基準が設定されている。今のところ、DEPに対する設定は行われていないが、DEPへの暴露による生涯発ガンリスクは、札幌を含む地方都市においても、人をとりまく環境因子の中で最も大きいリスクレベルを持つことが試算されている。

しかし、このリスク評価の柱になっているディーゼル微粒子の暴露量推定には、以下のような決定的な問題がある。まず、ディーゼル微粒子濃度は直接測定する方法が無いため、その主要成分である黒色純炭素濃度から推定されるが、(1)黒色純炭素濃度の測定法が確立していない。次に、黒色純炭素濃度からディーゼル微粒子濃度への換算において仮定される(2)黒色純炭素濃度へのディーゼル車の寄与推定、および、(3)ディーゼル微粒子中の黒色純炭素組成(発生源プロファイル)の推定、は不確実性が高く、これらをどのように仮定するかで評価が大きく変わりうる。

本研究の目的は、測定に基づいたディーゼル微粒子の暴露量評価法を確立することであり、そのための測定およびデータ解析法の提案を行い、以上に示した問題点を解消し、そのリスク評価に資することにある。

第1章では、発ガン影響・非発ガン影響に関するDEPの有害性に関する評価の現状、組成や粒径分布などのDEPの性状に関する研究の現状、統計的手法を用いた環境大気中のDEP濃度評価に関する研究の現状と問題点について述べた。

第2章では、DEPの大気中濃度推定を目的として行った札幌市内における多地点通年観測(第3章)で用いた各種汚染物質の分析法について述べた。測定対象とした大気汚染物質は、粒子状物質の全質量濃度である「PM_{2.5}」、DEPの指標物質とすることを目的とした「エレメンタルカーボン(EC)、ブラックカーボン(BC)、重金属」、発ガン性を有する有害大気汚染物質でありDEPに占める発ガン

リスクの寄与または DEP の発ガンリスクとの比較を目的とした「多環芳香族炭化水素 (PAH)、VOC」である。特に、黒色純炭素連続モニタリングのために開発したテープ式吸収率計については、都市の黒色純炭素濃度を連続測定する装置として十分な性能を持っており、従来の分析法と比較して高い時間分解能でその測定が可能であることを示した。また、VOC の長期捕集法について、毎日のサンプリングによる日平均濃度と連続サンプリングを行った試料濃度との比較から、一週間のサンプリングが可能であることを示した。

第 3 章では、平成 15 年 8 月から平成 16 年 7 月までの 1 年間、札幌市内 10 地点において DEP の長期平均濃度を推定することを目的として行った通年観測の概要・結果について述べた。札幌市内の BC 分布は概ね交通量に対応したものになり、年平均濃度は、住宅地域の測定点では $1.9\sim 2.6\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、道路沿道の測定点では 3.3 (東 18 丁目)、 $4.3\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ (北 1 条) となった。また、いずれの地点も春季に低濃度、夏季から冬季にかけて高濃度となる季節変化を示した。特に、道路沿道の測定点では、夏季に高濃度ピークがあり、気象条件から冬季に高濃度、夏季に低濃度となるガス状大気汚染物質とは異なる変動を示すことを明らかにした。また 1 時間最高濃度は、都心で $30\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上の濃度が得られた。一方、ガソリン車由来と考えられるベンゼンの年平均濃度は、住宅地域の測定点で $1.0\sim 1.4\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、道路沿道の北 1 条局でも $2.1\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ と、市内全域で環境基準値 (年平均値 $3.0\ \mu\text{g}/\text{m}^3$) を下回っていた。ベンゼンは夏季に低濃度、冬季に高濃度となったが、測定対象とした 9 種 VOC は各成分で異なる季節変化を示した。また、9 種の PAH はいずれの成分も年平均濃度が $0.10\sim 0.40\text{ng}/\text{m}^3$ と非常に低かったが、夏季に低く冬季に高い季節変化を示した。

第 4 章では、因子分析の一種であり、発生源プロファイルと発生源の寄与を同時に推定する PMF 法を用いた DEP の発生源寄与推定方法を提案した。第 3 章で示した通年観測の BC、重金属測定結果を用いて解析を行い、札幌市内における DEP 濃度を推定した。BC の主要な発生源を 6 発生源としたとき、測定結果と PMF 法による推定値がもっともよく一致し、札幌市内で観測される BC への DEP の寄与は 35%~83% であること、さらに DEP 中の BC 組成として 54% を得た。すなわち、札幌市内の年平均 DEP 濃度推定値は、都心部 (北 1 条) で $5.4\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度、高速道路沿道 (東 18 丁目) で $4.2\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度、周辺部で $1.2\sim 2.2\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度になった。

第 5 章では、第 3 章のベンゼン、PAH の測定結果と第 4 章の結果をもとに、大気汚染物質に起因する生涯発ガンリスクを算出した。環境基準値が設定されているベンゼンはすべての測定地点で 10^{-5} リスクレベルに基づいて設定された環境基準値を下回り、都心部 (北 1 条) においても生涯発ガンリスクは 6.6×10^{-6} になった。PAH は DEP に含有されている物質であり DEP が引き起こす発ガン機構に大きな役割を担っているといわれているが、もっとも大きな生涯発ガンリスクを持つ Benzo[a]pyrene でも 1.8×10^{-7} と 10^{-5} リスクレベルを二桁下回っていた。DEP に起因する生涯発ガンリスクは、一般局において $3.7\times 10^{-4}\sim 6.7\times 10^{-4}$ となり、 10^{-5} リスクレベルと比較しても 30 倍から 60 倍程のリスクを持ち、自排局の北 1 条局、東 18 丁目局では、 $1.2\times 10^{-3}\sim 1.6\times 10^{-3}$ となり 10^{-5} リスクレベルと比較して 100 倍以上のリスク値になった。

第 6 章では、本研究全体を総括し、本研究の意義と今後の課題を述べた。

以上のように、本研究は、これまでその濃度評価やリスク評価が不十分であったディーゼル微粒子について、各種汚染物質濃度の長期測定とそのデータ解析をもとに、都市規模の分布や季節変動などの動態を明らかにし、ディーゼル微粒子の暴露量評価法を提案したもので、大気汚染に由来するリスク評価を行う上で重要な知見をもたらすものである。

学位論文審査の要旨

主 査 助 教 授 村 尾 直 人
副 査 教 授 太 田 幸 雄
副 査 教 授 窪 田 英 樹
副 査 教 授 藤 田 修

学 位 論 文 題 名

ディーゼル排気微粒子の健康影響リスク評価に関する 基礎的研究

浮遊粒子状物質(SPM)による大気汚染問題は、大都市域を中心に依然として深刻な状態にあり、特にディーゼル排気微粒子に由来する健康影響(発ガン)リスクは、人をとりまく環境因子の中で最も大きいものであると推定されている。この問題の難しさは、環境基準が設定されモニタリングが行われている「浮遊粒子状物質」が、人間活動によって直接排出される微粒子だけではなく、大気中で生成する二次粒子、さらには自然起源の粒子をも含む集合体で、SPM 濃度とその影響の関係が明確でない点にある。したがって、今後、浮遊粒子状物質に対するリスク評価や大気汚染対策を有効かつ確に行うには、SPM の質的な汚染状況の把握が不可欠であるといえる。しかし残念ながら、その成分として重要な硫酸や硝酸、黒色純炭素粒子などの時間・空間分布の把握は、時期や場所が限定的であり、発生源同定やリスク評価は、不十分な発生源データを使用して行われるモデル計算に基づいているのが現状である。

以上のような背景をもとに、著者は、浮遊粒子状物質の構成成分として最も重要な成分の一つと考えられるディーゼル排気微粒子の指標物質である黒色純炭素粒子について、①小型で長期観測に利用可能な測定装置の開発を行うこと、②開発した装置を用いて長期にわたる都市規模のフィールド調査を行うこと、③観測結果を用いた統計的解析により、都市規模のディーゼル排気微粒子濃度とその分布推定を行い、ディーゼル排気微粒子の暴露量評価を通してリスク評価を行うこと、を研究の目的としている。

まず、本研究で開発された黒色純炭素モニタリング装置は、安価かつ小型であるとともに無人運転が可能であるため、必要な台数を必要な場所に設置することができ、柔軟性の高いモニタリングネットワークの構築を可能にするものである。また、濃度に応じたサンプリング時間が設定されるため、特定の気象条件下で起こる高濃度汚染を捉えることができ、さらにフィルターの分析によって、高濃度時のエアロゾル組成を得ることができる。すなわち、本装置による測定によって、黒色純炭素粒子の長期平均濃度と短期的高濃度の双方、およびその分布を得ることができる。

測定法の検討を行った後、著者は平成 15 年 8 月から平成 16 年 7 月までの 1 年間、札幌市内 10 地点において通年観測を行っている。その結果から、札幌市内の黒色純炭素濃度分布が概ね交通量に対応したものであり、いずれの地点も春季に低濃度、夏季から冬季にかけて高濃度となる通常の大気汚染物質とは異なる季節変化を示すことを明らかにした。さらにこの観測では、発ガン物質として注目されているベンゼンなどの揮発性有機化合物、多環芳香族炭化水素(PAH)についても年平均濃度と季節変化を得ている。都市大気汚染対策においては、それに関係する多くの物質の分布を把握したうえで、発生源対策や交通計画を策定する必要があるが、実際に多成分を長期にわたって都市規模で総合的に観測した例は少なく、本研究の観測結果は貴重なデータになるものと思われる。

ディーゼル排気微粒子濃度は直接測定する方法が無いため、ディーゼル排気微粒子のリスク評価は、その指標物質である黒色純炭素濃度測定に基づき行われることが多い。しかしこの方法には多くの問題がある。決定的な問題は、黒色純炭素濃度からディーゼル排気微粒子濃度への換算に必要なデータが不十分な点にある。著者はこの問題を解決するため、黒色純炭素と重金属類の測定結果に、因子分析の一種であり、発生源組成と測定点での各発生源寄与を同時に推定する PMF 法を適用するディーゼル排気微粒子濃度推定方法を提案した。またこの方法を用いて、札幌市内で観測された黒色純炭素へのディーゼル排気微粒子の寄与割合およびディーゼル排気微粒子中の黒色純炭素組成割合を得、札幌市内のディーゼル排気微粒子の年平均濃度を明らかにしている。この方法の優れた点は、都市内のディーゼル車の走行実態に対応した結果が得られることにある。実際に、著者が得た値はリスク評価で一般に仮定されている値とは異なる値になっている。

観測結果をもとに、著者は各種大気汚染物質に起因する生涯発ガンリスクを算出している。環境基準値が設定されているベンゼン、ディーゼル排気微粒子中にも含まれ発ガンが大きいとされる PAH は、いずれのリスクレベルも環境基準値設定が目標とする 10^{-5} レベル（一生涯の暴露によって 10 万人に一人の発ガンによる死亡が生じるレベル）を下回っていた。これに対して、ディーゼル排気微粒子に起因する生涯発ガンリスクは、住宅地域において 10^{-4} 、道路沿道では 10^{-3} を超える高いリスクレベルにあることを明らかにしている。これは都市の大気汚染問題において、ディーゼル微粒子の対策が最重要課題であることを指摘するものである。

以上のように、本研究は、これまでその濃度評価やリスク評価が不十分であったディーゼル排気微粒子について、各種汚染物質濃度の長期測定とそのデータ解析をもとに、都市規模の分布や季節変動などの動態を明らかにし、ディーゼル排気微粒子の暴露量評価法を提案したものであり、大気環境保全工学、環境リスク工学の発展に貢献するところが大きい。したがって著者は、北海道大学博士（工学）の学位を授与される資格があるものと認める。