

(第5号様式)

学位論文審査の結果の要旨

氏名	朴相我
審査委員	主査 本田 克久 副査 多田 邦尚 副査 康 峪梅 副査 川嶋 文人 副査 脇本 忠明

論文名

室内環境中ポリ臭素化ジフェニルエーテルの分布と挙動および人体曝露の評価に関する研究
(Study on the Distribution and Behavior of Polybrominated Diphenyl Ethers in Indoor Environment and their Assessment of Human Exposure)

審査結果の要旨

ポリ臭素化ジフェニルエーテル (PBDEs)は、代表的な添加タイプの臭素系難燃剤であり、3種の工業製品(c-Penta-, c-Octa-, c-Deca-BDEs)がある。PBDEs はポリ塩化ビフェニルと類似した化学構造を有し、難分解性と易脂溶性のため、広範囲な環境汚染や生体汚染を引き起こしている。また、いくつかの PBDEs 異性体は生殖系、神経系、内分泌系に悪影響を及ぼすことから、ストックホルム会議(2009年)において新規に“POPs (残留性有機汚染物質)”に指定され、c-Penta-と c-Octa-BDEs は生産及び使用が禁止されている。

一方、今なお継続使用されている c-Deca-BDEs は、分子量が大きいため、生体内への吸収率が低く、従って、毒性影響も小さいと考えられてきた。ところが、人体試料の調査によると(朴ら, 2013), 血中に高濃度の高臭素化 PBDEs が検出され、また、母乳中にも主成分の一つであったことから、食物以外にハウスダストの摂取や吸入がヒトへの取り込み経路として重要であると思われたが、その詳細については未解決のままであった。

本研究は、低揮発性物質である高臭素化 PBDEs の室内環境中の存在状態と挙動及び人体曝露を解明するため、まず、(1) 室内の床ダスト及び空気中(浮遊ダスト及びガス態)における PBDEs の濃度と異性体組成を測定し、室内環境汚染の実態を明らかにした。次いで、(2) 床ダスト及び浮遊ダストの粒径別キャラクター化を行い、室内環境中 PBDEs の分布と挙動の解析を試みた。最後に、(3) 室内環境中 PBDEs の分布と挙動及びその特性を基に、高臭素化 PBDEs のヒトへの取り込み経路、特に、呼気経路による人体曝露について評価した。

(1) 最初に、床ダスト中の PBDEs 汚染の実態を明らかにするため、韓国の一般家屋内及び愛媛大学農学部室内から採取した床ダスト試料中の PBDEs 濃度と異性体組成を測定した。その結果、韓国家屋内の床ダスト中 PBDEs はその 80%以上を高臭素化異性体が占め、その濃度及び異性体組成は愛媛大学農学部内の居室、コンピュータ室及び休憩室の床ダストともよく一致し、韓国及び日本の室内の床ダストは高臭素化異性体主体の PBDEs 汚染であることが分かった。

一方、室内空気中の PBDEs について、愛媛大学農学部内の居室、分析機器室、コンピュータ室及び TV 後部から採取した空気中（浮遊ダスト及びガス態）の PBDEs を測定したところ、26.5~80.5pg/m³ の PBDEs が検出され、その内、居室(室内オフィス環境)と分析機器室(分析機器類が多い作業環境)は高臭素化異性体主体の汚染であったが、コンピュータ室(コンピュータ関連機器が多い環境)と TV 後部(PBDEs の揮散が予想される環境)では比較的濃度が高く、しかも、低臭素化異性体主体の汚染であった。つまり、室内空気中の PBDEs 汚染は、床ダストの場合とは異なり、室内に置かれた機器類や場所によって汚染の形態が大きく異なること、また、低臭素化異性体に加えて高臭素化 PBDEs もコンピュータや TV 等の発生源から気化し空気中へ移行することが明らかとなった。

(2) 次に、室内における PBDEs の挙動を明らかにするため、床ダストはサイズにより 3 画分 (150~75, 75~32, <32 μ m) に篩別し、また、アンダーセンサンプラとガス態吸着フィルタによって採取した空気中の浮遊ダスト及びガス態試料は 6 画分 (>11~7, 7~3.3, 3.3~1.1, 1.1~0.43 μ m, エアロゾル, ガス態) に分級し、各試料中の PBDEs 濃度を測定した。その結果、床ダストは 3 画分ともほぼ同じ濃度を示し、高臭素化異性体が主体であった。一方、空気中の浮遊ダスト及びガス態の PBDEs はガス態に最も濃度が高く、次いで、エアロゾル画分であり、いずれも低臭素化異性体が主体であったが高臭素化異性体も存在し、それより粒子サイズが大きい画分は高臭素化異性体が主体でほぼ同じ濃度であった。つまり、空気中 PBDEs は、ガス態及びエアロゾル画分とそれよりも大きい画分とで濃度と異性体組成が異なるものの高臭素化異性体の存在が明らかとなった。

そこで、室内のダストの起源とそれに伴った PBDEs の挙動の詳細を明らかにするため、光学顕微鏡観察と構成元素の測定及び赤外分光測定により、各ダストのキャラクタリゼーションを行った。その結果、室内浮遊ダストは室外由来のダストに加えて、家具や電気機器に由来するエアロゾル等の混合物から成り、そして、それら浮遊ダストが集合し、大粒子化して沈降し、建物や人間活動由来のダストと混じり床ダストを形成していることが分かった。こうして形成された浮遊ダスト中 PBDEs は、ダストの大粒子化と共に沈降し、高臭素化 PBDEs 主体の床ダストとなり、次いで、床ダストは低臭素化 PBDEs が気化し、さらに高臭素化する。高臭素化 PBDEs は、室内の機器類等から気化し、ガス態、エアロゾル及び浮遊ダストに、最終的に床ダストに含有されると結論付けられた。

(3) 最後に、室内環境中 PBDEs の分布と挙動及びその特性に関する知見を基に、ヒトへの取り込み経路、特に、呼吸経路による高臭素化 PBDEs の人体暴露を評価した。その結果、食物や床ダストの摂食を通して胃消化管から取り込まれる PBDEs 量は呼吸経路のものに比べて相対的に大きく、特に、幼児では床ダストの摂食による取り込みが相当量あるが、高臭素化 PBDEs は胃消化管吸収率が低く、従って、高臭素化異性体の取り込み量だけでは体内蓄積を説明することが難しい。これに対して、呼吸経路の PBDEs 取り込みは、肺胞深部まで移行する 2.5 μ m 以下の浮遊ダストとエアロゾル及びガス態の PBDEs が大きく関与し、そこでは低臭素化のみならず、高臭素化異性体の肺胞を通しての体内吸収率も高く、従って、ヒト血液中の高臭素化 PBDEs の高い残留にも大きく寄与していると思われる。つまり、これまで、高臭素化異性体のヒトへの取り込みと体内蓄積は、主に、床ダストや食物の摂取によると考えられてきたが、本研究結果より、空気中のエアロゾルやガスに含まれる高臭素化 PBDEs が人体暴露と蓄積を考える上でより重要な因子であることを初めて提示することができた。また、本研究の成果は、PBDEs 以外の低揮発性難分解性物質の室内環境中の挙動や人体暴露を考える上で適用できる部分がある。

本論文に関する公開審査会は平成 26 年 2 月 1 日、愛媛大学農学部で開催され、申請者の論文発表と適切な質疑応答が行われた。引き続いて行われた学位論文審査会で本論文の内容を慎重に審議し、審査委員全員一致して博士(農学)の学位を授与するに値するものと判定した。