

2008年3月修了 修士研究要旨

同位体比分析に基づく日本人小児の鉛曝露源解析

~小児3名を対象としたケーススタディ~

環境システム学専攻 環境健康システム学研究室

66759 高木麻衣 (指導教官: 吉永淳 准教授)

Key words: Japanese children、lead、Isotope ratio、Source apportionment

1. 緒言および目的

近年子どもの呼吸器系疾患や免疫系、神経系の疾患の増加に対する懸念の高まりや、化学物質に対する特異的な脆弱性を示す科学的知見が得られたことにより、環境中の危険因子から子どもを守ろうとする動きが高まっている。数ある化学物質の中でも、鉛は延性、耐腐食性等の工業的に優れた性質を持つため、世界中で古くから使用されてきた金属である。一方、鉛中毒を始めとして健康被害の歴史も古く報告数も多い。1997年のG8環境大臣会合における先進8カ国による小児の健康保健に関する宣言(マイアミ宣言)でも取り上げられ、世界全体の小児の鉛曝露への関心は非常に高い。小児はHand-to-mouth行動や、地面や室内の床近くで行動することが多いため鉛を摂取しやすく、消化管での吸収率も成人に比べて高いことが分かっており、成人よりも小児に対しての危険性が高い。米国疾病予防管理センター(CDC)は小児血中鉛レベル10 µg/dLを“Level of concern”と定めており¹⁾、様々な施策のおかげで欧米での小児の血中濃度レベルは現在10 µg/dLを下回るまでに大幅に低減化している²⁾。一方、近年この10 µg/dLという懸念値以下であっても小児への知能の発達³⁾⁴⁾や女児の第二次性徴⁵⁾への影響が報告されている。特にIQの低下に対しては、現段階で明確な閾値がないとされており、現在の日本人小児の曝露レベル(血中レベルで1.4 µg/dL)でも安心できない。よって、可能な限り小児の鉛曝露を低減化することが望ましく、そのためには曝露源を特定することが必要である。欧米では以前より小児の鉛曝露が問題となっていたため、曝露源に関する研究も進んでいる一方、かつての主要な曝露源であった有鉛ガソリンが30年前に廃止され、また欧米では有鉛ガソリンと並ぶ主要な曝露源として知られる含鉛塗料を住居に使用する習慣のなかった日本において、鉛は大きな問題とならず、小児の鉛曝露源についてはほとんど情報が無い。また、欧米との周辺環境の違いや、室内を土足で行動する等の生活スタイルや習慣の違いが存在するため、欧米での曝露源研究例がそのまま日本には適用できない。

本研究では、日本人小児の鉛曝露源を特定することを目的とし、小児3名を対象とした曝露源解析のケーススタディを行う。曝露量の情報のみでなく、小児の血中鉛同位体比と曝露媒体中の鉛同位体比との近似性を評価することにより主要な曝露源の推定および、各曝露媒体からの寄与度を推定する。

2. 研究方法

2.1. 対象とサンプル

静岡県内某病院を受診した小児136名の血中濃度を当研究室の田宮が測定し⁶⁾、そのうち平均(1.3 µg/dL)よりやや高濃度(~3 µg/dL)であった小児3名(7-9歳)を対象とした(以下ID.1,2,3と示す)。曝露媒体試料として2006年8-9月に各小児の家庭環境から土壌(学校・庭・公園)・室内塵(掃除機塵)・降下煤塵(窓枠粉塵)・1日分の飲食物・水道水等采取し、土壌・室内塵・降下煤塵は250 µm以下、食事は均質化後に凍結乾燥したものをサンプルとして、鉛濃度および同位体比の測定を行った。また、同時に小児の生活パターンや行動をアンケート調査した。

2.2. 試料の前処理

Total 鉛の分解

土壌・室内塵・窓枠粉塵は硝酸・過塩素酸・フッ化水素酸による加熱分解、食事は MW で硝酸・過酸化水素水による分解、タバコは二重ポンプ法（140℃、5 時間）による硝酸分解を行った。

可給態（Bioaccessible）鉛の溶出

可給態鉛の溶出試験は経口曝露が想定される土壌・室内塵・食事を対象とした。可給態率（Bioaccessibility）とはヒトの体内を再現した溶出法によって溶出する鉛量の、全鉛量に対する割合と定義される。試料 1 g に塩酸で pH1.5 に調整した 0.4 M グリシン溶液を 100 ml 加え、 37 ± 2 °C の電気オープン内で 1 時間転倒攪拌後、0.45 μm のディスクフィルターでろ過し、測定まで 4℃ で保存した。

2.3. 鉛濃度・同位体比の分析と精度管理

鉛濃度および鉛同位体比は誘導結合プラズマ質量分析計（ICP-MS, Agilent 7500ce）を用いて測定した。各分解液/溶出液をマトリクスの影響のない程度に稀釈後、Bioaccessible の溶出液は TI 内標で鉛濃度を定量した。同位体比測定の際は鉛濃度が 5ppb となるように分解液を稀釈し（食事・タバコ試料は NOBIAS（日立ハイテクノロジーズ製）でマトリクスを除去した後）、鉛安定同位体比（ $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 、 $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ ）を測定した。

各サンプルの前処理および分析時には各種認証標準物質（CRM）を併行して操作し、精度管理を行った。また、同位体比測定時の ICPMS のマスディスクリミネーション補正には NIST981 を用いた。血中鉛同位体比のデータは当研究室の田宮の測定値を用いた。

3. 結果と考察

3.1. 環境媒体中の鉛濃度(Total 鉛)

各サンプルの鉛濃度と、基準および汚染懸念レベルとを比較した結果を Table 1 に示す。ID.3 の水道水以外に、特に汚染が懸念されるレベルである媒体試料は見つからなかった。

Table 1. Lead Concentration of Tap Water, Soil, Indoor Dust, Outdoor Dust and Food

	Tap Water (ng/mL)	Soil ($\mu\text{g}/\text{g d.w.}$)	Indoor dust ($\mu\text{g}/\text{g d.w.}$)	Outdoor dust ($\mu\text{g}/\text{g d.w.}$)	Food ($\mu\text{g}/\text{g w.w.}$)
Standard/ Concern Level	10 ^a	100 ^b	300 ^b	960 ^b	0.0074 ^c
ID.1	0.2	15.6 \pm 7.6 (n=4)	100	158 \pm 52 (n=3)	0.0017
ID.2	0.2	25.5 \pm 19.6 (n=3)	43.5	284	0.0010
ID.3	5.7 \pm 5.9 (n=4)	26.2	82.1, 50.5	180	0.0024

^a The Standard level (Ministry of Health, Labour and Welfare), ^b Calculated on Ishibashi (2007)⁷, Average + 2SD, ^c Calculated on Aung (2004)⁸, Average+2SD

3.2. 可給態鉛

各小児の土壌・室内塵・飲食物の可給態率は Table 2 に示す値となった。また、これまで地球化学分野では同位体比による起源解析においてはトータル鉛の同位体比で解析することが大部分であるが、バイオマーカーである血中鉛同位体比と比較する上では、可給態鉛での解析を行う必要がある。トータル鉛の同位体比と可給態鉛を比較した結果、両者は異なる場合があることが確認された（Figure 2）。

Table 2. Bioaccessibility of soil, indoor dust and food

Sample	Bioaccessibility (%)	n
Soil	5-59	8
Indoor Dust	36-62	4
Diet	67-68	3

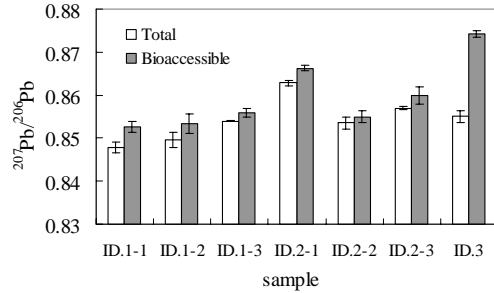


Figure 1. Comparison of total lead isotope and Bioaccessible lead in soil samples

3.3. 小児の1日全鉛摂取量・摂取割合の推定

各媒体中の鉛濃度 (Table 1) と土壌摂取量 (8.5 mg/day⁹⁾)・室内塵摂取量 (25 mg/day⁹⁾)・飲食物 (測定値) および、換気率 (8.75 m³/day) を掛け合わせて小児毎に全鉛摂取量を算出した。推定全鉛摂取量は ID.1、ID.2、ID.3 でそれぞれ 5.0、2.5、4.7 μg/day となり、その内訳は食事・室内塵で 90% 以上を占めていた (Figure 2)。また、煤塵の寄与は非常に小さいことが分かった。しかし、全鉛摂取量は過去推定された日本人小児の全鉛曝露量である 20-30 μg/day⁸⁾¹⁰⁾ に比べて非常に低い。今回収集した曝露媒体、および摂取量では、小児の全鉛摂取量を過少評価している可能性がある。その要因は、サンプルの代表性、土壌や室内塵摂取量を個々に測定していない等の不確実性が存在するためであると考えられる。

Table 3 Amount of lead intake and apportionment

	Intake (μg)	Percentage (%)
Diet	1.6	13
Soil	0.15-3.6	1.2-28
Indoor dust	7.5-10.9	59-86
Total intake	12.7	

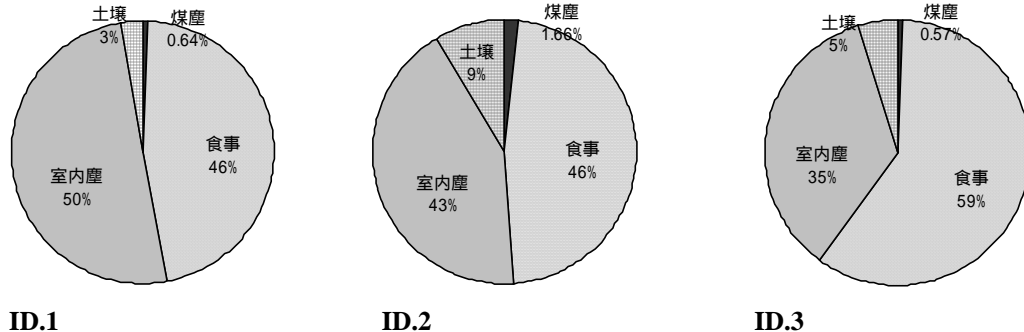


Figure 2. Estimated lead intake from diet, indoor dust, soil and atmosphere

3.3. 曝露源解析のケーススタディ

の曝露媒体中 (可給態) 鉛と血中鉛の同位体比分布図を Figure 3 に示す。3 軒それぞれ特徴的な同位体比分布であり、家庭間でも同位体比に差があることが分かる。以下各小児について解析を行った。

ID.1

血中鉛同位体比は室内塵の同位体比に近い。全摂取量と、各媒体同位体比から予想される小児の血中鉛同位体比は食事と室内塵の同位体比の中間に位置すると予測される。これは、室内塵寄与が想定した値 (Figure 2) より大きいことを示している。ここでは、全鉛摂取量で寄与がごくわずかであると推定された煤塵を除き、食事からの摂取量を一定として鉛同位体比と血中鉛の同位体比を用いた線形計画法¹¹⁾により、各媒体からの寄与の最小値および最大値を算出した (Table 3)。室内塵の寄与は最小でも 59% であり、これは ID.1 の小児の主要な鉛曝露源は室内塵であることを示唆している。またこの解析から得られた寄与割

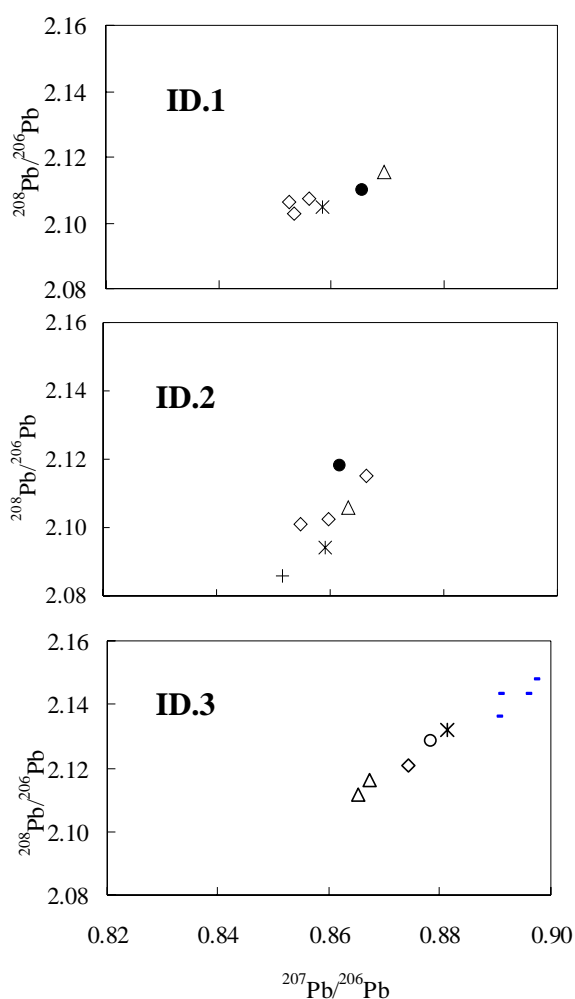


Figure 3. Lead isotope ratio of exposure media and blood lead
 blood, soil, Indoor dust, Food and drink, +Tobacco, - Tap water

4. 結論

本研究では小児3名を対象に血液と曝露媒体中の鉛同位体比の分析に基づき、鉛曝露源解析のケーススタディを行った結果、1軒において小児の主要な鉛曝露源は室内塵である可能性が確認された。必ずしも同位体比分析によって曝露源が特定できるケースのみではないが、日本人小児のような低レベル曝露であり、目立った曝露媒体が存在しない状況においても、本手法を用いた曝露源解析によって曝露源が明らかになるケースが存在することが確認された。今後このようなケーススタディの積み重ねが日本人小児の鉛曝露源の特定、および曝露の低減化に繋がると考えている。

合をもとに、土壌と室内塵の摂取量をそれぞれ算出すると、土壌は52.9-1029 mg、室内塵211-302 mgとなった。これまで曝露源としての重要性が認識されていながら、他の方法では測定困難なために不確かな情報しかなかった土壌・室内塵の摂取量を推定できた。

$19.5 \mu\text{g/day}^{12)} \times 0.65$ (食事の可給態率)として計算

ID.2

このケースでは今回収集した曝露媒体の同位体比では血中鉛の同位体比を説明することはできなかった。同位体比を図の上にシフトさせる何らかの曝露媒体が存在する可能性が高い。日本において同位体比が図の右上に存在する要因の1つはガソリン鉛であるが、100%無鉛化が達成されて30年経った現在、環境中でガソリン鉛に直接曝される可能性はない。

今回サンプリングした潜在的な曝露媒体より図の上側に同位体比をもつ媒体は何であるかを知ることはできないが、日用品や製品といったものを摂取した可能性があると考えられる。

ID.3

この対象者は同位体比分析用血液が得られなかったために曝露源の特定はできなかったが、他の2家庭と大きく異なる同位体比を持つ曝露媒体の存在する例としてあげておく。

引用文献¹⁾ Tomas et al., 1999, *Environmental Science and Technology* 33 3942 ²⁾ CDC, 1991, Preventing Lead Poisoning in young children. ³⁾ Canfield et al., 2003, *The New England Journal of Medicine* 348 1517, ⁴⁾ Lanphear et al., 2000, *Public Health reports* 115 521, ⁵⁾ Emory et al., 2003, *American Journal of Obstetric Gynecology* 188 S26 ⁶⁾ 田宮ら, 未発表, ⁷⁾ 石橋ら, 2007 卒業論文 ⁸⁾ Aung et al., 2004, *Environmental Health and preventive Medicine* 9 257 ⁹⁾ 国環研, 2005, 環境省請負業務 小児等の脆弱性を考慮したリスク評価検討調査報告書 ¹⁰⁾ 小林ら, 2006, リスク評価書 鉛 ¹¹⁾ Little, 1997, *Journal of Archaeological Science* 24 471, ¹²⁾ JECFA, 1993, WHO Technical Report Series 837 35

謝辞: 協力して下さった加治先生、上松先生、3人のご家族の方、環境研の方々、ありがとうございました。