

審査の結果の要旨

氏名 カナル ラジェンドラ

本研究は、「CHARACTERIZATION OF TOXICANTS IN SIZE-FRACTIONATED URBAN ROAD DUST USING OSTRACOD *HETEROCYPRIS INCONGRUENS* DIRECT CONTACT TEST AND TOXICITY IDENTIFICATION EVALUATION PROCEDURE (カイミジンコ毒性試験とTIE手法を用いた粒径分画した都市道路塵埃の毒性要因評価)」と題して、8つの章から論文が構成されている。

第1章では、研究の背景と目的、および論文の構成を述べている。

第2章では、研究対象としている道路塵埃中の微量汚染物質、毒性試験方法やその毒性評価方法、毒性物質の同定手法、さらには、最近の道路塵埃の毒性要因研究に関する文献の整理を行っている。

第3章では、研究対象とした道路塵埃の採取地点と採取方法、道路塵埃中の重金属や多環芳香族炭化水素類などの分析手順、カイミジンコを用いた底質毒性試験手順、毒性要因を推定するTIE手法、さらには、フーリエ変換質量分析計による網羅的有機物分析方法について記載している。

第4章では、異なる交通量の10か所の道路塵埃を対象として、塵埃と水を混合した系に直接カイミジンコを曝露させて毒性試験を行った結果をまとめている。まず、段階的に希釈した道路塵埃による毒性試験に基づき用量-反応曲線を求め、LC20、LC50を用いて道路塵埃試料間の相対的な毒性比較を定量的に整理している。また、道路塵埃中の重金属濃度や多環芳香族炭化水素類濃度を有機物含量で基準化した指標を用いて、毒性指標値の大小関係を説明することを試みている。

さらに、2 mm、250 μm 、63 μm メッシュの篩により粒径分画を行い、画分ごとの底質毒性試験も併せて実施して、概ね細粒画分の毒性が高い傾向があるものの、地点によっては粒径が大きな画分で毒性値が高い場合があるという興味ある結果を示している。

第5章では、道路塵埃が雨天時流出後に長時間湿潤状態にあることを想定して、その毒性がどのように変化するかを調べるために、道路塵埃と水が接触した後の経過時間の影響、道路塵埃と水の固液比の影響、水による洗い出しの影響に着目した毒性試験を実施している。水との接触後10日間における毒性変化を溶出画分と湿潤化塵埃の両方について調査して、溶出画分は水と接触した直後から高い毒性を示す試料や徐々に毒性を発現する試料があること、2試料において湿潤化塵埃は数日後に毒性が低下したあとに増加することなど、興味ある結果を得ている。また、溶出画分について、固液比や洗い出し量の増大により毒性が低下する一方で、各固液比や洗い出し量の条件でも湿潤化塵埃は毒性を保持し続けることから、塵埃からの溶出する相対的に高い親水性の毒性成分と塵埃側に残存する疎水性の高い成分がそれぞれ毒性要因として存在していることを明らかにしている。

第6章では、毒性の高い3つの道路塵埃試料を対象として、XAD-4（疎水性有機物吸着）、SIR-300（重金属吸着）、SIR-600（アンモニア吸着）という3種類の吸着剤添加を行う whole sediment TIE 手法を適用して毒性要因の推定を行っている。1試料は、吸着剤添加によっても致死率は100%のままであり毒性要因推定ができなかったが、XAD-4によって1試料、SIR-300によって2試料において致死率が対照系 Baseline（それぞれ80%と100%）に対し有意に低減したため、これらの道路塵埃において、疎水性の有害化学物質と重金属が致死毒性要因として重要であることを推定している。同時に、毒性試験の開始時と終了時における溶出画分の重金属を測定して、カシミジンのLC50の文献値より高い重金属成分として銅と亜鉛がある可能性を示している。しかしながら、重金属吸着剤である SIR-300 で致死率が低下した試料に関して、溶出画分の重金属濃度の測定結果だけでは致死率低下を説明できないことから、毒性物質への暴露経路として食物摂取や接触によるものも致死に影響しているものと推定している。また、塵埃に添加して毒性を低下させた XAD-4 から疎水性物質を3種類の有機溶媒（メタノール、アセトン、ジクロロメタン）で分画回収し、毒性試験に供したところ、ジクロロメタンと比較するとメタノール、アセトンで溶出される画分においてより高い致死毒性があることを示した。したがって、相対的に極性のある疎水性の有機化合物が毒性要因として重要であることを推定している。

第7章では、6章において XAD-4 から有機溶媒で分画回収した試料に関して、有機物を網羅的に測定可能な高分解能のフーリエ変換質量分析計を適用して、毒性有機物を絞り込む方法を検討している。異なる有機溶媒での回収試料の毒性結果を鑑みて、毒性要因として有力な候補有機物質をその組成を含めて整理する方法を提案している。

第8章では、上記の研究成果から導かれた結論と総括、ならびに道路塵埃の毒性評価における研究課題と展望が述べられている。

以上の成果は、都市ノンポイント汚染源として道路塵埃に着目して、供試底生生物としてカシミジンをを用いて毒性試験を実施した結果に基づくものである。特に、異なる交通量の幹線道路や高速道路からの大量の試料を採取して、道路塵埃に関する用量-反応曲線を求めていること、さらに雨天時流出現象や毒性物質の吸着現象に影響すると考えられる粒径分布に着目して、毒性評価を求めていることは新規性も高く評価できる。また、道路塵埃が長期間湿潤状態にあることによる毒性変化の評価を行った成果は貴重である。本研究では、道路塵埃に底泥のための whole sediment TIE 手法を適用して、疎水性有機物や重金属が毒性要因として重要であることを示したこと、さらに、異なる溶媒抽出とフーリエ変換質量分析計での分析を組み合わせ、毒性物質の絞り込みを試みている点も評価できる内容であり、様々な非常に有用なデータや知見を提供しており、都市環境工学の学術の進展に大きく寄与するものである。

よって、本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。