

氏 名	いけ だ かず ひろ 池 田 和 弘
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)
学位記番号	工 博 第 2502 号
学位授与の日付	平 成 17 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 1 項 該 当
研究科・専攻	工 学 研 究 科 環 境 地 球 工 学 専 攻
学位論文題目	疎水性有機汚染物質の細胞膜への収着と天然有機物質の影響

論文調査委員 (主査) 教授 松井三郎 教授 藤井滋穂 教授 田中宏明

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、疎水性有機汚染物質の水中から生物への取り込みの基本となる細胞膜への収着特性を評価したものである。生物への取り込みに関しては、水中に共存する天然有機物質の影響に注目し、モデル細胞膜を用いた系で、その影響の大きさと影響機構について詳細な検討を行っている。本論文は9章から構成されている。

第1章は序論であり、疎水性有機汚染物質の生態リスク評価に対し、細胞膜への収着と天然有機物質の影響を評価する意義についてまとめ、本論文の目的と構成を示している。

第2章では、細胞膜と疎水性有機汚染物質および天然有機物質の基礎的情報と相互作用に関する既存の研究に関して整理している。そのなかで、細胞膜の脂質構成の多様性について述べ、脂質の脂肪鎖長と細胞膜の流動性の関係を述べている。第3章では、本論文で用いた実験方法についてまとめている。

第4章では、PAHsの細胞膜への収着係数 (K_{mw}) を測定している。pyreneの細胞膜への収着には、細胞膜の流動性が極めて大きな影響を与えることを明らかにしている。

第5章では、多種の疎水性有機物質の K_{mw} を測定し、その構造、特に親水基が細胞膜への収着に与える影響を評価している。さらに、モデル細胞膜の表面電荷に注目し、収着に与える影響を評価している。17 β -estradiolなどの内分泌かく乱物質が3-4環の多環式芳香族炭化水素類と同じ程度に細胞膜に収着すること、そして、pyreneの代謝産物である1-hydroxypyreneがpyreneの2倍以上細胞膜に収着することを明らかにしている。細胞膜の負の電荷は1-pyrenecarboxylic acidの K_{mw} を減らす方向に、1-aminopyreneの K_{mw} を増やす方向に影響を与えることを明らかにしている。

第6章では、pyreneやnonylphenolなどの多くの疎水性有機汚染物質が天然有機物質のひとつであるSRNOMの共存によって、SRNOM側に収着があり細胞膜への分配が減少することを明らかにしている。特に、pyreneや1-hydroxypyreneは20mgC/LのSRNOMの共存により、細胞膜への分配が半分近くまで減少することを明らかにしている。一方、17 β -estradiolなどは、20mgC/L程度のSRNOMの存在は、細胞膜への分配に影響を与えない結果を得ている。

第7章では、天然有機物質の分子量分布の測定法として、質量分析法を導入し、天然有機物質のひとつであるSRFAの分析を通し、その最適分析条件を検討し、確立している。SRFAの質量分析条件としてはイオン強度、シーソガス圧、チューブレンズ電圧、ヒータヘッドキャピラリー温度が、強く分析結果に影響を与え、一方、SRFA濃度とpHはそれほどではないことを明らかにしている。また、SRFAの平均分子量はSRFAのイオン化のしやすさや壊れやすさなどを反映したものではあるが、それらは最適分析条件により最小化されることを明らかにしている。さらにSRFAの低分子成分は、脂肪鎖構造を基本単位としてもつことが推察される結果を得ている。

第8章では、SRNOMが細胞膜へ直接与える影響と、疎水性有機汚染物質を収着することでその特性を変える間接的な影響に分け、疎水性有機汚染物質の細胞膜への分配に与える影響機構を検討している。SRNOMは細胞膜にほとんど収着せず、細胞膜の流動性に影響を及ぼすことはないことを明らかにしている。また、pyreneについては、天然有機物質に収

着し、その結合体が細胞膜へ吸着しなくなることを、実験と数学モデルによって明らかにしている。さらに、SRNOMの低分子成分は pyrene の細胞膜への分配を減少させるが、17 β -estradiol には影響を与えないことを明らかにしている。

第9章は結論で、本論文で得られた知見をまとめ、今後の展望について言及している。

論文審査の結果の要旨

本論文は、疎水性有機汚染物質の水中から生物への取り込みの基本となる細胞膜への吸着特性を評価したものである。生物への取り込みに関しては、水中に共存する天然有機物質の影響に注目し、モデル細胞膜を用いた系で、その影響の大きさと影響機構について詳細な検討を行っている。得られた主な成果は次のとおりである。

- (1) pyrene の細胞膜への吸着に対しては、細胞膜の流動性が極めて大きな影響を及ぼすことを明らかにしている。
- (2) 17 β -estradiol などの内分泌かく乱物質が3-4環の多環式芳香族炭化水素類と同じ程度に細胞膜に吸着すること、そして、pyrene の代謝産物である 1-hydroxypyrene が pyrene の2倍以上細胞膜に吸着することを明らかにしている。
- (3) 多くの疎水性有機汚染物質が天然有機物質 (SRNOM) の共存によって、SRNOM 側に吸着があり細胞膜への分配が減少することを明らかにしている。特に、pyrene や 1-hydroxypyrene は 20mgC/L の SRNOM の共存により、細胞膜への分配が半分近くまで減少することを明らかにしている。
- (4) 天然有機物質一般の分子量分布の測定法として、質量分析法を導入し、Suwannee River Fulvic Acid の分析を通し、その最適分析条件を検討し、確立している。
- (5) SRNOM が細胞膜へ直接与える影響と、疎水性有機汚染物質を吸着することでその特性を変える間接的な影響に分け、疎水性有機汚染物質の細胞膜への分配に対する影響機構を検討している。その結果、SRNOM は細胞膜にほとんど吸着せず、細胞膜の流動性に影響を及ぼすことはないことを明らかにしている。また、pyrene については、SRNOM に吸着し、その結合体が細胞膜へ吸着しなくなることを、実験と数学モデルによって明らかにしている。

以上のように本論文は、疎水性有機汚染物質の実際の水環境中における生物への取り込みの評価を行う上で重要なモデルとデータを提示しており、学術上、実際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士(工学)の学位論文として価値あるものと認める。また、平成17年2月17日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認められた。