

京都大学	博士（工学）	氏名	Vo Thi Le Ha
論文題目	Chemical characterization, source identification and health risk assessment of particulate matter pollutants in indoor environment, as a case study of Hanoi, Vietnam (屋内環境における粒子状汚染物質の化学特性、発生源同定、健康リスク評価、ベトナム、ハノイでの事例として)		
<p>(論文内容の要旨)</p> <p>本論文はベトナム、ハノイにおける屋内の粒子状汚染物質について、その化学特性、発生源、健康リスクについて検討したものであり、以下の7章から構成される。</p> <p>第1章は序論であり、本論文の研究目的を示した。本論文は、室内環境における粒子状物質 (PM) とその成分に関する体系的な情報を提供するとともに、ベトナムのハノイの事例として、発展途上国における室内汚染の状況を分析したものである。そのため、研究の焦点を次の3つに設定した。1) 住宅における粒子状物質の特性として、質量サイズ分布、屋内と屋外のPMの関連性、影響因子など。2) PMの化学組成 (PAHs、TEs)。3) PMの粒径分布によるヒト呼吸器系での沈着量分布と健康リスク評価との関係、および吸入曝露による居住者の健康リスク評価の実施。</p> <p>第2章では文献サーベイの結果を示した。室内および屋外環境におけるPMおよび揮発性有機化学物質 (VOC) を対象とした65件の研究のうち、19件でベトナムの異なる室内環境におけるPM、VOC、および大気管理体系における現在の状況について報告した。その結果、PM (PM_{2.5}, PM₁₀, PM_{0.1}) およびBTEX (ベンゼン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン) が住宅のキッチン、駐車場、オフィスなどの室内環境で高濃度であり、ベトナムの都市部ではPM_{2.5} およびベンゼンのレベルが、場合によりWHOガイドラインを超え、人間の健康に悪影響を与えることが明らかになった。屋内外の汚染物質の制御に焦点を当てた緩和努力が行われているが、技術的な規制、基準、IAQに関する効果的な介入の欠如のために、依然として不十分な状況にあることを述べた。</p> <p>第3章では室内空気汚染の調査結果を示した。ハノイの都市住宅におけるサイズ分画された粒子状物質の質量濃度の季節変化、屋内外のPMの関係、粒径分布、沈着量などについて検討を行った。夏と冬に4軒の住宅でPM_{0.1}, PM_{0.1-0.5}, PM_{0.5-1}, PM_{1-2.5}, PM_{2.5-10}, PM_{>10} を毎日1,200試料ずつナノサンプラー (3182型, Kinomax, 流量40 L/min) で屋内と屋外で同時に採取した。4軒の住宅 (K1, K2, K3, K4) は、自然換気の住宅を代表しており、K1 (都市周辺部2階建て住宅) は、道路や工業地帯に近い場所に位置し、K2, K4 (都市型多層住宅) は、人口密集地にあり、K3 (道路敷地内多層住宅) は、交通密度の高い道路に隣接していた。測定の結果、屋内のPM_{0.1}, PM_{0.5}, PM₁, PM_{2.5}, PM₁₀ の平均濃度は、4軒の住宅でそれぞれ5.3-8.9 µg/m³; 10.8-20.1 µg/m³; 20.5-47.6 µg/m³; 33.7-105.9 µg/m³ および44.7-135 µg/m³ の範囲にあることが示された。屋外のPM_{2.5} とPM₁₀ の濃度は、屋内のPM_{2.5} とPM₁₀ の濃度よりかなり高かったが、PM_{0.1}, PM_{0.5}, PM₁ の濃度にはほとんど差がなかった。また、屋内のPM₁, PM_{2.5}, PM₁₀ には有意な季節変動が見られたが、PM_{0.1}, PM_{0.5} には見られなかった。屋内粒子の大部分は屋外の発生源に由来すると考えられた。</p> <p>第4章では室内PMの粒径分布、屋内外の関係、沈着曝露量について検討した。室内粒子の粒径分布は一峰性を示し、最も濃度が高いのはミクロンサイズ (1-2.5 µm) であり、PM_{<0.5} とPM_{>10} では濃度が低かった。また、屋内外ともに、PM_{0.5-1} やPM_{1-2.5} などの微細粒子が粗大粒子より優位であり、人体に対する深刻な脅威を示唆している。マルチパス粒子曝露評価モデル (MPDM) を用いて、呼吸器系へのPMの沈着量を予測した。PM₁₀ の総沈着量はPM_{2.5}, PM₁, PM_{0.5}, PM_{0.1} の総沈着量より大きかった。しかし、肺葉の総沈着率 (DF)</p>			

京都大学	博士（工学）	氏名	Vo Thi Le Ha
------	--------	----	--------------

は、年齢区分により PM0.1 が最も高く、PM2.5, PM10, PM1, PM0.5 と続いた（PM10 については 21 歳のグループを除く）。PM10 は気道頭部に最も多く沈着し、PM0.1 は肺胞に最も多く沈着していた。

第 5 章では PM0.1 および PM2.5 の化学組成、発生源の特定、健康リスク評価について調査した。3 つの住居（K1, K2, K3 はそれぞれ都市周辺部、道路沿い、都市住宅を表す）で、季節ごとに 320 の PM0.1 および PM2.5 のサンプルを毎日収集した。試料は、10 種類の微量元素（TEs : Cr, Mn, Co, Cu, Ni, Zn, As, Cd, Sn, Pb）と 15 種類の PAH（15PAHs : Nap, Acy, Ace, Flu, Phe, Ant, Flt, Pyr, BaA, Chr, BbF, BaP, IcdP, DahA, BghiP）の分析に使用された。屋内と屋外の毎日の PM0.1 のサンプルは、2 つの同一の Nano Sampler II（Model 3182, KINOMAX）によって石英フィルター（直径 55 mm）に集められ、屋内と屋外の毎日の PM2.5 のサンプルも、繊維ホルダー付きの 2 つの同様のサイクロンサンプラー（URG-2000-30EH, University Research Glassware Co., Chapel Hill, NC, USA）によって流速 16.7 L/min で石英フィルター（直径 47 mm）に集められた。濃縮係数、診断比、主成分分析（CPA）を適用して、考えられる曝露源を同定した。国際放射線防護委員会（ICRP）モデルを用いて、吸入曝露による TEs または PAHs のヒト呼吸器官への沈着量分布を計算し、USEPA モデルを非自動車および自動車のリスク評価のために適用した。その結果、室内 PM0.1 と PM2.5 の平均濃度は、それぞれ 7.0-8.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と 43.3-105.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。室内 PM に結合した TEs の平均濃度は、PM0.1 では 66-216 ng/m^3 、PM2.5 では 391-2,356 ng/m^3 と幅があった。15PAHs の平均濃度は、屋内の PM2.5 と PM0.1 でそれぞれ 102.9 ng/m^3 -155.6 ng/m^3 , 25.3-52.9 ng/m^3 であった。PM2.5 と PM0.1 に結合した BaP の平均濃度は、それぞれ $2.6 \pm 0.4 \text{ ng}/\text{m}^3$ と $1.6 \pm 0.2 \text{ ng}/\text{m}^3$ で、欧州ガイドラインの閾値を超え、調査対象の 3 住宅で居住者の健康を損なう可能性を示す結果となった。屋外の発生源として家庭での石炭燃焼、産業廃棄物、交通機関の排ガスが、屋内の発生源として家庭の埃や室内燃焼が確認された。都市周辺部や沿道の家屋では屋外発生源（交通、石炭、バイオマス燃焼）が重要であり、都市部の家屋では屋内発生源（線香、ろうそく、天然ガス、樟脳、建材等からの蒸発や燃焼）が主な発生源となっていた。

第 6 章は屋内外の粒子状 PAH の特性と健康影響について検討した。PM2.5 に結合した TEs または PAHs の大部分は喉頭に沈着し、PM0.1 に結合した PAHs は肺胞領域に圧倒的に多く沈着していた。モンテカルロ・シミュレーションの結果、PM2.5 中の TEs による発がんリスクは、60 歳以上の人を除くすべての年齢層で許容範囲内であることが示された。また、例外として、冬場の道路沿いの家では、すべての年齢層で非発がんリスクが存在していた。一方、都市住宅の居住者が最も高いリスクに曝されており、BaP と DahA の摂取は、3 軒の住宅の居住者全員に対して累積発がんリスクは許容範囲内であるものの、都市住宅の高齢者グループに対して、個別の条件次第では発がんリスクを引き起こす可能性があることが示された。BaP_{eq} 濃度は、感度解析により過剰生涯発がんリスク（ILCR）の分散の約 87% から 98% に寄与していた。マクロ環境としては、WHO 法に基づく ILCR では潜在的な発がんリスクが高く、CalEPA および US EPA 法に基づく ILCR では発がんリスクは許容範囲内であった。

第 7 章は結論であり、研究の総括を行うとともに、今後の課題について言及した。

(論文審査の結果の要旨)

本論文はベトナム、ハノイにおける屋内の粒子状汚染物質について、その化学特性、発生源、健康リスクについて検討したものである。本論文の学術的意義は、以下の通りである。

1) ハノイの4つの住宅(都市型2、都市周辺型、沿道型)において、屋内外の粒子状物質(PM)濃度や粒径分布を測定した。その結果、屋内PM0.1, PM0.5, PM1, PM2.5, PM10の平均濃度は、4軒の間でそれぞれ5.3-8.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 10.8-20.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 20.5-47.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 33.7-105.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ および 44.7-135 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。屋外のPM2.5とPM10の濃度は、屋内のPM2.5とPM10の濃度よりかなり高かったが、PM0.1, PM0.5, PM1の濃度の差はごくわずかであった。また、季節変動は屋内のPM1, PM2.5, PM10には見られたが、PM0.1, PM0.5には見られなかったことなどから、屋内のPM0.1とPM0.5の大部分は屋外発生源であることを示した。

2) 夏と冬にハノイの3つの住宅(都市型、都市周辺型、沿道型)で、合計320のPM0.1とPM2.5の試料を採取し、10種類の微量元素(TE)および15種類の多環芳香族炭化水素(PAH)を分析した。その結果、PM2.5とPM0.1に結合したBenzo[a]pyrene(BaP)の平均濃度は、それぞれ $2.6 \pm 0.4 \text{ ng}/\text{m}^3$ と $1.6 \pm 0.2 \text{ ng}/\text{m}^3$ で、欧州ガイドラインの閾値を超え、調査対象の3住宅では居住者の健康被害が発生する可能性があることを示した。また、都市周辺住宅と沿道住宅では、屋外発生源が屋内PM濃度に大きく寄与し、都市型住宅では屋内発生源(線香、ろうそく、天然ガス、樟脳、建材等からの蒸発や燃焼)が屋内PMの主な発生源であることを示した。

3) 国際放射線防護委員会(ICRP)モデルを用いて、PMに結合したTEsまたはPAHの吸入による肺胞領域における沈着量分布を計算した。PM2.5に結合したTEsまたはPAHsの大部分は頭部気道に沈着し、一方PM0.1に結合したPAHsは肺胞に沈着する割合が圧倒的に多かった。モンテカルロ・シミュレーションによると、PM2.5中のTEsによって誘発される発がんリスクは、60歳以上の人を除いて、すべての年齢層で許容範囲内であった。感度分析によるとBaP等価量(BaP(eq))は、環境全体からの平均増分生涯癌リスク(ILCR)の変動の約87%から98%に寄与していることなどを示した。

以上のように、本論文は発展途上国の屋内粒子状物質による汚染状況とその健康リスクを粒径分布と対応させながら定量的に評価したものであり、開発途上国における屋内粒子状汚染物質の管理手法の確立に大きく貢献するものであって、学術上、實際上寄与するところが大きい。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、令和4年4月25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、合格と認めた。

なお、本論文は、京都大学学位規程第14条第2項に該当するものと判断し、公表に際しては、当該論文の全文に代えてその内容を要約したものとすることを認める。