

関東地域都市部に飛散するスギ花粉への大気汚染物質の沈着  
**Deposition of air pollutants on airborne *Cryptomeria japonica* pollen  
in urban areas of Kanto Plain, Japan**

王 青躍, 青木 大輔, 坂本 和彦

Qingyue WANG, Daisuke AOKI and Kazuhiko SAKAMOTO

The morbidity due to *Cryptomeria japonica* pollinosis so-called ‘Japanese Cedar Pollinosis’ is increasing, especially in the urban areas of Kanto Plain in Japan. The reasons of this increase might have been associated with airborne pollutants from the biomedical tests conducted on mice and rats. The overall purposes of this study were to investigate whether air pollutants may deposit onto airborne *Cryptomeria japonica* pollen or not during the pollen flying season, and thereby also try to find out the influence of airborne pollutants on the pollinosis, the results of which may advance the further biomedical researching. We investigated deposition of air pollutants on *Cryptomeria japonica* perigonium pollen and what pollutants may deposit together with the airborne pollen to respiratory tract between urban and mountainous areas. Metallic, ionic and carbonic components of suspended particulate matter (SPM) and perigonium pollen collected at the urban of Saitama City and the mountainous areas of Okuchichibu during the season were analyzed to identify their relationship. We found that crustal particles (Al, Fe and Ti) tended to deposit on the perigonium pollen. The amount of ionic components of anthropogenic secondary particles ( $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$  and  $\text{NH}_4^+$ ) deposited on the perigonium pollen were higher in the urban than in the mountainous areas. It suggested that these airborne pollutants may affect the pollinosis, and it is important to determine airborne *Cryptomeria japonica* pollen and its major allergen (*Cry j* I), and investigate the chemical, physical and biomedical combination effects on it in our further study.

**Keywords:** *Cryptomeria japonica* pollen, Perigonium, Suspended particulate matter (SPM), Ionic components, Metallic components, Carbonic components and Crustal particles

### 1. はじめに

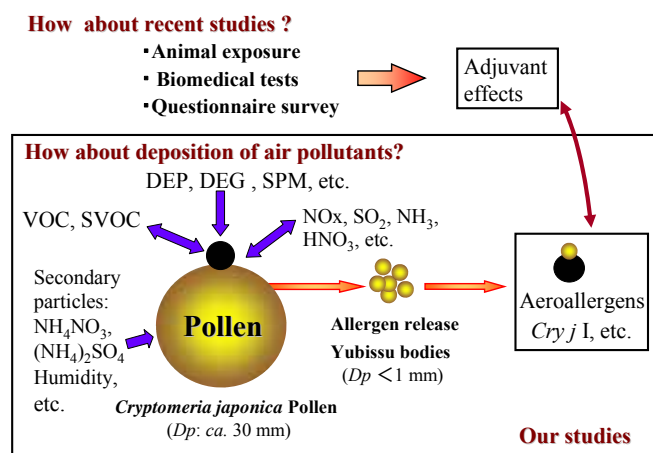
スギ花粉症患者数は日本国民の約 20%と報告されており<sup>1)</sup>、現代の日本人にとって国民病とも言える。近年ではスギ花粉症患者数の増加<sup>2)</sup>、発症の低年齢化<sup>3)</sup>、喘

息症状の発症<sup>4), 5)</sup>の傾向が報告されているため、現代病として大きな社会問題になっており、早急な改善策が求められている。このような花粉症患者数の増加現象は、特に都市部において顕著に現れていることから、大気汚染物質による複合影響説が有力視されている<sup>1), 6)</sup>。現在までに、花粉症と大気汚染物質との関連性に関する研究は、主に動物暴露実験による生体影響評価研究が多く行われており、スギ花粉と大気汚染物質が同

---

埼玉大学大学院 理工学研究科 環境制御工学専攻  
Department of Environmental Science and Human  
Engineering, Graduate School of Science and Engineering,  
Saitama University, 255 Shimo-Okubo, Sakura-ku,  
Saitama City, Saitama 338-8570, Japan

時に生体内に投与されると、アレルギー症状を相乗的に増強させるアジュバンド作用が引き起こされることが報告されている<sup>7), 8)</sup>。しかしながら、これらの研究はスギ花粉アレルギー（以後：*Cry j I*）と大気汚染物質を混合したものを強制的に注入投与するといった研究例が多いため、実際の呼吸器官への沈着が模擬されておらず、スギ花粉が山岳地から飛散して都市部まで移流し<sup>9)</sup>、人体の呼吸器官に到達するまでに及ぼされる、大気汚染物質によるスギ花粉症への影響因子を考慮していない現状にある。その影響因子として、①*Cry j I*が多く局在するスギ花粉表面上<sup>10)</sup>への粒子状、ガス状大気汚染物質の沈着、②スギ花粉や機械的破壊、降雨での水分吸収による膨張破裂等の物理的寄与を受けたスギ花粉フラクション<sup>11), 12)</sup>と大気汚染物質が呼吸器官の同じ沈着部位へ沈着することの2つが考えられる。そのため、これら影響因子を解明することは花粉-大気汚染物質の複合影響評価(**Fig. 1**)やその改善策、今後の花粉に関する疫学的研究の発展のためにも非常に重要である。



**Fig. 1 Concept of pollen-air pollutant possible interaction processes in our studies.**

Here, DEP: diesel exhaust particulates, DEG: diesel exhaust gases, SPM: suspended particulate matter, VOC: volatile organic carbon, SVOC: semi-volatile organic carbon, *Cry j I*: major allergen of the pollen and  $D_p$ : particle size.

本研究では、スギ花粉飛散時期において、関東地域都市部と山岳地でサンプリングした大気粒子状汚染物質とスギ花粉を含むスギ雄花について、金属成分、イオン成分、炭素成分の分析を行い、都市部に飛散するスギ雄

花、スギ花粉への大気汚染物質の沈着可能性について調べた。ここではそのフィールド調査により得られた基礎的結果を報告する。

## 2. 実験方法

### 2.1 大気粒子状汚染物質とスギ花粉を含むスギ雄花の採取

関東地域都市部として、さいたま市の埼玉大学地域共同センター屋上にて、山岳地として奥秩父の埼玉大学山寮にて、それぞれ2004年の3/2~3/8、3/11~3/16の期間に大気サンプリングを行った。大気粒子状汚染物質のサンプリングにはアンダーセンハイボリウムエアサンプラー（柴田科学製 AH-600, 以後: AHV サンプラー）を用いた(**Fig. 2 (a)**)。金属成分、イオン成分、炭素成分の分析用サンプルとして、AHV サンプラーにより大気粒子状汚染物質を23時間、吸引流量566 L  $\text{min}^{-1}$ にて、石英繊維フィルターに5段分級（1段目の粒径( $D_p$ : particle size):  $> 7 \mu\text{m}$ , 2段目の  $D_p$ :  $3.3 \sim 7 \mu\text{m}$ , 3段目の  $D_p$ :  $2 \sim 3.3 \mu\text{m}$ , 4段目の  $D_p$ :  $1.1 \sim 2 \mu\text{m}$ , 5段目の  $D_p$ :  $< 1.1 \mu\text{m}$ )して捕集した。このAHVエアサンプラーは人体の呼吸器系の沈着部位に対応しており、それぞれの分級段数に応じて、口や鼻腔、気管、気管支、気管支枝、肺胞まで到達する大気粒子状汚染物質の捕集を想定して設計されている。1~4段目の大気粒子状汚染物質( $D_p > 1.1 \mu\text{m}$ )には円形石英繊維フィルター（東京ダイレック製、AHQ-630）を、5段目の大気粒子状汚染物質( $D_p < 1.1 \mu\text{m}$ )には長方形バックアップ石英繊維フィルター（東京ダイレック製、2500QAT-UP）を使用した。さいたま市（都市部）における大気粒子状汚染物質（スギ花粉、スギ花粉フラクションも含まれている）を捕集した石英繊維フィルターは、チャック付きポリ袋に密封し、分析するまで $-40^\circ\text{C}$ で保存した。奥秩父（山岳地）では、サンプリング期間中 $-20^\circ\text{C}$ の冷凍庫にて保存し、氷を入れた保冷箱により埼玉大学まで持ち帰り、分析するまで $-40^\circ\text{C}$ で保存した。

また、ダーラム型花粉採取器（西精機株式会社製、DK-1SA）（Fig. 2 (b)）を用いて捕集した花粉を、光学顕微鏡（島津製作所製、Model GLB-B1500MBITaN）や走査型電子顕微鏡（SEM、日立製作所製、Model S-2400）により花粉個数をカウントし、ならびに花粉表面の形態を観察した。ダーラム型花粉採取器は捕集部にワセリンを塗布したスライドガラスを乗せ、重力沈降して付着する花粉を捕集する捕集器であり、上部の円板は雨よけ、下部の円板は、ほこりやゴミよけになっている。

さらに、両サンプリング地点において、スギ花粉を含むスギ雄花を高枝切りばさみにより飛散前の成熟スギ花粉を含むスギ雄花を採取した。さいたま市（都市部）で採取したスギ花粉を含むスギ雄花は、チャック付きポリ袋に密封し、分析するまで-40℃で保存した。奥秩父（山岳地）では、山岳地のサンプリング期間中-20℃の冷凍庫にて保存し、氷を入れた保冷箱により埼玉大学まで持ち帰り、分析するまで-40℃で保存した。サンプリング期間における気象データは風向風速計（グローバルチェンジ製、EDOMET）（Fig. 2 (a)）により記録した。

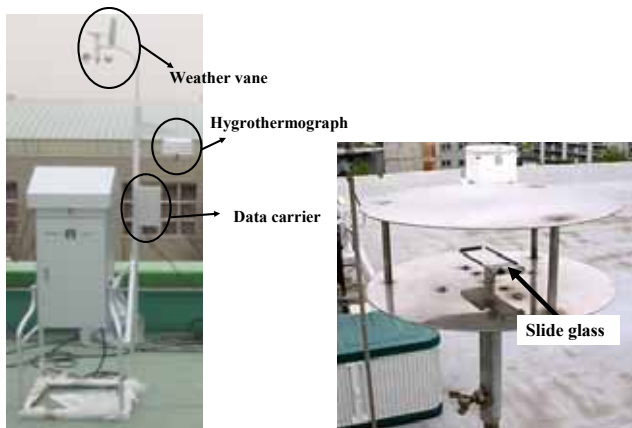


Fig. 2 Sampling equipments used for collecting airborne particulate matter and pollen.

## 2.2 大気粒子状汚染物質とスギ花粉を含むスギ雄花の成分分析

都市部と山岳地で捕集した大気粒子状汚染物質と採取したスギ花粉を含むスギ雄花中の金属成分、イオン成

分、炭素成分についての分析を行った。採取したスギ雄花からスギ花粉を分析必要量得ることは難しかったため、スギ花粉を含むスギ雄花をそのまま用いて分析した。

1~4 段目の大気粒子状汚染物質( $Dp > 1.1 \mu\text{m}$ )を捕集した円形石英繊維フィルターをそれぞれの成分分析用としてカッターにより扇形に分割した。都市部、山岳地における試料中のイオン成分、炭素成分の測定には1/8に、金属成分の測定には都市部で1/4、山岳地で1/2を使用し、残ったフィルターを保存用とした。5段目の大気粒子状汚染物質( $Dp < 1.1 \mu\text{m}$ )を捕集した長方形バックアップ石英繊維フィルターについてはイオン成分と炭素成分の測定用として47 mmφを2枚くり抜き、金属成分の測定用としては全体の1/2を用い、残りを保存用とした。

大気粒子状汚染物質を捕集した石英繊維フィルターの所要量と秤量した約0.030 gのスギ花粉を含むスギ雄花をそれぞれ30 ml用テフロン製ビーカーに入れ、石英フィルターに捕集された金属成分の酸分解には、硝酸3 ml、フッ化水素酸3 mlを、スギ雄花には硝酸3 ml、フッ化水素酸3 ml、塩酸3 mlを加え、テフロン製時計皿で覆い、ホットプレート上に置き、100℃に設定して約30分間加熱し、試料が完全に溶けた後、過塩素酸3 mlを加え、白煙が発生したら、冷却・濾過し、1%硝酸で洗浄し、濾液で希釈して10 mlのメスフラスコで定容して金属分析用の試料溶液とした。試料溶液はバイアル瓶に入れ、分析するまで冷蔵庫(約0℃)に保存した。金属成分(Al, Ba, B, Ca, Cd, Cr, Cu, Fe, Li, Mg, Mo, Na, Ni, Pb, Sb, Ti, Zn, Sc, Sr, V)について誘導結合プラズマ発光分析法（ICP-AES, 日本電子製, JICP-PS1000UV）により測定した。

水溶性イオン成分は、1/8にカットした粒子状大気汚染物質中の水溶性イオン成分を捕集した石英繊維フィルターを、スギ花粉を含むスギ雄花のイオン成分試料を細かく砕き、0.30 gを秤量後、それぞれポリ瓶の中に入れ、50 mlの超純水により10分間×2回の超音

波抽出により行った。抽出後、抽出液 5 ml をバイアル瓶に入れ、シリンジにより、さらに 50  $\mu\text{l}$  の 0.27 M  $\text{Na}_2\text{CO}_3/0.03 \text{ MNaHCO}_3$  を加えた。ポリ瓶内の溶液を陽イオン分析用とし、バイアル瓶内の溶液を陰イオン分析用とした。その後、陰、陽イオンクロマトグラフ（ダイオテック東京製、DX-100）を用いて、陰イオン成分( $\text{F}^-$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{NO}_2^-$ ,  $\text{Br}^-$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{PO}_4^{3-}$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $(\text{COO})_2^-$ ), ならびに陽イオン成分( $\text{Na}^+$ ,  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ )の測定を行った。

有機炭素(Organic Carbon : OC)と元素炭素(Elemental Carbon : EC)に大別して炭素成分を分析するため、8 mm $\phi$  にくり抜いた石英繊維フィルターまたは適量の花粉試料を試料ホルダーに入れ、熱光学式炭素分析計 (DRI 製, Model 2001) を用いて TOC(Total Organic Carbon, 120~550 $^\circ\text{C}$  無酸素雰囲気下)と TEC (Total Elemental Carbon, 550~800 $^\circ\text{C}$  酸素雰囲気下)を測定した。炭化した Py-OC (Pyrolyzed OC)の補正は透過光により行った。

### 3. 結果と考察

都市部と山岳地で捕集した大気粒子状汚染物質と採取したスギ花粉を含むスギ雄花の金属成分、イオン成分、炭素成分の分析結果を用いて、大気粒子状汚染物質のスギ花粉への沈着影響について検討した。

#### 3.1 都市部と山岳地における大気汚染物質濃度の観測とその結果比較

都市部と山岳地のスギ花粉への大気汚染物質の沈着影響やスギ花粉と大気汚染物質が同じ呼吸器官の沈着部位に到達する際の花粉症悪影響因子について検討するために、まず、本研究で行われたサンプリング期間において、地点別の大気汚染物質濃度について比較検討した。Fig. 3 には、粒径別粒子状大気汚染物質中のイオン成分 ( $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{Cl}^-$ ) を示し、Fig. 4 は濃度が高かった粒子状大気汚染物質 ( $\text{Al}$ ,  $\text{Fe}$ ,  $\text{Ti}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NH}_4^+$ ) の平均濃度を示した。その結果、大気粒子状汚染物質濃度は都市部の方が高いことが観測された。主に微小粒子域

( $D_p < 2.0 \mu\text{m}$ ) 存在している人為起源由来の二次生成粒子状イオン成分 ( $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NH}_4^+$ ) 濃度については、都市部の方が山岳地に比べ、約 2~4 倍程度高かった。一方、地殻成分の指標物質である  $\text{Al}$ ,  $\text{Fe}$ ,  $\text{Ti}$  等の濃度が都市部で高かった理由として、本研究のサンプリング期間の平均風速において、山岳地の  $1 \text{ m s}^{-1}$  以下に対し、

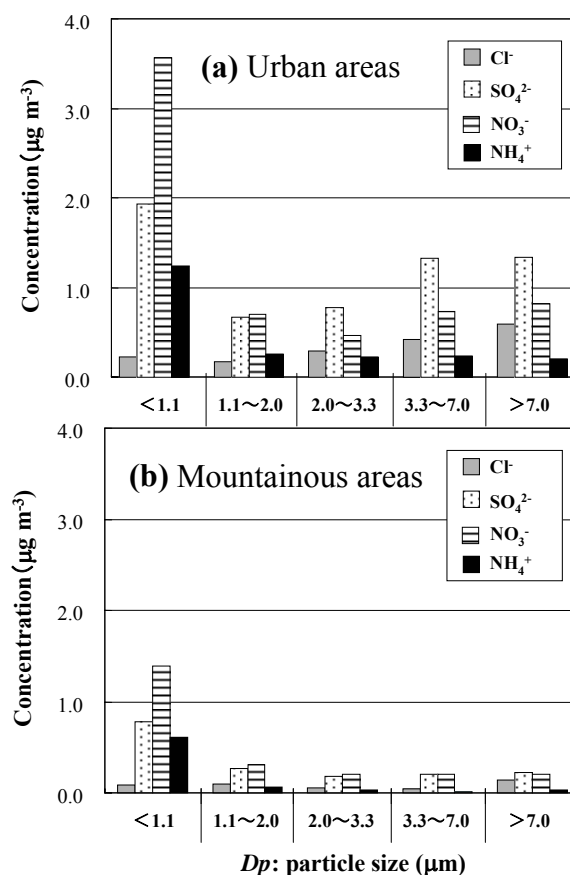


Fig. 3 Size-distribution of the ionic concentrations of airborne particles collected in mountainous and urban areas.

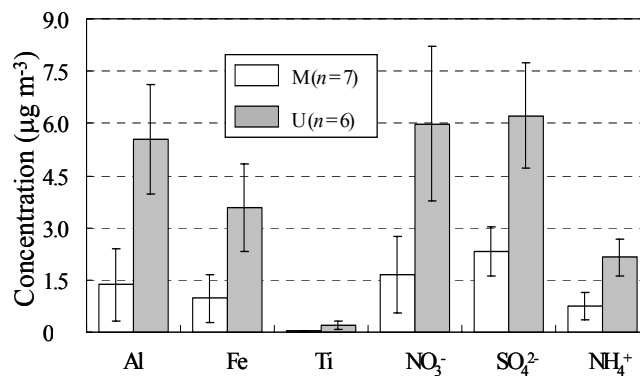


Fig. 4  $\text{Al}$ ,  $\text{Fe}$ ,  $\text{Ti}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NH}_4^+$  concentrations of airborne particles collected in mountainous (M: Okuchichibu) and urban (U: Saitama City) areas. The bars show the standard deviation.

都市部では  $6 \text{ m s}^{-1}$  以上の強風の日もあり、地殻粒子が巻き上げられたことや、都市部の方が自動車走行による道路粉塵の発生量が多かったためであると考えられる。

### 3.2 スギ花粉への大気粒子状汚染物質の沈着に関する考察

都市部と山岳地で採取したスギ花粉を含むスギ雄花の金属成分、イオン成分の定量分析結果から、以下のように沈着について考察した。

#### 3.2.1 浮遊する地殻成分の沈着

都市部と山岳地におけるスギ花粉を含むスギ雄花の地殻成分 (Al, Fe, Ti) について分析した結果を Table 1 に示す。

Table 1 Al, Fe and Ti concentrations of *Cryptomeria japonica* perigonium pollen collected in mountainous (M) and urban (U) areas.

| Site                    | Al                 | Fe                 | Ti ( $\mu\text{g m}^{-3}$ ) |
|-------------------------|--------------------|--------------------|-----------------------------|
| M: Okuchibu (n = 8)     | n.d. <sup>a)</sup> | n.d. <sup>a)</sup> | n.d. <sup>a)</sup>          |
| U: Saitama City (n = 8) | 1,070              | 1,140              | 52                          |

a) n.d. means below the limit of detection.

山岳地のスギ雄花、花粉には Al, Fe, Ti が検出下限以下であったが、都市部のスギ雄花、花粉では特に Al, Fe が高く測定され、Al : Fe : Ti の割合は約 1 : 1.06 : 0.05 であった。さいたま市における土壌成分と道路粉塵などの地殻物質ソースプロフィールの調査研究<sup>13)</sup>では、土壌の Al : Fe : Ti の割合は約 1 : 1.28 : 0.14 に対し、道路粉塵の Al : Fe : Ti の割合は約 1 : 1.03 : 0.09 となっていたため、都市部に浮遊する地殻成分がスギ雄花、花粉に沈着した可能性が示唆された。さらに、Maejima ら<sup>14)</sup>のスギ花粉と地殻粒子をチャンバー内で浮遊させ、スギ花粉の浮遊過程を模擬したモデル浮遊実験でも、スギ花粉表面上に地殻粒子が吸着することが報告されており (Fig. 5(a))、本研究でも巻き上げられ、浮遊する地殻粒子や道路粉塵がスギ雄花上に吸着したものと考えられた (Fig. 5 (b))。このように、主に粗大粒子域に存在し、大気中で拡散係数の低い地殻粒子が吸着した理由として、スギ雄

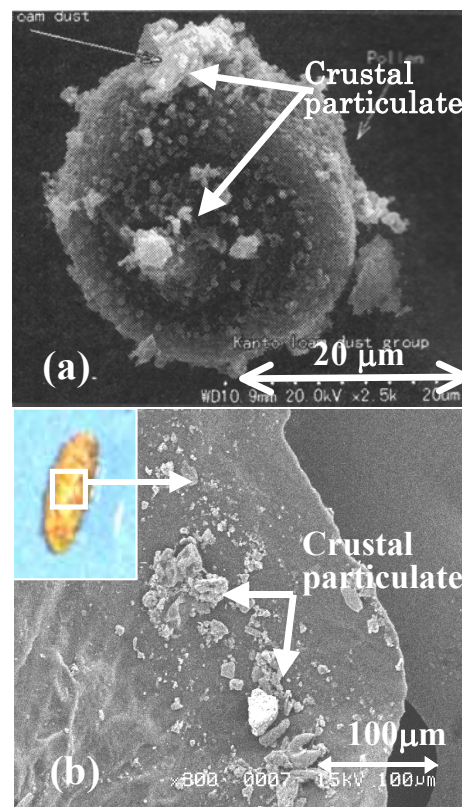


Fig. 5 Scanning electron micrographs of pollen surfaces (a) suspended pollen and Kanto loam dust in the chamber experiment<sup>4)</sup>, and *Cryptomeria japonica* perigonium surfaces (b) collected in the urban area in this study.

花表面の化学組成、雄花表面上に存在するワックスの組成、また冬季には静電気が働くことにより吸着する可能性が挙げられる<sup>15)</sup>。

以上から、地殻粒子(土壌粒子や道路粉塵を含む)がスギ花粉飛散前に吸着し、スギ花粉が飛散、浮遊する間にさらに吸着する可能性が考えられた。

#### 3.2.2 大気粒子状イオン成分の沈着

都市部と山岳地におけるスギ花粉を含むスギ雄花のイオン成分 ( $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NH}_4^+$ ) について分析した結果を Fig. 6 に示す。Fig. 3 と Fig. 4 に既に表示した様に、都市部の方が粒子状成分は約 2~4 倍高濃度であり、都市部と山岳地における大気粒子状イオン成分濃度の倍率とほぼ同程度であった。そのため、Fig. 6 に示すように、山岳地に比較して都市部のスギ花粉に多くの粒子状の  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NH}_4^+$  が沈着した可能性が推定される。

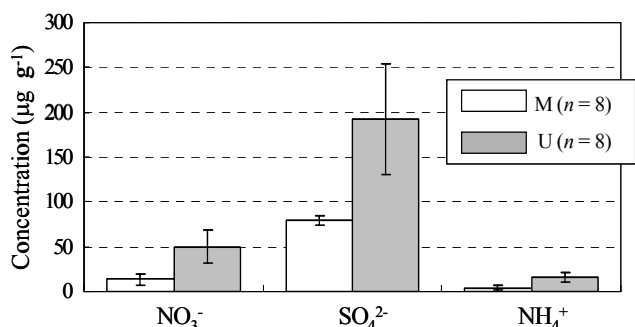


Fig. 6 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup> concentrations of *Cryptomeria japonica* periponium pollen collected in mountainous (M) and urban (U) areas. The bars show the standard deviation.

以上のことから、都市部のスギ花粉は山岳地のものより人為起源の大気汚染物質と推定される NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>が多く沈着していたことが分かり、このことから、スギ花粉に沈着するそれらの大気汚染物質による花粉症の症状に悪影響を及ぼす可能性が示唆された。しかし、大気中にはガス状汚染物質として NO<sub>x</sub>, SO<sub>2</sub>, NH<sub>3</sub>, HNO<sub>3</sub>などが存在しており、これらの花粉への沈着や沈着後の不均一反応などが考えられるため、花粉から抽出された NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>がそれらに由来する可能性も残されており、この点についてはさらに検討する必要がある。

### 3.2.3 大気汚染物質とスギ花粉の呼吸器系への沈着影響に関する考察

飛散するスギ花粉と同じ呼吸器系沈着部位への大気粒子状汚染物質の沈着影響を評価するため、スギ花粉を含むスギ雄花や粒径別大気粒子状汚染物質中の炭素成分とイオン成分 (Dp<2 µm)、金属成分(地殻成分, Dp>7 µm)の分析結果を用いて検討した。

ディーゼル車排気粒子(DEP)が地殻粒子よりスギ特異 IgE 抗体生成量がかなり高く、鼻腔内での炎症性変化の程度は最も高いことが報告されている<sup>14)</sup>ことから、スギ花粉を含むスギ雄花に対する炭素成分の沈着について検討した。しかし、スギ花粉を含むスギ雄花の炭素成分の分析では、OC がスギ花粉の主な構成成分であること<sup>16), 17)</sup>を明らかにし、サンプリング期間中、Fig. 7 に示したように都市部で最も注目されている DEP 由来の元素状炭素(TEC)の濃度が割的に微小粒子側 (Dp <2 µm) で高いため、それによるスギ花粉を含むスギ雄花への沈

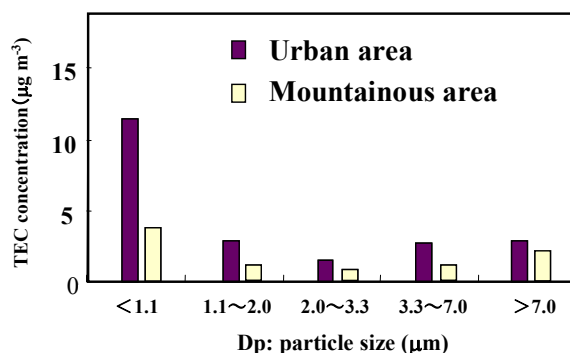


Fig. 7 Size-distribution of TEC concentrations of air samples collected in mountainous (M) and urban (U) areas. TEC is total elemental carbon.

着を調べた。しかし、都市部、山岳部のスギ雄花への TEC と TOC を熱光学式炭素分析計 (TOCA) により計測し、TEC の沈着量を評価したところ、都市部、山岳部、ブランクスギ花粉、それぞれの TEC/TC (%) (TC = TEC + TOC) に有意な差は認められず、TOCA 計における光学補正の誤差範囲内に入ってしまった。したがって、交通量の多い都市部において、スギ雄花、花粉表面上での人為起源由来 EC の沈着影響について正確な評価ができなかったが、これは TOC の濃度が TEC に比べて圧倒的に多いことによると考えられた。

Fig. 3 に既に示したように、人為起源由来の二次生成粒子状イオン成分 (NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>) の濃度は都市部の方が山岳地に比べ、約 2~4 倍程度高く、主に微小粒子域 (Dp <2.0 µm) 存在していた。また都市部と山岳地における粒子状イオン成分濃度の倍率を比較すると、ほぼ同程度 (Fig. 8) であったため、都市部でより高

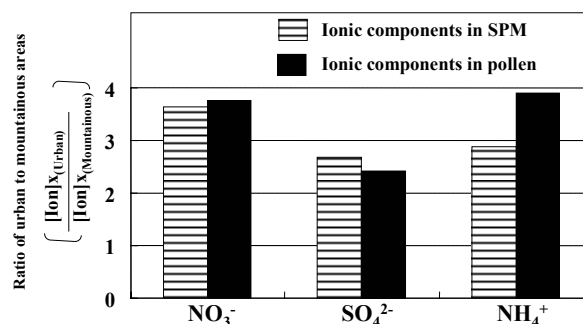


Fig. 8 Ratios of ionic concentrations ([Ion]<sub>x(Urban)</sub>) in samples collected in urban area to ionic concentrations ([Ion]<sub>x(Mountainous)</sub>) collected in mountainous area.

濃度であった水溶性イオン成分 ( $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NH}_4^+$ ) がスギ雄花上に沈着した可能性が推定された。さらに、スギ花粉が雄花から飛散して、人体の呼吸器官に到達するまでに、物理的、化学的影響の影響を受けながらスギ花粉の表面構造が大きく変化し、花粉外壁のユービッシュ小体 ( $D_p < 1 \mu\text{m}$ ) の脱落<sup>12), 18)</sup> が確認されていることから、変質、形態変化による微粒子化の可能性が示唆されている。本研究では、スギ花粉が飛散して都市部への移流、または都市部内での浮遊に伴った形態変化による微粒子化プロセスの可能性について調査し、その形態変化 SEM 観察結果を Fig. 9(a)~(f) に図示した。したがって、水溶性イオン成分が沈着したスギ花粉フラクションが

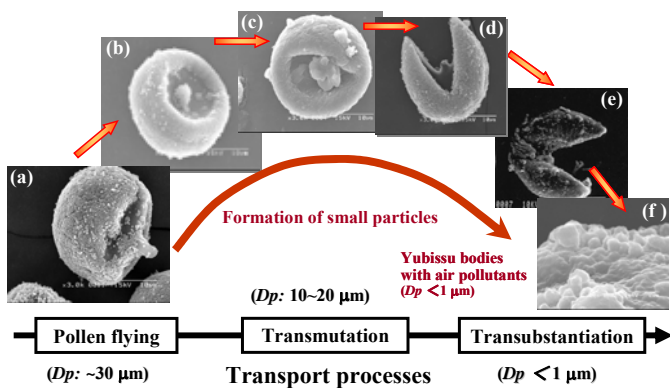


Fig. 9 Morphological changes of cedar pollen during airborne transport to or within the urban area. ( $D_p$ : particle sizes)

人体の気管支、肺胞まで到達する可能性も考えられ、相乗的にアレルギー増強を誘発するアジュバンド作用が引き起こし、花粉症が発症しやすくなることが推測できる。しかし、ここで沈着が推定された水溶性イオン成分は、ガス状汚染物質の沈着による形成も可能であり、スギ花粉表面への沈着についてはさらなる検討が必要である。

人体の鼻腔内に沈着される大気粒子状汚染物質 ( $D_p > 7 \mu\text{m}$ ) 濃度について、都市部と山岳地にて比較検討した。都市部と山岳地で、サンプリング期間中に AHV の 1 段目 ( $D_p > 7 \mu\text{m}$ ) に捕集された大気粒子状汚染物質の各成分濃度の平均値を Fig. 10 に示す。これにより、都市部では、約 4 倍の大気粒子状汚染物質が鼻腔内に沈着すると推定され、両地点で最も濃度が高かった成分は

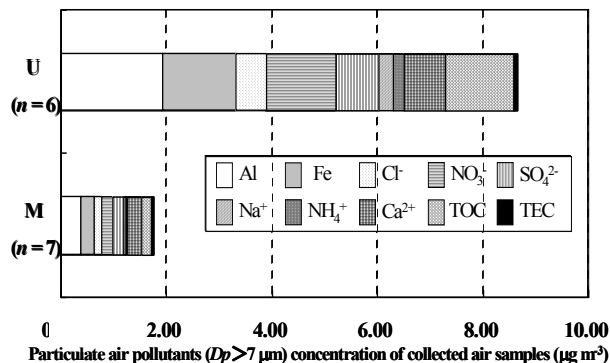


Fig. 10 Particulate ( $D_p > 7 \mu\text{m}$ ) concentrations of air samples collected in mountainous (M) and urban (U) areas. TOC is total organic carbon, and TEC is total elemental carbon.

Al, Fe 等の地殻成分であった。また Table 1 にすでに示したように、都市部のスギ雄花、花粉では特に Al, Fe が高く測定されたため、スギ花粉と地殻粒子が同じ鼻腔内に沈着されやすいことを明らかにした。マウスを用いた地殻モデル粒子(関東ローム粒子、主成分は  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SiO}_2$ )とスギ花粉の混合暴露実験では、スギ花粉症の発症に直接的に関与するスギ特異 IgE 抗体生成量、陽性率、頸部リンパ節細胞の特異的増殖反応に明らかな影響が認められている<sup>19)</sup>ため、Al, Fe 等を含む地殻成分のスギ花粉への沈着による花粉症の発症に悪影響を及ぼす可能性が考えられる。

#### 4. まとめ

関東地域都市部と山岳地の大気粒子状汚染物質濃度とスギ花粉を含むスギ雄花に沈着した大気汚染物質濃度の分析により、スギ花粉への大気汚染物質の沈着について検討した。スギ花粉は人為起源由来の  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NH}_4^+$  などの大気汚染物質の影響を受け、高濃度汚染の都市部では、より多く大気汚染物質が沈着していたことが分かった。したがって、スギ花粉が雄花から飛散して都市部まで移流し、または都市部内で浮遊して、人体の呼吸器官に到達するまでに、大気汚染物質がさらに沈着する可能性が考えられ、特に Al, Fe 等の地殻成分が沈着していることを明らかにした。本研

究から、上述の大気汚染物質が沈着したスギ花粉が、花粉症の症状に悪影響を及ぼすことが懸念され<sup>19)</sup>、これらの複合的な生体影響評価研究の改善の必要性を示唆した。

今後、花粉が受ける外部からの物理的、化学的因子による影響について研究するため、ガス状汚染物質のスギ花粉表面への沈着、スギ花粉症のトレーサーである *Cryj I* の粒径別捕集と分析について検討していく予定である。

### 謝 辞

本研究の実施にあたって、財団法人日本自動車研究所前島一仁博士から一部モデル暴露実験用スギ花粉の試料を提供していただきました。また本研究の一部は、科学研究費補助金(基盤研究(B)No.17310031)により行われ、ここに記し、深く感謝申し上げます。

### 参考文献と資料

- 1) 信太隆夫, 花粉症に関する調査研究, *空気清浄*, **36**, 17-27, 1998
- 2) 東京都環境局環境改善部, ディーゼル車排気ガスと花粉症の関連に関する調査委員会報告書, 2003
- 3) Watanabe N., Ohsawa M., Elevated serum immunoglobulin E to *Cryptomeria japonica* pollen in rats exposed to diesel exhaust during fetal and neonatal periods, *BMC Pregnancy and Childbirth*, **25**, 1-9, 2002
- 4) 上野香奈, 美濃口健治, 河野泰郎, 小田成人, 和田記代子, 宮本正秀, 横江琢也, 橋本直方, 美濃口秀子, 田中明彦, 國分二三男, 足立 満, 気管支喘息増悪要因としてのスギ花粉症の調査研究, *アレルギー*, **51**, 565-570, 2002
- 5) 前田裕二, 花粉喘息とその治療, *アレルギー臨床*, **22**, 34-38, 2002
- 6) 前島一仁, 「粒子とスギ花粉症研究」の成果の概要, *自動車研究*, **22**, 123-129, 2000
- 7) Muranaka M., Suzuki S., Koizumi K., Takafuji S., Miyamoto T., Ikemori R., Tokiwa H., Adjuvant activity of diesel-exhaust particulates for the production of IgE antibody in mice, *Journal of Allergy and Clinical Immunology*, **77**, 616-623, 1986
- 8) Takafuji S., Suzuki S., Koizumi K., Tadokoro K., Ikemori R., Muranaka M., Diesel-exhaust particulates inoculated by the intranasal route have an adjuvant activity for IgE production in mice, *Journal of Allergy and Clinical Immunology*, **79**, 639-645, 1987
- 9) 川島茂人, スギ花粉拡散過程のモデル化. *環境技術* **32**, 2-9, 2003
- 10) Miki-Hiroshige, H., Nakamura, S., Yasueda, H., Shida, T., Takahashi, Y., Immunocytochemical localization of the allergenic proteins in the pollen of *Cryptomeria japonica*, *Sex Plant Reprod* **7**, 95-100, 1994
- 11) Takahashi Y., Sakaguchi M., Inouye S., Miyazawa H., Imaoka K., Katagiri S., Existence of exine-free airborne allergen particles of Japanese cedar pollen. *Allergy*, **46**, 588-593, 1991
- 12) Takahashi Y., Sasaki K., Nakamura S., Miki-Hiroshige H., Nitta H., Aerodynamic size distribution of the particles emitted from the flowers of allergologically important plants, *Grana*, **34**, 45-49, 1995
- 13) 王青躍, 坂本和彦, 土壌と道路粉塵中の炭酸塩の地域的変動及びその大気エアロゾル酸性度との関連, *エアロゾル研究*, **9**, 345-353, 1994
- 14) Maejima, K. Tamura, K., Nakajima, T., Taniguchi, Y., Saito, S., Takenaka, H., Effects of the inhalation of diesel exhaust, Kanto loam dust, or diesel exhaust without particles on immune responses in mice exposed to Japanese cedar (*Cryptomeria japonica*) pollen, *Inhalation Toxicology*, **13**, 1047-1063, 2001
- 15) 佐竹研一, 高松武次郎, 瀬山春彦, 田中淳, 東アジアにおける環境酸性化物質収支解明のための大気・土壌総合化モデルと国際共同観測に関する研究- 森林生態系における乾性沈着量測定手法の開発および湿性沈着物の動態に関する研究, *地球環境研究総合推進費平成 10 年度研究成果報告集*, 146-150, 1998
- 16) Wang Q., Aoki D. and Sakamoto K., Basic Observation



- on Interaction between Air Pollutants and Ingredient Matter Released from Various Pollens, *The Paper of International Conference of Atmospheric Environment* (October 24~26, Nanning, China), 234-242, 2003
- 17) 王青躍, 青木大輔, 坂本和彦, 都市部及び山岳地におけるスギ雄花, 花粉中の大気汚染関連物質について, 第45回大気環境学会年会(10月20~22日)講演要旨集, 秋田, 2D0915, 536, 2004
- 18) Takahashi Y., Sakaguchi M., Inouye S., Miyazawa H., Imaoka K. and Katagiri S., Existence of exine-free airborne allergen particles of Japanese cedar (*Cryptomeria japonica*) pollen, *Allergy*, **46**, 588-593, 1991
- 19) 財団法人日本自動車研究所, 粒子とスギ花粉症—実験動物を用いた粒子とスギ花粉の混合暴露実験—, 97-118, 2000