

平成22年 3月31日現在

研究種目：基盤研究（B）（海外）

研究期間：2007～2009

課題番号：19404001

研究課題名（和文） 熱帯アジアの環境汚染史の柱状堆積物を用いた復元

研究課題名（英文） Reconstruction of pollution history in tropical Asia by using sediment cores.

研究代表者

高田 秀重（TAKADA HIDESHIGE）

東京農工大学・大学院共生科学技術研究院・教授

研究者番号：70187970

研究成果の概要（和文）：

タイ（タイランド湾バンコク沖）、フィリピン（マニラ湾）、マレーシア（ジョホールバル海峡）、インドネシア（ジャカルタ湾）、ベトナム（トンキン湾）において長さ 50 cm～100cm の柱状堆積物を採取し、スライスした層の各種汚染物質の測定を行い、汚染史の再現を行った。タイランド湾、ジャカルタ湾、ジョホールバル海峡、ホーチミン沖では自動車に起因する石油汚染が過去から現在に向けて進行していることが明らかになった。合成洗剤汚染もこれら4つの水域で進行中であることが明らかになった。マニラ湾、ジャカルタ湾流域では下水処理が普及してきていることが示された。

研究成果の概要（英文）：

Sediment cores of ~50 cm to ~100 cm were collected from Gulf of Thailand, Straits of Johor, Jakarta Bay, and Gulf of Tonkin. Hopanes, polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and linear and branched alkylbenzenes were measured in sliced layers to reconstruct pollution history. In Gulf of Thailand, Straits of Johor, Jakarta Bay, and Gulf of Tonkin, there observed increased inputs of automobile-derived hydrocarbons. In these water bodies, increased inputs of synthetic-detergent-derived contaminants were observed. Isomeric compositions of linear alkylbenzenes suggest expansion of the coverage of sewage treatment systems in the catchment of Manila Bay and Jakarta Bay.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	4,400,000	1,320,000	5,720,000
2008年度	4,100,000	1,230,000	5,330,000
2009年度	4,100,000	1,230,000	5,330,000
年度			
年度			
総計	12,600,000	3,780,000	16,380,000

研究分野：環境地球化学

科研費の分科・細目：環境動態解析

キーワード：柱状堆積物、汚染史、熱帯アジア、環境汚染、モニタリング、多環芳香族炭化水素、ホパン、アルキルベンゼン

1. 研究開始当初の背景

熱帯アジア地域は人口増加と急速な経済発展により、環境への汚濁負荷が急増している。一方で環境保全対策が不十分な国が多く、環境汚染が急速に進行している。我々がここ数年行ってきた環境汚染モニタリングの結果、熱帯アジア水域の深刻な屎尿汚染、合成洗剤汚染、自動車の急速な普及に由来する石油汚染等が明らかになってきている。しかし、熱帯アジア諸国における環境汚染の歴史はまったく明らかにされていなかった。汚染の歴史変遷を明らかにすることは、環境汚染の原因の特定と汚染のメカニズムの解明、環境汚染の将来予測をする上で重要である。汚染史を明らかにすることは汚染対策を立案する上でも重要な情報を提供する。熱帯アジアの一部の国ではすでに下水処理場の建設、自動車排ガス規制、有機塩素系農薬使用の禁止等の環境汚染対策もとられてきている。それらの国における環境汚染の歴史的な推移を明らかにすることは、これまで施行された環境汚染対策の効果を評価する上でも大変に有効である。

しかし、熱帯アジア諸国では環境汚染の計測自体が最近始まったばかりでデータの蓄積が少なく、既存のモニタリングデータから環境汚染の変遷を知ることは困難である。そのような場合は汚染の歴史が刻まれた環境媒体の利用が有効となる。沿岸海域には流域から粒子と粒子に吸着した汚染物質が河川や大気経路で輸送され海底に層状に堆積するため、沿岸堆積物には汚染物質の負荷の歴史（汚染史）が刻まれている。それらの堆積物を柱状に採取しスライスして分析することから流域の汚染史復元が可能である。そこで我々は熱帯アジア諸国で柱状堆積物を採取・分析し、汚染史を復元するプロジェクト（Tropical Asia Core (TACO) Project(タコプロジェクト))を行った。

2. 研究の目的

熱帯アジア複数国沿岸海域において柱状堆積物を採取し、有機・無機の汚染物質を分析し、熱帯アジア諸国における環境汚染史を復元する。これらの汚染史を各国の人口・工業生産等の社会経済情報、環境対策の施行状況と関連づけて考察し、熱帯アジアの環境汚染の科学的な理解（環境汚染の原因の特定と汚染のメカニズムの解明）を行う。そして、それに基づき、各国の環境汚染の将来予測、必要な環境汚染対策の提案、対策の効果の評価を行う。

3. 研究の方法

試料採取は、タイ（タイランド湾バンコク沖）、フィリピン（マニラ湾）、マレーシア（ジョホールバル海峡）、インドネシア（ジャカルタ湾）、ベトナム（ホーチミン沖）において行った。各国に松本式重力式コアサンプラー（コア直径 11 cm、ステンレス製ダブルキャッチャー、25 kg の錘 2 個装着）を空路携行し、現地でウインチ付きの船を備船し、各国で長さ 50cm～100 cm の柱状堆積物を採取した。採取した堆積物は船上で 1cm あるいは 2cm 間隔でスライスし、各層をステンレス製保存容器に入れ、冷凍状態で日本に輸送した。試料の一部を使い、現地研究室で含水率、bulk density を測定した。

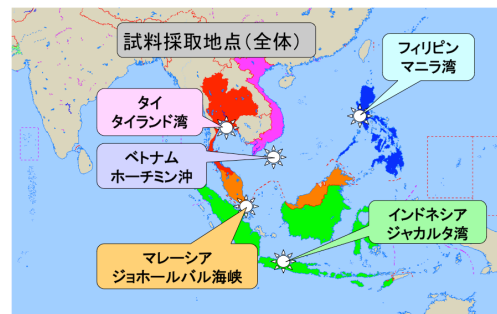


図 1. 柱状堆積物採取地点

今回対象とした成分は合成洗剤成分のアルキルベンゼン（直鎖型: LABs, 分枝型: Branched AB）、自動車の潤滑油等に含まれている Hopanes、石油汚染・化石燃料の燃焼により生成する多環芳香族炭化水素類(PAHs)である。堆積物試料を凍結乾燥後、乾燥泥 2～4g を高速溶媒抽出装置(ASE)で抽出し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーによる分画・精製後、GC-MS により同定・定量した。堆積速度は放射線核種 (^{210}Pb , ^{137}Cs) の測定から推定した。

4. 研究成果

マニラ湾、ジョホールバル海峡、ジャカルタ湾、ホーチミン沖、そしてタイランド湾 (GT15) における Hopanes の各コア中の最高濃度との比を図 2 に示す。表層に向けての上昇傾向が見られるタイランド湾、ジョホールバル海峡、ホーチミン沖に対し、マニラ湾は中層で濃度を上昇させた後、上層では横ばいの推移となっており、石油汚染の進行の歴史に差異がある可能性を示唆した。またジャカルタ湾は Hopanes においては大きな濃度変化は見られなかった。また Hopanes はその組成から石油の産地推定を行うことが可能である。本研究ではその指標の一つである C31-35 / C30 を用

いた。この指標は低ければ東南アジア産、高ければ中東産石油起源であることを示すが、今回の分析ではタイランド湾のみ他に比べて低い値となった。タイを除く各国では現在、中東産石油がその原料とされる自動車の潤滑油の寄与が強いことが報告されており、今回の結果はその報告と符号する。さらにマニラ湾においては 30cm 台後半の層でその組成を中東産石油にシフトする動きが見られ、この時期に潤滑油汚染が進行した可能性が示唆された。

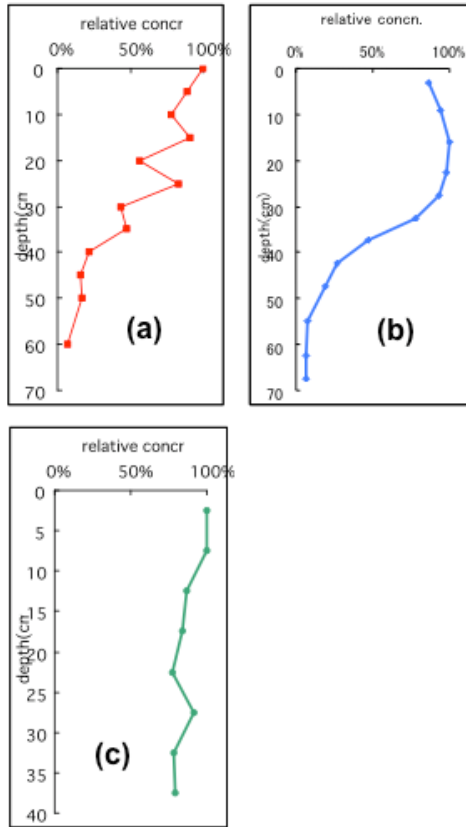


図 2. 柱状堆積物中の Hoapnes の鉛直分布。(a) タイランド湾、(b) マニラ湾、(c) ジャカルタ湾

[PAHs]

PAHs においても同様に各コアにおける濃度比で結果を表した (図 3)、過去に上昇期を持ち表層付近ではほぼ横ばいの推移を見せるマニラ湾、タイランド湾に対し、ジョホールバル海峡においては表層に向かっての濃度上昇が見られた。またホーチミン沖は過去にピークを持ち、表層付近ではピーク時の 65%前後の濃度を示した。またジャカルタ湾は PAHs でも今回採取された 40cm までの深さでは大きな推移を見せなかった。また起源推定の指標である Pyr/Fluo を計算した。この指標は小さければ燃焼由来、大きければ石油由来の PAHs の寄与が強いことを示すが、今回の分析ではマニラ湾、タイランド湾においてコア中で燃

焼紀元から石油起源への変化が見られた。これは採取された水域の集水域での汚染源が変化した結果であると考えられる。特にマニラ湾のコアではこの変化時期が Hopanes の上昇時期と一致し、この組成変化には潤滑油の寄与が大きい可能性を示唆した。またホーチミン沖では一貫して比が燃焼由来を示す低い値を取っているが、市内運河では石油起源の汚染が確認されている。これは今回のコアの結果は採取地が陸から離れ、石油汚染の影響が弱まったためである可能性がある。

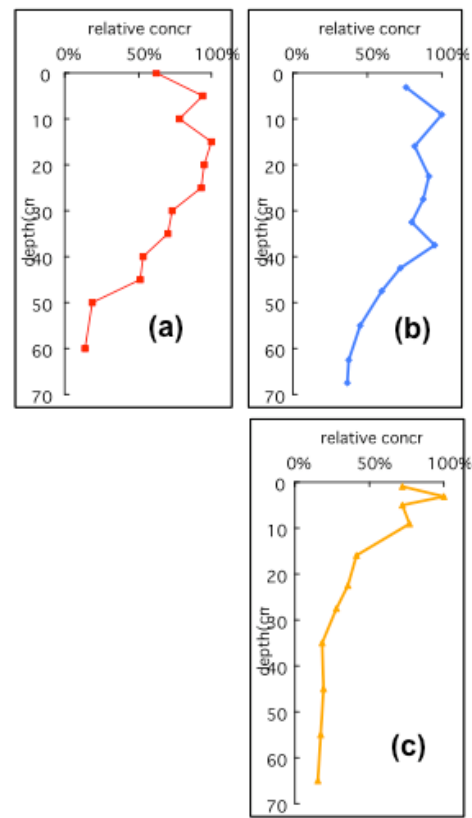


図 3. 柱状堆積物中の PAHs の鉛直分布。(a) タイランド湾、(b) マニラ湾、(c) ジャカルタ湾

[LABs]

LABs (図 4) においては、マニラ湾を除く 3 本のコアが表層にて最高値を示したのに対し (ホーチミン沖は検出限界以下)、マニラ湾は中層にピークを持ち、表層ではその 60%程度の濃度となった。LABs の分解指標である I/Eratio は通常外部要因に変化がなければ堆積後も分解が緩やかに続くため、タイランド湾のように下層になるに従ってその値は大きくなる。しかしマニラ湾、ジャカルタ湾においては表層で最も大きな値を示した。これは近年これらの地域で下水処理施設が普及・発達したためであると考えられる。さらにジョホールバル海峡においては中層で明らかな傾

向の変化を見せた。これはタイランド湾と同様、分解の結果下層になるに従って分解が進むが、一定の時期より前に堆積したものに関しては下水処理を受けていないため I/E ratio が著しく低くなった結果である可能性がある。

[TABs]

マニラ湾、タイランド湾、ジャカルタ湾においては難分解性のため現在世界の多くで使用されていない TABs も検出された。GT15 における濃度推移からはタイでは過去には多く使われたものの現在の使用は激減していることが示唆されるが、マニラ湾、ジャカルタ湾に関しては表層でも著しい減少は見られず、特にジャカルタ湾ではほぼ横ばいの推移となり、これらの地域では現在も TABs の使用が続いている可能性が示唆された。

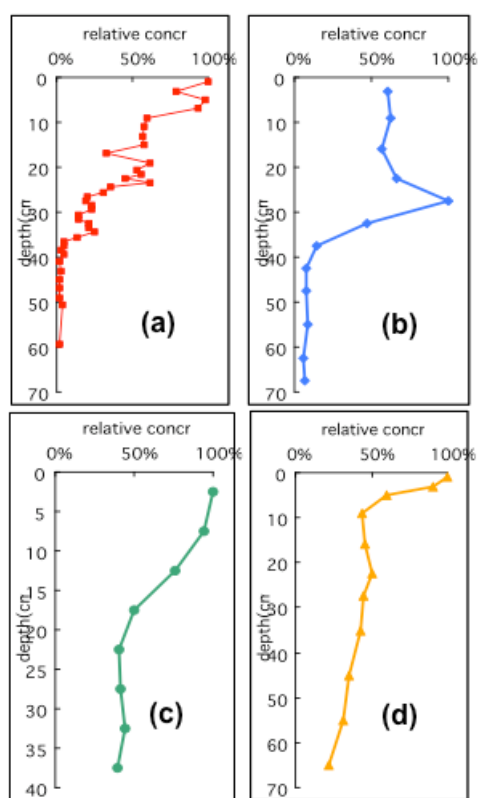


図4. 柱状堆積物中の Linear alkylbenzenes (LABs) の鉛直分布。(a) タイランド湾、(b) マニラ湾、(c) ジャカルタ湾、(d) ジョホールバル海峡

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計3件)

- ① Sources of sedimentary PAHs in tropical Asian waters: differentiation between pyrogenic and petrogenic sources by alkyl homolog abundance. Mahua Saha, Ayako Togo, Kaoruko Mizukawa,

Michio Murakami, Hideshige Takada, Mohamad P. Zakaria, Nguyen H. Chiem, Bui Cach Tuyen, Maricar Prudente, Ruchaya Boonyatumanond, Santosh Kumar Sarkar, Badal Bhattacharya, Pravakar Mishra, Touch Seang Tana, *Mar. Pollut. Bull.* vol.58, p.189-200, 2009.

- ② Sources of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in street dust in a tropical Asian mega-city, Bangkok, Thailand. Ruchaya Boonyatumanond, Michio Murakami, Gullaya Wattayakorn, Ayako Togo, Hideshige Takada. *Sci. Total Environ.*, vol. 384, p.420-432, 2007.

- ③ Reconstruction of pollution history of organic contaminants in the upper Gulf of Thailand by using sediment cores: first report from Tropical Asia Core (TACO) project. Ruchaya Boonyatumanond, Gullaya Wattayakorn, Atsuko Amano, Yoshio Inouchi, Hideshige Takada. *Mar. Pollut. Bull.*, vol.54, p.554-565, 2007.

[学会発表] (計2件)

- ① Distribution and source identification of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in aquatic environment in India. M. Saha, H. Takada, and B. Bhattacharya, *2nd International conference on Ecotoxicology & Environmental Sciences*, Kolkata (India), December 15, 2009.

- ② Distribution of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in tropical Asian countries. M. Saha, H. Takada, and B. Bhattacharya, *18th symposium on Environmental Chemistry* Tsukuba, (Japan), June 10th, 2009.

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

○取得状況 (計0件)

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

高田 秀重 (TAKADA HIDEHIGE)

東京農工大学・大学院共生科学技術研究院・教授

研究者番号：70187970

(2) 研究分担者

渡邊 泉 (WATANABE IZUMI)

東京農工大学・大学院共生科学技術研究
院・准教授
研究者番号：30302912

(3) 研究分担者

加藤 義久 (KATOH YOSHIHISA)
東海大学・海洋学部・教授
研究者番号：00152752

(4) 連携研究者

大地 まどか (OHJI MADOKA)
東京農工大学・大学院共生科学技術研究
院・准教授
研究者番号：40447511