

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 4 月 27 日現在

機関番号：17301

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2009～2011

課題番号：21404005

研究課題名（和文）東アジアにおける大気越境化学物質の動態および生物影響に関する国際的調査

研究課題名（英文）International research on the transboundary air pollution in East Asia

研究代表者

長江 真樹 (NAGAE MASAKI)

長崎大学・大学院水産・環境科学総合研究科・准教授

研究者番号：00315227

研究成果の概要（和文）：東アジアにおける越境大気汚染の現状を明らかにする目的で、韓国（済州島）および日本（長崎、沖縄）において周年的に大気を捕集し、PAHs 類の微量分析および生物影響を調べた。その結果、冬期に捕集されるサンプルに強い毒性が認められ、またそれら冬期のサンプル中の PAHs 濃度が高いことが明らかにされた。これら冬期に捕集された大気は、主に中国東北部に由来することが後方流跡線解析から明らかとなり、高い毒性は越境大気の影響によるものと示唆された。しかし、これら毒性に対する PAHs の寄与率は高々10%であり、他の毒性物質の探索が今後の課題となった。

研究成果の概要（英文）：This study focused on the transboundary air pollution in East Asia. Air samples were collected both in Korea (Jeju island) and Japan (Nagasaki and Okinawa). PAHs concentration in the air samples collected in winter were higher than those collected in other seasons. Toxicity (genotoxicity and acute toxicity) of the same samples were also higher in winter. Backtrajectory analysis revealed the air mass collected in Nagasaki in winter was originally from northwest China. These results suggest that PAHs was one of the causative toxicants and they originated in northeast China. However, contribution rate of PAHs to total toxicity was about 10% at most, it will be need to search another toxicants contained in transboundary air.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	6,800,000	2,040,000	8,840,000
2010 年度	3,300,000	990,000	4,290,000
2011 年度	3,300,000	990,000	4,290,000
年度			
年度			
総計	13,400,000	4,020,000	17,420,000

研究分野：化学

科研費の分科・放射線・化学物質影響科学

キーワード：大気越境汚染・生物影響評価・化学物質・PAHs

1. 研究開始当初の背景

東アジア諸国、特に中国の著しい経済発展により、極めて多様な化学物質が環境中に多量に放出され、それぞれの国で深刻な環境悪化を招いている。このうち、大気中に放出された化学物質はその当該国のみならず、気流を介して容易に越境し近隣国へも影響をもたらすと考えられている。実

際に近年、九州西部の数県で光化学スモッグ警報が発せられ、運動会や各種イベントなどの中止が報道された。この原因は、中国大陸由来の排ガスなどに含まれる窒素酸化物や揮発性有機化合物と考えられているが、その因果関係は証明されていない。

これまで、中国大陸から越境する大気汚染物質に関する研究では、黄砂および酸性

雨に関するものが殆どであり、気流を介してもたらされる化学物質に関しては未解明な点が多い。それは、黄砂や酸性雨に関する研究では、既存の観測点において計測項目を自動分析しデータのみを送信するシステムが確立されており、比較的容易にデータ収集および解析が可能であるのに対して、越境化学物質に関しては、大気サンプルの捕集・定性定量分析・生物影響評価を関係諸国協力のもと、それぞれ連動的に実施する必要がある。国際的研究ネットワークの構築を含めた研究体制整備が、当該研究分野の推進にとって大きなハードルとなっているのが現状である。

2. 研究の目的

そこで、上述のような複数諸国に跨って発生する化学物質による大気汚染のメカニズムや生物影響を明らかにすることを目的とし、「東アジアにおける大気越境化学物質の動態および生物影響に関する国際的調査」を行った。

3. 研究の方法

本研究は、1) 捕集した大気に含まれる有害有機化合物の定性および定量分析、2) 捕集大気からの抽出成分を用いた生物影響評価試験、3) 気団の起源推定 の大きな3項目から構築され、越境大気に含まれる化学物質、特に主に化石燃料の不完全燃焼によって発生する多環芳香族炭化水素類 (PAHs) の微量分析を行うとともに、多角的な視点からその生物影響を解析した。

大気試料は、長崎県西彼杵半島県民の森、韓国済州島ハンナラ山、沖縄県国頭村森林公園においてハイボリュームエアサンプラーにより捕集した。フィルターから溶媒により回収した大気抽出液を用いて、GC/MS-MS により PAHs 濃度 (PAHs, O-PAHs および N-PAHs) を測定し、それらの季節変動を明らかにした。

また同試料を用いて、サルモネラ菌を用いた遺伝子毒性評価試験 (*umu* 試験)、ミジンコ遊泳障害試験、土壌微生物活性試験および昆虫行動影響試験をそれぞれ実施し、これら生物毒性と PAHs 濃度との相関を明らかにした。

さらに捕集した大気の起源推定のため、後方流跡線解析を行い、PAHs 濃度あるいは生物毒性の季節変化の気団起源の関係についても考察した。

4. 研究成果

(1) 捕集大気中PAHs濃度の季節変化

各地点で捕集した大気に含まれる PAHs 濃度の季節変化を図1に示す。PAHs 濃度は、何れの地点においても、夏に低値で推移し、秋にやや増加した後、冬に高値を示したことから、明瞭な季節変動が認められた。また、同地点における

O-PAHs および N-PAHs 濃度の季節変動は、PAHs のそれとよく一致した (図2)。

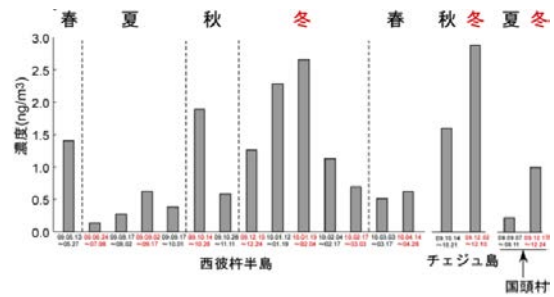


図1. 各地点で捕集した大気中の PAHs 濃度の季節変化

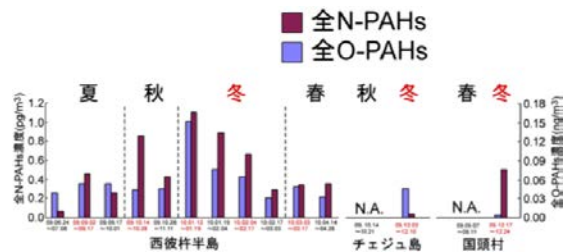


図2. 各地点で捕集した大気中の N-PAHs および O-PAHs 濃度の季節変化

(2) 気団の後方流跡線解析

前記(1)で PAHs 濃度の季節変化を明らかにしたが、それら捕集大気の起源を推定するために、各捕集期間における気団の後方流跡線解析を行った。図3に長崎県西彼杵半島の後方流跡線解析結果を示す。冬期には、多くの大気が中国北東部に由来し、その起源が限定的であるのに対し、特に夏期では全方位からの流入が認められた。

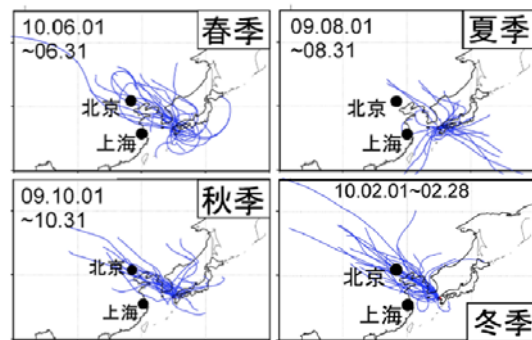


図3. 捕集大気の後方流跡線解析結果

(3) 捕集大気中の遺伝子毒性 (遺伝子損傷性) 評価

a. *umu*-testによる遺伝子毒性評価

前記の PAHs 濃度測定行ったものと同時期に得られた試料を用いて、*umu*-testによる遺伝子毒性を評価した (図4)。図中の GA 値は元の捕集大気 1m³ あたりの遺伝子毒性を、4-NQO 値は陽性対照として用いた 4-ニトロキノリン-1-オキシドの毒性として換算した

ときの濃度 (ng/m³) をそれぞれ示している。遺伝子毒性は、冬期に極めて高い値を示したが、それ以外の季節においては低値で推移し、先に述べた PAHs 濃度の季節変動とよく相関した。

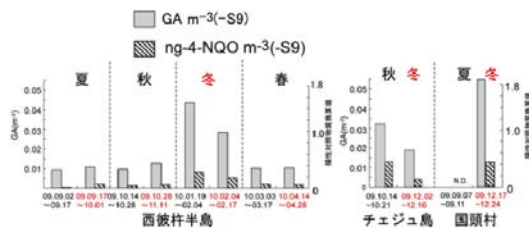


図4. 各地点で捕集した大気遺伝子毒性の季節変化

b. ミジンコ遊泳阻害試験を用いた捕集大気の毒性評価

OECDテストガイドライン202 (ミジンコ類急性遊泳阻害試験) を用いて、捕集大気的一般毒性についても解析した。本試験結果は、48時間曝露における半数致死濃度 (EC50値) の逆数値で表した。

捕集大気のみジンコに対する急性毒性は、上記の遺伝子毒性同様、冬期に顕著に顕著に高く、それ以外の季節においては低値であった (図5)。

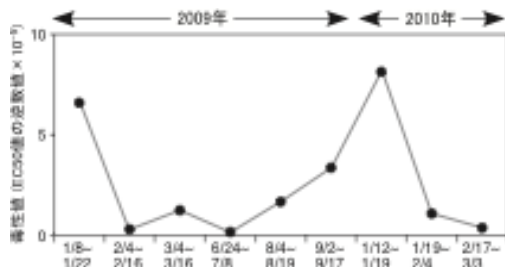


図5. 西彼半島で捕集した大気のみジンコ急性毒性の季節変化

c. 土壌微生物に及ぼす捕集大気の影響

大気抽出物を種々の濃度で土壌の硝化菌集積液に加え、硝酸生成量を測定した。添加大気量100m³/ml培養液の条件で生成硝酸量が低下する事例が多く認められたが、測定値のばらつきが大きく、有意差を認めることは稀であった。

また、土壌からの分離菌株に大気抽出物を添加し、呼吸活性 (TTC還元デヒドロゲナーゼ活性) を測定したところ、多くの菌株では低下したものの、一部菌株では上昇したことから、大気物質によって土壌の微生物集団の種構成が影響を受ける可能性が示唆された。

d. 昆虫の嗅覚連合学習に及ぼす捕集大気の影響

大気抽出物をフタホシココロギに急性投与し、嗅覚連合学習に対する影響を調べた。抽出物を助剤であるジメチルスルホキシド (

DMSO) に溶解後、生理食塩水で希釈して投与溶液を調整し、学習訓練30分前に体腔内注入した。投与量は大気量換算で 2.136 m³と21.36 m³ の2種類設けた。また対照実験として、生理食塩水のみ (対照群1) および生理食塩水+DMSO (対照群2) の2種類を設けた。訓練後に形成された記憶の程度を表す指標は、何れの投与においても対照群1>対照群2>抽出物投与群の順に低下する傾向が見られたが、全群ペア間で統計学的有意差は認められなかった。より影響の少ない助剤を検討するとともに、抽出物の投与量とサンプル数をさらに増やすことが今後の課題として考えられた。

大気に含まれる化学物質の成分分析および生物影響評価 (遺伝子毒性評価試験およびミジンコ遊泳阻害試験) の結果から、冬期に捕集されるサンプルに比較的強い毒性が認められ、またそれら冬期のサンプル中の多環芳香族炭化水素類 (PAHs) の濃度が有意に高いことが明らかにされた。さらに、これら冬期に捕集された大気は、主に中国東北部で発生し、季節風により長崎にもたらされたことが示唆された。

しかし、これら毒性への PAHs の寄与率は高々10%程度に過ぎず、残りの毒性をもたらす物質については未知のままである。今後は、これら生物毒性に寄与する化学物質の網羅的解析が必要であると考えられた。

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9件)

1. Endo S., Takatsuji T., Kimura S., Nanasawa K., Imanaka T. and Shizuma K. Measurement of soil contamination by radionuclides due to the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident and associated estimated cumulative external dose estimation. *Journal of Environmental Radioactivity*, In Press.
2. Kawamoto K. and Suzuki K. Microphysical transition in water clouds over the Amazon and China derived from space-borne radar and radiometer data. *J. Geophys. Res.*, (2012), 117, D05212, doi:10.1029/2011JD016412.
3. Kawamoto K. and Hayasaka T. Cloud and aerosol contributions to variation in shortwave surface irradiance over East Asia in July during 2001 and 2007. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 112:329-337 (2011)
4. Nishikawa M., Mori I., Takahashi K., Matsui I., Sugimoto N., Kawamoto K., Wang Y. and Dong S. Short-Term Variations in Aerosol

Components during the Same Asian Dust (Kosa) Event Observed in Nagasaki, Japan and Beijing, China. *SOLA*, 7A:9-12 (2011)

5. 兼保直樹, 高見昭憲, 佐藤圭, 島山史郎, 林政彦, 原圭一郎, 河本和明, 山本重一 九州北部の離島および大都市部におけるPM_{2.5}濃度の通年での挙動. *大気環境学会誌*, 46:111-118 (2011)
6. Kawamoto K. and Hayasaka T. Geographical features of changes in surface shortwave irradiance in East Asia estimated using the potential radiative forcing index. *Atmospheric Research*, 96:337-343 (2010)
7. Yamamoto S., Otsuka S., Murakami Y., Nishiyama M. and Senoo K. Genetic diversity of gamma-hexachlorocyclohexane-degrading sphingomonads isolated from a single experimental field. *Letters in Applied Microbiology*, 49(4):472-477 (2009)
8. 西山雅也, 妹尾啓史 “土壌の物理的構造と細菌のすみか” *日本生物工学会誌*, 87(9):419-421 (2009)
9. 松本洋平, 本間信, 田浦慎太郎, 世良耕一郎, 高辻俊宏 大気中浮遊物質に含まれる放射性同位元素と金属元素の関係. NMCC (仁科記念サイクロトロンセンター) 共同利用研究成果報文集, 16:138-151 (2009)

[学会発表] (計 24 件)

1. 河本和明, 鈴木健太郎 “CloudSat と MODIS データを用いたアマゾンと中国における低層水雲特性の比較” 日本気象学会2011年度春季大会, 2011年5月21日, 東京.
2. Kawamoto K. and Suzuki K. “Microphysical properties of water clouds over the Amazon and China derived from CloudSat and MODIS” The 2nd International Symposium on Atmospheric Light Scattering and Remote Sensing, Lanzhou, China, 2011, June 20th.
3. YU Tao, 久保 隆, 郭 雪松, 伊藤剛史, 山中潤二, 梁 媛, 山城詩織, 長江真樹, 西山雅也, 岡田二郎, 河本和明, 高辻俊宏, 武政剛弘, Yeo In-Kyu, Lee Ki-Ho, Lee Young-Don, 高尾雄二 “越境大気中の多環芳香族化合物類とその遺伝子毒性の季節変動” 第52回大気環境学会年会, 2011年9月14日, 長崎.
4. 高尾雄二, 山中潤二, Yu Tao, Liang Yuan, 久保隆, 長江真樹, 西山雅也, 岡田二郎, 河本和明, 高辻俊宏, 武政剛弘, Yeo In-Kyu, Lee Ki-Ho, Lee Young-Don “越境大気中の遺伝子毒性における多環芳香族炭化水素化合物の寄与

率”, 第52回大気環境学会年会, 2011年9月14日, 長崎.

5. 宮城久明, Yu Tao, 山中潤二, 土屋裕志, 伊藤剛史, 郭雪松, 高尾雄二, 久保隆, 岡田二郎, 河本和明, 高辻俊宏, 西山雅也, 武政剛弘, 長江真樹 “越境大気中 PAHs のミジンコ急性毒性” 第52回大気環境学会年会, 2011年9月14日, 長崎.
6. 袁軍, 松本洋平, 本間 信, 世良耕一郎, 高辻俊宏 “大気中浮遊物質に含まれる放射性同位元素と安定元素の関係” 第52回大気環境学会年会, 2011年9月14日, 長崎.
7. 河本和明, 鈴木健太郎 “アマゾンと中国における水雲粒子遷移のリモートセンシング解析” 第52回大気環境学会年会, 2011年9月16日, 長崎.
8. 杉町誓児, 吉富絵美, 松本幸久, 水波誠, 岡田二郎 “コオロギの嗅覚連合学習に対するカフェインの影響” 第14回環境ホルモン学会研究発表会, 2011年12月2日, 東京.
9. Kawamoto K., “Vertical characteristics of liquid hydrometers in view of column cloud droplet number” A-train symposium, New Orleans, LA, 2010, October 26th.
10. Kawamoto K., “Temporal and spatial variations of atmospheric (clouds and aerosols) contributions to shortwave surface irradiance in East Asia” AMS Cloud and Radiation meeting, Portland, OR, 2010, June 28th.
11. 松本洋平, 高辻俊宏 “大気中浮遊物質に含まれる放射性同位元素と金属元素の関係” 第16回 NMCC共同利用研究発表会, 2010年5月14日, 盛岡.
12. 土屋裕志, 伊藤剛史, 郭雪松, 鏑迫典久, 高尾雄二, 久保隆, 岡田二郎, 河本和明, 高辻俊宏, 西山雅也, 武政剛弘, Yeo In-Kyu, Lee Ki-Ho, Lee Young-Don, 長江真樹 “長崎県西彼半島で捕集した大陸越境化学物質のミジンコ急性遊泳阻害” 第51回大気環境学会年会, 2010年9月8日, 大阪.
13. 郭雪松, 山中潤二, Yu Tao, 三浦嘉仁, 荒木一清, 長江真樹, 久保隆, 西山雅也, 岡田二郎, 河本和明, 高辻俊宏, 武政剛弘, 高尾雄二 “長崎、沖縄、チェジュ島で捕集した越境大気中の多環芳香族化合物濃度の季節変動” 第51回大気環境学会年会, 2010年9月8日, 大阪.
14. 松本洋平, 高辻俊宏, 高尾雄二, 長江真樹, 河本和明, 西山雅也, 岡田二郎, 武政剛弘, 久保

- 隆, 世良耕一郎“大気浮遊物質に含まれる放射性同位元素と金属元素の関係”第51回大気環境学会年会, 2010年9月8日, 大阪.
15. 久保隆, 伊藤剛史, 郭雪松, 桑原和子, 長江真樹, 高良真也, 西山雅也, 岡田二郎, 河本和明, 高辻俊宏, 武政剛弘, 高尾雄二 “長崎、沖縄、濟州島における越境大気中の難揮発性有機化学物の遺伝子毒性”第19回環境化学討論会, 2010年6月21日, 春日井.
16. 土屋裕志, 伊藤剛史, 郭雪松, 高尾雄二, 久保隆, 岡田二郎, 河本和明, 高辻俊宏, 西山雅也, 武政剛弘, Yeo In-Kyu, Lee Ki-Ho, Lee Young-Don, 長江真樹 “ミジンコを用いた東アジアにおける越境大気中化学物質の毒性影響に関する研究”第13回環境ホルモン学会研究発表会, 2010年12月16日, 東京.
17. 郭雪松, 伊藤剛史, 山中潤二, Yu Tao, 長江真樹, 久保隆, 西山雅也, 岡田二郎, 河本和明, 高辻俊宏, 武政剛弘, 高尾雄二 “越境大気中に含まれる多環芳香族炭化水素化合物濃度と遺伝子毒性の関連”第13回環境ホルモン学会研究発表会, 2010年12月17日, 東京.
18. 高尾雄二, 石田剛志, 伊藤剛史, 郭雪松, 久保隆, 長江真樹, 高良真也, 西山雅也, 岡田二郎, 河本和明, 高辻俊宏, 武政剛弘 “長崎で捕集された越境PAH類の化学分析と後方流跡線解析”第18回環境化学討論会, 2009年6月10日, 熊本.
19. Kawamoto K. “Estimating the contributions of atmospheric parameters on the surface shortwave irradiance changes in East Asia” International Symposium on Atmospheric Light Scattering and Remote Sensing, Xi’an, 2009, July 13th.
20. Kawamoto K. “Applying the index of potential radiative forcing to quantify relative contribution of atmospheric parameters to the surface shortwave irradiance” International Association of Meteorology and Atmospheric Sciences, Montreal, 2009, July.
21. 河本和明 “中国・日本海域の短波放射線量変動の要因解析”第3回環日本海域環境シンポジウム, 2009年10月28日, 金沢.
22. 河本和明 “東アジアにおける短波放射変動に対する雲・エアロゾル・水蒸気の寄与の地理分布”日本気象学会2009年度秋期大会, 2009年11月25日, 福岡.
23. 土屋裕志, 伊藤剛史, 鑓迫典久, 高尾雄二, 久保隆, 岡田二郎, 河本和明, 高辻俊宏, 西山雅也, 武政剛弘, 長江真樹 “ミジンコを用いた大
- 陸由来化学物質の生体影響評価に関する研究”第12回環境ホルモン学会研究発表会, 2009年12月7日, 東京.
24. 伊藤剛史, 郭雪松, 荒木一清, 山城詩織, 久保隆, 長江真樹, 高良真也, 西山雅也, 岡田二郎, 河本和明, 高辻俊宏, 武政剛弘, 高尾雄二 “長崎県西彼杵半島で捕集した浮遊粒子状物質およびガス状物質の遺伝子毒性”第12回環境ホルモン学会研究発表会, 2009年12月8日, 東京.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

長江 真樹 (NAGAE MASAKI)

長崎大学・大学院水産・環境科学総合研究科・准教授

研究者番号: 00314227

(2) 研究分担者

高尾 雄二 (TAKAO YUJI)

長崎大学・大学院水産・環境科学総合研究科・教授

研究者番号: 20206709

久保 隆 (KUBO TAKASHI)

長崎大学・産学官連携戦力本部・助教

研究者番号: 40397089

岡田 二郎 (OKADA JIRO)

長崎大学・大学院水産・環境科学総合研究科・准教授

研究者番号: 10284481

河本 和明 (KAWAMOTO KAZUAKI)

長崎大学・大学院水産・環境科学総合研究科・准教授

研究者番号: 10353450

高辻 俊宏 (TAKATSUJI TOSHIHIRO)

長崎大学・大学院水産・環境科学総合研究科・准教授

研究者番号: 70163219

西山 雅也 (NISHIYAMA MASAYA)

長崎大学・大学院水産・環境科学総合研究科・准教授

研究者番号: 50263801

