

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 27 年 6 月 5 日現在

機関番号：17301

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24404007

研究課題名(和文) 東アジア越境大気汚染がもたらす生物影響とその原因物質探索に関する国際的調査

研究課題名(英文) International investigation of transboundary air pollution in East Asia

研究代表者

長江 真樹 (NAGAE, Masaki)

長崎大学・水産・環境科学総合研究科(環境)・教授

研究者番号：00315227

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,800,000円

研究成果の概要(和文)：東アジアにおける越境大気汚染による毒性影響ならびにその原因物質探索のため、以下の解析を行った。

越境大気に含まれるPAHs濃度は、これまでと同様に冬季に高く夏季に低い季節変化を示した。また、同試料の生物毒性も、化学分析値と同様に冬季に高く夏季に低い結果となった。この毒性の一端は、PAHs がもたらすことは以前から判明しているが、それ以外の毒性物質は未同定である。そこで新規毒性物質探索のため、HPLC/Q-TOFを用いたスクリーニング分析を行った結果、1,8-Naphtalic anhydride, Atrazine, Norharmanなどの毒性物質が比較的多く含まれていることが明らかとなった。

研究成果の概要(英文)：In this study, air samples were collected, and seasonal changes in the concentration of poly-aromatic hydrocarbons (PAHs) were monitored. In addition, changes in the toxicity of chemicals contained in these samples were investigated using several biological tests. Back trajectory analysis revealed that air mass was crossing over to Nagasaki from Northern part of China mainly in winter, but it was not seen during summer season. From toxicity test, toxic levels of airborne chemicals collected at Nagasaki seemed to be high during winter period. Microanalysis revealed PAHs concentrations were also high in winter. There was high seasonal correlation between the toxicity and PAHs concentration. From these results, it was suggested that PAHs was one of the major toxicant contained in transboundary air. In addition, high sensitive microanalysis (HPLC/Q-TOF) detected a few candidates for the new toxicant.

研究分野：環境科学

キーワード：越境大気汚染 生物毒性 東アジア PAHs 微量分析

### 1. 研究開始当初の背景

東アジア、主に中国大陸で発生し越境して近隣諸国にもたらされる化学物質による大気汚染は深刻化しつつあるが、その詳細な因果関係や生態系への影響等に関する知見は未だ乏しい。

我々の研究グループは、2009 から 2011 年度までの 3 年間、科研・基盤 B (海外学術調査) に採択され、東アジアの越境大気汚染に関する国際的調査を実施した。その結果、化石燃料等の燃焼によって発生する多環芳香族炭化水素 (PAHs) が主に中国大陸から冬期に顕著に越境飛来すること、またこれら PAHs が生体の遺伝子損傷や急性毒性を引き起こすことなどを示唆した。

### 2. 研究の目的

上述したように、我々のこれまでの研究から、化石燃料等の燃焼によって発生する多環芳香族炭化水素 (PAHs) が主に中国大陸から冬期に顕著に越境飛来し、これら PAHs が生体の遺伝子損傷や急性毒性を引き起こすことなどを示唆した。しかし、それら生物影響に対する定量分析対象の PAHs の寄与率は高々 10% 程度であり、残り 90% 程度の大部分の毒性をもたらす原因化学物質あるいは毒性発現メカニズムについては未知である。本研究では、越境大気に含まれる未知の毒性物質の探索および毒性発現メカニズムの理解を目的とした。

### 3. 研究の方法

韓国および日本においてエアサンプラーを設置し、一週間単位で気団中の化学物質を捕集する。捕集した化学物質は抽出液として回収し、以下に示す化学分析ならびに生体影響評価 (毒性評価) 行う。

#### 有害有機化合物の定性および定量分析

主に HPLC/MS-MS を用い、抽出液に含まれるに産業活動に由来する有機化合物の分析を行う。化学物質を含む粗抽出液をクロマトグラフィー等により画分化し、下記の生物影響試験において生物毒性が高いと判定された個々の画分について詳細な化学分析を行い、化学分子種の定性および定量を進める。

#### ミジンコを用いた毒性評価試験

OECD テストガイドライン 202 (TG202: ミジンコ急性遊泳阻害試験) を用いて、捕集大

気抽出液をオオミジンコに曝露し、急性毒性を評価する。また、慢性毒性 (繁殖毒性) を明らかにする必要がある場合は、TG211 (ミジンコ繁殖試験) を行うことも視野に入れている。

#### サルモネラ菌を用いた遺伝子毒性試験

サルモネラ TA1535/pSK1002 株を用いた umu 試験により抽出液の遺伝子毒性 (遺伝子損傷性) を評価する。

#### 昆虫を用いた学習・行動異常解析

フタホシコオロギに捕集大気サンプル抽出物を投与し、学習行動、生殖行動、社会行動等の変容についてビデオ画像解析等により調べることにより、昆虫に対する行動生理学的影響を明らかにする。

#### 化学物質が土壌微生物に与える影響解析

大気抽出物質が土壌に加わることにより引き起こされる土壌の硝化活性、デヒドロゲナーゼ活性、 $\beta$ -グルコシダーゼ活性の変動について、微生物集団構成の観点から検討する。これにより、例えば、硝化菌群の中でも影響を受けやすいグループ、あるいは呼吸活性に影響を受けやすい細菌群などが明らかにされ、物質循環がかく乱され易い土壌に関する微生物学的な情報を得る。

### 4. 研究成果

#### 有害有機化合物の定性および定量分析

越境大気粒子状物質中に含まれる PAHs 濃度を分析したところ、これまでと同様に冬季に高濃度で夏季に低濃度、春季と秋季にはその中間程度の濃度を示した (図 1. 棒グラフ)。大気の後方流跡線解析では、冬期に顕著な東向きの気流が認められ (図 2)、これら PAHs は主に中国大陸で発生したものと推察された。

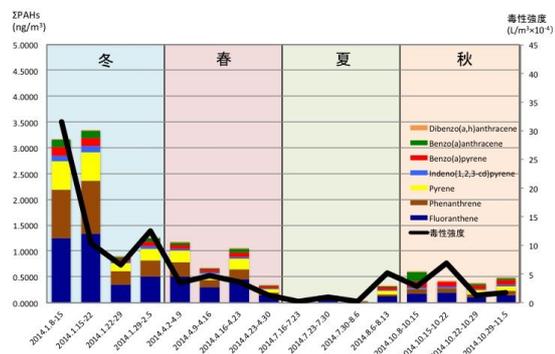


図 1. 越境大気中の主要 PAHs (棒グラフ) およびミジンコ急性毒性の季節変化

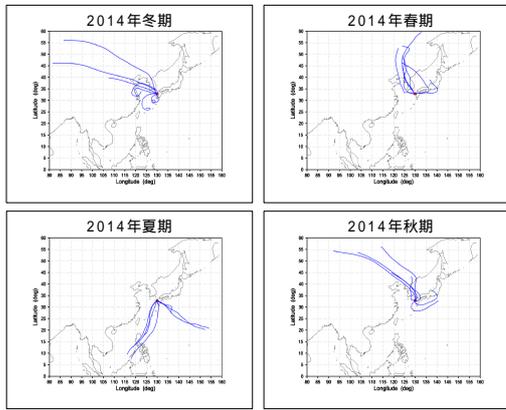


図2 . 各季節での気塊の後方流跡線解析結果

### ミジンコ急性毒性の季節変化

上記 PAHs 濃度の季節変化と同様、ミジンコ急性毒性についても、冬期に高く夏期に低いという顕著な季節変化が認められた（図2 . 折れ線グラフ）。

### 遺伝子毒性の季節変化

遺伝子毒性（DNA 損傷性）についても、PAHs およびミジンコ毒性と同様の傾向を示し、冬期に高く夏期に低い結果であった。

### コオロギの学習記憶への影響

大気抽出物をコオロギに投与し、嗅覚学習に対する影響を調査した結果、春期および夏期のサンプルでは影響が認められなかったのに対し、秋期に初めて学習阻害の傾向が見られ始め、冬期のサンプルでは有意な阻害が検出された。

### 土壌微生物に及ぼす影響

大気捕集化学物質のうち、水溶性物質において土壌のデヒドロゲナーゼ活性抑制効果が認められた。このことは、水溶性大気汚染物質の土壌への沈着が微生物相を改変させる可能性を示唆している。

### 新規毒性物質の探索

大気捕集物質をクロマトグラフィーにより15 画分に分け、それぞれに対して遺伝子毒性およびミジンコ急性毒性を明らかにした。両毒性が最も高かったフラクションは異なっており、両毒性の原因物質が異なることが示唆された。ミジンコ毒性が最も高かったフラクションには多くの PAHs が含まれており、遺伝子毒性のそれには PAHs よりもやや極性の高い化学物質が含まれていた。フラクション中の化学物質を HPLC/Q-TOF を用いて分析し

た結果、遺伝子毒性の原因物質の候補として 1,8-Naphthalic anhydride, Atrazine, Norharman, Acenaphthoquinone, TPPA が検出された。

### 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6件）

Kawamoto K. and Suzuki K.

Distributional correspondence of 94-GHz radar reflectivity with the variation in water cloud properties over the northwestern Pacific and China, *J. Quant. Spectros. Radiat. Transfer.*, 査読有り, 153, 38–48 (2015)

doi:10.1016/j.jqsrt.2014.10.012

Michibata, T., Kawamoto K., and Takemura T. The effects of aerosols on water cloud microphysics and macrophysics based on satellite observations over East Asia and the Northern Pacific. *Atmos. Chem. Phys.*, 査読有り, 14, 11935–11948 (2014).

doi:10.5194/acpd-14-10515-2014

Kaneyasu, N., Yamamoto S., Sato K., Takami A., Hayashi M., Hara K, Kawamoto K., Okuda T. and Hatakeyama S. Impact of long-range transport of aerosols on the PM<sub>2.5</sub> composition at a major metropolitan area in the northern Kyushu area of Japan, *Atmospheric Environment*, 査読有り, 416–425 (2014). DOI:

10.1016/j.atmosenv.2014.01.029

Kawamoto K. and Suzuki K.

Comparison of water cloud microphysics over mid-latitude land and ocean using CloudSat and MODIS observations, *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 査読有り, 122, 13–24 (2013).

doi:10.1016/j.jqsrt.2012.12.013

袁軍, 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同位元素の関係, *NMCC 共同利用研究成果報文集*, 査読無し 18 (2013), 158-168

Kawamoto K. and Suzuki K. Difference in fractional occurrences of precipitation categories in terms of cloud properties,

AIP Conference Proceedings, 査読有り,  
1531, 424 (2013); doi: 10.1063/1.4804797

[学会発表](計18件)

河本和明, 鈴木健太郎 95-GHzレーダ反  
射率と水雲特性の頻度分布の関係. 日本気  
象学会 秋季大会, 2014年10月23日, 福岡  
国際会議場(福岡県・福岡市).

井崎大知, 梁媛, 今仁喜一, 高尾雄二, 長  
江真樹, 久保隆, 岡田二郎, 高辻俊宏, 西  
山雅也, 河本和明, 山口真弘 石英繊維フ  
ィルターで捕集した大気試料の保存性に関  
する毒性学および分析化学的検討 第  
55回大気環境学会, 2014年9月17日-19日,  
愛媛大学城北キャンパス(愛媛県・松山市).

今仁喜一, 久保隆, 梁媛, 長江真樹, 西山  
雅也, 岡田二郎, 河本和明, 高辻俊宏, 高  
尾雄二 越境大気のPAHs濃度と遺伝子毒  
性および輸送経路との関連 第55回大気  
環境学会, 2014年9月17日-19日, 愛媛大学  
城北キャンパス(愛媛県・松山市).

Kawamoto K. and Suzuki K. Difference  
in cloud properties as a function of cloud  
height viewed from CloudSat and  
MODIS. Asia Oceania Geosciences  
Society, 1<sup>st</sup> Aug, 2014, Sapporo (Japan).

Kawamoto K. and Suzuki K.  
Characterizing vertical structure of  
waterclouds using CloudSat and MODIS  
datasets. 14th Conference on Cloud  
Physics/14th Conference on Atmospheric  
Radiation American Meteorological  
Society, 9<sup>th</sup> July, 2014, Boston (USA).

Kawamoto K. and Suzuki K.  
Dependence of the drizzle growth process  
on the cloud top height and its relevance  
to the aerosol vertical profile, American  
Geophysical Union Fall meeting, 9-13th  
Dec 2013, San Francisco (USA).

河本和明, 鈴木健太郎 中緯度における水  
雲のドリズル成長過程の雲頂高度依存性,  
中緯度における水雲のドリズル成長過程の  
雲頂高度依存性, 日本気象学会秋季大  
会, 2013年11月19日-21日, 仙台国際セン  
ター(宮城県・仙台市)

Kawamoto K. and Suzuki K.  
Ocean-Land Contrast of the Precipitation  
Development in view of the Cloud Top  
Height, Sixth China-Korea-Japan Joint  
Conference on Meteorology, 23-25th  
October 2013, Nanjing (China).

井崎大知, 宮城久明, 久保隆, 平山貴大,  
斎藤友也, 梁媛, 高尾雄二, 西山雅也, 岡  
田二郎, 河本和明, 高辻俊宏, 長江真樹,  
長崎県で捕集された越境大気汚染物質のミ  
ジンコ急性毒性の季節変動とその原因物質  
の探索, 第54回大気環境学会, 2013年9月  
18日-20日, 新潟コンベンションセンター  
(新潟県・新潟市).

梁媛, 久保隆, 今仁喜一, 井崎大知, 長江  
真樹, 西山雅也, 岡田二郎, 河本和明, 高  
辻俊宏, 高尾 雄二 2013年冬季における  
長距離移動大気の遺伝子毒性, 第54回大気  
環境学会, 2013年9月18日-20日, 新潟コン  
ベンションセンター(新潟県・新潟市).

Kawamoto K. and Suzuki K.  
Precipitation categories and cloud  
vertical properties viewed from  
synergetic use of active and passive  
satellite sensors, International  
Symposium on Atmospheric Light  
Scattering and Remote Sensing 2013,  
29<sup>th</sup> July-2<sup>nd</sup> August 2013, Nagoya  
(Japan).

今仁喜一, 梁媛, 長江真樹, 有蘭幸司, 久  
保隆, 高尾雄二 2013年2月における越境  
大気中の多環芳香族化合物類の実態", 第  
22回環境化学討論会, 2013年7月31日-8月  
2日, 東京農工大学(東京都・府中市).

袁軍, 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19回 NMCC 共同利用研究  
成果発表会, 2013年5月17日-18日, 岩手  
医科大学(岩手県・盛岡市)

Kawamoto K. and Suzuki K.  
Investigation of water cloud  
microphysical transition over East Asia  
using active and passive satellite sensors,  
Joint Symposium on Science and  
Technology between Jeju University and

Nagasaki University (JSST), 5th June 2013, Jeju (Korea).

Kawamoto K. and Suzuki K.  
Examining microphysical transition in water clouds over the amazon and china from active and passive sensors, AOGS - AGU (WPGM) Joint Assembly, 14th Aug 2012, Singapore (Singapore).

Kawamoto K. and Suzuki K.  
Microphysical transition in water clouds over the Amazon and China derived from space-borne radar and radiometer data. The International Radiation Symposium 2012, 8th Aug 2012, Berlin (Germany).

河本和明, 鈴木健太郎  
中緯度低層雲の雲粒・ドリズル・降雨遷移過程の海陸の違いについて, 日本気象学会秋季大会, 2012年10月6日, 北海道大学 学術交流会館 (北海道・札幌市) .

袁軍, 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17&18回NMCC共同利用研究成果発表会, 2012年5月11日~12日, 岩手医科大学 (岩手県・盛岡市) .

〔図書〕(計1件)

高尾雄二他 (川添禎浩編), 講談社サイエンスフィック, 健康と環境の科学, 2014, pp60-69.

## 6. 研究組織

### (1)研究代表者

長江 真樹 (NAGAE, Masaki)  
長崎大学・水産・環境科学総合研究科 (環境)・教授  
研究者番号: 00315227

### (2)研究分担者

高尾 雄二 (TAKAO, Yuji)  
長崎大学・水産・環境科学総合研究科 (環境)・教授  
研究者番号: 20206709

久保 隆 (KUBO, Takashi)  
長崎大学・産学官連携戦略本部・助教

研究者番号: 40397089

岡田 二郎 (OKADA, Jiro)  
長崎大学・水産・環境科学総合研究科 (環境)・教授  
研究者番号: 10284481

河本 和明 (KAWAMOTO, Kazuaki)  
長崎大学・水産・環境科学総合研究科 (環境)・教授  
研究者番号: 10353450

西山 雅也 (NISHIYAMA, Masaya)  
長崎大学・水産・環境科学総合研究科 (環境)・教授  
研究者番号: 50263801

高辻 俊宏 (TAKATSUJI, Toshihiro)  
長崎大学・水産・環境科学総合研究科 (環境)・教授  
研究者番号: 70163219