

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 5 月 29 日現在

機関番号：13201

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2000～2011

課題番号：21510010

研究課題名（和文）ホルムアルデヒドによる国内雨水の汚染実態と汚染機構に関する研究

研究課題名（英文）Rainwater pollution with formaldehyde over a wide area of Japan and the pollution mechanism.

研究代表者

田口 茂 (TAGUCHI SHIGERU)

富山大学大学院理工学研究部（理学）・教授

研究者番号：80089838

研究成果の概要（和文）：日本国内の降雨のホルムアルデヒド等のアルデヒド類による汚染を北海道から九州に至る 19 地点において 3 年間継続して調査した。また、人間活動の異なる都市と地方の 3 地点（富山県、石川県、岐阜県）において、降雨中のこれらの成分の詳細な濃度変化を追跡し、比較した。それらの結果を総合すると、アルデヒド類による雨水汚染は全国規模で深刻な状況であり、それに人間活動を反映したレベルの汚染が加わっている実態が明らかになった。

研究成果の概要（英文）：The rainwater pollution with aldehydes including formaldehyde was investigated for 3 years at 19 sites of wide area in Japan from Hokkaido to Kyusyu and at 3 urban and rural sites of Toyama, Ishikawa and Gifu prefectures. It was concluded that the pollution with the aldehydes is very serious at any site in Japan. The pollution levels were also reflected from the human activity of the local areas.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	2,500,000	750,000	3,250,000
2010 年度	500,000	150,000	650,000
2011 年度	500,000	150,000	650,000
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学

キーワード：環境計測

1. 研究開始当初の背景

富山県内の降雨中のホルムアルデヒド濃度を測定したところ、水道水基準(0.08ppm)を超えることがしばしばあることを見出した。そこで、観測範囲を日本全国に広げ、降雨のホルムアルデヒド汚染の実態を明らかにすることとした。

2. 研究の目的

日本国内の降雨のホルムアルデヒドなど

のアルデヒド類による汚染の実態を広域かつ長期に亘って調べ、また、人間活動の異なる場所による汚染レベルの違いを調べ、それらを総合して、汚染の原因、汚染の機構を明らかにすることを目的とした。

3. 研究の方法

(1) 調査期間：2009 年～2011 年

(2) 調査地点：北海道から九州までの 19 地点

(3) 雨の採取：採水点に住む、調査協力員に

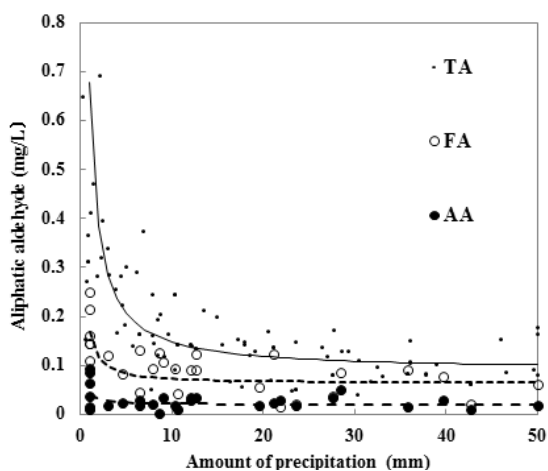
よって一雨ごとに採取してもらい、冷蔵状態で富山大学の研究室に配送してもらった。

(4) 雨の分析：研究室では直ちに、雨水中のホルムアルデヒド、アセトアルデヒドなどの個別のアルデヒド類を HPLC 法で、また、全脂肪族アルデヒドの濃度を吸光光度法によって測定した。

4. 研究成果

(1) 全国的な汚染レベル：北海道から九州までホルムアルデヒド等のアルデヒド類による雨水汚染は、地域や季節によらず水道水基準を超えることが日常的であることがわかった。

(2) 汚染レベルが降雨量によって強く影響され、それぞれの雨試料について汚染レベルと降雨量の関係は、下図のようになり、場所や季節によらないことが明らかになった。



図中記号 TA:全脂肪族アルデヒド
FA:ホルムアルデヒド
AA:アセトアルデヒド

さらに、降雨量とホルムアルデヒド濃度との関係は次式で表されることを見出した。

$$C_{\text{obs}} = m/v + C_{\text{eq}}$$

[C_{obs} :測定濃度, m :初期沈積量(mg/m^2), v :雨量(mm), C_{eq} :バックグラウンド濃度]

(3) 富山市、輪島市(石川県)、高山市(岐阜県)において、一降雨の雨水を1mmずつ採取し、降雨の進行によって、汚染の状況がどのように変わるかを観測した。その結果、降雨のごく初期において水道水基準(0.08 ppm)を超える高濃度に汚染されており、そのあと

は汚染レベルが低く、ほぼ一定であることが分かった。汚染レベルの地域差はごく初期の降雨にみられ、その後のやや低いレベルの汚染はほぼ同程度であった。

また、降雨の中断後、再開した降雨中のホルムアルデヒド濃度は高く、降雨の進行によって低下した。

(4) 以上のことから、ホルムアルデヒド等による雨の汚染は全国広域に及んでおり、また、それに加えて地域の人間活動を反映していることがわかった。その原因は、ホルムアルデヒド等が主に他の有機物の光化学反応によって生成し、しかも、その反応の元になる有機物質(メタンなど)による大気汚染が全国に及んでいるためと推論できる。

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7件)

(1) Shigeru Taguchi, Keita Murai, Mizuho Takamatsu, Yukari Hayakawa, Shinya Tamizu, Makoto Kuwata, Yuuki Katayama, Hideki Kuramitz and Noriko Hata, Interpretation of the concentrations of aldehydes in rainwater over a wide area and local areas of Japan by some dominant factors, *Atmospheric Environment*, in press.

(2) Hideki Kuramitz, Yoko Mawatar, Mariwo Ikeuti, Osamu Kutomi, Noriko Hata, Shigeru Taguchi, and Kazuharu Sugawara, Multiplexed assay for proteins based on sequestration electrochemistry using the protein binding electroactive magnetic microbeads *Analytical Sciences*, **28**(1), 77-81 (2012)

(3) 中山慶子, 山本 保, 波多宣子, 田口 茂, 高村 禪, 有機イオン会合体抽出多元素濃縮/液体電極プラズマ発光分析法による水中の微量重金属の同時定量, *分析化学*, **60**(6), 515-520 (2011)

(4) Kazuto Sazawa, Masaki Tachi, Takatoshi Wakimoto, Takanori Kawakami, Noriko Hata, Shigeru Taguchi and Hideki Kuramitz, The evaluation for alterations of DOM components from upstream to downstream flow of rivers in Toyama (Japan) using three-dimensional

excitation-emission matrix fluorescence spectroscopy, *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 2011, **8**, 1655-1670

(5) Hideki Kuramitz, Shun Miyagaki, Eiji Ueno, Noriko Hata, Shigeru Taguchi and Kazuharu Sugawara, Binding assay for cholera toxin based on sequestration electrochemistry using lactose labeled with an electroactive compound *Analyst*, **136**(11), 2373-2378 (2011)

(6) 田口 茂, 藤井絢子, 起 孝志, 倉光英樹, 波多宣子, 真空紫外線による光酸化を用いるクロム(IV)と全クロムのフローインジェクション逐次定量, *分析化学*, 59(12), 1133-1136 (2010)

(7) 倉光英樹, 佐澤和人, 七山泰昭, 工藤千春, 川上貴教, 波多宣子, 田口 茂, マイクロスケール藻類生長阻害試験を用いた銅の毒性に対する溶存有機物質に含まれる抑制成分の探索, *水環境学会誌 Vol. 32*, No. 6 (2009) pp. 309~314

[学会発表] (計9件)

(1) 桑田真実, 片山祐貴, 倉光英樹, 波多宣子, 田口 茂, 地域における雨水のアルデヒド類汚染 - 大気汚染との関連 -, 平成23年度日本化学会北陸地区講演会と研究発表会 (2011年11月18日(金), (金沢大学))

(2) Shigeru Taguchi, Keita Murai, Yukari Hayakawa, Shinya Tamizu, Makoto Kuwata, Yuki Katayama, Noriko Hata, Hideki Kuramitz, Rainwater pollution with aldehydes over a wide area of Japan, The 4th IWA-ASPIRE Conference & Exhibition, Tokyo International Forum, Tokyo, October 2 - 6, 2011.

(3) 桑田真実, 村居景太, 片山祐貴, 倉光英樹, 波多宣子, 田口 茂, ホルムアルデヒドによる国内雨水の汚染 - 広域汚染と地域汚染 - E 3005Y, 日本分析化学会第60年会 (2011年9月14日(水)-16日(金), (名古屋大学東山キャンパス))

(4) 桑田真実, 片山祐貴, 倉光英樹, 波多宣子, 田口 茂, 平地から高山に至る降水(雨, 雪)および大気ホルムアルデヒド汚染, 「分析中部・ゆめ21」若手交流会第10回高山フォーラム (2010年11月12日(金)-13日(土), 高

山市図書館(煥章館))

(5) 田口 茂 【招待講演】 膜捕集による簡易分析法の高感度化と環境分析, 第41回中部化学関係学協会支部連合秋季大会 (2010年11月6日(土), 7日(日), 豊橋技術科学大学(豊橋市))

(6) 田口 茂, 早川由佳里, 田水伸弥・倉光英樹, 波多宣子, P 3038, 国内雨水のホルムアルデヒド汚染, 日本分析化学会第59年会 (2010年9月15日(水)-17日(金), (東北大学川内北キャンパス))

(7) 田口 茂 【依頼講演】 膜抽出を利用する高感度な簡易水質分析, 第71回分析化学討論会 (2010年5月15日(土)・16日(日), (島根大学松江キャンパス(松江市)))

(8) 早川由佳里, 田水伸弥, 倉光英樹, 波多宣子, 田口 茂, ホルムアルデヒドによる雨と大気の汚染 - 広域(全国)調査と高度差調査 -, 「分析中部・ゆめ21」若手交流会第9回高山フォーラム (2009年11月13日(金)-14日(土), 高山市図書館(煥章館))

(9) 田口 茂 【特別講演】 膜抽出による簡易水質分析法の高度化, 平成21年度日本水環境学会中部支部講演会 (2009年8月5日(水), 名古屋国際会議場)

[図書] (計2件)

(1) 倉光英樹, 田口 茂, 波多宣子, 分担執筆, 日本分析化学会編 改訂六版 分析化学便覧, 2 化学反応による定性分析, 2.1 化学反応による検出, 2.1.1 陽イオン, 2.1.2 陰イオン, p. 11-17, 丸善株式会社, ISBN978-4-621-08409-0, C3043 (2011年9月20日刊)

(2) 田口 茂, 分担執筆, 日本分析化学会編 環境分析ガイドブック, 4 環境分析に用いられる測定法, 4.39 簡易・現場分析法, p. 230-238, 丸善株式, ISBN978-4-621-08277-5 (2011年1月刊)

[産業財産権]

○取得状況 (計1件)

名称: ホルムアルデヒドの測定方法

発明者: 田口 茂

権利者: 国立大学法人 富山大学

種類: 特許権

番号：4769940

取得年月日：平成23年7月1日

国内外の別：国内

〔その他〕

新聞ならびにインターネット報道

(1)2010年9月15日付朝日新聞夕刊に掲載された。見出し：「ホルムアルデヒド濃度 水道基準超え雨水に」

(2)2010年9月15日付Yahoo!トップニュースとして掲載された。見出し：「<ホルムアルデヒド>高濃度の雨 全国で降っている可能性」

(3)2010年9月16日付毎日新聞朝刊に掲載された。見出し：「雨水に高濃度ホルムアルデヒド、富山大調査」

6. 研究組織

(1)研究代表者

田口 茂 (TAGUCHI SHIGERU)

富山大学工学研究部 (理学)・教授

研究者番号：80089838

(2)研究分担者

なし

(3)連携研究者

なし