## 発表業績

### 1 学会誌への投稿

Kimiyo Kumagai, Akihiro Iijima, Hiroshi Tago, Atsushi Tomioka, Kunihisa Kozawa, Kazuhiko Sakamoto. Seasonal characteristics of water-soluble organic carbon in atmospheric particles in the inland Kanto plain, Japan. Atmospheric Environment 2009; 43: 3345-3351.

An investigation of water-soluble organic carbon (WSOC) in atmospheric particles was conducted as an index of the formation of secondary organic aerosol (SOA) from April 2005 to March 2006 at Maebashi and Akagi located in the inland Kanto plain in Japan. Fine (<2.1 µm) and coarse (2.1–11 µm) particles were collected by using an Andersen low-volume air sampler, and WSOC, organic carbon (OC), elemental carbon (EC), and ionic components were measured. The mean mass concentrations of the fine particles were 22.2 and 10.5 µg m<sup>-3</sup> at Maebashi and Akagi, respectively. The WSOC in fine particles accounted for a large proportion (83%)of total WSOC. concentration of fine WSOC ranged from 1.2 to 3.5 µg-C m<sup>-3</sup> at Maebashi, rising from summer to fall. At Akagi, it rose from spring to summer, associated with the southerly wind from urban areas. The WSOC/OC ratio increased in summer at both sites, but the ratio at Akagi was higher, which we attributed to differences in primary emissions and secondary formation between the sites. The fine WSOC concentration was significantly positively correlated with concentrations of SO<sub>4</sub>-2, EC, and K<sup>+</sup>, and we inferred that WSOC was produced by photochemical reaction and caused by combustion of both fuel and biomass. We estimated that SOA accounted for 11–30% of the fine particle mass concentration in this study, suggesting that SOA is a significant year-round component in fine particles.

Iijima A, Sato K, Fujitani Y, Fujimori E, Saito Y, Tanabe K, Ohara T, Kozawa K, Furuta N. Clarification of the predominant emission

sources of antimony in airborne particulate matter and estimation of their effects on the atmosphere in Japan. Environ. Chem. 2009; 6: 122-132.

By focusing on the similarities in elemental composition, particle size distributions of elemental concentrations, and microscopic images between the ambient airborne particulate matter (APM) and several potential sources, we discussed the predominant sources of antimony (Sb) in APM in The distribution of Sb concentration in size-classified ambient **APM** showed characteristic bimodal profile in which peaks were found in coarse  $(3.6-5.2 \mu m)$  and fine  $(0.5-0.7 \mu m)$ fractions. Elemental ratios, particle sizes, and microscopic images observed in the coarse APM fractions were found to be in good agreement with those of brake abrasion dust. On the other hand, in the fine APM fractions, fly ash originating from waste incineration was identified as the most probable source of Sb. Chemical mass balance analysis was performed to determine the effects of the emission sources of Sb, and it was revealed that brake abrasion dust and waste fly ash were the dominant sources of Sb in the coarser and the finer fractions of APM, respectively. This study provides important clues to understand the cycles and fates of Sb in the environment.

Iijima A, Sato K, Furuta N. Antimony in airborne particulates: a review on environmental monitoring and potential sources. In Airborne Particles; M. Cheng & W. Liu, Eds.; (pp. 81–115), New York: Nova Science Publishers.

Antimony (Sb) and its compounds have distinguished physicochemical properties. Hence, they have been widely used as functional materials; moreover, awareness regarding its negative impact on the environment and ecosystem has increased considerably. This chapter aims at providing an overview of the available studies on the recent enrichment of Sb in airborne particulates and its potential sources. The analyses of samples of

environmental archives such as peat and ice cores have revealed marked changes in the concentrations of various atmospheric pollutants, probably due to the changes in human activities after the Second Industrial Revolution. In fact, historical studies have revealed that the temporal trend of the anthropogenic impact of Sb on the environment between the mid- and late 20th century was strongly dominated by two emission sources: coal combustion and metallurgical processes. Interestingly, another remarkable enrichment of Sb has been observed during the last several decades, implying the emergence of anthropogenic Sb sources. This emergence is most likely to be related with the recent expansion of Sb applications as functional materials, such as a flame retardant for plastics and chemical fibers and as a lubricant for automotive brake friction materials. In this chapter, first, the latest knowledge on the fate of Sb through mining, fabricating, usage, and emission to the atmosphere and the toxicities of various Sb compounds are briefly summarized with the aim of providing an in-depth understanding of this topic. Then, the temporal trends of Sb in the environmental samples are reviewed for the purpose of discussing the relationship between Sb behaviors and human activities. Subsequently, current studies on airborne Sb, which are carried out in various parts of the world, are overviewed, and the potential sources of Sb are characterized. Moreover, abrasion dust from automotive brakes is highlighted to be an important Sb source that potentially affects highly-trafficked areas. Finally, we include the outlook on the demand for Sb compounds and subsequent changes in the Sb concentration in airborne particulates.

Iijima A, Sato K, Ikeda T, Sato H, Kozawa K, Furuta N. Concentration distributions of dissolved Sb(III) and Sb(V) species in size-classified inhalable airborne particulate matter. J. Anal. At. Spectrom. 2010; 25: 356-363. In order to obtain more accurate assessments of global contamination by potentially toxic antimony

(Sb) and the toxicological effects of Sb on ecosystems, speciation analysis of inorganic Sb species in size-classified airborne particulate matter Thirteen fractions of (APM) was performed. size-classified APM (with aerodynamic diameters: Dp <0.06, 0.06–0.12, 0.12–0.20, 0.20–0.30, 0.30-0.50, 0.50-0.70, 0.70-1.2, 1.2-2.1, 2.1-3.6, 3.6-5.2, 5.2-7.9, 7.9-11, and >11 µm) were collected on a filter by using a multistage cascade impactor sampler. Speciation analysis of inorganic Sb(III) and Sb(V) was performed by using HPLC-ICP-MS. Portions of sample-loaded filters were sonicated with 30 mmol l-1 citric acid under purified N2 in order to avoid the oxidation of Sb(III) to Sb(V) during the extraction process. Sb(III) and Sb(V) were separated on a PRP-X100 anion exchange column using a mixture of 10 mmol 1-1 EDTA and 1 mmol 1-1 phthalic acid (pH 4.5) as a mobile phase, and they were subsequently detected by ICP-MS. The size distributions of the total Sb concentration exhibit a bimodal profile in which peaks corresponded to fine (0.50–0.70 µm) and coarse (3.6–5.2 μm) fractions. The speciation analysis demonstrated for the first time that Sb(III), which is the more toxic form, is dominated by coarse fractions whereas Sb(V) is distributed in both the fine and coarse fractions. The presented high-resolution size distributions of inorganic Sb species will provide helpful information in discussing both health risks by inhalation exposure to Sb and the extent of the effects of emission sources by atmospheric circulation.

Hajime Kurosawa, Masahiro Fujita, Satoshi Kobatake, Hirokazu Kimura, Mitsuko Ohshima, Akira Nagai, Shingaku Kaneko, Yasuki Iwasaki, and Kunihisa Kozawa. A Case of *Legionella* pneumonia Linked to a Hot Spring Facility in Gunma Prefecture, Japan. Jpn J Infect Dis. 2010; 63: 78-9.

Legionnaires' disease, which manifests as pneumonia or the less severe Pontiac fever, is known to be associated with hot spring facilities and public bath houses in Japan . Recent studies

suggest the incidence of *Legionella* pneumonia in Japan is increasing .We described a case of *Legionella* pneumonia, and identified the probable source of infection as the water from a hot spring facility in Maebashi-shi, Gunma Prefecture, Japan.

Hidehito Mukai, Tetsuo Seki, Hiroko Nakano, Yoshinori Hokari, Toshifumi Takao, Masanori Kawanami, Hiroyuki Tsukagoshi, Hirokazu Kimura, Yoshiaki Kiso, Yasutsugu Shimonishi, Yoshisuke Nishi, and Eisuke Munekata. Mitocryptide-2: Purification, Identification, and Characterization of a Novel Cryptide That Activates Neutrophils. J Immunol. 2009; 182: 5072–5080.

Neutrophils are a class of leukocytes involved in innate immunity by monitoring and scavenging invading microorganisms and toxic substances. The actions of neutrophils in damaged tissues are still not well understood, particularly in the early stage of inflammation, and as-yet-unknown neutrophil-activating substances are proposed to induce their acute transmigration and activation. Here, we isolated and identified from porcine hearts a neutrophil-activating peptide. Structural analyses indicated that the primary structure of this peptide is

formyl-Met-Thr-Asn-Ile-Arg-Lys-Ser-His-Pro-Leu-Met-Lys-Ile-Ile-Asn, which is identical to that of the N-terminal pentadecapeptide of porcine mitochondrial cytochrome b; we therefore named the newly isolated peptide "mitocryptide-2" (MCT-2), since we have recently purified and identified mitocryptide-1, a different class of a neutrophil-activating peptide. Synthetic MCT-2 and its human homolog hMCT-2 induced β-hexosaminidase release in and chemotaxis of HL-60 cells differentiated into neutrophilic/granulocytic cells. The induction of β-hexosaminidase release, chemotaxis, and the increase in the intracellular free Ca<sup>2+</sup> concentration by hMCT-2 were completely suppressed by pertussis toxin, indicating the involvement of Gi- or Go-type G proteins in the signaling pathways.

Moreover, MCT-2 and hMCT-2 also stimulated β-hexosaminidase secretion in human neutrophils peripheral isolated from blood concentration-dependent manner. Additionally, competed these peptides partially with [3H]formyl-Met-Leu-Phe binding to HL-60 cells differentiated into neutrophilic/granulocytic cells, presenting the possibility that the receptor for MCT-2 and hMCT-2 is one of the formyl peptide receptors. These results demonstrate that MCT-2 and its human homolog hMCT-2 are cryptides that activate neutrophils, thus suggesting the presence regulatory mechanisms involving mitocryptides in innate immunity.

Katsumi Mizuta, Asumi Hirata, Asuka Suto, Yoko Aoki, Tadayuki Ahiko, Tsutomu Itagaki, Hiroyuki Tsukagoshi, Yukio Moritad, Masatsugu Obuchi, Miho Akiyama, Nobuhiko Okabe, Masahiro Noda, Masato Tashiro, Hirokazu Kimura. Phylogenetic and cluster analysis of human rhinovirus species A (HRV-A) isolated from children with acute respiratory infections in Yamagata, Japan. Virus Res. 2010; 147: 265–274.

We performed phylogenetic and cluster analysis of human rhinovirus species A (HRV-A) isolated from 76 children with acute respiratory infection in Yamagata prefecture, Japan during the period 2003-2007. Phylogenetic trees based on the nucleotide and amino acid sequences of the VP4/VP2 coding region showed that the present strains could be classified into 11 and 8 clusters, respectively. The homology among the present strains ranged from 66.6% to 100% at the nucleotide level and 84.7% to 100% at the amino level. acid The interspecies distance (mean±standard deviation) was calculated to be  $0.235\pm0.048$  at the nucleotide level 0.076±0.033 at the amino acid level. In addition, the phylogenetic trees created based on the nucleotide and amino acid sequences showed that HRV-A strains belonging to some clusters were associated with both upper respiratory infection and wheezy bronchiolitis, while other strains were associated with upper respiratory infection alone. These results suggest that the present HRV-A isolates had a wide nucleotide divergence and were associated with acute respiratory infection, including upper respiratory infection and wheezy bronchiolitis, in Yamagata prefecture, Japan during the investigation period.

# 田子 博. 有害大気汚染物質モニタリングにおける試料採取期間と年平均値の関係.

#### 大気環境学会誌 2009;44:196-201

揮発性有機化合物(VOCs)について,それぞれ 1 週間採取×4 回/年(1w法)および24 時間採取 ×12回/年(24h 法)から求めた年平均値(いずれ も算術平均)を比較した。年平均値が定量下限 値以上であった 30 の VOCs について, 24h 法か ら求めた年平均値は 1w 法から求めた年平均値 の1~1.5倍となった。周辺に発生源が存在する 物質については,特に24h法による年平均値が 高くなる傾向が見られた。これは,24h 法で年1 ~2回観測された一過性と考えられる高濃度事 象に,年平均値が大きく影響されることによる ものであった。これに対し,1w法では一過性の 高濃度事象による高濃度サンプルはほとんど存 在しなかった。一部例外となる物質はあるが, 多くの物質おいては,24h 法の測定値を幾何平 均して年平均値を求めると ,1w 法による年平均 値とほぼ一致した。

# 熊谷貴美代,田子博,飯島明宏,小澤邦壽,坂本和彦.群馬県平野部および山岳部における微小粒子状物質の季節特性.大気環境学会誌 2010;5:10-20.

関東平野の内陸に位置する群馬県前橋市および赤城山において、大気中粒子状物質を粒径別 (<  $2.1\mu m$ , 2.1-11  $\mu m$ , > 11  $\mu m$ )に捕集し、無機イオン成分、炭素成分分析を行った。炭素成分分析では、熱分離法と熱光学補正法の比較により補正を行った。微小粒子濃度の年平均値は、前橋で  $20.2\sim22.7\mu g/m^3$ 、赤城で  $8.2\sim10.5\mu g/m^3$ であった。微小粒子濃度は春から夏にかけて高濃度となる季節変動を示した。微小粒子における無機イオン成分の 96%は、 $NO_3$  、 $SO_4$  、 $NH_4$  、 $NH_4$ 

であった。前橋も赤城も粒子濃度は同様の変動 パターンを示した。前橋では春に NO3 が大きく 増加するという特徴が見られた。しかし NO3 は赤城では低濃度であったことから、前橋にお ける NH3 ガスが NO3 粒子生成に影響している と示唆された。SO<sub>4</sub><sup>2</sup>-は夏に高濃度となる変動を 示した。赤城でも前橋の8割程度のSO42-が観測 され、SO42-粒子は広域的に存在することが分か った。マスクロージャーモデルを用いて、成分 濃度から粒子質量濃度を推定した結果、実測値 と同等の結果が得られた。モデル推定値から、 粒子濃度の成分構成を季節毎に求めたところ、 二次生成粒子と有機物が微小粒子の8割を占め ると推定された。EC の寄与率は 1 割程度であ った。春は NO<sub>3</sub>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>粒子、夏秋は SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>と有 機物の寄与率が大きいことが分かった。

下田美里, 飯島明宏, 田子 博, 熊谷貴美代, 齊藤由倫, 小澤邦壽. 群馬県における有害大気 汚染物質調査 - モニタリングデータと排出インベン トリーに着目した水銀発生源の探索 - .

全国環境研会誌 2009; 34(3): 165-170.

群馬県では,県内の5地点において有害大気 汚染物質の調査を毎月行っている。本報では大 気中水銀濃度について,2002~08年度の7年間 のモニタリングデータを取りまとめ,地点間の 濃度およびそのトレンドを比較した。5 地点の うち 4 地点における水銀濃度の年平均値は 1.9 ~ 2.6 ng/m³で,この値は全国の年平均値と同レ ベルであった。一方,残りの1地点における水 銀濃度の年平均値は 2.7~3.4 ng/m3で,他の4 地点よりも有意に高く,経年的に濃度が増加す る傾向が見られた。そこで,この1地点の大気 中水銀濃度と風向頻度および同地点で測定した 金属成分濃度との関係を解析したところ、水銀 濃度は北東風の頻度と有意な正の相関(p<0.01) を示し,測定地点北東方向に位置する金属製錬 工場の指標となる亜鉛およびカドミウムと有意 な正の相関(p<0.01)を示した。このことから, この工場が水銀の発生源であることが示唆され た。一方, PRTR 制度による届け出によれば, 測定地点周辺からの水銀の大気排出はなく,排 出実態の把握は困難であった。今後は, 当該物 質の環境モニタリングによる監視のみならず,

排出が危惧される事業所からの正確な排出実態 の把握が必要である。

### 飯島明宏. 大気粉塵中アンチモンの発生源の解明及び大気への影響評価. 分析化学 2010; 59(2): 151-152.

近年、アンチモン(Sb) およびその化合物の 持つ多機能性の発見によって、様々な産業・生 活物資へのそれらの用途が拡大し、使用量が増 えている。泥炭湿原や北極圏氷床から採取され たコアサンプルの分析によれば、大気からの Sb の沈着量が近年増加する傾向にあると報告され ており、全球的な環境負荷の増大が危惧されて いる。その原因として、Sb を含む大気粉塵 (APM)の排出量の増加が指摘されているが、 その発生原や排出量等については十分解明され ていない。また、Sb 化合物には慢性毒性、急性 毒性、および哺乳動物細胞に対する変異原性を 示すものがあるため、Sb を含む APM の吸入暴 露による健康影響も懸念のひとつである。この ように、環境負荷および健康リスクの双方の観 点から、APM に含まれる Sb の発生源を同定す ることは重要な課題である。本研究では、APM の環境モニタリングおよび発生源プロファイリ ングの2方向からのアプローチにより、APMに 含まれる Sb の発生源を探索し、その発生源が 大気環境に及ぼす影響を定量的に議論した。

塩原正枝,黒澤 肇,鈴木智之,長井綾子,森田幸雄,小畑 敏,加藤政彦,小澤邦壽,田村直子,赤見まり子,中村多美,宗行 彪,高橋ふさ子,山崎 稔,水上憲一,木村博一.海外渡航歴のない細菌性赤痢患者の同時期の複数届出事例について- 群馬県.病原微生物検出情報2009;30;97-98.

2009年(平成21年)1月10日~2月5日に 群馬県において海外渡航歴がなく感染地域が国内と推定された細菌性赤痢(Shigella sonnei II 相)の感染症法に基づく届出が、隣接する2保健所管内の3家族から4例あった。症例1~4(家族A~C)の患者情報について、患者調査及び病原体検査を行った。症例1と2は同居の家族(家族A)である。家族AとBの居住地は同じ保健所管内にあり所在地間は約2kmであった が、家族間の交流はなかった。

分離菌株はいずれも細菌性赤痢(Shigella sonnei II 相)と同定され、症例 1、2(家族 A)及び症例 3(家族 B)由来株は SM、TC、NA、ST に耐性を示し、薬剤耐性パターンが一致していた。症例 4(家族 C)由来株は ABPC、SM、TC、CP、ST に耐性を示していた。組織侵入遺伝子のうち ipaH は症例 1~4 由来株のすべてが保有していたが、invE は症例 2 由来株は保有していなかった。PFGE の結果では、症例 2 はバンド 1 本異なっていたが、症例 1、2 及び 3 は、PFGE 解析上、ほぼ同じ遺伝子切断パターンであり感染源が同一である可能性が示唆された。症例 4 由来株は他の症例と明らかに異なる遺伝子切断パターンを示していた。

家族・患者の喫食状況、行動、飲食店、購入店等の疫学調査から明確な関連は見いだせず、感染原因・感染経路を推定できなかった。しかし、2家族(家族AとB)から分離された赤痢菌は薬剤感受性パターン及びPFGE解析結果から同一感染源である可能性が示唆されたことから、赤痢菌で汚染された共通食材等が感染源になっていた可能性もある。以上のことから、本事例は3症例を含む集団発生例(家族AとB)と散発例(家族C)が同時期に発生したことが推定された。今後、感染症サーベイランステムによる患者情報収集と共に個々の事例の病原体解析をより強化する必要性があろう。

### 2 学会等での発表

Iijima A, Sato K, Ikeda T, Sato H, Kozawa K, Furuta N. Speciation of antimony (III) and antimony (V) present in size-classified airborne particulate matter. 6<sup>th</sup> Asian Aerosol Conference, Bangkok, Thailand (2009 Nov)

Airborne Particulate Matter (APM) has become one of the most concerning aspects in recent air pollution issues. Because APM contains various kinds of harmful chemicals, the exposure to APM is believed to induce some adverse effects for human health. Our previous studies have demonstrated that APM in the central Tokyo has been extremely enriched with potentially toxic antimony (Sb), and have identified waste fly ash and automotive brake abrasion dust as its predominant sources. To assess the health risk, it would be essential to clarify the particle size distribution of Sb. Additionally, because the toxicities of Sb vary depending on their chemical forms, not only the determination of total concentrations of Sb but also the identification of chemical forms of Sb species will be necessary. This study highlights inorganic Sb species present in the size-classified APM. Thirteen fractions of size-classified APM (with Dp < 0.06, 0.06–0.12, 0.12-0.20, 0.20-0.30, 0.30-0.50, 0.50 - 0.70, 0.70-1.2, 1.2-2.1, 2.1-3.6, 3.6-5.2, 5.2-7.9, 7.9–11, and  $> 11 \mu m$ ) were collected. For the prevention of oxidation from Sb(III) to Sb(V), citric acid was used as an extractant. Sb(III) and Sb(V) present in the extracts were separated by high performance liquid chromatography equipped with an anion exchange column, and subsequently detected by inductively coupled plasma mass spectrometry. Sb(III), the more toxic form, was abundantly found from the coarser (1-10 µm) fractions. On the other hand, Sb(V) was detected from both the finer (0.1-1 µm) and coarser (1-10 um) fractions.

Hagino H., Sasaki S., Nakayama A., Kumagai K., Iijima A., Shimoda M., Takami A., Hasegawa

S., Kobayashi S., and Sekiguchi K.. Organic fine particles from photochemical events in central Japan by high-resolution aerosol mass spectrometry. 6<sup>th</sup> Asian Aerosol Conference, Bangkok, Thailand (2009 Nov)

organic aerosol sampled during photochemical active episodes in July and August of 2008 in Maebashi, central Japan, was analyzed with a high-resolution time-of-flight aerosol mass spectrometer (HR-ToF-AMS) and complementary instrumentation. In previous long-range transport studies of air pollutants conducted in the mountainous region more than 100 km inland from the large emission sources along Tokyo Bay in central Japan, the behavior of total suspended particles was investigated and their components were analyzed. In that study, the rising of fine particle mass concentration was frequently observed during photochemical active events in the daytime. Furthermore, the concentration of organic aerosols increased along with that of secondary organic components such as  $CO_2^+$  and  $C_3H_5O^+$  (m/z = 43.990 and 57.034, respectively), which are present in oxygenated organic aerosols. The temporal variation in the concentration of organics observed here was similar to the results observed in the previous long-range transport studies, with organic aerosol comprising more than 25% of the fine particulate matter mass. Corresponding increases in the concentrations of ozone and gaseous carbonyls also were observed. Moreover, organic hydrocarbons such as  $C_4H_9^+$  (m/z = 57.705) increased with an increase in the black carbon produced from a burning source. Concentrations of inorganic aerosol species such as NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, Cl<sup>-</sup>, and NH<sub>4</sub><sup>+</sup> did not noticeably increase during the daytime. These results suggest that gas-to-particle partitioning related to temperature played an important role in driving the diurnal cycles.

田子 博,後藤和也. 群馬県北部の河川における 水環境健全性指標試行調査.日本水環境学会関 東支部総会・講演会,東京都 (2009年6月)

水環境健全性指標は河川を総合的に評価する

のに有用であるが、個人差や評価しにくい項目 等、問題点もまだ残っており、改良が重ねられ ているところである。そこで、利根川上流部の 支川である赤谷川において、地元団体と共同し て調査を行い、調査票の問題点の洗い出し、調 査者の居住地が評価結果に与える影響について 考察した。調査票問題点については、感覚で評 価する項目は回答率が高く、根拠の必要な項目 は回答率が低い傾向が見られた。回答率が高く 評価しやすい項目は今後も十分に活用すること が可能と考えられた。回答率が低く評価が難し い項目については、住民の方々が使いやすいよ うに改良する必要があると思われた。地元住民 の方が、全体的に外部調査者より厳しい評価を していたが、両者の評価が大きく乖離すること はなかった。地元住民、特に高齢者は過去の同 じ川との比較で評価したため、点数が低くなっ たと考えられた。また、川の歴史にも地元住民 は詳しく、自信を持って評価する傾向があった が、外部調査者は知識がないため、評価不能、 あるいは甘い評価になりがちであった。調査者 のプロフィールは、水環境健全性指標調査結果 に、ある程度の影響を与えるであろう。今後は 同様の調査を群馬県内都市部の河川において実 施し、考察する予定である。

影山志保,中島大介,白石不二雄,永洞真一郎,佐久間隆,渡邉英治,熊谷貴美代,河合 渉,吉田篤史,原口公子,茶屋典仁,矢島博文,後藤純雄,白石寛明,鈴木規之.国内 11 地点における大気粉じん及びガス状成分の遺伝毒性.第 18回環境化学討論会,つくば市 (2009年6月)

環境中の化学物質は発生源や挙動が複雑であるため、その成分や個々の毒性に関しては不明な点が多い。このため、曝露リスク等を総合的に把握するためには化学分析法ばかりでなく生物評価試験を用いる必要がある。そこで我々は発光 umu 試験法を用いて大気粉じん及びガス状成分の遺伝毒性を評価することを試みた。捕集地点は北海道、宮城、山形、群馬、茨城、東京、神奈川、静岡、鳥取、福岡、鹿児島の 11 地点とした。石英フィルター(大気粉じん)の後段にポリウレタンフォーム(PUF)(ガス状成分)を用いて捕集し、発光 umu 試験を行った。

大気中の遺伝毒性は、夏季の - S9mix 系では比較的関東地方で活性値が高い傾向にあった。また、2008 年冬季の - S9mix 系では活性の殆どが大気粉じんだったが、それ以外では大気粉じんよりもガス状成分で強い活性を示すことが認められた。大気粉じん及びガス状成分の遺伝毒性は変異原性の挙動とは異なる傾向を示していた。

関口和彦,工藤慎治,金庚煥,坂本和彦,熊谷 貴美代,飯島明宏,大谷吉生.関東内陸域(群馬 県)における超微小粒子成分の観測.第26回エア ロゾル科学·技術研究討論会,岡山市 (2009年8月)

On the behavior of atmospheric ultrafine particles (UFP; less than 0.1 µm), measurement of PM<sub>0.1</sub> using impactor filter was carried out in Gunma (rural area) during summer and winter of 2008. The collection period was 11 hours to make a distinction between daytime and nighttime. Analysis of organic carbon (OC) and elemental carbon (EC) were performed using a thermal-optical carbon analyzer based on Improve protocol, and ionic components (SO<sub>4</sub><sup>2</sup>, NO<sub>3</sub>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>) were extracted with pure water to analyze with an ion chromatograph. After acid degradation of filter using microwave, multielement analysis of trace metals (V, Cu, As, Se, Cd, Sb and Pb) was also performed by an inductively coupled plasma-mass spectrometry to identify UFP sources using positive matrix factorization (PMF) analysis. In main components (EC, OC, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>) of PM<sub>0.1</sub>, there was high contribution of OC between summer and winter. And the analyzed total PM<sub>0.1</sub> concentration was a little higher in summer than in winter. However, ion concentrations (especially, NO<sub>3</sub> of PM<sub>0.1</sub> were higher in winter. Results from PMF indicated that nine factors in summer and six factors in winter contributed to the observed ambient PM<sub>0.1</sub>. There were three main sources (secondary sulfate and nitrate, combustion, vehicle), however, in the case of UFP, the factors were combined with each other due to mixed sources.

熊谷貴美代. 群馬県における地下水への窒素負荷分布の推定, 第 13 回水環境学会/ンポイント研究会, 前橋市 (2009 年 9 月)

群馬県は地下水における硝酸性窒素(NO<sub>3</sub>-N) 汚染が深刻であり、環境基準超過率は高い値で 推移している。群馬県では畜産と農業が盛んで あることから、施肥や家畜排せつ物が主たる原 因と考えられるが、汚染対策を行うためには 種々の発生源がどの程度寄与しているのか、定 量的に把握することが必要である。そこで本研 究では、地下水に対する発生源別窒素(N)負荷を 推計するモデルを構築し、群馬県全域を対象に 地下水へのN負荷分布を求めた。

N 発生源は、農業、畜産、生活、工場、自然の5分類とした。本モデルでは畜産から発生するNのうち、堆肥として必要とされる分は農業負荷に分類し、過剰に農地還元されている分は畜産(過剰施肥)負荷と定義した。市町村毎にN負荷を算出し、土地利用データを基に3次標準メッシュに細分化した。2000年を基準とした種々の統計データを用いてN負荷量を算出した。算出結果はGISソフト(Mandara, ver8.05)により分布図を出力させた。

本モデルにより推計した結果、群馬県全体で は 7600t-N/yr が地下浸透していると見積もられ た。その発生源割合は農業 43%、畜産(過剰施 肥)30%、大気 20%、生活 6%、工業 1%であった。 農業由来の負荷は広範囲に分布する特徴がある のに対し、畜産(過剰施肥)負荷は赤城、榛名山 麓地域を中心に極めて高い負荷が偏在していた。 NO<sub>3</sub>-N 基準超過地域では基準達成地域の 2 倍以 上の N が負荷されており、その発生源は畜産(過 剰施肥)と農業が大きな割合を占めていること が分かった。畜産(過剰施肥)負荷を排除した場 合の削減効果を評価した結果、畜産負荷の大き い地域を中心に大幅な改善効果が得られること が示唆された。地下水質改善のためには、まず 過剰施肥を削減することが重要であり、化学肥 料から堆肥への転換や畜産排せつ物の農地還元 以外の利用用途拡大が必要であろう。

田子 博,下田美里,熊谷貴美代,飯島明宏.大 気中窒素化合物の地域特性と沈着. 第13回水環 境学会ノンポイント汚染研究会,前橋市 (2009 年 9月)

大間々扇状地における地下水への窒素負荷に対する乾性沈着の影響を見積もった。大気中アンモニア、硝酸および二酸化窒素濃度から土地利用形態別に沈着量を求めたところ、59 t-N/year が大間々扇状地へ降下していた。このデータを基に乾性沈着による地下水への窒素負荷の約5%に相当し、生活排水による負荷(約7%)に匹敵した。乾性沈着に最も寄与したのは、アンモニアであり、畜産地域の高濃度アンモニアの影響が大きかった。湿性沈着も合わせた大気からの窒素負荷は全体の約20%に達し、無視できない影響をこの地域の地下水へ与えていることがわかった。

田子 博,下田美里,熊谷貴美代,小澤邦壽,齋藤由倫,飯島明宏.群馬県西部における大気汚染物質調査.第50回大気環境学会年会,横浜市(2009年9月)

前橋市は大気中アンモニア濃度が全国で最も高い地域の一つである。これは、赤城山南麓を中心とする畜産の影響が大きいと考えられているため、畜産の影響が少ないと思われる県西部の富岡市において、4段濾紙法による大気捕集を前橋市と並行して行い、アンモニア等の濃度を比較した。二酸化硫黄、硝酸ガス濃度は両地点においてほぼ同濃度であったのに対し、前橋のアンモニア濃度は富岡の約3倍であった。これは、群馬県においてはアンモニア濃度が高ことを示唆している。また、硝酸粒子濃度について、前橋は富岡の2倍であり、大気中の高いアンモニア濃度がその一因になっていると考えられる。

熊谷貴美代,萩野浩之,飯島明宏,下田美里, 斎藤由倫,小澤邦壽,坂本和彦.関東内陸部に おける水溶性有機エアロゾル成分の季節特性.第 50回大気環境学会年会,横浜市(2009年9月)

大気中の有機エアロゾルは、微小粒子中の主要成分の一つであるが、大気中での挙動や発生源などの解明が課題となっている。関東内陸部では春夏季に高濃度の光化学 Ox が多発することから、二次生成有機エアロゾル(SOA)の影響

が懸念される。また海外ではバイオマス燃焼も有機エアロゾルの重要な発生源として注目されている。本研究ではこれらの寄与を推定するため、SOA の指標として C2-C9 ジカルボン酸類、バイオマス燃焼の指標としてレボグルコサンに着目し、その季節特性について考察した。2007年春季、冬季、2008年夏季に群馬県前橋市において PM2.1を採取し、イオン成分、炭素成分、ジカルボン酸およびレボグルコサンを分析した。

全期間中の炭素成分濃度は EC; 2.2 ±  $0.8 \mu g/m^3$ , OC; 5.2 ± 2.2  $\mu g/m^3$ , WSOC; 3.4 ± 1.7μg/m<sup>3</sup> であった。OC 濃度には明確な季節差は 見られなかったが、WSOC/OC 比は春>夏>冬 の順に高くなっていた。PM2.1中のジカルボン酸 では、シュウ酸(C2)濃度がもっとも高く、春夏 では全ジカルボン酸濃度の 8~9 割、冬では 6 割を占めていた。各季節においてシュウ酸と WSOC の間には強い正の相関が得られ、春夏に その傾きが大きくなっていることから、この季 節における WSOC は光化学反応による二次生 成の影響を強く受けていると考えられた。PM21 中のレボグルコサン濃度は、冬に高い濃度で検 出された。レボグルコサンと WSOC は冬では強 い正相関が得られた。このことから、冬で観測 される WSOC はバイオマス燃焼の影響を受け ていると推察された。

飯島明宏,清水源治,小澤邦壽. 関東における大 気エアロゾルのキャラクタリゼーション(第 30 報) -PMF法による総合解析 - . 第 50 回大気環境学会 年会,横浜市 (2009 年 9 月)

浮遊粒子状物質は、固定発生源や移動発生源などからの一次排出のみならず、移流拡散過程における二次的な反応にも大きく支配されているため、広域的な大気汚染問題のひとつとして認識されている。関東地方およびその周辺の自治体では、この広域的な課題に対する取組の一環として、粒子組成の季節的、地域的な特徴および主要な発生源からの寄与率を明らかにするよび主要な発生源からの寄与率を明らかにするよび主要な発生源からの寄与率を明らかにするよび主要な発生源からの寄り率を明らかにするよび主要な発生源からの事力を表している。本研究では、過去19年間(平成元年度から19年度)のモニタリング結果から、Positive Matrix Factorization(PMF)法によって成分濃度の変動因子を抽出

し、その長期トレンドについて考察した。

飯島明宏, 佐藤啓市, 藤谷雄二, 藤森英治, 齊藤由倫, 田邊潔, 大原利眞, 小澤邦壽, 古田直紀. 大気エアロゾル中アンチモンの発生源解析. 第 50 回大気環境学会年会, 横浜市 (2009 年 9月)

浮遊粒子状物質は、固定発生源や移動発生源などからの一次排出のみならず、移流拡散過程における二次的な反応にも大きく支配されているため、広域的な大気汚染問題のひとつとして認識されている。関東地方およびその周辺の自治体では、この広域的な課題に対する取組の一環として、粒子組成の季節的、地域的な特徴および主要な発生源からの寄与率を明らかにするよび主要な発生源からの寄与率を明らかにすることを目的とし、夏期および冬期に浮遊粒子状物質の共同調査を実施している。本研究では、過去19年間(平成元年度から19年度)のモニタリング結果から、Positive Matrix Factorization(PMF)法によって成分濃度の変動因子を抽出し、その長期トレンドについて考察した。

萩野浩之,中山朋美,佐々木左宇介,熊谷貴美代,飯島明宏,下田美里,高見昭憲,長谷川就一,小林伸治,関口和彦. 2008 年夏季関東内陸部における大気微小粒子組成の高時間分解観測.第 50 回大気環境学会年会,横浜市(2009 年 9 月)

大気環境中の微小粒子中には、人為発生源や 自然からの一次排出だけでなく、大気中の光化 学反応により二次的に生成する分が多く含まれ ることが考えられている。近年、エアロゾル質 量分析計による微小粒子の直接的な連続分析が 多くの研究で試行されており、高い時間分解で の情報が得られつつある。本研究では2008年 夏季に関東の内陸地域である前橋市において、 微小粒子の観測を行った事例について紹介する。 観測は群馬県前橋市(群馬県衛生環境研究所) にて行った。飛行時間型エアロゾル質量分析計 (ToF-AMS)は、質量分解能がやや低い(単一 質量計測に近い) V-mode と精密質量計測を行 うための W-mode を、5 分毎に交互に切替えて データを採取した。また、ブラックカーボン (BC) 濃度計 (5012 MAAP) による BC 濃度

の計測も同時に行った。微小粒子濃度は日中や夜間に濃度上昇する期間がいくつか観測され、その組成の割合は劇的に変化していることが確認された。有機エアロゾル質量スペクトルの精密質量から、有機物濃度およびその元素組成比(O/C 比)の日内変化を求めた。その結果、有機物の濃度と粒子中の酸素と炭素の元素比(O/C 比)が日中に増加し、酸化された有機粒子の割合が増加する傾向となっていた。O/C 比について、ディーゼル排ガスでは 0.03 程度で二次有機粒子(トルエン/NO 系など)は 0.4 程度という報告があり、二次生成有機粒子が寄与していた可能性が示唆された。

下田美里, 飯島明宏, 田子 博, 熊谷貴美代, 齊藤由倫, 小澤邦壽. 群馬県における有害大気 汚染物質調査 - モニタリングデータと排出インベン トリーに着目した水銀発生源の探索 - . 平成 21 年 度全国環境研協議会関東甲信静支部大気専門 部会, 甲府市 (2009 年 9 月)

群馬県では、県内の5地点において有害大気 汚染物質の調査を毎月行っている。今回、大気 中水銀濃度について、2002~08年度の7年間の モニタリングデータを取りまとめ、地点間の濃 度およびそのトレンドを比較した。5 地点のう ち 4 地点における水銀濃度の年平均値は 1.9~ 2.6 ng/m³で、この値は全国の年平均値と同レベ ルであった。一方、残りの1地点における水銀 濃度の年平均値は 2.7~3.4 ng/m³で、他の 4 地 点よりも有意に高く、経年的に濃度が増加する 傾向が見られた。そこで、この1地点の大気中 水銀濃度と風向頻度および同地点で測定した金 属成分濃度との関係を解析したところ、水銀濃 度は北東風の頻度と有意な正の相関(p<0.01)を 示し、測定地点北東方向に位置する金属製錬工 場の指標となる亜鉛およびカドミウムと有意な 正の相関(*p*<0.01)を示した。このことから、こ の工場が水銀の発生源であることが示唆された。 一方、PRTR 制度による届け出によれば、測定 地点周辺からの水銀の大気排出はなく、排出実 態の把握は困難であった。今後は、当該物質の 環境モニタリングによる監視のみならず、排出 が危惧される事業所からの正確な排出実態の把 握が必要である。

齊藤由倫 , 飯島明宏, 木村真也, 小澤邦壽, 野原精一. 群馬県谷川温泉における温泉水中希土類元素パターンの識別. 日本陸水学会第 74 回大会, 大分市 (2009 年 9 月)

近年、急速な開発により温泉資源の枯渇が懸念されている。温泉資源を保護するためには、地下の温泉の流れ等を把握して、枯渇しないよう利用を管理する必要がある。しかしながら、山岳地域に多く分布する温泉では、基盤岩中を複雑に錯綜する断層を介して温泉が流動している場合が多く、水脈の把握が難しい。そこで本研究では、水脈が通る地層の地質情報を詳細に反映すると言われている温泉中の希土類元素(REEs)に着目して、REEs 濃度組成パターン(REEs パターン)の識別から温泉水脈の推測を試みた。

谷川温泉の12源泉を対象に、採取した温泉をろ 過し REEs をろ液と残渣に分離してそれぞれ分 析に供した。12源泉のREEsパターンの識別に はクラスター分析によるグループ分けを行った (距離:ピアソンの相関係数,クラスター化: 最遠隣法)。残渣の REEs パターンは大きく 3 グループに分類され、この分類分けは源泉間の 地理的な近接性と良い一致を示した。このこと から、残渣の REEs パターンは局地的な地質組 成を反映し、温泉中の残渣は源泉井戸先端近く の岩石そのものである可能性が考えられた。こ の識別結果に基づき谷川温泉の地下の地質区分 を推測した。一方、ろ液の REEs パターンは、 地質を構成する元素の価数を反映し、その違い を識別できることが示されている(例えば Ce<sup>3+</sup>/Ce<sup>4+</sup> や Eu<sup>2+</sup>/Eu<sup>3+</sup> の違いを識別)。従って、 これに着目すればより詳細な地質組成の違いを 識別できることが期待される。そこで本研究で は、前述の地質区分が同じで、且つろ液の結果 も同じグループに属した源泉同士は、高透水性 の岩石破砕帯(水脈)のような同一の地質構造に よって繋がっていると仮説立てた。この仮説に 基づき谷川温泉の主となる2つの温泉水脈を推 測した。

須藤和久,木村真也,田子 博,後藤和也,後藤 考市,中島 右,小澤邦壽.利根川における農薬 類の濃度変化.平成 21 年度全国環境研協議会

## 関東甲信静支部水質専門部会,宇都宮市(2009年10月)

本県では県内河川について水質保全のために、化学物質を含めた各種項目の常時監視を行っている。しかし、それらの項目の中で農薬の水質調査については、調査データの蓄積が必ずしも十分とは言えない。そこで本研究では、利根川本流における農薬類の流出実態を把握するため、2009年6月から1年間、水道法・水質管理目標設定項目の GC/MS 分析対象農薬を中心に多成分一斉分析によるスクリーニング調査を行った。測定の結果、26農薬が定量下限値を超えて検出された。しかしいずれの農薬も水道法・水質管理目標値を超過していなかった。

熊谷貴美代,飯島明宏,下田美里,小澤邦壽,坂本和彦.群馬県における微小粒子中炭素成分の季節特性.第 36 回環境保全・公害防止研究発表会,富山市 (2009年 10月)

大気中微小粒子は健康影響を及ぼすことから、 我が国では環境基準の導入が検討されている。 関東平野の内陸に位置する群馬県では、春夏季 に高濃度の光化学 Ox が多発することから二次 生成有機エアロゾルの生成促進が懸念される。 そこで本研究では、微小粒子中の含炭素粒子の 挙動を解明するため、光化学反応が盛んな春夏 とその対照として冬季において微小粒子中の炭 素成分および水溶性有機炭素成分の観測を行い、 それらの季節的な特徴について考察した。

微小粒子濃度の平均値は春 21.4、夏 24.3、冬  $23.1\mu g/m^3$ であった。微小粒子の組成は、春夏季は  $SO_4^2$ と OC、冬季は  $NO_3$ と OC が優勢な成分であった。春夏季では EC 濃度の変動は比較的小さいのに対し、OC 濃度は変動が大きく、OC/EC 比も大きく変動した(0.9-3.5)。高濃度の光化学 Ox が発生した日は、OC も高濃度となる傾向がみられ、二次生成によって OC が増加したと考えられる。WSOC 濃度は、OC とほぼ同じ変動を示していた。WSOC/OC 比は季節によって異なり、その平均値はそれぞれ春 0.62、夏 0.82、冬 0.46 であり、夏季は WSOC の割合がかなり高いという結果が得られた。光化学反応によって有機物の酸化が進み、水溶性が増加したと考えられる。春および夏では、WSOC と Ox

には強い正相関が得られたことから、WSOCは SOA 由来の成分であると考えられた。一方、冬季では Ox との正相関は見られなかった。冬季では WSOC はバイオマス燃焼の指標とされる K+濃度と強い正の相関関係となっていた。 WSOC はバイオマス燃焼由来の粒子も存在し、特に冬季ではその影響を強く受けている可能性が示唆された。

藤田雅弘,吉住正和,長井綾子,塚越博之, 齊藤美香,鈴木智之,横田陽子,小畑 敏,小澤 邦壽.群馬県で分離された新型インフルエンザウ イルスの遺伝子解析について.第 24 回関東甲信 静支部ウイルス研究部会,東京都 (2009年10月)

2009年4月にメキシコと米国カリフォルニア から報告された新型インフルエンザ A/H1N1 (以下 AH1pdm)は、その後、世界 135 カ国、 患者数 177,457 人に拡大している (8月6日現 在)。今回、当研究所において得られた AH1pdm について HA 及び NA 遺伝子の塩基配列につい て解析した。AH1pdm が確認された検体につい て HA 遺伝子の全領域(1701bp)の分子系統解 析および NA 遺伝子の一部についてノイラミニ ターゼ阻害薬剤耐性マーカーである H275Y に ついて調べた。分離された9株のHA遺伝子の 塩基配列は、A/New York/20/2009/AH1pdm と 99.58~100%相同であった。また、HA 遺伝子の Receptor Biding site では、A151T と D239E の置 換がみられた株が1株ずつあった。これらの NA 遺伝子の一部を調べたところオセルタミビ ルに対する耐性変異はみられず、オセルタミビ ル感受性株であることが分かった。本県におい ては、7月以降は学校など集団関連事例がみら れるようになり、7月24日の以降のクラスター サーベイランスの結果、8月2日の時点で6つ の AH1pdm 集団感染が確認されている。今後も AH1pdm の HA 遺伝子がどのように変異するか を監視するために、HA 遺伝子について詳細に 調べていくことは重要と考えられた。

中島大介, 影山志保, 白石不二雄, 永洞真一郎, 佐久間隆, 渡邉英治, 熊谷貴美代, 今津佳子, 吉田篤史, 岡山安幸, 茶屋典仁, 矢島博文, 後藤純雄, 白石寛明, 鈴木規之. 国内 11 地点にお

ける夏季·冬季の大気粉じんおよびガス状成分のマイクロサスペンジョン法による変異原性評価 (2007-2009 年). 日本環境変異原学会第 38 回大会, JEMS2009, P.133, 静岡市 (2009 年 11 月)

全国 11 地点(北海道、宮城、山形、群馬、茨城、東京、神奈川、静岡、鳥取、福岡、鹿児島)で、2007 年から 2009 年にかけて夏季および冬季の計 4 回、各 4 日間ずつ大気一斉モニタリングを実施した。モニタリングにはハイボリウムエアサンプラーを用い、同時採取した大気粉じん(フィルター抽出物)およびガス状成分(ポリウレタンフォーム(PUF)抽出物)について、TA98 株及び TA100 株におけるマイクロサスペンジョン法により変異原性を調べた。

その結果、変異原性は全体的に TA98 株-S9mix で最も強く、TA100 株ではほとんど活性が認められなかった。変異原性は特に関東地方(茨城、東京および神奈川)で高い傾向があった。フィルター抽出物の変異原性は、夏季よりも冬季に活性が高くなり、PUF 抽出物の活性はフィルター抽出物とは逆に冬季よりも夏季で高まる傾向が認められた。また大気中の変異原は、降雨や降雪によって低下する傾向も認められた。

影山志保,中島大介,白石不二雄,永洞真一郎,佐久間隆,渡邉英治,熊谷貴美代,今津佳子,吉田篤史,岡山安幸,茶屋典仁,矢島博文,後藤純雄,白石寛明,鈴木規之.国内 11 地点における夏季・冬季の大気粉じんおよびガス状成分の発光 umu 試験による遺伝毒性評価(2007-2009年),日本環境変異原学会第 38 回大会,JEMS2009 p.114,静岡市 (2009年11月)

全国11都道府県で2007年から2009年にかけて大気モニタリングを実施した。サンプリングはハイボリウムエアーサンプラーを用い、夏季および冬季に計4回、大気粉じん(フィルター抽出物)およびガス状成分(ポリウレタンフォーム抽出物)を同時採取した。採取試料についてS.typhimurium TL210を用いた発光 umu 試験により遺伝毒性を調べた。

大気の遺伝毒性は夏季の - S9mix 系では比較的関東地方で高い活性が認められた。2008年および2009年冬季の - S9mix系では活性の殆どが大気粉じんだったが、それ以外では大気粉じん

よりもガス状成分で強い活性を示すことが認められた。大気粉じんおよびガス状成分の変異原性は、夏季はガス状成分が高まり、冬季には大気粉じん成分が高くなる傾向にあるが、今回の発光 umu 試験による遺伝毒性はそれとは異なる挙動を示していた。

後藤和也,田子 博,中島右,須藤和久,木村真也,小澤邦壽.地域住民と協働した河川環境モデルの評価.第46回環境工学研究フォーラム,高崎市(2009年11月)

水環境を水質のみでなく、動植物の生息や水 の利用、水辺の快適性などの幅広い視点から評 価するモデルが公表されているが、同一モデル を全ての河川に適用することは難しく、必ずし も誰もが使用できるものにはなっていない。モ デルは地域住民や河川利用者の方々が使用する ことで、その河川の特徴を知ることができ、よ りよい河川環境を創造・保全できると考える。 そこで、我々は地域住民と共同で地域住民の視 点によるモデル評価を行い、誰でも簡単に使用 できるモデルを作成(改良)すること、この評 価をとおして河川に親しみ、環境教育につなげ ることを目的として実施した。その結果、地域 住民がモデル評価を行うことで、現在の自分た ちの河川環境の把握が可能となり、自分たちの 活動の課題も確認することができた。モデルに ついては、評価しやすい項目と難しい項目がは っきりと回答率に表れた。評価しやすい項目は 今後も十分に活用することが可能と考えられる が、評価が難しい項目は評価者が使いやすいよ うに改良する必要があると思われた。ただし、 今回は山間部のみでの結果であるので、今後は 環境の異なる群馬県内の都市河川で評価を実施 し、その結果と合わせてよりよいモデルの改良 を行う。誰でも簡単に使用できるモデルとする ことで、環境教育につなげ、河川環境保全の一 助としたい。

木村真也,須藤和久,飯島明宏,田子博,後藤和也,冨岡淳,中島右,小澤邦壽.利根川における金属類のモニタリング結果.第46回環境工学研究フォーラム,高崎市(2009年11月)

群馬県内の利根川本川において平常時の金属元素の濃度レベルや季節変動パターン等の環境動態及び Cu や Ni など事業所から相当量の排出があるものについての流出実態等を把握することを目的として、金属濃度の通年調査を行った。各種基準の超過は濁水時にのみ見られた。超過のあった金属については、濁水時に懸濁態金属濃度が上昇する挙動が明らかとなった。Cu、Ni、Cr、V、Zn は、金属製品製造業等の工場排水に含有される金属であり、下流へ向向をでいた。そのため、人為的な発生源の負荷を評価するための重要な指標として、その環境動態を詳細に解析する必要があると考えられた。

齊藤由倫,飯島明宏,木村真也,小澤邦壽,野原精一.希土類元素に着目した基盤岩中の地下水水脈の推測.第 46 回環境工学研究フォーラム,高崎市 (2009 年 11 月)

齊藤由倫ら、日本陸水学会第74回大会要旨に同じ。

白石不二雄,中島大介,鎌田 亮,影山志保,滝 上英孝,永洞真一郎,佐久間隆,渡邉英治,熊 谷貴美代,今津佳子,吉田篤史,岡山安幸,茶 屋典仁,池盛文数,矢島博文,後藤純雄,白石 寛明,鈴木規之.国内の大気粉じんのアリルハイ ドロカーボン受容体(AhR)結合活性について.第 12 回環境ホルモン学会研究発表会,p.109,東京 (2009年12月)

アリルハイドロカーボン受容体(AhR)は別名、ダイオキシン受容体とも呼ばれており、大気汚染物質として注目されている多環芳香族炭化水素類(PAHs)とも強い親和性を持つことが知られている。我々は、国内各地から採取した大気粉じんのアセトンによる抽出試料について、AhR遺伝子導入酵母アッセイ法により AhR 結合活性の測定を試みた。大気粉じんは、日本国内 11 都道府県の採取地点から、2007年から 2009年にかけて夏季及び冬季に、24 時間毎に同時にハイボリュームエアサンプラーを用いて石英フィルターに捕集した。国内 11 採取地点における大気粉じんの 1 m³ あたりの AhR 結合活性は、期間ごとの平均では夏季より冬季に強い傾向が見られ

た。夏季の AhR 結合活性を採取地点ごとに比較すると、群馬、茨城、東京、福岡で強い傾向が、北海道、宮城、山形、神奈川、静岡、鳥取、鹿児島で弱い傾向が見られた。一方、冬季の AhR 結合活性は、北海道、群馬、茨城、神奈川で強い傾向が、宮城、山形、静岡、鳥取、福岡、鹿児島で低い傾向が見られた。特に北海道及び群馬の 2008 年冬季では他の採取地点に比べて 2 倍程度の活性を示した。

後藤考市,後藤和也,田子 博,中島 右. 県内河川のBOD環境基準達成率に係る調査. 群馬県分析研究会第34回研究発表会,前橋市(2010年1月)

群馬県内河川において代表的な河川水質環境 基準(BOD75%値)の達成率は、平成12年度以 降、平成 19 年度までは 70%代で横ばいの傾向 であったが、平成20年度は87.5%を達成した。 この大幅な向上をもたらした状況について県内 40 箇所の環境基準点別にみると、平成 19 年度 から平成 20 年度新たに環境基準を達成したの は7地点で、環境基準値が測定値を統計処理し た変動域内(時系列解析による変動幅内)にあ リ高い確率で達成が見込めた3地点(鏑川鏑川 橋、矢場川落合橋、広瀬川中島橋)と、変動域 を外れて低い確率で達成した4地点(井野川浜 井橋、早川前島橋、石田川大川合流前、休泊川 泉大橋)に分けることができた。これらのうち 後者の4地点について詳細にみると、灌漑期、 非灌漑期とも経年的な改善傾向が認められ、基 準達成の要因については、石田川地点以外の 3 地点で基準点付近の年度降水量と非灌漑期 BOD 値とが見かけ上関連していることから、継 続的な BOD 負荷削減の努力と相まって、自然 現象である降水量の多寡が共通の要因と推測さ れた。なお、各地点においては地域的事情が関 与していることから、基準達成を図っていく上 で各地点ごとの個別検討も重要である。

熊谷貴美代. 有機トレーサー成分に着目した有機 エアロゾルの発生源把握. 第 25 回全国環境研究 所交流シンポジウム, つくば市 (2010年2月)

大気中の有機エアロゾルは、微小粒子の主要 成分の一つであるが未解明な部分が多く、今後 の微小粒子汚染対策を考える上で有機エアロゾルの発生源を把握することが重要である。有機エアロゾルは化石燃料やバイオマスの燃焼により直接排出される一次粒子と二次生成有機エアロゾル(SOA)が存在する。本研究では、SOA の指標として光化学反応によって生成するジカルボン酸類と、バイオマス燃焼のトレーサー成分であるレボグルコサンに着目して観測を行い、有機エアロゾルの発生源を推定した。

観測地点は群馬県前橋市(群馬県衛生環境研究所)とした。2007年冬季、2008年夏季、冬季に、石英繊維フィルター上に PM<sub>2.1</sub>(< 2.1 μm)を捕集し、イオン成分、炭素成分(EC・OC)、水溶性有機炭素成分(WSOC)ジカルボン酸およびレボグルコサンを分析した。

夏季は光化学 Ox 高濃度日に OC、WSOC の増 加がみられ、WSOC/OC 比は平均 0.82 と高い値 となっていた。また総ジカルボン酸濃度は、冬 季よりも夏季の方が高く、光化学 Ox の増加に 伴いジカルボン酸濃度も増加する傾向が見られ た。ジカルボン酸の中では C2 diacid 濃度が最も 高くなっており、夏季は光化学反応の活性化に より有機物の酸化が促進され、低級ジカルボン 酸の生成量が増加すると考えられた。レボグル コサン濃度は、夏季よりも冬季の方が高く、顕 著な季節差が見られた。2007年冬季についても 同様に高濃度が観測された。冬季はレボグルコ サンと WSOC、OC は強い相関関係にあり、バ イオマス燃焼由来の影響を受けていると推察さ れた。夏季についてはこれらの相関は認められ なかった。

レボグルコサン濃度からバイオマス燃焼の寄与を求め、さらに EC-トレーサー法を組み合わせて SOA の寄与を推定した。その結果、夏季では二次生成が支配的であり、OC に占める二次生成の割合は 75%であった。一方、冬季では二次生成の寄与は夏の 1/2 程度に低下しているのに対し、バイオマス燃焼の寄与は大きく増加し、OC の半分はバイオマス燃焼由来と推定された。以上の結果から、夏季は二次生成、冬季はバイオマス燃焼が重要な有機エアロゾルの発生源であることが分かった。

飯島明宏. レセプターモデルを用いた粒子状物質 の発生源解析. 第 25 回全国環境研究所交流シン ポジウム, つくば市 (2010 年 2 月)

大気エアロゾルには様々な発生源に由来する金属元素が含まれている。その中で、アンチモン(Sb)は濃縮係数が極めて高い元素で、人為的な発生源の存在が強く示唆されている。本研究では大気エアロゾル中の Sb の発生源解明を目指し、Chemical Mass Balance (CMB)法により道路沿道および一般環境において採取した粒径別大気エアロゾルの発生源解析を行った。さらに、Sb の化学形態に着目し、CMB 法よる解析結果の妥当性を検証した。

横田陽子, 坂野智恵子, 安中秀幸, 須藤律子. 小規模コンニャク製造業者の意識調査および手作 り風コンニャクの汚染実態調査について. 地方衛 生研究所全国協議会関東甲信静支部細菌研究 会第 22 回研究会, 前橋市 (2010 年 2 月)

群馬県ではコンニャクの製造には食品製造業 の許可を受け管理運営基準を遵守し衛生的な製 造を行わなければならない。しかし小規模コン ニャク製造業者は保健所から直接指導を受け食 品衛生の重要性を再認識する機会も少ない。ま た、コンニャクはアルカリ性食品であるため細 菌は増殖できず安全であると認識していると思 われる。そこでアンケートによる意識調査およ び手作り風コンニャク(表示から生イモ使用、 手作りと表示、外観から推測等)の細菌検査等 を行ったところ以下の結果を得た。アンケート 調査では製造に従事する人数が1~2人が87%を 占め家内工業的であった。専用衣服の着用や手 洗いマニュアルもない施設は44%であった。製 造において品質や異物混入、表示については合 わせて66%が注意しているが、消毒や衛生に注 意する施設は16%しかなかった。手作り風コン ニャク18検体を試買検査したところ、pH11未満 で一般生菌数(2乗、4乗、7乗)および好アルカ リ性菌 (pH9以上の環境で発育、3乗、6乗)が 比較的多く検出された。pH9の1製品からはさら に大腸菌群が6乗、クロストリジアも検出された。 大手のコンニャク製造業者がpH11以上を維持 して製造している実態はある程度科学的根拠が あると考える。自主検査の項目についてさらに

検討し特産品であるコンニャクが衛生的に製造 されるよう指導したい。

#### 黒澤 肇, 齋藤美香. 腸管出血性大腸菌 O157 を 対象とした遺伝子多型解析法の検討. 第 46 回関 東甲信地区医学検査学会, 千葉市, (2010年2月)

腸管出血性大腸菌(EHEC)感染症では感染源 を特定するために分離菌株の遺伝子解析(型別) が必要となる。今回は IS (Insertion Sequence) の ゲノム領域を標的とした IS - printing System の 評価を目的として、Pulsed - field Gel Electrophoresis (PFGE 法)との比較を行ったので 報告した。EHEC O157: H7 VT1-VT2 両産生 14 株、同 VT2 単独産生 6 株を供試した。O157 VT1-VT2 両産生 14 株は、PFGE 解析では 5 種の パターン、IS-printing では 7 種のパターンに型 別された。EHEC VT2 単独産生 6 株では、PFGE 解析および IS-printing は 2 種のパターンに型別 された。今回の検討から、両解析法は菌株間に おける識別能が概ね一致することが認められた。 特に diffuse outbreak の発生時には、疫学情報を 基本に多型解析法を活用することが、感染源調 査に極めて有効であると考えられた。

### 田子 博,後藤和也,須藤和久,木村真也,下田 美里,中島 右,小澤邦壽.群馬県の河川におけ る水環境健全性指標試行調査(1).第44回日本 水環境学会年会,福岡市 (2010年3月)

我々は昨年、群馬県内の比較的清浄な河川に おいて、水環境健全性指標を用いて河川の総合 的評価を試みた。その結果、調査者のプロフィ ールが評価結果に影響を与える、具体的には地 元の調査者は外部の調査者より厳しい評価を下 す傾向があることがわかった。そこで今回は群 馬県の東南部にある都市河川(粕川、谷田川) を対象に同様の調査を行い考察した。地元と外 部の評価結果の差異は、粕川ではほとんど認めら れなかった。これは、外部調査者の中に環境カウ ンセラーが数名含まれており、その人たちの評価 がその他の外部調査者よりかなり厳しく、平均す ると結果的に地元の調査者とほぼ同じ評価点にな ってしまったためである。これに対して、谷田川 では地元調査者の評価が厳しく、昨年と同様の結 果が得られた。地元の人たちは時間的、空間的 な広がりを持ってその河川を評価したこと、「揚舟」を観光資源ではなく、洪水から逃れるためのやむを得ない手段と考えたことなどが評価値に大きな差を与えた。このような住民意見は評価実施後の結果説明会で聞かれたものであった。結果説明会は住民が河川環境について議論することで共通認識を持つ機会となり、河川環境に対する関心がさらに高まることから、非常に重要であることがわかった。

#### 後藤和也,田子 博,須藤和久,木村真也,下田 美里,中島 右,小澤邦壽.群馬県の河川におけ る水環境健全性指標試行調査(2).第44回日本 水環境学会年会,福岡市 (2010年3月)

環境教育を通した環境保全意識の高揚を図る ことを目的として、群馬県内の4河川を対象に地 域住民と共同で水環境健全性指標を使用した試 行調査を実施した。指標は誰でもどこでも簡単 に使用できる必要があり、今回の調査結果から 主として回答率に着目して指標(調査票)の改 良を試みた。調査河川は山間部の赤谷川、片品 川、都市部の粕川および谷田川である。いずれ も同一の調査票を用いて調査を行った。その結 果、山間部と都市部の違いによる回答率に大き な差は見られなかった。地域住民の感想も好評 であったことから、本調査は住民の方々にある 程度受け入れられたと考えられた。その一方で 回答率の低い項目があり、これらに共通する内 容は現地状況からでは回答が難しく、回答する ためには根拠が必要なものであった。そこで、 現地での確認が容易なものを判断材料に加える、 調査者各自の感覚で判断できる内容とするなど の対応が必要であると考えられた。ここでの考 察を反映させて改良した新たな調査票を用いて、 今後も地域住民と共同で調査を行い、より使い やすい調査票を作成し、環境教育として普及啓 発に努めたい。

須藤和久,木村真也,田子 博,後藤和也,後藤 考市,中島 右,小澤邦壽.群馬県中東部の利根 川における農薬類の流出実態.第 44 回日本水環 境学会年会,福岡市 (2010 年 3 月)

県内利根川本流のうち県央~東部を調査対象 とし、合計6地点(大渡橋、福島橋、坂東大橋、

上武大橋、刀水橋、昭和橋)について農薬類の 流出実態および動態を調査した。調査は 2008 年6月~2009年5月とし、合計25回の採水を 行った。調査対象農薬は、水道法・水質管理目 標設定項目の GC/MS 分析対象農薬の中の 67 種 類とした。調査の結果26種類の農薬が定量下限 値を超えて検出された。いずれの農薬もそれぞ れに設定されている環境基準値、要監視項目指 針値及び水質管理目標値を超過していなかっ た。これらは検出パターンから3つのタイプに 分類された。検出タイプ1は、県央~東部地域 で水稲栽培初期に使用された農薬が主体と考え られ、6月下旬~7月上旬に検出が集中した。検 出タイプ2は前橋以北の水田で使用された農薬 と思われ、6 月下旬に大きな検出ピークが現れ た。検出タイプ3は、主に畑作農薬が中心であ り、不定期に、あるいは微量な濃度で長期間に わたって検出されるなどの特徴が認められた。 今回の結果から、県央~東部地域の利根川本流 および同流域の水質農薬調査は6月下旬~7月 上旬を中心に行うことが適切と考えられた。

木村真也,須藤和久,飯島明宏,田子 博,後藤和也,吉澤正純,中島 右,小澤邦壽.群馬県中東部の利根川における金属成分の流出実態.第 44回日本水環境学会年会,

#### 福岡市(2010年3月)

群馬県内の利根川流域で人為発生源の影響が懸念される県中央部から県内の利根川下流域において金属成分の流出実態を把握することを目的として、金属濃度の通年調査を行った。利根川本川においては、各種基準の超過は濁水時にのみ見られた。また、工場排水に含有され、下流へ向かうほど濃度および負荷量が共に増加する金属成分として Zn 及び Ni があり、人為的な発生源の負荷を評価するための指標として解析を行った。その結果、負荷割合の大きい利根川へ流入する支川を明らかにした。

下田美里,田子 博,熊谷貴美代,飯島明宏, 齊藤由倫,小澤邦壽.地下水窒素汚染に対する 大気沈着の寄与の推計.第 44 回日本水環境学 会年会,福岡市 (2010年3月)

群馬県では硝酸性窒素による地下水汚染が

深刻な状況にある。本研究では、地下水窒素汚染に対する大気からの窒素沈着の寄与を推計した。窒素化合物の乾性沈着量を定量的に見積もるため、土地利用形態の異なる県内の4地点において大気中窒素化合物濃度を測定し、インファレンシャル法から乾性沈着量を求めた。群馬県全体における乾性沈着量は0.46 t-N/km²/yrで、硝酸ガス(HNO<sub>3</sub>-N: 47%)およびアンモニアガス(NH<sub>3</sub>-N: 21%)が主成分であった。これまでの研究で求めた湿性沈着量1.68 t-N/Km²/yrと合計すると、大気沈着量は2.14 t-N/km²/yrと推計された。地下水への窒素負荷に対する大気沈着の寄与率は24%であった。

大江 華,中田祐志,野澤康平,黒河圭子,井関正博,熊谷貴美代,田子 博,小澤邦壽,塩素発生電極によるホルムアルデヒドの分解メカニズムの解明.電気化学会第77回大会,富山市(2010年3月)

電解水を応用した室内空気質浄化技術の開発のため、シックハウス症候群の主要な原因物質であるホルムアルデヒドに着目し、電解によるホルムアルデヒドの分解メカニズムについて検討した。シリコン栓で密閉した円筒形ガラス容器に、模擬水道水とホルムアルデヒドを入れ、板型塩素発生電極一対を浸漬させ、電解実験を行った。所定時間毎にNash 法によりホルムアルデヒド濃度の測定を行った。また中間生成物と考えられるギ酸水溶液の分解を確認するために、ホルムアルデヒドと同様の電解実験も行った。

電流密度・電極面積を変化させた場合、電解時間とホルムアルデヒド濃度の対数は一次の比例関係にあることが明らかとなった。また電解液容量を変化させた場合、電解時間とホルムアルデヒド濃度は反比例となることが明らかとなった。これらの結果より、本試験系における溶液中のホルムアルデヒドは、拡散律速に従う陽極酸化反応により分解されることが示唆された。電解によるギ酸の分解速度とホルムアルデヒドの分解速度の比較から、ギ酸は迅速に無害化されることが明らかとなった。