

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	こ びん	提出年月日	2022 年 4 月 28 日	
申請者氏名	胡 敏			
所属・職名	北京大学 環境科学与工程学院・教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☒ 重点共同研究 ☐ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☐ 一般枠 ☒ 国際枠	研究期間 ☐ 単年 ☒ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☒ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☒ 地域環境の将来予測に関する研究 ☒ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	東アジア地域大気中マイクロプラスチックの大気内挙動及び日本海への影響評価			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 31 日			
センター 教員	唐 寧			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	胡 敏	北京大学	教授	総括
	分担者	呉 志軍	北京大学	教授	化学分析
		郭 松	北京大学	教授	大気サンプリング
		呉 慶	復旦大学	教授	海水サンプリング
		周 志俊	復旦大学	教授	海水サンプリング
		長尾誠也	金沢大学	教授	海水サンプリング
		張 露露	金沢大学	博 士 研 究 員	化学分析
		唐 寧	金沢大学	教授	大気サンプリング
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	粒子状物質 粒子状物質 粒子状物質 海水 海水	固体 固体 固体 液体 液体	120 60 60 20 40	
	分析した試料	粒子状物質 粒子状物質 粒子状物質 海水 海水	固体 固体 固体 液体 液体	10 0 0 0 0	
研究目的・ 期待される 成果	これまでに日中両国の共同研究で東アジア地域における大気汚染物質，特に発がん性多環芳香族炭化水素類の越境輸送について，その輸送時期やルート及び生態環境への影響は次第にわかってきた。近年，マイクロプラスチック（MP, 直径< 5 mm）は新たな環境問題として，注目が集まっている。海洋 MP は，1972 年に <i>Science</i> に初めて報告されたが，当時殆ど問題視されなかった。しかし 1997 年に Great Pacific Garbage Patch が確認されてから，研究が盛んに行われるになった。 日中両国はいずれもプラスチック消費大国であり，特に中国は 2010 年に海洋に流出したプラごみ年間発生量の 1 位になっていた。一方，海洋プラごみの主要発生源から考えますと，河口が最も重要であるが，大気からの沈着も無視できない。そこで，本研究では，日中両国が共同で，東アジア地域，とりわけ日本海域の生態環境の MP による汚染現状を把握し，大気-海洋-陸地循環機構を解明した上，プラごみの潜在的な危険を予測することを目的とした。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	アジア地域のマイクロプラスチック（MP）排出量は世界全体の約 86%を占め、うち中国の排出量は 132-353 万トン／年でアジア地域においても断トツである。また、中国の中でも、北京（5650 MP/m³）や上海（1.42 MP/m³）の大気中浮遊している MP はもっと多く、長江を経由して東シナ海への流出量は年間 33 万トンに及ぶ。これらの先行調査をもとに、本研究では、北京（北京大学）、金沢（金沢大学）と能登スーパーサイト輪島測定局 KUWAMS）に総降下物（乾性と湿性）の捕集装置を設置し、連続して降下物の捕集を行った。なお、捕集容器の交換は月ごとに行った。捕集した降下物をステンレスフィルターを用いてろ過し、フェントン処理を施してから塩化ナトリウム水溶液に浸し、MP の抽出処理を行った。選別された MP は LDIR Chemical Imaging System を用いて定性した。今年度は、北京で捕集したサンプルの分析を行った。また、コロナ禍で上海にある長江河口（復旦大学）の採水を実施できなかった。 北京の大気中 MP の平均濃度は 785 items/(m² d)であり、その殆どは、ポリアミド、ポリエチレン、ゴムとポリプロピレンであった。まだサイズ別にみると、20－30 μm（50%）の割合が最も多く、サイズが大きくなるにつれて MP の検出量が減少し（30－40 μm、約 30%）、40－50 μm（16%）と 50－620 μm（18%）の画分は最も少なかった。しかし、どのサイズにおいてもポリアミド、ポリエチレン、ゴムとポリプロピレンが主成分であることから、大気中に存在する MP は主に機械的な破壊で生じたことが示唆された（表 1）。 表 1 北京の大気中サイズ別 MP の割合 ・ 20～30 μm：ポリアミド（42%）＞ポリエチレ（18%） ＞ゴム（12%）＞ポリプロピレン（11%） ・ 30～40 μm：ポリアミド（41%）＞ポリエチレ（22%） ＞ゴム（15%）＞ポリプロピレン（11%） ・ 50～620 μm：ポリエチレン（34%）＞ポリアミド（19%） ＞ゴム（15%）＝ポリプロピレン（15%） 一方、本研究では加工時に抗酸化剤の添加により抗酸化能力の高い塩素化ポリエチレン系や生物分解性を有するポリ乳酸系の MP は殆ど検出されなかった。 来年度は、大気試料の一斉捕集のみならず、長江河口における海水の捕集をできるだけ実施し、MP の分析とデータ解析を行う予定である。 ※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。
見込まれる 成果物	修士論文のテーマとし、データが出次第、投稿論文を作成する予定である。 ※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

Annual Results Report
Joint Research, Institute of Nature and Environmental Technology,
Kanazawa University, 2021

Name	Ochir ALTANSUKH	Date	04/14/2022		
Affiliation Position	Professor (tenure), D.Env School of Engineering and Applied Sciences National University of Mongolia				
Postal Address					
Phone Number		Facsimile			
E-mail Address	_____				
Funding Category	☒ Key Joint Research Program ☐ Joint Research Program ☐ PhD student Support Program	☐ domestic ☒ international	Research period ☒ one year ☐ two years	☐ new ☒ continue	
Research Field	☒ Understanding environmental pollution, environmental fluctuations, and the mechanisms behind these factors ☐ Investigating the effects of environmental change on human health ☐ Researching the effects of human societies on ecosystems ☒ Developing methods for the prediction of changes to local environments ☒ Researching topics related to sustainable development ☐ Interdisciplinary studies related to the Sea of Japan Sea region				
Research Theme	"Study on dynamics of nutrients, organic matter and trace metals in lakes at semi-arid region of Mongolia"				
Program Period	04/01/2022~ 04/01/2023				
K-INET Research Staff	Seiya NAGAO				
Research Team		Name	Affiliation	Position	Role/Research Task
	Applicant	Ochir Altansukh	NUM	Professor	Supervisor
	Member(s)	Noriko HASEBE	KU	Professor	Field work
		Keisuke FUKUSHI	KU	Professor	Analysis/field work
		Shinya OCHIYA	KU	Professor	Analysis/field work
		Davaasuren Davaadorj	NUM	Professor	Analysis/field work
		Hisanori IWAI	KU	Post doctor	Analysis
		Bat-Erdene Ariunsanaa	KU	Ph.D student	Analysis/field work
		Tsetsgee Solongo	NUM	PhD	Analysis/field work
		Zorigt Baasanjav	NUM	MSc student	Analysis/field work
		Yunden Ariuntungalag	NUM	MSc	Researcher
		Munkhsuld Enkhuur	NUM	MSc	Researcher
		Gerelmaa Tuvshin	NUM	MSc	Researcher
※If there are any changes, please submit a newly revised application form to the K-INET office in consultation with K-INET staff.					

		Name of Sample	Form (Shape)	The number of samples
Assay sample(s)	Applied sample	Four season samples for inorganic nutrients, major ions, DOC, and trace metals (Winter, Spring, Summer, Autumn), Sediment sample	Frozen water samples, 4 core samples (for Lake Ugii -2, for Lake Bulan -2)	Water – 204 Core - 4
	Analyzed sample	Four season samples for inorganic nutrients, major ions, DOC, and trace metals (Winter, Spring, Summer, Autumn), Sediment sample	Water samples were analyzed fully. Sediment cor Bulan 1 was analysed	Water – 204 Core - 1
Purpose of the Research/ Expected Results	The ongoing study of surface water in the mining area (Geochemical Prediction Laboratory), an artificial lake in the urban area (LLRL), and natural lakes affected by meteorologic (climate) changes and pastureland can provide insight into changes in geochemical conditions of lakes in vast areas of semi-arid regions of Mongolia. First-year, we collected the samples four times in the year (spring, summer, autumn, winter) and to find out the preliminary result by field survey and laboratory analysis. Second-year, we plan to obtain four-time fieldwork in the year 2022-2023 (February, April, August, and October) to understand and define the relationship between physical features and nutrient cycles in the water of Lake Bulan, and to predict climate change's impact on water quality and the nutrient situation on the basis of the vertical distribution of physical-chemical features of water Lake Bulan.			

※ Submit the application form.

Details of the project/ Results	Our study analysis in the Kharaa River basin divided in three main parts. Firstly, focused on the nutrient concentration dynamics and a percentage of NH_4^+, NO_3^-, NO_2^- to total dissolved inorganic nitrogen (DIN) in surface water to assess the tropical situation in the lower reach of this basin. Second part is the vertical profile of nutrient concentration in seasonal range to identify their behavior in small artificial lake influenced by human activity by temporal and spatial observation. Third is sediment analysis to proceeding of eutrophication in the Lake Bulan. Mongolian lake environments have been subject to climate change and human activity such as urbanization. Lake systems maintain the social environment as a water resource, and through agriculture and resort activity. The nutrient concentration level and dynamics play an important role in maintaining the natural ecosystem and its diversity. This study focused on a small artificial lake with eutrophication, Lake Bulan, which is located in the lower reaches of Kharaa River basin where there is increasing human activity. The field research was carried out at three sites of Lake Bulan together with the Kharaa River from April 2019 to September 2021. The water samples were analyzed for nutrients, trace elements, and DOC concentrations to understand the present lake environment for future assessment. The concentrations and vertical profiles of nutrients ranged widely over four seasons. Higher concentrations of DIN and PO_4^{3-} were observed in January (1.44 ± 0.08 mg N/l, 0.08 ± 0.07 mg P/l) and September (0.72 ± 0.10 mg N/l, 0.02 ± 0.01 mg P/l). Under winter stratification the NH_4^+ and NO_3^- concentrations increased with the depth at the bottom layer. At summer stratification, an increase in nutrients and manganese concentration in the bottom layer was observed, with concentrations of NH_4^+ at 2.35 mg N/l, PO_4^{3-} at 0.08 mg P/l, Mn at 0.37 mg/l. These results suggested that the bottom layer and surface sediments were changed to a reducing environment by organic matter decomposition during the summer and winter seasons. The water stratification was one of the factors controlling nutrient concentration in Lake Bulan. Variation of DIN composition in the water Lake Bulan and Kharaa River The amplitude of seasonal fluctuations in the dissolved inorganic nitrogen (DIN) concentration and the percentage of the composition can serve as indicator of the eutrophication of a water body. The percentages of $\text{NH}_4^+ - \text{N}$, $\text{NO}_3^- - \text{N}$, and $\text{NO}_2^- - \text{N}$ are shown in Figure 2.6. In uncontaminated surface waters, the concentration of nitrate ions did not exceed a value of the order of tens of $\mu\text{g N / l}$ [23]. In January 2021, the average concentration of DIN from the surface lake water at three stations was 1.44 ± 0.08 mg/l. On the other hand, the Kharaa River had a downward change of between 0.03 and 0.27 mg/l, though the sampling station WWTP had an extremely higher DIN concentration of 28.7 mg/l. Average DIN concentration in the lake ranged from 0.26 ± 0.11 mg/l in August to 0.72 ± 0.1 mg/l in September. The variation of Lake Bulan is not similar to that of the Kharaa River. The maximum concentration of DIN was observed at Kharaa 3 in January, including the contribution of the WWTP water.
--	--

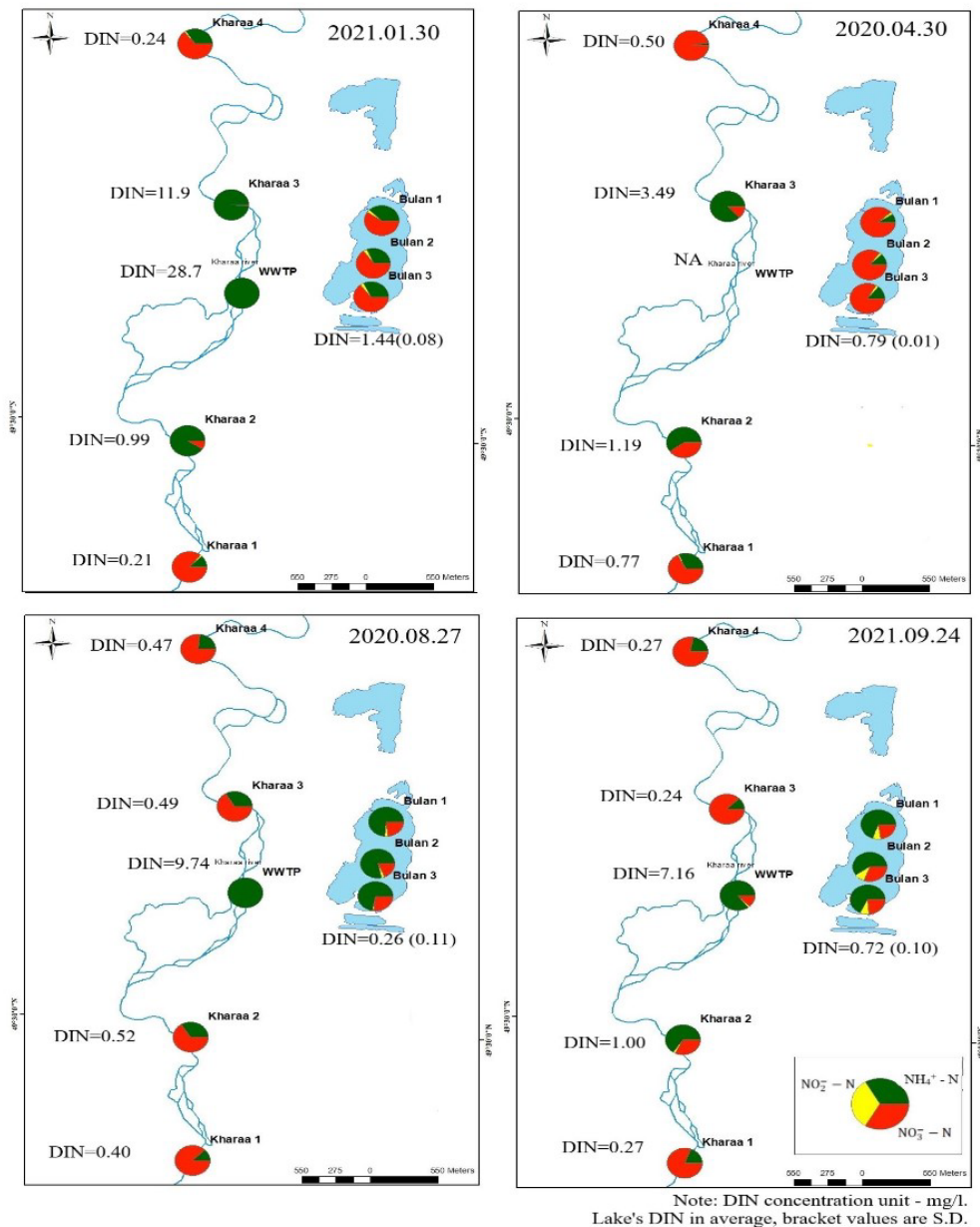


Figure 1. Percentage of $\text{NH}_4^+ - \text{N}$, $\text{NO}_3^- - \text{N}$, and $\text{NO}_2^- - \text{N}$ to total DIN concentration in the water from Lake Bulan and Kharaa River

With the proceeding of eutrophication, the concentration of $\text{NO}_3^- - \text{N}$ increases as well as its share in the total inorganic nitrogen. The concentration of nitrites and their shares in the total nitrogen content in August decreased to 0–2% at all studied stations. The average percentage of DIN in the water of Lake Bulan showed clear seasonal differences, as depicted in Figure 1. The dominant DIN was $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ in January and April but changed to $\text{NO}_3^- - \text{N}$ in August and September. Higher DIN concentration was related to higher $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ concentration.

Vertical profile of nutrients and DOC in Lake Bulan.

The vertical profile of nutrients and DOC concentrations at station Bulan 2 is shown in Figure 2. The NH_4^+ profiles had a wide variation in each season. The NH_4^+ concentration was almost constant with depth in April but significantly increased from 5 m water depth and reached 2.5 mg/l in August. The January observation results indicated an increasing trend with

water depth, though the concentrations differed from each other at the bottom layer. The NO_2^- concentration showed a wide variation from 0.01 mg N/l in January to 0.057 mg N/l in September. The January samples showed an increase in NO_2^- concentration from 6 m water depth to the deeper layer. The vertical profiles of NO_3^- concentration showed a similar variation trend to profiles of NO_2^- concentration. The January profile of NO_3^- concentration changed relatively widely and decreased until 6 m, but increased to 1.46 mg N/l in bottom layer. Phosphate concentration increased in the bottom layer in January, August, and September. The silica concentrations showed a similar vertical profile to the phosphate concentrations. The DOC concentration was constant with depth in April and August but showed wide variation with a maximum peak at 7 m water depth in January and September.

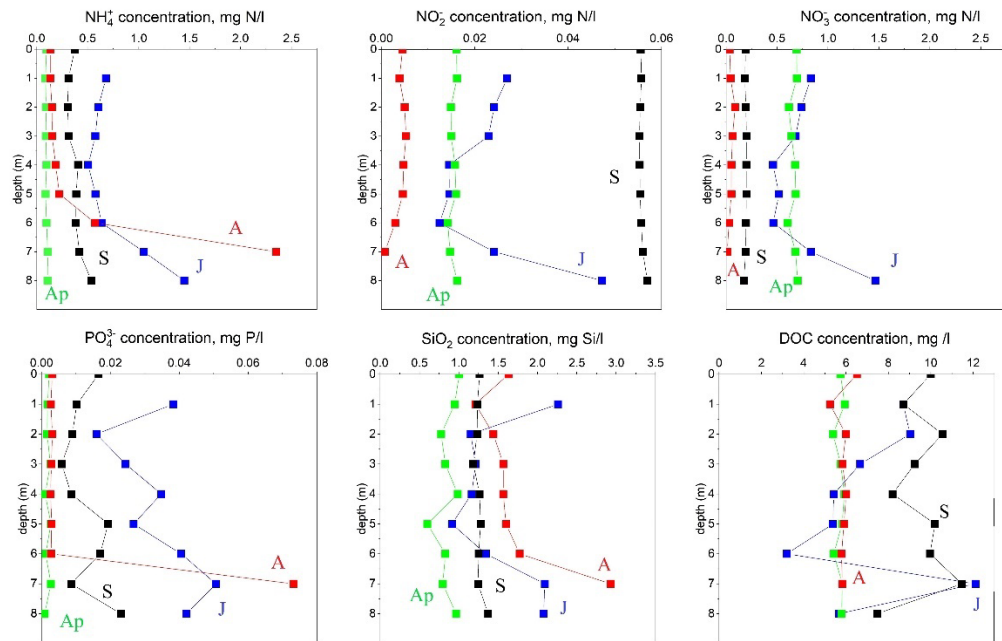


Figure 2. Vertical profile of DIN concentration in Lake Bulan water.

Note: A – August, Ap – April, S – September, J - January

TOC content significantly decreased from the surface to the sub – surface of 3 cm depth in core. TN content also decreased with depth until 3 cm depth, but $\delta^{13}\text{C}$ and $\delta^{15}\text{N}$ were almost constant with depth. The C/N ratio increased from 6.8 to 9.2. The C/N ratio has been used as a representative proxy to reconstruct the depositional environment of freshwater lake sediments. Carbon and Nitrogen in aquatic ecosystems are governed by the mixing of terrestrial and autochthonous organic matter. C/N ratios of 5 to 6 are reported in phytoplankton and zooplankton, which have proteins, which are primarily nitrogen compounds. Freshly deposited OM, derived mainly from planktonic organisms, has a C/N ratio of 6 to 9.

Future detailed study will be necessary to understand the effects of global warming and human activity, such as periods of shorter winter stratification and longer summer stratification on small lakes in Mongolia.

※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。

Results	Oral presentation: 8th forum of Material Chemistry, Kanazawa University – November 2021 Seasonal variation of nutrient concentrations in a small-artificial lake in Mongolia Symposium on corroborative research at Kanazawa University – March 2022 Study on dynamics of nutrients, DOC, and trace metals in lakes at the semi-arid region of Mongolia Ph.D Thesis, BATERDENE ARIUNSANAA – March 2022 Study on geochemical behavior of nutrients and trace metals in freshwater lakes with impact of human activities, Kanazawa University
※Write down the schedule of the published original papers, the publishment without original papers, oral presentation, bachelor thesis, thesis of master degree and doctoral thesis. Applicants must report the results to theK-INET office.	

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	やざわ たかし	提出年月日	2022 年 4 月 30 日	
申請者氏名	矢澤 隆志			
所属・職名	旭川医科大学生化学講座・講師			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☒ 重点共同研究 ☐ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☐ 単年 ☒ 複数年(2年)	☐ 新規 ☒ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☒ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☒ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	PAHs が生殖腺機能に及ぼす影響の包括的な解析			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 31 日			
センター教員	関口 俊男			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	矢澤隆志	旭川医科大学	講師	研究統括、細胞実験
	分担者	関口俊男	金沢大学	助教	魚類・無脊椎動物実験
		鈴木信雄	金沢大学	教授	遺伝子発現解析
		本田匡人	金沢大学	助教	PAHs 測定
		今道力敬	旭川医科大学	助教	魚類・マウス実験
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	ベンゾ(a)ピレン フェナトレン ベンゾチオフェン フルオレン	粉末 粉末 粉末 粉末		
	分析した試料	ベンゾ(a)ピレン フェナトレン ベンゾチオフェン フルオレン	粉末 粉末 粉末 粉末		
研究目的・ 期待される 成果	化石燃料の大量消費により発生する多環芳香族炭化水素類(PAHs)は、世界中の大気や海を汚染する化学物質であり、呼吸や食物連鎖を通じた人体への影響が懸念されている。PAHs は高い毒性を有することに加えて、内分泌かく乱物質として作用することが示唆されていることから、男女の生殖腺に作用してステロイドホルモン産生に代表される内分泌機能を抑制することにより、生殖能や健康面にも多大な影響を及ぼすことが懸念されていた。申請者は、過去に確立した環境ホルモンの生殖腺機能への影響を評価する系を用いて、PAHs の中に生殖腺の内分泌細胞に作用して遺伝子発現やホルモン産生に著しく影響を及ぼすものがあることを明らかにした。2021 年度は、これらの結果に基づき、哺乳類細胞株を用い PAHs の種類による遺伝子発現の変動を網羅的に解析する。これにより、ヒトの内分泌腺機能に影響を及ぼす PAHs やその作用の分子メカニズムの包括的な理解に繋がることが期待できる。また、哺乳類・魚類・無脊椎動物のステロイド産生酵素や核内受容体の活性測定系を用いることにより、環日本海域に生息する多様な動物における環境ホルモンや汚染物質のリスク評価を行う。生殖腺機能の低下による少子化の進行や環境汚染による生物種の絶滅は、世界各国において深刻な問題となりつつある。本研究により、環境汚染物質が生殖能や内分泌機能に及ぼすリスク要因を解明することにより、環境面から少子化や生物種減少の改善に向けた対策を提言することが期待できる。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	前年までの研究結果により、PAHs の中には、男女生殖腺のステロイドホルモン産生を短期的な作用で抑制する物質と長期的な作用で抑制する物質があることを明らかにしている。この PAHs 間における作用機序の違いを明らかにするため、短時間でステロイドホルモン産生を著しく抑制するジベンゾチオフェンをマウス・ライディッヒ細胞由来の MA-10 細胞に 6 時間処理した後に mRNA を採取して、RNA-seq により発現する遺伝子を網羅的に解析した。すると、ジベンゾチオフェン処理は、CYP17A1 等のステロイドホルモン産生系酵素遺伝子の発現を低下させるものの、解毒作用を持つチトクローム P450 群のような AHR 受容体の典型的な標的遺伝子の発現には、あまり影響を及ぼさなかった。よって、短時間処理でステロイドホルモン産生を抑制する PAHs 類の作用は、AHR に依存しない可能性が示唆された。この結果を支持するように、ジベンゾチオフェン、フェナントレン、フルオレンといった短期的な作用でステロイドホルモン産生を抑制する PAHs 類は、<i>in vitro</i> でルシフェラーゼを用いたアッセイ系において AHR を活性化する能力は、非常に弱かった。一方、<i>in vitro</i> 系で AHR を強力に活性化する PAHs 類（ベンゾ[a]ピレン、インデノ[1,2,3-cd]ピレン等）のステロイドホルモン産生の抑制効果は、短時間では非常に弱かった。しかしながら、これらの PAHs 類は、長時間処理により P450 1A を含む AHR 標的遺伝子の発現が強く誘導されて、ステロイドホルモン産生は抑制された。この PAHs によるステロイドホルモン産生に及ぼす影響の違いは、ヒト顆粒膜細胞由来の KGN 細胞においても、同様の傾向が得られた。以上の結果より、PAHs による早期のステロイドホルモン産生抑制作用は、主に AHR を介さない新たなシグナル経路を介することが分かった。一方、AHR に応答するリガンドは、チトクローム P450 1A サブファミリー等による代謝を介した長期的な作用を示すと推測される。 さらに、多くの PAHs がステロイドホルモン産生を含む生殖系に及ぼす影響を調べるために、15種類の PAHs がヒトやウナギ、ホヤのステロイドホルモン産生酵素を抑制したり、AHR の転写を活性化する能力をルシフェラーゼアッセイにより検討した。すると、ほとんどの PAHs が、ステロイドホルモン産生酵素の活性を抑制することが分かった。さらに、半分以上の PAHs が AHR の転写活性化能を有していなかったことから、多くの PAHs が AHR を介さない未知の作用機序によって生体に影響を及ぼす可能性が示唆された。
見込まれる 成果物	※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。 原著論文 1. <u>Suzuki N</u>, <u>Honda M</u>, Sato M, Yoshitake S, Kawabe K, Tabuchi Y, Omote T, <u>Sekiguchi T</u>, Furusawa Y, Toriba A, Tang N, Shimasaki Y, Nagato EG, Zhang L, Srivastav AK, Amornsakun T, Kitani Y, Matsubara H, <u>Yazawa T</u>, Hirayama J, Hattori A, Oshima Y, Hayakawa K. Hydroxylated benzo[c]phenanthrene metabolites cause osteoblast apoptosis and skeletal abnormalities in fish. <i>Ecotoxicol Environ Saf</i>. 2022, <i>in press</i>. 2. Kojima F, Sekiya H, Hioki Y, Kashiwagi H, Kubo M, Nakamura M, Maehana S, <u>Imamichi Y</u>, Yuhki KI, Ushikubi F, Kitasato H, Ichikawa T. Facilitation of colonic T cell immune responses is associated with an exacerbation of dextran sodium sulfate-induced colitis in mice lacking microsomal prostaglandin E synthase-1. <i>Inflamm Regen</i>. 2022, 42(1), 1. 3. Muramatsu I, Uwada J, Chihara K, Sada K, Wang MH, <u>Yazawa T</u>, Taniguchi T, Ishibashi T, Masuoka T. Evaluation of radiolabeled acetylcholine synthesis and release in rat striatum. <i>J Neurochem</i>. 2022, 160, 342-355. 4. Islam MS, Uwada J, Hayashi J, Kikuya KI, Muranishi Y, Watanabe H, Yaegashi K, Hasegawa K, Ida T, Sato T, <u>Imamichi Y</u>, Kitano T, Miyashiro Y, Khan RI, Takahashi S, <u>Umezawa A</u>, <u>Suzuki N</u>, <u>Sekiguchi T</u>, <u>Yazawa T</u>. Analyses of

Molecular Characteristics and Enzymatic Activities of Ovine HSD17B3. *Animals*, 2021, 11, 2876.

5. Uwada J, Mukai S, Terada N, Nakazawa H, Islam MS, Nagai T, Fujii M, Yamasaki K, Taniguchi T, Kamoto T, Yazawa T. Pleiotropic effects of probenecid on three-dimensional cultures of prostate cancer cells. *Life Sci.* 2021, 278, 119554.
6. Yazawa T, Sato T, Ida T. Evaluation of enzymatic activities of various HSD17B3 mutants using androgen receptor-mediated transactivation. *Journal of the Endocrine Society*, 2021, A797–A798.

招待講演

1. 矢澤隆志、奈良篤樹：イントロダクション～ウィズコロナ時代のステロイドホルモン研究とその課題、第 94 回日本生化学会大会、2021 年 11 月、横浜。
2. 井田隆徳、佐藤貴弘、矢澤隆志：ブタの主要アンドロゲンである 11-ケトテストステロン合成系と機能解析、第 164 回日本獣医学会学術集会、2021 年 9 月、北海道。

※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな) 申請者氏名	アジャイ スリバスタブ Ajai K. Srivastav	提出年月日	R4 年 4 月 6 日	
所属・職名	D.D.U. Gorakhpur University, Professor			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☐ 一般枠 ☒ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☐ 新規 ☒ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	魚類のミネラル代謝に及ぼす環境汚染物質の毒性影響			
研究実施期間	2021年 4月 1 日～ 2022年 3 月 31日			
センター教員	鈴木信雄			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	Ajai K. Srivastav	D. D. U. Gorakhpur University	教授	研究総括、解剖及び組織学的解析
	分担者	鈴木信雄	金沢大学	教授	ウロコを用いた解析
		関口俊男	金沢大学	助教	ホルモンの分析
		木谷洋一郎	金沢大学	助教	血液サンプリング
		服部淳彦	東京医科歯科 大学	教授	血液マーカー分析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	Benz[a]anthracene	粉末	1	
	分析した試料	Benz[a]anthracene	粉末	1	
研究目的・ 期待される 成果	目的 環境汚染物質である塩化クロムや内分泌かく乱化学物質であるビスフェノール A などの魚類のミネラル代謝に対する影響を調べる。 期待される成果 既に、鈴木を中心とする臨海実験所の研究グループと Srivastav 教授との共著の論文として、重金属の水銀やガドリニウムがキンギョのカルシウム代謝に影響を及ぼしていることを報告している（Yachiguchi et al., 2014; Suzuki et al., 2019）。そこで本研究では、塩化クロムやビスフェノール A の魚類のミネラル代謝に対する影響を解析する。これまで内分泌かく乱化学物質は、生殖との関係しか調べられていないが、本研究によりミネラル代謝との関係を初めて明らかにする。 ※申請書に記載した事項を要約して下さい。				

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	塩化クロムの魚類の血液ミネラル濃度に対する影響評価： 本研究では、短期および長期暴露におけるナマズの 1 種 (<i>Heteropneustes fossilis</i>) の血液ミネラルに対する環境汚染物質である塩化クロムの影響を調査することを目的とした。 短期間の暴露では、魚は塩化クロムの LC50 値の半分の濃度で暴露した。長期暴露では、塩化クロムの LC50 値の 1/10 の濃度を使用して、実験を 30 日間、曝露実験を行った。魚は、短期暴露では 24、48、72、96 時間後、長期実験では 5、10、15、30 日後に、対照群と実験群の各時間間隔でサンプリングを行った。 血液サンプルは、カルシウムと無機リン酸塩のレベルについて分析した。塩化クロムの急性暴露は、48 時間後に魚類の血清カルシウムレベルの低下を引き起こし、これは実験の終了 (96 時間) まで持続した。血清無機リン酸塩レベルは、塩化クロムにより 48 時間まで影響を受けなかった。しかし 72 時間と 96 時間で、無機リンレベルは減少した。慢性毒性試験の結果、塩化クロムは 10 日目に血清カルシウムレベルの低下を引き起こした。この低下は 15 日まで続き、その後レベルはコントロールレベルに回復する傾向があった。一方、クロム処理された魚の血清リン酸塩レベルは、15 日目と 30 日目に減少することが判明した。 以上のことから、塩化クロムは、魚類のミネラル代謝に影響を及ぼすことが、短期及び長期の暴露試験の結果、明らかになった。これらの結果は、Int. Aquat. Res に発表した。 ビスフェノール A などの内分泌かく乱作用： 本研究では、ビスフェノール A のウロコの骨芽細胞及び破骨細胞に対する影響を評価して、エストロゲンと比較した。その結果、エストロゲンでは、骨芽細胞と破骨細胞の両方の活性を上昇させたが、ビスフェノール A では、骨芽細胞と破骨細胞の両方の活性を抑制することが判明した。さらにエストロゲンは、血液中のカルシウム低下ホルモンであるカルシトニンの分泌を上昇させるが、ビスフェノール A では、カルシトニンの分泌を低下させることが分かった。これらの結果は、Intern. J. Biol. Environ. Invest. に発表した。またホルモン (プロラクチン及びスタニウス小体のホルモン) の影響を調べて、Int. J. Zool. Inv. 及び Int. J. Biol. Env. Inv. に発表した。さらにスチレントリマーの影響も評価して、Int. J. Zool. Inv. に発表した。 ※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。
見込まれる 成果物	Srivastav, A.K., Agarwal, K., Kumar, A., Prasad, M.R., Srivastav, S.K. and Suzuki, N.: Effect of chromium chloride on serum calcium and phosphate levels of stinging catfish <i>Heteropneustes fossilis</i>. Int. Aquat. Res., 13: 81-87 (2021) Srivastav, S., Mishra, D., Kumar, A., Srivastav, S.K., Suzuki, N. and Srivastav, A.K.: Prolactin induced cyto-architectural changes in the corpuscles of Stannius of stinging catfish, <i>Heteropneustes fossilis</i> acclimated to different calcium media. Int. J. Biol. Env. Inv., 1: 1-9 (2021) Srivastav, S., Mishra, D., Srivastav, S.K., Suzuki, N. and Srivastav, A.K.: Alterations in the prolactin cells of stinging catfish, <i>Heteropneustes fossilis</i> administered with prolactin and maintained in artificial freshwater or calcium-deficient freshwater. Int. J. Zool. Inv., 7: 615-620 (2021) Sekiguchi, T., Srivastav, A.K. and Suzuki, N.: Influence of estrogen and the endocrine disruptor on the calcitonin functions in teleosts. Intern. J. Biol. Environ. Invest., 1: 134-140 (2021) Kawago, U., Hatano, K., Ikeuchi, T., Honda, M., Watabe, Y., Ogiso, S., Nagami, A., Matsubara, H., Urata, M., Matsumoto, K., Srivastav, A.K., Saido, K. and Suzuki, N.*: Effects of a styrene trimer (2,4,6-triphenyl-1-hexene) on plasma mineral concentrations of nibbler fish, <i>Girella punctata</i>. Int. J. Zool. Inv., 7: 785-791 (2021) ※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

Annual Results Report
Joint Research, Institute of Nature and Environmental Technology,
Kanazawa University, 2021

Name	Zhijun WU	Date	4/28/2022	
Affiliation Position	Peking University/Professor			
Postal Address				
Phone Number		Facsimile		
E-mail Address				
Funding Category	☐ Key Joint Research Program ☒ Joint Research Program ☐ PhD student Support Program	☐ domestic ☒ international	Research period ☒ one year ☐ two years	☒ new ☐ continue
Research Field	☒ Understanding environmental pollution, environmental fluctuations, and the mechanisms behind these factors ☐ Investigating the effects of environmental change on human health ☐ Researching the effects of human societies on ecosystems ☐ Developing methods for the prediction of changes to local environments ☐ Researching topics related to sustainable development ☐ Interdisciplinary studies related to the Sea of Japan Sea region			
Research Theme	The Ice Nucleation Activities of long-range transport Asian Dust Particles in Wajima, Japan			
Program Period	4/1/2021 ~ 3/31/2022			
K-INET Research Staff	Ning Tang			

Research Team		Name	Affiliation	Position	Role/Research Task
	Applicant	Zhijun WU	Peking University	Professor	Management
	Member(s)	Min HU	Peking University	Professor	Sampling
		Song GUO	Peking University	Professor	Chemical analysis
		Ning TANG	Kanazawa University	Professor	Sampling
※If there are any changes, please submit a newly revised application form to the K-INET office in consultation with K-INET staff.					
Assay sample(s)		Name of Sample	Form(Shape)	The number of sample	
	Applied sample	Ambient particulate matter samples	Filters	9 sets	
	Analyzed sample	Ice nucleation activity of particle samples	Filters	9 sets	
Purpose of the Research/ Expected Results	The concentrations and properties of atmospheric ice nucleating particles (INPs) could modulate the cloud formation and furtherly have impacts on precipitation and cloud radiative forcing. Therefore, INPs play profound roles in the aerosol-cloud-climate system. However, the sources of INPs and corresponding ice nucleation mechanisms remain largely unclear, impeding our understanding the aerosol-cloud interaction and climate change. Especially, studies related to the INPs over Asian regions were scarce. The investigations on INPs sources and properties will improve our understanding of INP budgets and cloud formation over Eastern areas. We plan to develop the collaboration between Peking University and Kanazawa University and carry out the field observations focusing on the INPs at Wajima, Japan. Wajima faces to Japanese sea and is a receptor of dust particles and anthropogenic aerosols from outflow of Eastern Asia areas. Thus, Wajima is a unique site to study the marine aerosols and modified continental aerosols by marine environment, which are recently considered as potential INPs sources. Recent years, Peking University developed several novel devices which were used to detect the INPs concentrations and properties. Within this project framework, the devices including the filter sampler, single particle sampler, and SKC bio-sampler will be shipped to Japan to collect the atmospheric aerosol particles. The ice nucleation properties of collected samples will be detected in the laboratory of Peking University by the ice nucleation apparatuses named Peking University Ice Nucleation Array (PKU-INA) and Horizontal Ice Nucleation Chamber-Beijing (HINC-Beijing). The outcomes will provide the information on INPs characteristics and sources over Japanese sea. Integrating aerosol chemistry and meteorological parameters, such investigation would improve our understanding of INPs in the outflow of continental atmosphere in a marine environment.				
※Submit the application form.					

Details of the project/ Results	Due to the COVID-19, the visiting and sampling in Kanazawa University did not succeed. The dust particle sampling and following analysis were mainly done in Peking University. We collected the atmospheric particle samples during Asian dust events. An eight-stage Micro-Orifice Deposit Impactor (MOUDI, model 100-R, MSP Corporation, USA) with aerodynamic cut-off diameter (D_{50}) ranging from 0.18 to 10 μm at a flow rate of 30 L min⁻¹ was applied with polycarbonate filters (47 mm Nuclepore, 0.2 μm pores, Whatman) to collect size-resolved aerosol samples during the Asian dust events. The PeKing University Ice Nucleation Array (PKUINA), a cold-stage-based instrument, was employed to perform immersion freezing measurements. Briefly, 90 droplets (1 μL) of suspensions were pipetted onto a hydrophobic glass slide located on the cold stage in each experiment. These droplets were separated from each other by a spacer block and upper and lower glass slides to prevent the Wegener-Bergeron-Findeisen process. A charge-coupled device was employed to monitor the cooling process (cooling rate 1 $^{\circ}\text{C}$ min⁻¹) of the cold stage (every 6 s) until all 90 droplets were frozen. The collected samples were analyzed using PKUINA to derive the ice nucleation activity of mineral dust particles. The purpose of this work to understand the effects of atmospheric chemical modification on the ice nucleation activity of East Asian dust. Up to now, the analysis and data processing were finished.
Results	We investigated the effects atmospheric chemical modification on the ice nucleation activity of East Asian dust by verifying the significant aging of airborne size-resolved Asian dust via particle chemistry and morphology analyses, and comparing the immersion mode INP properties of aged and normal Asian dust. Although the aged dust particles have been chemically modified, in which the proportion of Ca^{2+} in element Ca and the factor of aluminum-normalized NO_3^- increased by 67.0% and 1726%, respectively, their micron-scale INP concentrations and INA were nearly equal to or even slightly higher than normal Asian dust (0.64-4.34 times at -18 $^{\circ}\text{C}$), revealing that anthropogenic pollution does not impair the INA of Asian dust. Our work provides direct observational evidence and clarifies the non-suppression effects of anthropogenic pollution on the INA of East Asian dust. One PhD student was involved this work. She finished her PhD thesis in 2021 and moved to ETH.

※Write down the schedule of the published original papers, the publishment without original papers, oral presentation, bachelor thesis, thesis of master degree and doctoral thesis. Applicants must report the results to theK-INET office.

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	ダバドルジ ダバスレン	提出年月日	2022 年 4 月 28 日	
申請者氏名	Davaadorj Davaasuren			
所属・職名	モンゴル国立大学・准教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☐ 一般枠 ☒ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	モンゴル南部アルカリ塩湖におけるウランとヒ素の濃集過程調査			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 31 日			
センター 教員	福士圭介教授			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	Davaadorj Davaasuren	モンゴル国立 大学	専任講師	現地調査、総括
	分担者	福士圭介	金沢大学環日 本海域環境研 究センター	准教授	地球化学的解析
		Gankhurel Baasansuren	金沢大学大学 院自然システ ム学専攻	博 士 後 期 課程 2 年	水試料の採取・分析
		北島卓摩	金沢大学大学 院自然システ ム学専攻	博 士 後 期 課程 1 年	水試料の採取・分析
		Ochir Altansukh	モンゴル国立 大学	教授	現地調査
		Gerelmaa Tuvshin	モンゴル国立 大学	非 常 勤 講 師	現地調査
	※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。				
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	湖水試料 泉水試料 川水試料 堆積物	液体 固体	80	
	分析した試料	湖水試料	液体	20	
研究目的・ 期待される 成果	申請者らは 2014 年度よりゴビアルタイ砂漠に存在する塩湖群の水質調査と試料分析を行い、オログ湖およびオルゴイ湖では有害元素であるヒ素およびウランが環境基準をはるかに上回ることを予察的に見出した。ゴビアルタイ砂漠は、日本に到来する大気浮遊物質の発生地の一つであり、将来の乾燥化は大気輸送に伴うこれら重金属の越境汚染をもたらす可能性がある。 本年度は、塩湖におけるヒ素およびウランの濃集過程と環境動態を理解することを目的に、昨年度コロナ禍により実行できなかったオログ湖およびオルゴイ湖において通年水質観測を行う。				

※申請書に記載した事項を要約して下さい。

利用・研究
実施内容・
得られた成
果

モンゴル南部の乾燥地域は東アジアにおける黄砂の重要な発生源の一つである。発生した黄砂は季節風により中国沿岸部、朝鮮半島、日本、さらに太平洋へと飛来する。黄砂中の PM2.5 は呼吸器疾患をもたらす健康影響物質として認識されている。また、飛来する黄砂は輸送過程で大気中から有害化学物質を吸着し、越境汚染をもたらす可能性も指摘されている。一方、発生源において黄砂が有害化学物質を含む可能性はこれまで指摘されていない。

申請者らはモンゴル南部の乾燥地域に点在する塩湖群の水質および湖沼堆積物の調査を行ってきた。本地域はウランのバックグラウンド濃度が世界平均よりもはるかに高い岩体を有し、北部のハンガイ山脈から流出する河川水には比較的高濃度のウランやヒ素を含む。申請者らの日蒙国際共同研究グループは本地域の河川末端に存在する塩湖群の水質を 5 年間にわたり観測し、**河川から運ばれるウランやヒ素は蒸発によって湖水中に蓄積されることを明らかにした** (図: Baasansuren et al., 2022 *Journal of Hazardous Materials*)。従来、塩湖に溶存する重金属は蒸発過程において鉱物として析出したり、吸着したりすることで、湖水からは除去されると推定されてきた。本研究はウランやヒ素は従来の描像とは異なり、ナトリウムや塩化物イオンと同様に、湖水中に濃集すること明示した。このことは最終的に湖沼が干上がった際、高濃度のウランやヒ素が溶解性の高い塩として析出することを示唆している。土壌重金属の毒性は重金属の溶解性に強く依存する。すなわち、有害な元素からなる固体であっても溶解しなければ生物には無害である一方、溶解性が高いと即効的に健康被害をもたらす。ウランやヒ素が塩化ナトリウムと同様に塩として生成する場合、その塩はきわめて高い毒性を提示することが予想される。

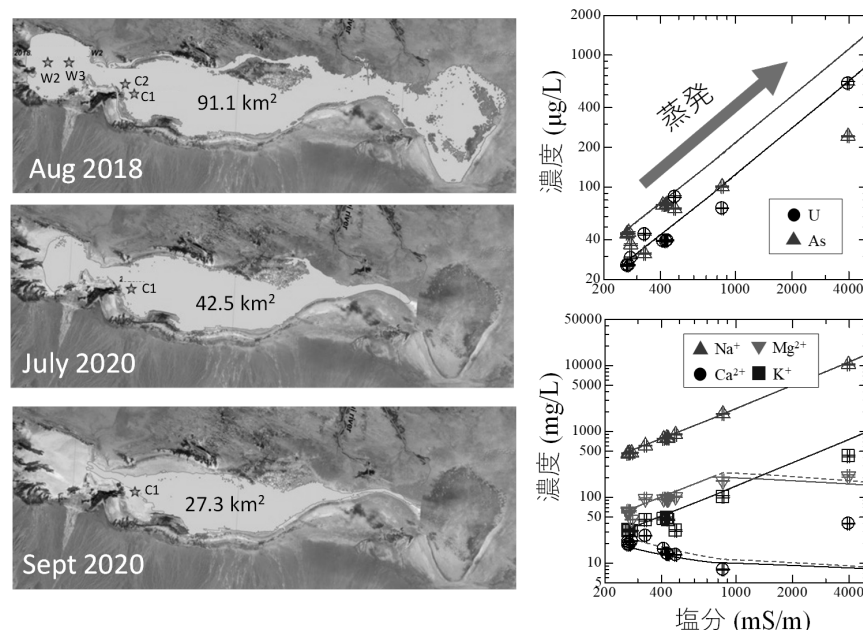


図 オログ湖の縮小と水質変化

モンゴル南部乾燥域は居住にはあまり適しておらず、わずかな遊牧民が特定の季節に出入りするのみである。したがって仮に有害な汚染土壌が生成したとしても、地域的環境問題として明るみにでることはないかもしれない。一方、本地域では乾季である冬から春に砂塵が巻き上がり、大量の砂塵が季節風とともに長距離にわたって移動する。砂塵は降雨に遭遇せずに輸送される場合、**高濃度かつ溶解度の高い重金属は高い毒性を維持したまま人口密集地に降下する可能性がある**。本研究成果は気候変動に起因する新たな越境汚染の可能性を示すものである。

※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。

見込まれる 成果物	研究期間中の成果物 Baasansuren Gankhurel, 2022, Speciation of Trace Elements in Contaminated Soil and Sediments: Implication for mobility and solubility of uranium, arsenic, lead, and cadmium in natural environments 博士論文 (金沢大学) G. Baasansuren*, Fukushima, K.*, D. Davaadorj., Imai, E., Kitajima, T., U. Uyanga, G. Tuvshin, Sekine, Y., Takahashi, Y., Hasebe, N., 2022, Arsenic and uranium contamination of Orog Lake in the Valley of Gobi Lakes, Mongolia: field evidence of conservative accumulation of U in an alkaline, closed-basin lake during evaporation. <i>Journal of Hazardous Materials</i>, 436, 129017. Gankhurel, B., Fukushima, K., Davaasuren, D., Imai, E., Kitajima, T., Gerelmaa, T., Sekine, Y., Takahashi, Y., Hasebe, N., 2021, Distribution of Uranium and Arsenic in Surface Water around Alkaline-Hyposaline Lake from Valley of Gobi Lakes in Mongolia. 日本地球惑星科学連合 2021 年大会, オンライン (2021.5.30-6.6) Gankhurel, B.・福士圭介・Davaasuren, D.・今井英吾・北島卓磨・Gerelmaa, T.・関根康人・高橋嘉夫・長谷部徳子, 2021, Distribution of uranium and arsenic between sediment and water of alkaline hyposaline lake from Valley of Gobi Lakes in Mongolia 日本地球化学会第 68 回年会, オンライン (2021.9.6-8) Gankhurel, B., Fukushima, K., Davaasuren, D., Imai, E., Kitajima, T., Gerelmaa, T., Sekine, Y., Takahashi, Y., Hasebe, N., 2021, Trace Elements Contamination in Water of Alkaline-Hyposaline Lake from Valley of the Gobi Lakes, Mongolia: Field Evidence of Elevated Level of As and U accumulated by evaporation. AGU Fall Meeting 2021, オンライン (2021.12.13-17) ※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。
--------------	--

Annual Results Report
Joint Research, Institute of Nature and Environmental Technology,
Kanazawa University, 2021

Name	Prof. Dr. Riffat Naseem Malik	Date	04/03/2022	
Affiliation Position	Professor			
Postal Address				
Phone Number		Facsimile		
E-mail Address				
Funding Category	☐ Key Joint Research Program ☒ Joint Research Program ☐ PhD student Support Program	☐ domestic ☒ international	Research period ☐ one year ☒ two years	☐ new ☐ continue
Research Field	☒ Understanding environmental pollution, environmental fluctuations, and the mechanisms behind these factors ☐ Investigating the effects of environmental change on human health ☐ Researching the effects of human societies on ecosystems ☐ Developing methods for the prediction of changes to local environments ☐ Researching topics related to sustainable development ☐ Interdisciplinary studies related to the Sea of Japan Sea region			
Research Theme	Historical reconstruction of Persistent Organic Pollutants (POPs) in lakes sediments of Himalayan region of Pakistan			
Program Period	04/1/2021 ~ 03/31/2022			
K-INET Research Staff	Seiya Nagao Professor Division of Integrated Environmental Studies in Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University, Japan.			

Research Team		Name	Affiliation	Position	Role/Research Task
	Applicant	Riffat Naseem Malik	Department of Environmental Sciences Quaid-i-Azam University, Islamabad, Pakistan	Professor	Resources, Supervision, Funding Acquisition, Project Administration.
		Hafiz-ur-Rehman	Graduate School of Science and Engineering Kagoshima university Korimoto, Kagoshima, Japan	Associate Professor	Technical assistance
		Abdia Farooqi	Department of Environmental Sciences Quaid-i-Azam University, Islamabad, Pakistan	Associate Professor	Technical assistance
		Rahat Riaz	Department of Environmental Sciences Quaid-i-Azam University, Islamabad, Pakistan	PhD-Student	Sampling, Methodology, Investigation, Writing.
※If there are any changes, please submit a newly revised application form to the K-INET office in consultation with K-INET staff.					
Assay sample(s)		Name of Sample	Form (Shape)	The number of sample	
	Applied sample	Sediment core samples from remote Himalayan lakes	Freeze dried sediment samples	30	
	Analyzed sample	Sediment samples	--	15	
Purpose of the Research/ Expected Results	1. Purpose of the Research/Expected Results Persistent Organic Pollutants (POPs) are ubiquitous chemicals in environment. The unique characteristics and properties of POPs such as toxicity to pests, persistency, hydrophobicity, electro-conductivity, polymerization and piezoelectricity led to their wide				

	range of applications (Barnicki 2017). However, owing to these properties, this group also become cause of concern because of reported toxic effects of these pollutants on human health and living organisms in the environment (Alharbi, Khattab et al. 2018). Persistent and volatile behavior of POPs facilitates their long-range atmospheric transportation from source to remote region. The low temperatures in remote colder regions results in a decrease in vapor pressure of POPs and these chemicals lose their energy to retain in atmosphere and via deposition, these pollutants trapped in different environmental matrices such as soil, sediments, glaciers for centuries (Westgate 2013). In remote environment inland water systems such as lakes are vulnerable to environmental changes in the terrestrial ecosystem such as climate forcing, land use changes and increasing levels of contaminants (Williamson, Saros et al. 2009). Once entering the aquatic system, fate and distribution of POPs is determined by a complex interplay of processes occurring between different matrices of the aquatic systems such as water and sediment (Jiménez, Dachs et al. 2015). During the sedimentation process, POPs bound with sediment particles are deposit and trapped in sediment layers. Concentrations of POPs in different depths of sediment cores provide temporal information about their sources, route of transportation and historical profile. Sediment cores are the natural archives used to assess and restructure historical pollution trends of POPs in aquatic system (Heim and Schwarzbauer 2013). Sediment cores collected from different lake system enable the reconstruction of local pollution history. The vertical structure reflects the onset of POPs production and utilization in specific areas. It is important that their ban is also reflected in the sediments. The vertical profiles of organic contaminants in dated sediment can also be used to examine pollution mechanisms, which are significant for predicting future pollution tendencies and assessing potential environmental risks (Pavlova, Zennegg et al. 2016).
※ Submit the application form.	
Details of the project/Results	2. Details of the project/Results Two Himalayan lakes were selected based on altitudinal gradient and climate differences, shown in Fig 1. These lakes are in two different environments. Glacial lakes (Shounter) is situated at 3483 miles above sea level (masl) and directly fed by Himalayan glacier and Baghsar is non-glacial alpine lake, situated at 700 masl and fed by small tributaries in catchment region. One sediment core sample from each lake was taken from deepest part

of shallower sub-basin in March-April 2018 by using stainless steel sediment core sampler. Each core is 30 cm long and were sectioned into two halves and further sliced at 2 cm intervals from the surface to the base using a stainless-steel slicer. Each slice weighed, labelled, and freeze dried Each slice has weight of 10g, it means there are total 15 slices (15 samples) in one core and total weight of all 15 samples will be 150g. All samples were stored at -4 °C in lab. One section is used for chemical analysis of POPs (DDTs, PCBs, PBDEs, HCB, HCHs) physiochemical parameters and isotope analysis ($\delta^{13}\text{C}$, $\delta^{15}\text{N}$) in each sediment slice. Second half section of extracted sediment core is preserved for ^{210}Pb dating. ^{210}Pb analysis of sediment samples was carried out by collaboration with Division of Integrated Environmental Studies in Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University, Japan.

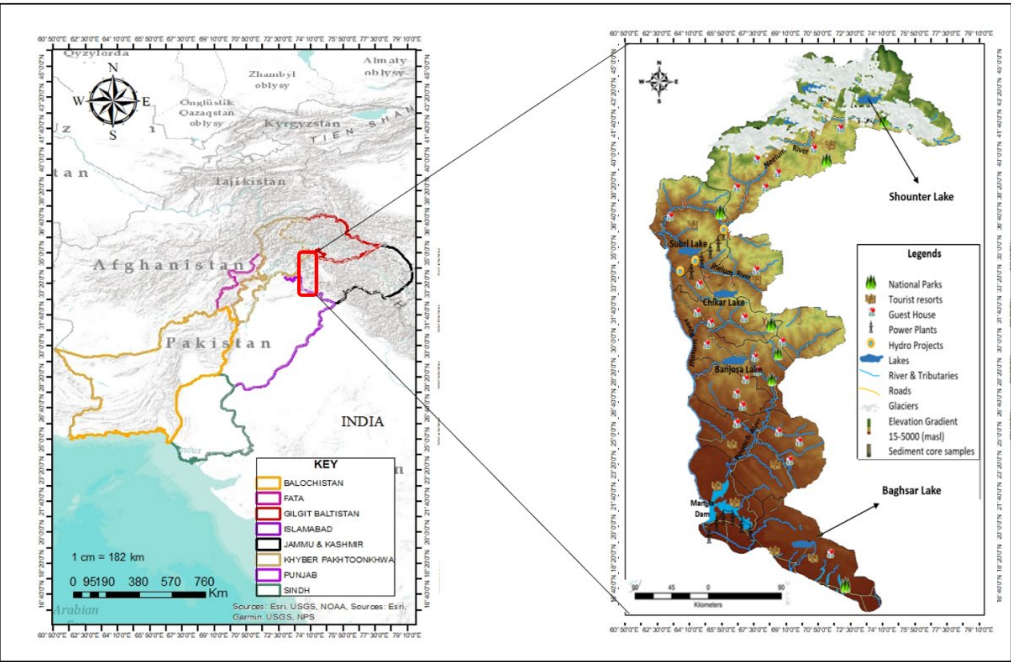


Fig 1: Study area comprised of Lesser Himalayan Region (LHR) in AJK; details of sampled lakes

3. Results

Depth dependent distribution of POPs

The depth distribution of ΣOCPs , ΣPCBs and ΣPBDEs in sediment cores of selected lakes are given in Table1 and Fig 2. Both lakes i.e., Shounter Lake and Baghsar Lake had shown the similar distribution trend for ΣOCPs . From bottom to top, comparatively small but first peak of ΣOCPs were found at lower layers of sediment

Results

4

form 3

cores, at depth of about 25-30 cm. In middle layers of sediment core lower levels of Σ OCPs were found and followed by re-increase in levels in surface or sub-surface layers. The declining trend in levels of PCBs in middle layer was more evident in Shounter Lake (14-23 cm), whereas core sample from Baghsar Lake has exhibited the fluctuating trend, but overall inclining toward increasing trend from bottom to top. On the other hand, although considerably lower levels of PBDEs have been detected as compared to Σ OCPs and Σ PCBs in sediment cores from lakes of LHR. However, with series of peaks and crest troughs, overall, increasing trend in levels of Σ PBDEs was also found from bottom to top layers of sediment cores in all lakes. The spatial variability of pollutants among sampling sites could be explained by several factors such as sources of pollutants, atmospheric transportation of pollutants, characteristics of catchment area (Sultana et al., 2014). Overall, LHR is characterized as hub of tourism in northern Pakistan as well as recreational activities like skinning, fishing etc. and has experienced extensive tourism related activities. Such activities could be major contribution of contamination at glacial and remote mountainous lakes (PND, 2019). Furthermore, hydropower project at Neelum River and Jhelum River could also be important source of PCBs and flame retardants, whereas horticulture and forestry could be important consumer of pesticides in the region (Chandio et al., 2016).

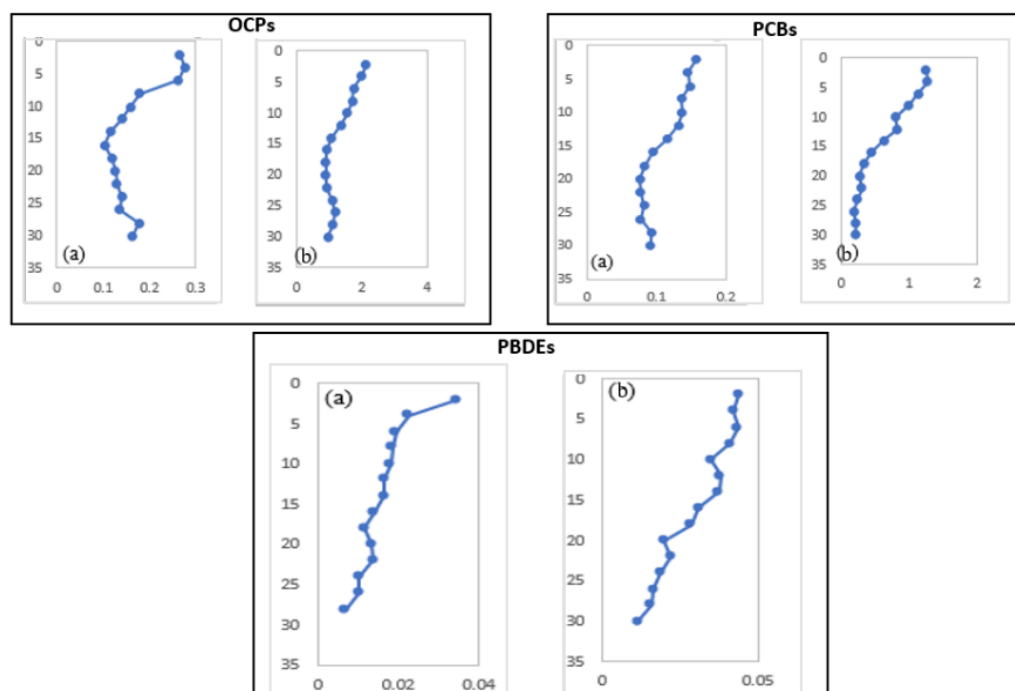


Fig 2: Depth distribution of OCPs, PCBs and PBDEs in (a) Shounter Lake and (b) Baghsar Lake of LHR

Table 1: The range of organochlorine pesticide (OCPs), polychlorinated biphenyls (PCBs) and polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) concentrations determined in sediment cores of (ng g⁻¹ dw) from selected lakes of LH

	Shounter Lake	Baghsar Lake
β-HCH	0.011-0.01	0.017-0.25
γ-HCH	0.011-0.01	0.010-0.61
ΣHCHs	0.016-0.06	0.154-0.61
HCB	0.035-0.057	0.01-0.17
op'-DDE	0.011-0.095	0.191-0.44
pp'-DDE	0.01-0.078	0.120-0.33
op'-DDT	0.010-0.029	0.107-0.54
pp'-DDT	0.010-0.034	0.122-0.61
ΣDDTs	0.034-0.16	0.600-1.37
tetra-CBs	0.01-0.05	0.03-0.44
penta-CBs	0.01-0.04	0.03-0.55
hexa-CBs	0.00-0.04	0.01-0.36
ΣPCBs	0.07-0.15	0.18-1.27
hexa-BDEs	0.001-0.005	0.001-0.019
hepta-BDEs	0.001-0.008	0.001-0.006
ΣPBDEs	0.006-0.034	0.011-0.043

Chronological analysis (²¹⁰Pb analysis) of sediment core

The core sample of Shounter Lake was only analyzed for sediment chronology by ¹³⁷Cs and ²¹⁰Pb. Based on the variations of ²¹⁰Pb_{ex}, the sediment age was calculated by using different ²¹⁰Pb_{ex}-based models. However, the distribution of ¹³⁷Cs and ²¹⁰Pb specific activity did not exhibits distinct variations in the core (Table 2). The maximum peak of ¹³⁷Cs occurs at the depth of 6-8 cm with a value of 11 ± 1.3 Bq kg⁻¹. The secondary one occurs at 2-4 cm depth with a specific activity of 10 ± 1.3 Bq kg⁻¹. Similarly, the vertical distributions of Shounter core are shown in Table 3.

Surficial ²¹⁰Pb_{ex} activity is 141 Bq kg⁻¹ and the maximum ²¹⁰Pb_{ex} activity at 6–8 cm depth is 147 Bq kg⁻¹. A flattening of the ²¹⁰Pb_{ex} activity is found core form bottom to top with ²¹⁰Pb_{ex} is ranged between 101-147 Bq kg⁻¹ at depth of 0–30 cm. The lack of variation along sediment core could be attributed to several factors such as seasonal perturbation in lakes which might result into physical and biological mixing or other redistribution processes such as flooding, early post-depositional diagenetic release and mobility of some elements and drastic change of hydrological environment is likely to cause dating problems. Similarly, anthropogenic activities in lakes dredging of sediments might also be responsible for lack of ²¹⁰Pb_{ex} specific activity in sediment layers.

Table 2: The level of ^{137}Cs and ^{210}Pb (Bq kg^{-1}) in sediment core from Shouner Lake of LHR.

Depth	^{210}Pb	^{137}Cs
(cm)	(Bq/kg) $\pm$ error	(Bq/kg) $\pm$ error
0-2	141.1 $\pm$ 3.0	8.7 $\pm$ 0.2
2-4	126.4 $\pm$ 8.9	10.1 $\pm$ 0.7
4-6	142.9 $\pm$ 11.3	8.5 $\pm$ 0.8
6-8	147.2 $\pm$ 14.7	11.0 $\pm$ 1.3
8-10	117.7 $\pm$ 7.8	9.6 $\pm$ 0.7
10-12	134.9 $\pm$ 12.5	6.6 $\pm$ 0.9
12-14	126.2 $\pm$ 7.4	8.9 $\pm$ 0.6
14-16	143.2 $\pm$ 4.8	8.0 $\pm$ 0.3
16-18	130.4 $\pm$ 14	9.8 $\pm$ 1.2
18-20	124.7 $\pm$ 8.5	7.9 $\pm$ 0.6
20-22	140.4 $\pm$ 8.2	9.5 $\pm$ 0.7
22-24	146.9 $\pm$ 4.7	9.3 $\pm$ 0.4
24-26	137.3 $\pm$ 4.8	8.3 $\pm$ 0.4
26-28	101.3 $\pm$ 6.1	2.8 $\pm$ 0.4
28-30	133.1 $\pm$ 9.1	8.7 $\pm$ 0.8

References

- Alharbi, O. M., et al. (2018). "Health and environmental effects of persistent organic pollutants." 263: 442-453.
- Barnicki, S. D. (2017). Synthetic organic chemicals. Handbook of industrial chemistry and biotechnology, Springer: 423-530.
- Chandio AA, Jiang Y, Rehman A, Jingdong L, Dean D. Impact of government expenditure on agricultural sector and economic growth in Pakistan. International Journal of Advanced Biotechnology and Research 2016; 7: 976-2612.
- Heim, S. and J. J. E. C. L. Schwarzbauer (2013). "Pollution history revealed by sedimentary records: a review." 11(3): 255-270.
- Jiménez, J. C., et al. (2015). Atmospheric deposition of POPs: Implications for the chemical pollution of aquatic environments. Comprehensive Analytical Chemistry, Elsevier. 67: 295-322.
- Pavlova, P. A., et al. (2016). "Release of PCBs from Silvretta glacier (Switzerland) investigated in lake sediments and meltwater." 23(11): 10308-10316.
- PND. AJK at Glance.
<https://pndajk.gov.pk/uploadfiles/downloads/AJK%20at%20a%20Glance%202019.pdf>
 2019.
- Sultana J, Syed JH, Mahmood A, Ali U, Rehman MYA, Malik RN, et al. Investigation of organochlorine pesticides from the Indus Basin, Pakistan: Sources, air-soil exchange fluxes and risk assessment. Science of the total environment 2014; 497: 113-122.
- Westgate, J. N. (2013). Proximity to Potential Sources and Mountain Cold-trapping of Semi-volatile Organic Contaminants.

※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。

Presentations/ Publications	Participation in “Joint International Symposium: To the New Stage of Collaboration” 30th -Nov-3rd Dec 2021. Two presentations were made under this project • Presentation by Prof. Dr. Riffat Naseem Malik titled “POPs in prestine lakes of Lesser Himalayn Region, Pakistan” December 3rd, 2021. • Poster presentation by Rahat Riaz “Evidance of long range atmospheric transport of POPs lakes of Lesser Himalayn Region Pakistan” on Dec 2nd, 2021. • Based on the research collaboration and scientific links developed under this project;, a new research project on Mountainous region of Pakistan was submitted again and fuding has been approved by the K-INET.
※Write down the schedule of the published original papers, the publishment without original papers, oral presentation, bachelor thesis, thesis of master degree and doctoral thesis. Applicants must report the results to theK-INET office.	

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	かわしま ひろと	提出年月日	2022 年 4 月 30 日	
申請者氏名	川島 洋人			
所属・職名	秋田県立大学システム科学技術学部・准教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☐ 一般枠 ☒ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☐ 新規 ☒ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	安定同位体比を用いたバングラデシュにおける浮遊粒子状物質の発生源解析			
研究実施期間	2021年4月1日～2022年3月31日			
センター教員	本田匡人 助教			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	川島洋人	秋田県立大学	准教授	研究代表，サンプリング
	分担者	本田匡人	金沢大学	助教	研究分担，分析業務
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	PM2.5	エアロゾル	100 程度	
	分析した試料	PM2.5	エアロゾル	100	
研究目的・ 期待される 成果	近年のアジアの急速な経済成長によって、大気汚染は進み、国家間を超えた越境汚染は深刻な問題となっている。東アジアでは中国、南アジアではインドが大きな排出源だと考えられ活発に調査が行われているが、近隣諸国の調査は未だに遅れているのが現状である。2018 年には、大気汚染情報提供企業の世界大手の IQAir（スイス）において、PM2.5 濃度の国別の世界ランキングでは、バングラデシュは 97.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と中国の倍近い高濃度であり、調査対象 73 か国中でワースト 1 位と劣悪な環境であることがわかってきた。それらの発生源は、主に煉瓦製造工場からのばい煙とダッカ市やチッタゴン市などの大都市における自動車の排気ガスが挙げられるが、インドやネパールからの流入も多いのではと考えられるが、定量的に発生源がどこから来たのかは不明な状況である。このため、闇雲に対策を取らざるを得ず、莫大な費用をかけて、誤った汚染源対策を実施してしまう恐れがある等、定量的に発生源を把握することは緊急性を有しており、バングラデシュにとって極めて重要な課題である。 本研究では、安定同位体比に着目して、PM2.5 に含まれる硝酸イオン、アンモニウムイオンの窒素安定同位体比及び PAH の濃度、炭素安定同位体比を高精度、高確度で分析して、発生源解析を行うことを第一の目的とした。また、環日本海域の本田匡人助教を分担者に加え、PAH の濃度測定、炭素安定同位体分析を実施し、PAH の発生源解析を行うことを第二の目的とした。期待される成果としては、世界でも最も高濃度地域であるバングラデシュの大気汚染の現状把握、発生源解析を通して、効率的な環境対策、濃度低減を行うことである。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	バングラデシュの首都ダッカのダッカ大学にてハイボリュームエアサンプラーを用いて PM_{2.5} のサンプリングを実施した。サンプリングは週に 1 日 24 時間サンプリングを実施した。2019 年 3 月 17 日から 11 月 15 日までの PM_{2.5} の平均濃度は 46.0 ± 26.0 µg/m³ となり、最小で 7.8 µg/m³、最大で 112.1 µg/m³ となった。また、季節傾向としては春か秋夏（雨季）にかけて濃度が低くなっている傾向が見られた。WHO の環境基準（10 µg/m³）、日本の環境基準（15 µg/m³）のどちらもほとんどの期間で上回っていることが分かった。また、水溶性イオンを測定した結果、イオンバランスは 1.0 ± 0.3 となり、妥当な結果であった。また、全期間のカチオンに関して、Ca²⁺ (1.8 ± 1.5 µg/m³) > NH₄⁺ (0.5 ± 0.5 µg/m³) > K⁺ (0.2 ± 0.2 µg/m³) > Na⁺ (0.1 ± 0.1 µg/m³) > Mg²⁺ (0.1 ± 0.1 µg/m³) となった。全期間のアニオンに関して、SO₄²⁻ (4.5 ± 3.5 µg/m³) > NO₃⁻ (1.0 ± 0.6 µg/m³) > Cl⁻ (0.6 ± 0.4 µg/m³) > NO₂⁻ (0.2 ± 0.2 µg/m³) となった。NH₄⁺ は特に明確な季節傾向は見られなかった。NH₄⁺ の窒素安定同位体比 (δ¹⁵-NH₄⁺) は、平均は 20.7 ± 4.8‰、最小は 9.2‰、最大は 34.4‰ となった。過去に実施された δ¹⁵-NH₄⁺ において、最も重い値であることがわかった。さらに、熱力学平衡モデル (ISORROPIA-II) を用いて NH₃ を推定し、δ¹⁵-NH₃ を計算することが出来た。その後、農業由来である農業廃棄物、肥料による揮発、非農業由来であるアンモニアスリップ、化石燃焼と 4 つに区分し、同位体混合モデルを用いて寄与率を算出した。その結果は、農業廃棄物、肥料による揮発、アンモニアスリップ、化石燃焼は、それぞれ、25.3 ± 14%、22.8 ± 10%、26.5 ± 15%、25.4 ± 10% となり、約半分が非農業由来となった。積み上げ式のアンモニアの排出量推計においては、農業由来が 90% 近いと推定されているものの、都市部においては非農業由来が大きくなることが推定された。 また、PAH 類を金沢大学附属植物園で抽出精製し、GC/MS で濃度分析を実施した。分析の結果、月平均総 PAH 類濃度では 10 月と 5 月で最も高く (10783 ± 4598, 10679 ± 5502 pg/m³)、これに次いで 3 月 (9231 ± 4297 pg/m³) > 9 月 (7581 ± 5380 pg/m³) > 7 月 (6430 ± 3897 pg/m³) > 8 月 (5961 ± 3672 pg/m³) > 4 月 (5272 ± 928 pg/m³) > 6 月 (4781 ± 1500 pg/m³) であった。全体的な周期的に変動する傾向は特に見られなかった。個別の PAH 種では Benzo[<i>g,h,i</i>]perylene が最も高濃度に検出された。水酸化 PAH 類も同植物園で抽出精製を行い、LC/MSMS にて分析を実施した。その結果、月平均総水酸化 PAH 類濃度では PAH 類と同様に 10 月に最も高く (740 ± 464 pg/m³)、これに次いで 9 月 (520 ± 389 pg/m³) > 3 月 (475 ± 235 pg/m³) > 5 月 (459 ± 338 pg/m³) > 7 月 (342 ± 224 pg/m³) > 8 月 (341 ± 241 pg/m³) > 4 月 (211 ± 56 pg/m³) > 6 月 (209 ± 23 pg/m³) であった。個別の水酸化 PAH 種では、合算値ではあるが 3OH および 9OH-Benzo[<i>a</i>]pyrene が最も高濃度に検出された。また PAH 類と水酸化 PAH 類の間で総濃度に有意な相関が見られ (スピアマンの順位相関係数: $p < 0.01$, $r = 0.89$)、これは同一か類似した発生源を持つ可能性または大気中で PAH 類から水酸化 PAH 類が生成されている可能性が示唆された。今後大気中のその他のパラメータとの比較および相関解析を行っていく予定である。 ※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。
見込まれる 成果物	Nur Hidayah Norazman, Md Firoz Khan, Sharanya Ramanathan, Syazwani Mustapa Kama Shah, Siti Jariani Mohd Jani, Khaled Shaifullah Joy Khaled Shaifullah Joy, Kazi Naimul Islam, Farah Jeba, Abdus Salam, Otoha Yoshida, and Hiroto Kawashima※4 (2021), Influence of Monsoonal Driving Factors on the Secondary Inorganic Aerosol over Ambient Air in Dhaka, ACS Earth and Space Chemistry, vol.5(9), 2517–2533 川島洋人(2021), 安定同位体比を用いた環境中有害化学物質の発生源解析と食品の異同識別, 日本質量分析学会同位体比部会 2021, 2021 年 11 月 (招待講演) 川島洋人, 吉田乙羽, Khaled Shaifullah Joy, Rasel Ahammed Raju, Kazi Naimul Islam, Farah Jeba, Abdus Salam (2021), バングラデシュ, ダッカにおける PM_{2.5} 中のアンモニウムイオンの窒素安定同位体を用いた起源推定, 第 62 回大気環境学会年会. その他に、現在、数報の論文を執筆中である。 ※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

Annual Results Report
Joint Research, Institute of Nature and Environmental Technology,
Kanazawa University, 2021

Name	Chong Han	Date	4/28/2022	
Affiliation Position	Northeastern University / Professor			
Postal Address				
Phone Number		Facsimile		
E-mail Address				
Funding Category	☐ Key Joint Research Program ☒ Joint Research Program ☐ PhD student Support Program	☐ domestic ☒ international	Research period ☒ one year ☐ two years	☒ new ☐ continue
Research Field	☒ Understanding environmental pollution, environmental fluctuations, and the mechanisms behind these factors ☐ Investigating the effects of environmental change on human health ☐ Researching the effects of human societies on ecosystems ☐ Developing methods for the prediction of changes to local environments ☐ Researching topics related to sustainable development ☐ Interdisciplinary studies related to the Sea of Japan Sea region			
Research Theme	Heterogeneous photochemistry of photosensitive substances in atmospheric aerosols near Japan sea region			
Program Period	4/1/2021 ~ 3/31/2022			
K-INET Research Staff	Ning Tang			

Research Team		Name	Affiliation	Position	Role/Research Task
	Applicant	Chong HAN	Northeastern University	Professor	Management
	Member(s)	Wangjin Yang	Northeastern University	doctoral student	Analysis of heterogeneous photochemistry of photosensitive substances
		Hongxing Yang	Northeastern University	doctoral student	Analysis of heterogeneous photochemistry of photosensitive substances
		Wenwen XU	Northeastern University	master student	Analysis of heterogeneous photochemistry of photosensitive substances
		Di YOU	Northeastern University	master student	Analysis of heterogeneous photochemistry of photosensitive substances
		Ran YAN	Northeastern University	master student	Analysis of heterogeneous photochemistry of photosensitive substances
		Ning TANG	Kanazawa University	Professor	Sampling
	※If there are any changes, please submit a newly revised application form to the K-INET office in consultation with K-INET staff.				
Assay sample(s)		Name of Sample	Form(Shape)	The number of sample	
	Applied sample	Aerosol; NACs; PAHs; NPAHs; NPs	Solid State	100	
	Analyzed sample	NACs, NPs, NPAHs	Solid State	130	

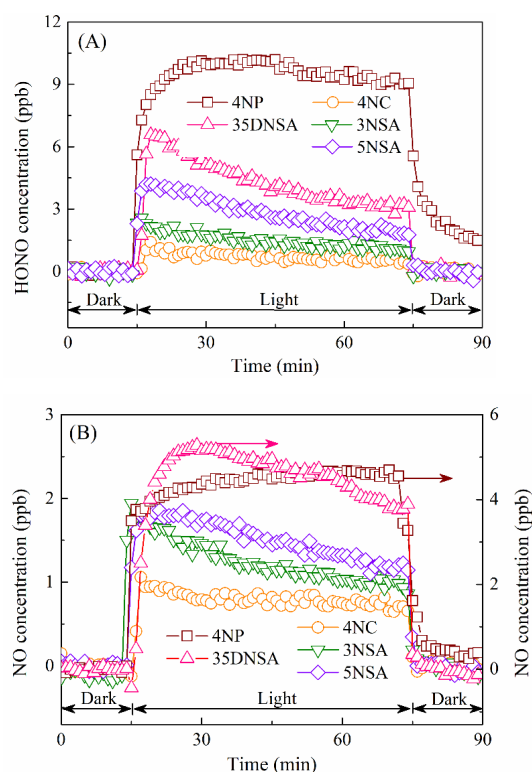
Purpose of the Research/ Expected Results	Photosensitive species in atmospheric aerosols includes quinones, aromatic carbonyls, and polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and their derivatives. Nitroaromatic compounds (Ar-NO₂), an important photosensitive species, with at least one nitro functional group attached to the aromatic ring, are widely observed in forest, rural, urban and marine regions. Nitrophenols (NPs) and nitro-polycyclic aromatic hydrocarbons (NPAHs) are important classes of Ar-NO₂. NPs concentrations of 0.2-52 and 0.08-768 ng·m⁻³ were detected in the gas and particle phases, respectively. The concentration of NPAHs was found to be 0.01-2.22 ng·m⁻³ in aerosols. The biomass burning and fossil fuel combustion contribute to primary sources of Ar-NO₂ in the atmosphere. Ar-NO₂ can be also produced from the homogeneous and heterogeneous oxidation of parent aromatics. The homogeneous reaction, occurring between benzene and NO₃/NO₂⁻ in the aqueous solution, can lead to the formation of nitrophenols through the hydroxylation and nitration. Catechol was oxidized by OH and NO₃ radicals in the gas phase to generate β-hydroxyphenoxy/o-semiquinone radical, which further reacted with NO₂ to form nitrocatechol. Acting as important contributors to the light absorption of brown carbon (BrC), Ar-NO₂ have potential impacts on the global radiative balance, climate and photochemistry. NPs accounted for 50%-80% and 4% in visible (>400 nm) and ultraviolet (=370 nm) light absorption of BrC, respectively. It has been reported that the photodegradation of ArNO₂ may be a source of HONO in the atmosphere. HONO is a key species in the atmosphere since its photolysis contributes to 20%-80% of OH radicals, which can oxidize most pollutants and governs the lifetime of many trace gases. Despite of the importance of HONO, the formation mechanism of HONO in the atmosphere still remains unclear. It has been found that HONO can be formed through the heterogeneous photochemical uptake of NO₂ and the photolysis of nitrates, which cannot still completely explain the daytime sources of HONO. Therefore, it is important to quantified the HONO formation by the photodegradation of Ar-NO₂. This project will be performed in the atmospheric chemical laboratory, Northeastern University and the aerosol sampling station of the institute of nature and environmental technology, Kanazawa University. Ar-NO₂ in the aerosols in near Japan sea region will be investigated. Reactive nitrogen gas formation, such as HONO and NO_x by the photolysis of Ar-NO₂ will be examined. It has been found that the photolysis of <i>ortho</i>-nitrophenols under ultraviolet-visible light (300-500 nm) generated HONO by intramolecular hydrogen transfer from the phenolic OH group to the nitro group, and photolysis frequencies of nitrophenols highly depended on irradiation intensity. The chemical composition and the solution pH of nitrophenols can greatly affect the HONO/NO₂⁻ formation by the photolysis of nitrophenols in the aqueous phase. HONO generation was also detected during the photolysis process of nitro compounds produced in situ by the heterogeneous reaction of NO₂ with carbonaceous aerosols. For instance, nitro compounds yielded by the chemical uptake of NO₂ on soot can be photolyzed to generate gaseous HONO under simulated sunlight. Nitrotyrosine, which was formed by nitration of tyrosine with the exposure to gaseous NO₂, can undergo photolysis process to produce HONO. Although the photolysis of nitrophenols has been investigated in previous few studies, the HONO formation from the photolysis of other typical Ar-NO₂ under sunlight has not been quantified to obtain exact information. Thus, the importance of Ar-NO₂ photolysis process as a possible HONO source is still unclear.
--	---

※ Submit the application form.

Details of the
project/
Results

1. HONO and NO_x Formations by the Ar-NO₂ Photolysis.

Figure 1 shows temporal changes in HONO, NO and NO₂ concentrations for nitrophenols (NPs) in the dark (0-15 and 75-90 minutes) and under irradiation (15-75 minutes). HONO and NO_x formations from NPs in the dark were insignificant. Upon irradiation, HONO and NO concentrations for most of NPs, such as 4-nitrocatechol (4NC), 3,5-dinitrosalicylic acid (35DNSA), 3-nitrosalicylic acid (3NSA) and 5-nitrosalicylic acid (5NSA), firstly exhibited a rapid increase, and then gradually decreased with the irradiation time. For 4-nitrophenol (4NP), HONO and NO concentrations almost remained unchanged after they reached their largest values. The HONO concentration for 4NP was always higher than 1.5 ppb after the light was switched off (75-90 minutes), which may be ascribed to the desorption of adsorbed HONO, the hydrolysis of nitro-containing species,¹ and the protonation of nitrites formed during the 4NP photolysis. As shown in Figure 2, HONO and NO concentrations for 2-nitrofluorene (2NF), 5-nitroacenaphthene (5NA) and 1-nitropyrene (1NPY) had a quick growth upon the exposure to light. Subsequently, these three nitro-polycyclic aromatic hydrocarbons (NPAHs) deactivated for HONO and NO formations. The most significant deactivation was observed for 2NF, where the largest HONO and NO signals were dozens of times larger than the corresponding ones at the steady state. HONO and NO formations from 9-nitroanthracene (9NAN) showed a slow increase during 0-25 minutes after the irradiation, and then decreased with the time. The decreasing HONO and NO signals with time during nitroaromatic compounds (Ar-NO₂) photolysis process were not caused by the desorption of Ar-NO₂, because only a slight mass loss of Ar-NO₂ during the dark experiments was expected (Table 1). It was possible that light was absorbed by Ar-NO₂ in the top layer and was unable to reach the underlayer of Ar-NO₂, and thus the photodegradation of Ar-NO₂ in the underlayer would be less efficient, leading to decreases in HONO and NO signals with time. The temporal decreases in HONO and NO signals on 5NA and 9NAN should be ascribed to the photolytic loss of these Ar-NO₂ on the surface (Table 1). Figure 1 and 2 displays that NO₂ formation from NPs and NPAHs was ignorable except for that from 2NF at the initial irradiation stage. These definitely suggest that light markedly enhances HONO and NO formations from Ar-NO₂, whereas it plays a minor role in the NO₂ formation.



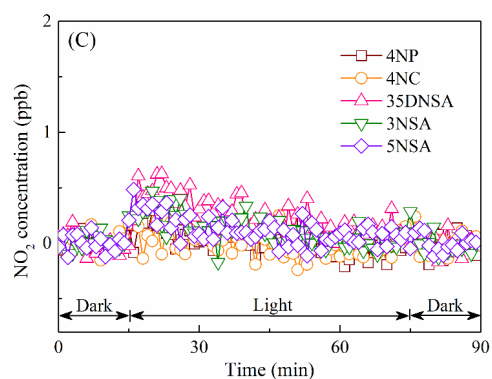


Figure 1. Temporal changes in HONO (A), NO (B) and NO₂ (C) concentrations from NPs in the dark and under irradiation. The NO formation for 4NP and 35DNSA referred to right axis in plot B.

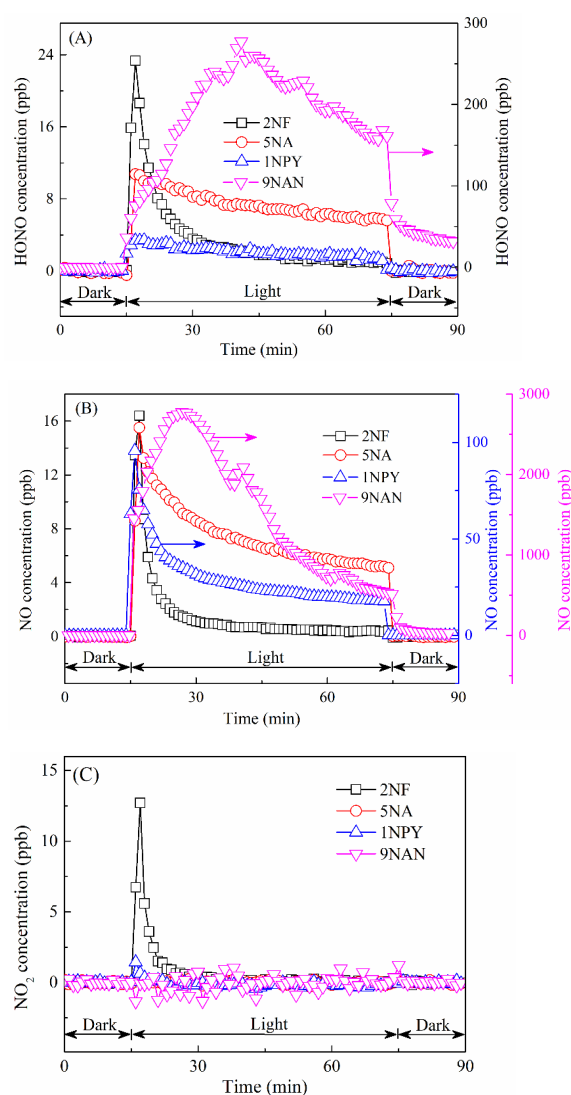
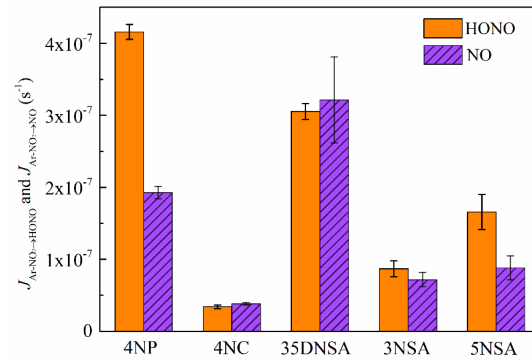
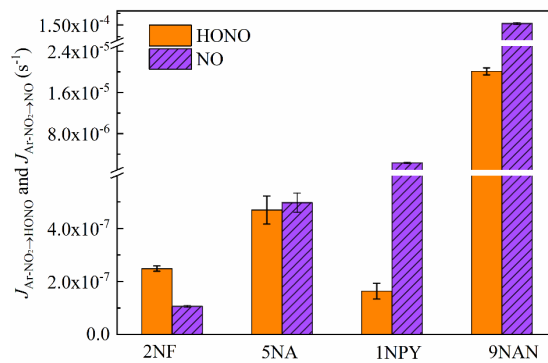


Figure 2. Temporal changes in HONO (A), NO (B) and NO₂ (C) concentrations from NPAHs in the dark and under irradiation. The HONO formation for 9NAN referred to right axis in plot A; the NO formation for 1NPY and 9NAN referred to blue and red axis on the right side in plot B, respectively.

Table 1. Change of Ar-NO₂ mass

	N_b (mg)	N_e (mg)	N_d (mg)	L_N (%)	L_e (%)
4NP	1.93	1.90		3.5	1.5 ^a
4NC	1.96	1.94		2.0	1.0 ^a
35DNSA	1.95	1.92		2.5	1.5 ^a
3NSA	1.95	1.91		2.5	2.1 ^a
5NSA	1.92	1.84		4.0	4.2 ^a
2NF	1.90	1.87		5.0	1.6 ^a
5NA	1.96	1.63	1.94	2.0	17 ^a /1.0 ^b
1NPY	1.92	1.89		4.0	1.5 ^a
9NAN	1.93	0.62	1.93	3.5	68 ^a /0 ^b

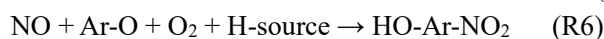
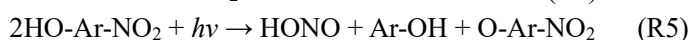
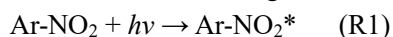
Figure 3 and 4 shows $J_{\text{Ar-NO}_2 \rightarrow \text{HONO}}$ and $J_{\text{Ar-NO}_2 \rightarrow \text{NO}}$ of NPs and NPAHs, respectively. The error bars represent the standard deviations of three independent experiments. For NPs, $J_{\text{Ar-NO}_2 \rightarrow \text{HONO}}$ ranged from $(3.42 \pm 0.24) \times 10^{-8}$ (4NC) to $(4.16 \pm 0.10) \times 10^{-7} \text{ s}^{-1}$ (4NP), and $J_{\text{Ar-NO}_2 \rightarrow \text{NO}}$ varied from $(3.81 \pm 0.15) \times 10^{-8}$ (4NC) to $(3.21 \pm 0.59) \times 10^{-7} \text{ s}^{-1}$ (35DNSA). For NPAHs, the maximum $J_{\text{Ar-NO}_2 \rightarrow \text{HONO}}$ $(2.01 \pm 0.05) \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ and $J_{\text{Ar-NO}_2 \rightarrow \text{NO}}$ $(1.59 \pm 0.04) \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ were observed for 9NAN, whereas the minimum $J_{\text{Ar-NO}_2 \rightarrow \text{HONO}}$ $(1.64 \pm 0.29) \times 10^{-7} \text{ s}^{-1}$ and $J_{\text{Ar-NO}_2 \rightarrow \text{NO}}$ $(1.06 \pm 0.02) \times 10^{-7} \text{ s}^{-1}$ were recorded for 1NPY and 2NF, respectively.

Figure 3. $J_{\text{Ar-NO}_2 \rightarrow \text{HONO}}$ and $J_{\text{Ar-NO}_2 \rightarrow \text{NO}}$ from NPs by the photolysis process.Figure 4. $J_{\text{Ar-NO}_2 \rightarrow \text{HONO}}$ and $J_{\text{Ar-NO}_2 \rightarrow \text{NO}}$ from NPAHs by the photolysis process.

2. Mechanism of Ar-NO₂ Photolysis

The mechanism for HONO and NO formations by the photolysis of Ar-NO₂ was proposed on the basis of experimental results and previous studies.²⁻⁹ The triple excited state of Ar-NO₂ (Ar-NO₂^{*}) formed under irradiation (R1) could be decomposed into NO and Ar-O (R2).^{2-4, 10, 11} HONO could be generated by the reaction of Ar-NO₂^{*} with water molecules (R3).⁹ HONO

may be also created by intramolecular hydrogen transfer of nitrophenols (35DNSA and 3NSA) from phenolic OH group to nitro group in *ortho* position (R4),⁸ and the intermolecular H-abstraction between two nitrophenols molecules (R5). The secondary reaction of photolytic products can also generate HONO.¹² An initially obvious increase of HONO and NO by the photolysis of most NPs and NPAHs (Figure 1 and 2) should be ascribed to the direct photochemical mechanisms (R1-5). A delayed increase of HONO with time, such as HONO formation from 9NAN (Figure 2A), may partially result from the secondary reaction of photolytic products. For example, the reaction of NO, Ar-O and O₂ resulted in the production of HO-Ar-NO₂ (R6), leading to HONO formation through R4.



In order to compare the efficiency of Ar-NO₂ in producing HONO and NO, Φ_{HONO} and Φ_{NO} were displayed (Figure 5 and 6). 4NP, with a nitro group in the *para* position of OH group, had the most prominent HONO production among various NPs (Figure 5). In addition, Φ_{HONO} from the *para* nitrophenol derivative (5NSA) was higher than that from the *ortho* nitrophenol derivative (3NSA). It can be concluded that *para* nitrophenols and their derivatives had a more important HONO formation as compared to other (*ortho* and *meta*) nitrophenols and their derivatives. Barsotti et al. investigated the HONO/NO₂⁻ formation from the photolysis of NPs in the aqueous phase and observed similar results.⁹ It is possible that *para* nitrophenols had lower steric hindrance of nitro group, which favored the H₂O attack on the C-N bond of Ar-NO₂^{*} (R3).⁹ 4NC had the minimum Φ_{HONO} among NPs, which may be partly ascribed to the high steric hindrance of nitro group in the *meta* position of OH groups. In addition, 4NC was weaker acid than nitrosalicylic acids (35DNSA, 3NSA and 5NSA), leading to a less protonation of NO₂⁻ to HONO. 35DNSA has two nitro groups that could theoretically release a double amount of HONO. However, similar Φ_{HONO} of 35DNSA and 3NSA was observed. For 35DNSA, the nitro group in the *para* position of OH group had a high steric hindrance due to the presence of COOH and nitro groups on the benzene ring, and thus HONO might be only produced by the nitro group in the *ortho* position through R4. It was also possible that one OH group was limited for the intermolecular H-abstraction between nitrophenols molecules with two nitro groups (R5), leading to the similar Φ_{HONO} of 35DNSA and 3NSA.

As shown in Figure 6, the NO formation was observed in the following trend: Φ_{NO} (9NAN) > Φ_{NO} (1NPY) > Φ_{NO} (5NA) > Φ_{NO} (2NF), which was attributed to a larger dihedral angle (90°) between the aromatic ring and the nitro group of 9NAN compared to that of 1NPY (60°), 5NA (45°) and 2NF (0°).⁷ A larger dihedral angle favored the overlap of the half-vacant nonbonding orbital of the nitro group with the adjacent orbital of the aromatic ring, promoting the intramolecular nitro-nitrite rearrangement to generate NO (R2).^{2, 4} In addition, the highest Φ_{HONO} was also observed on the photolysis of 9NAN. Carbonyl compounds were known to be generated from the photolysis of NPAHs.¹¹⁻¹³ It was possible that the photolysis of 9NAN yielded more carbonyl compounds acting as effective photosensitizers, which enhanced the photochemical formation of HONO.^{14, 15}

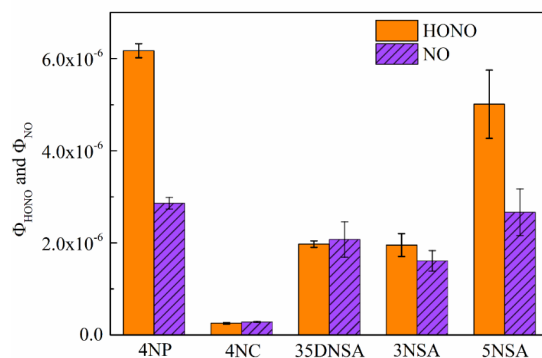


Figure 5. Φ_{HONO} and Φ_{NO} from NPs by the photolysis process.

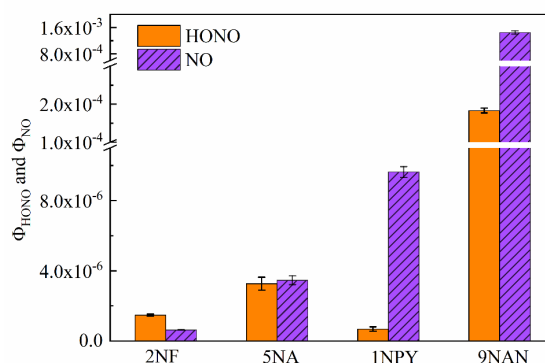


Figure 6. Φ_{HONO} and Φ_{NO} from NPAHs by the photolysis process.

Reference:

1. Han, C.; Liu, Y.; He, H., Heterogeneous reaction of NO_2 with soot at different relative humidity. *Environ. Sci. Pollut. Res. Int.* **2017**, *24*, (26), 21248-21255.
2. Chapman, O. L.; Heckert, D. C.; Reasoner, J. W.; Thackaberry, S. P., Photochemical studies on 9-nitroanthracene. *J. Am. Chem. Soc.* **1966**, *88*, 5550-5554.
3. Arce, R.; Pino, E. F.; Valle, C.; Ágreda, J., Photophysics and photochemistry of 1-nitropyrene. *J. Phys. Chem. A* **2008**, *112*, 10294-10304.
4. Fukuhara, K.; Kurihara, M.; Miyata, N., Photochemical generation of nitric oxide from 6-nitrobenzo[a]pyrene. *J. Am. Chem. Soc.* **2001**, *123*, 8662-8666.
5. Arce, R.; Morel, M., Phototransformations of dinitropyrene isomers on models of the atmospheric particulate matter. *Atmos. Environ.* **2013**, *75*, 171-178.
6. García-Berrios, Z. I.; Arce, R.; Burgos-Martínez, M.; Burgos-Polanco, N. D., Phototransformations of environmental contaminants in models of the aerosol: 2 and 4-Nitropyrene. *J. Photochem. Photobiol. A* **2017**, *332*, 131-140.
7. Warner, S. D.; Farant, J.-P.; Butler, I. S., Photochemical degradation of selected nitropolycyclic aromatic hydrocarbons in solution and adsorbed to solid particles. *Chemosphere* **2004**, *54*, 1207-1215.
8. Bejan, I.; El Aal, Y. A.; Barnes, I.; Benter, T.; Bohn, B.; Wiesen, P.; Kleffmann, J., The photolysis of *ortho*-nitrophenols: A new gas phase source of HONO. *Phys. Chem. Chem. Phys.* **2006**, *8*, 2028-2035.
9. Barsotti, F.; Bartels-Rausch, T.; De Laurentiis, E.; Ammann, M.; Brigante, M.; Mailhot, G.; Maurino, V.; Minero, C.; Vione, D., Photochemical formation of nitrite/nitrous acid (HONO) upon irradiation of nitrophenols in aqueous solution and in viscous secondary organic aerosol proxy. *Environ. Sci. Technol.* **2017**, *51*, 7486-7495.
10. van den Braken-van Leersum, A. M.; Tintel, C.; van't Zelfde, M.; Cornelisse, J.; Lugtenburg, J., Spectroscopic and photochemical properties of mononitropyrenes. *Recl. Trav.*

	<i>Chim. Pays-Bas</i> 1987, 106, 120-128 11. García-Berrios, Z. I.; Arce, R., Photodegradation mechanisms of 1-nitropyrene, an environmental pollutant: the effect of organic solvents, water, oxygen, phenols, and polycyclic aromatics on the destruction and product yields. <i>J. Phys. Chem. A</i> 2012, 116, 3652-3664. 12. Stewart, G.; Smith, K.; Chornes, A.; Harris, T.; Honeysucker, T.; Yu, H., Photochemical reaction of nitro-polycyclic aromatic hydrocarbons: Effect by solvent and structure. <i>Environ. Chem. Lett.</i> 2010, 8, 301-306. 13. Cvrčková, O.; Ciganek, M., Photostability of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and nitrated polycyclic aromatic hydrocarbons (NPAHs) in dichloromethane and isooctane solutions. <i>Polycycl. Aromat. Compd.</i> 2005, 25, 141-156. 14. Han, C.; Yang, W.; Yang, H.; Xue, X., Enhanced photochemical conversion of NO₂ to HONO on humic acids in the presence of benzophenone. <i>Environ. Pollut.</i> 2017, 231, 979-986. 15. George, C.; Strekowski, R. S.; Kleffmann, J.; Stemmler, K.; Ammann, M., Photoenhanced uptake of gaseous NO₂ on solid organic compounds: a photochemical source of HONO? <i>Faraday Discuss.</i> 2005, 130, 195-210.
Results	(1) Wangjin Yang, Di You, Chunhui Li, Chong Han*, Ning Tang, He Yang, Xiangxin Xue. Photolysis of Nitroaromatic Compounds under Sunlight: A Possible Daytime Photochemical Source of Nitrous Acid?, <i>Environmental Science & Technology Letters</i>, 2021, 8, 747-752. (2) Lu Yang, Lulu Zhang, Lijiang Chen, Chong Han, Tomoko Akutagawa, Osamu Endo, Masahito Yamauchi, Andrey Neroda, Akira Toriba, Ning Tang*. Polycyclic aromatic hydrocarbons and nitro-polycyclic aromatic hydrocarbons in five East Asian cities: Seasonal characteristics, health risks, and yearly variations. <i>Environmental Pollution</i>, 2021, 117360.
※Write down the schedule of the published original papers, the publishment without original papers, oral presentation, bachelor thesis, thesis of master degree and doctoral thesis. Applicants must report the results to theK-INET office.	

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)				
申請者氏名	Sergey Konstantinovich Krivonogov	提出年月日	2022 年 4 月 18 日	
所属・職名	Leading Research Scientist, Institute of Geology and Mineralogy, Siberian Branch, Russian Academy of Sciences, Russia			
連絡先住所				
TEL		TEL		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☐ 一般枠 ☒ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☒ 地域環境の将来予測に関する研究 ☒ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	Reconstruction of aridity history in southern part of Mongolia to understand environmental framework in the central part of the Eurasian continent (モンゴル南部の乾燥履歴の解明：中央ユーラシア大陸における環境機構の理解)			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～2022 年 3 月 31 日			
センター 教員	長谷部徳子			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	Sergey Konstantinovic h Krivonogov	Institute of Geology and Mineralogy , RAS	Leading Research Scientist	Field survey and sampling
	分担者	長谷部徳子	金沢大学	教授	試料分析
		Uyangaa Udaanjargal	金沢大学	博 士 後 期 課 程 3 年	調査，試料採集，試料分析
		Ganbat Shuukhaaz	金沢大学	博 士 前 期 課 程 1 年	調査，試料採集，試料分析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	Lake sediment	powder	30	
	分析した試料	Lake sediment	powder	30	

研究目的・
期待される
成果

Aridity in the Asian continent affects the amount of Asian dust thus the quality of the air. We expect to gain better understanding of the processes of lake level change and climate evolution in the arid region of Central Asia by complex sedimentological analysis of samples of mutual interest from Mongolian lakes obtained in summer 2021 within joint field mission. As a result, we hope to elaborate a project for long-lasting joint research and educational activity.

（アジア大陸の乾燥は黄砂や大気質に影響を与える。中央アジアの乾燥域での気候変動や湖水位変動過程をよりよく理解するために、2021 年夏に合同調査をモンゴルの対象湖で実施し複合的な堆積物分析を行う。将来的には長期的な共同研究体制に拡大しそれにより教育にも貢献する。）

※申請書に記載した事項を要約して下さい。

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	Due to COVID spread, it was impossible to collect the sediment core from the target lake because no visit to Mongolia was allowed from Russia. Therefore we worked on the multivariate statistical analysis on the 10.5 m core already collected from Lake Olgoy and physical and chemical analyses were carried out. This core preserves a record of 55kyrs. Main contributors in Factor 1 are carbonate, amorphous silica, Ca, and Sr concentrations and Factor 1 indicates authigenic productivity in lake precipitation. Factor 2 is mainly controlled by K, Rb, Al, Si, and Ti concentrations and reveals detrital terrigenous input, and Factor 3 is mainly affected by S and Zr concentrations and whole grain size, and implies the melting input from glacier and permafrost. MIS 2 and 3 stages were wet conditions in Khangai mountains. At the same time, the Olgoy lake basin was humid by the melting inputs. However, abrupt changes of sediment were occurred via temperature increase accompanied with dry climate during the Younger Dryas. コロナ禍のため、ロシアからモンゴルへの入国ができなかったため、予定していた対象湖でのコアの採取ができなかった。そこで既存のオルゴイ湖から採取された 10.5m コアの分析結果の多変量解析を進めた。オルゴイ湖から採取されたコアは約 55kyrs の記録を保持している。その結果 Factor 1 として 炭酸塩や非晶質シリカ, Ca, Sr 濃度が挙げられ、これらは湖の自生鉱物の生成を示していると思われる。Factor 2 として K, Rb, Al, Si, Ti などの濃度が挙げられ、碎屑性の陸源物質を示していると思われる。また Factor 3 として S, Zr 濃度と全岩粒径が挙げられ、硫黄の挙動より、永久凍土および氷河の融解による供給を示していると考えられる。ハンガイ山脈では MIS 2 と MIS 3 は湿潤だとされてる。同じ時期、オルゴイ湖地域でも融解水の流入により湿潤だったが、温度が上昇することによりヤンガードリアス期は乾燥化し急に堆積そうが変化したようである。
※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。	
見込まれる 成果物	Uyangaa Udaanjargal, 博士論文 (2021 年度)
※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。	

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

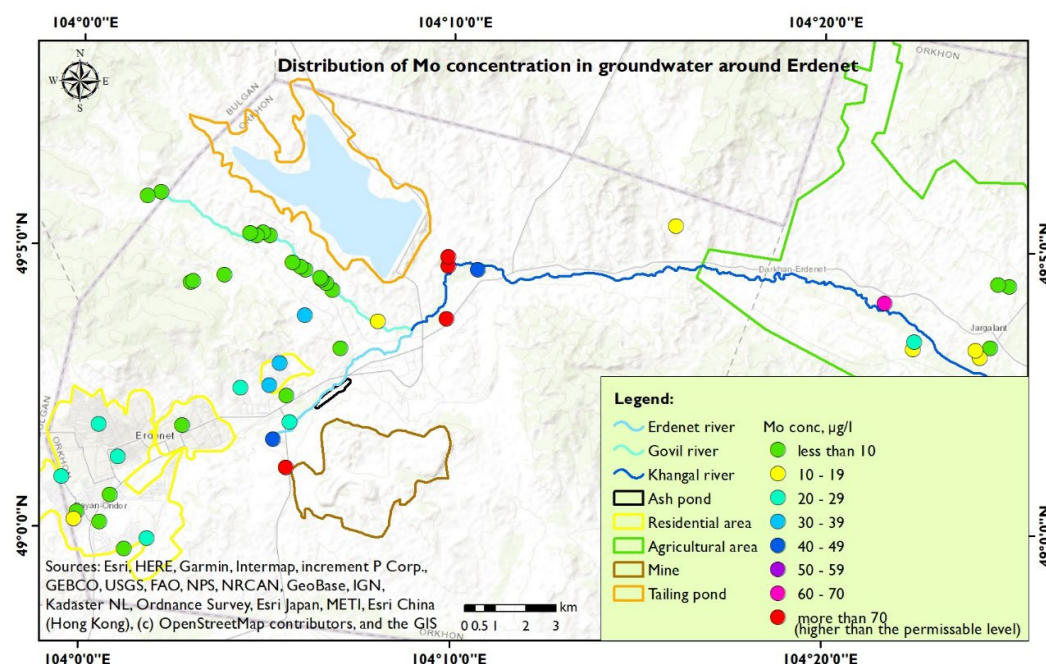
(ふりがな)	ツェツギー ソロンゴ	提出年月日	2022 年 4 月 28 日	
申請者氏名	Tsetsgee Solongo			
所属・職名	National University of Mongolia, researcher			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☐ 一般枠 ☒ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☒ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☒ 地域環境の将来予測に関する研究 ☒ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	The spatial and temporal observation of heavy metals in groundwater around the Erdenet city, Mongolia			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 31 日			
センター 教員	福士圭介教授			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	Tsetsgee Solongo	モンゴル国立 大学	Researcher	総括
	分担者	福士圭介	金沢大学環日 本海域環境研 究センター	准教授	水試料の分析
		Ochir Altansukh	モンゴル国立 大学	博 士 後 期 課程 2 年	現地調査・分析
		Enkhuur Munkhsuld	東京工業大学	博 士 後 期 課程 1 年	現地調査・水試料の分析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	Groundwater	液体	42	
	分析した試料	Groundwater	液体	60	
研究目的・ 期待される 成果	Mongolia has many active mine blocks. The most important part of the economy is the mining sector. The Erdenet mine brings high economy benefits of national income. The Erdenet mine is one of the largest copper and molybdenum (Cu&Mo) mine in the world, which is operating since 1980. The environmental pollution is becoming harmful to living organisms. The most important point is realistic evaluation of the environment, such as distribution and toxicity of the heavy metals. Since 2017 we have focused on Molybdenum (Mo), it is an essential element to living organisms. Mo concentration of rivers exceed the WHO drinking water guideline (70 µg/L) in 2011. Mine wastewater and groundwater's were inflow to the rivers. Contaminated river water was more than 70 µg/L, but the average concentration of mine wastewater and groundwater ranges 800 to 1000 µg/L. The groundwater pumped by thermal power plant for cool ash stoves. Once high concentration of Mo has recorded and may be causing health problem for long time. Therefore, we need to do more detail observation to understand the distribution and characteristic of groundwater. There are more than 500 wells in the Erdenet area, which is using for household and livestock water based on preliminary data. There are two main expectations (i) to establish the distribution and pollution source of groundwater Mo, (ii) to develop purification technology of groundwater Mo.				

※申請書に記載した事項を要約して下さい。

利用・研究
実施内容・
得られた成
果

While groundwater is a significant and valuable drinking water resource, it is vulnerable for the different kind of pollutions include heavy metals, organic compounds and many others and one of the common objects that have an impact on groundwater is the mining. 99% of drinking water resources is groundwater in Mongolia represents research on groundwater is high importance. The research area, Erdenet city (49°01'40"N, 104°02'40"E) is known for Erdenet mine (Erdenet Mining Corporation), has been in operation since 1978, is considered one of the biggest copper-molybdenum mines in Mongolia and Asia. The Erdenet mine locates south-eastern side of the city and transfers its waste water to tailing pond that locates north-eastern side of the city. The waste water in tailing pond discharges into the river named Khangal flows out from the city. A total of 49 sampling points were chosen, including public and private wells, natural spring and a tailing pond discharge. Trace metals and major metals, 27 metals were measured by ICP-OES and ICP-MS. Ga, Se, Bi were not observed at any sampling point. As a result of comparison with corresponding water quality permissible level by Mongolian National Standard (MNS) and World Health Organization (WHO), Mo and Ca concentrations were higher in several points. Mo concentration ranges between 1.04 - 1102.74 µg/l, and Ca concentration ranges between 36.63 - 277.24 mg/l. The most concerning result is that the tailing pond water contains high Mo with the highest concentration 1102.74 µg/l, and it exceeds the MNS 6148:2010 - "Water quality. Maximum limit of substance contaminating groundwater" by approximately 16 times higher. A natural spring locates 300 m away from tailing pond discharge contains 1064.02 µg/l Mo, which is high and similar with tailing pond discharge. Ca concentration was higher than the permissible level of abovementioned standard at 21 points out of 49 points. The highest exceeded amount is 3 times higher than the permissible level. About the distribution of Ca, it is similar, the highest Ca concentrations were observed in a natural spring and a tailing pond discharge. A natural spring water contains high concentration of Mo and Ca as mining tailing pond water. It makes hypothesis that the waste water is not purified effectively, and the waste water in tailing pond may affects groundwater.



※1,000字以上で具体的に記述して下さい。

見込まれる 成果物	研究期間中の成果物 Tsetsgee, Solongo., Okuyama, A., Ochir, A., Yunden, A., Odgerel, E., Batbold, T., Munkhsukd, E-U., Takahashi, Y., Munemoto, T., Honda, M., Fukushi, K., 2021, Mo Contamination in Rivers near the Erdenet Mining Area, Mongolia: Field Evidence of High Mobility of Mo at pH >8. ACS ES&T Water, 1(8), 1686-1694.
※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。	

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	おう きみん	提出年月日	2022 年 4 月 29 日	
申請者氏名	WANG Qimin (王 启民)			
所属・職名	College of Energy and Power, Shenyang Institute of Engineering (瀋陽工程学院・エネルギーとパワー学院)			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☐ 一般枠 ☒ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	バイオマス燃焼に由来する汚染物質の環境負荷評価と識別マーカーの探索			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 31 日			
センター教員	唐 寧			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	王 启民	瀋陽工程学院	教授	総括・データ解析
	分担者	蔡 雲平	瀋陽工程学院	研究員	サンプリング・化学分析（金属）
		胡 敏	北京大学	教授	化学分析（VOCs）
		張 露露	金沢大学	博 士 研 究 員	サンプリング・化学分析（PAHs）
		唐 寧	金沢大学	教授	データ解析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載した試料	粒子状物質 粒子状物質 ガス成分	固体 固体 気体	56 50 50	
	分析した試料	粒子状物質 粒子状物質 ガス成分	固体 固体 気体	56 50 0	
研究目的・ 期待される 成果	化石燃料の使用は CO₂ を大量に排出し、地球温暖化の主要因とされている。近年、多くの国が脱化石燃料化を積極的に推進し、再生可能なエネルギーが注目されるようになってきている。とりわけ中国政府は 2017 年より、発電所や北部地域の暖房施設の燃料として化石燃料からバイオマス（主要農作物のトウモロコシ稲わらなど）に転換する国家プロジェクトを急速に進めている。しかし、バイオマスの燃焼は、硫黄酸化物の排出量が少なく、「炭素中立性」の観点から CO₂ の排出が免責されるが、多環芳香族炭化水素類（PAHs）や揮発性有機化合物（VOCs）が生成され、大気中での酸化プロセスにより O₃ や PM_{2.5} への寄与も無視できない。さらに、農作物に濃縮された重金属が大気中への放出も危惧されるが、その実態は殆ど分かっていなかった。 そこで本申請課題では、瀋陽工程学院が所有するバイオマス燃焼テストボイラーを用いて、主要バイオマスの燃焼に排出されるガス状/粒子状物質を捕集し、PAHs, VOCs, 金属元素を分析して排出係数を求め、識別マーカー選別する。さらに、金沢大学能登大気観測スーパーサイト（輪島測定局, KUWAMS）において大気粒子状物質を採集し、バイオマスの燃焼による東アジア地域大気環境への負荷を評価することを目的とした。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	初年度、能登大気観測スーパーサイト輪島測定局（KUWAMS）において、総浮遊粒子状物質を連続的に捕集し、所定の前処理を施してからバイオマスの燃焼マーカーのレボグルコサン及びその異性体であるマンノサンの測定を行った。図1に示されたように、レボグルコサンの平均濃度は、冬季（5.97 ng/m³）＞春季（5.07 ng/m³）＞秋季（2.24 ng/m³）＞夏季（0.66 ng/m³）の順であり、マンノサンの平均濃度は、レボグルコサンのそれと同じく、冬季（0.83 ng/m³）＞春季（0.52 ng/m³）＞秋季（0.23 ng/m³）＞夏季（0.19 ng/m³）の順であった。レボグルコサンとマンノサンはいずれも植物の細胞壁の成分であるセルロースの熱分解に伴って生成されるが、それらの濃度比は植物の種類によって異なることが知られている。例えば、針葉樹の燃焼では10より小さく、広葉樹及び稲わらの燃焼では10より大きいと報告されている。本研究で得られたレボグルコサンとマンノサンの比は、冬季では7.2、春季では9.8、秋季では9.7、夏季では3.5であった。夏季を除いて、いずれの季節も10に近かった。従って、先行研究の結果だけでは、KUWAMSで観測されたレボグルコサンとマンノサンの主要発生源の推定に至らなかった。 一方、初冬から次の年の春先にかけて、東アジアモンスーンの影響で、中国北部都市で生成される発がん性多環芳香族炭化水素類が KUWAMS に越境輸送されることはすでに明らかにされている。それらの主要発生源は石炭暖房施設のほか、近年、中国政府が推進しているバイオマス燃料の使用に由来するものも無視できないと考えられる。しかし、Zhu らの報告によると、中国の北部から越境輸送されてくるエアロゾル中レボグルコサンとマンノサンとの月平均濃度比はおおよそ12であり、本研究で得られたそれより大きかったことから、より詳細な検討が必要であろう。従って、来年度は、1）バイオマス燃焼システムのレボグルコサンとマンノサンの排出特徴；2）中国北部の大気中エアロゾルの同時捕集と分析；3）さらに、越境輸送中におけるレボグルコサンとマンノサンの安定性について実験室レベルで研究を進める予定である。 ※1,000字以上で具体的に記述して下さい。
見込まれる 成果物	データを精査したうえ、投稿論文作成する予定である。 ※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

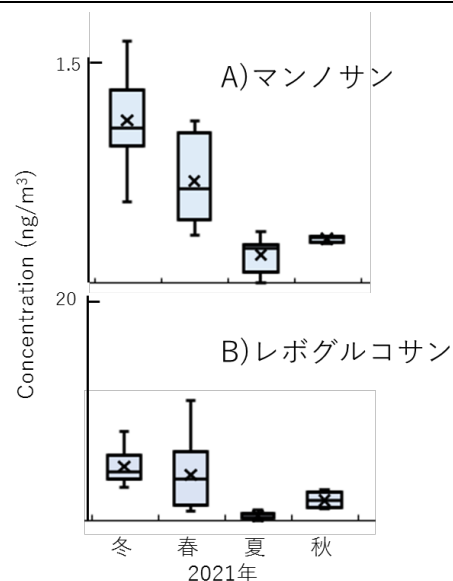


図1 KUWAMSにおける大気中マンノサン (A) とレボグルコサン (B) の濃度

Annual Results Report
Joint Research, Institute of Nature and Environmental Technology,
Kanazawa University, 2021

Name	Tatiana Chizhova		Date	04/12/2022	
Affiliation Position	Research scientist				
Postal Address					
Phone Number			Facsimile		
E-mail Address	_____				
Funding Category	☐ Key Joint Research Program ☒ Joint Research Program ☐ PhD student Support Program	☐ domestic ☒ international	Research period ☒ one year ☐ two years	☒ new ☐ continue	
Research Field	☒ Understanding environmental pollution, environmental fluctuations, and the mechanisms behind these factors ☐ Investigating the effects of environmental change on human health ☐ Researching the effects of human societies on ecosystems ☐ Developing methods for the prediction of changes to local environments ☐ Researching topics related to sustainable development ☐ Interdisciplinary studies related to the Sea of Japan Sea region				
Research Theme	PAHs pollution in the Sea of Japan marine environment				
Program Period	04/01/2021 ~ 03/31/2022				
K-INET Research Staff	Seiya Nagao, Professor Tetsuya Matsunaka, Assistant Prof.				

Research Team		Name	Affiliation	Position	Role/Research Task
	Applicant	Tatiana Chizhova	POI FEB RAS	Research scientist	Analysis & discussion
	Member(s)	Iiulia Kudriashova (Yuliya Koudryashova)	POI FEB RAS	Research scientist	Analysis & discussion
※If there are any changes, please submit a newly revised application form to the K-INET office in consultation with K-INET staff.					
Assay sample(s)		Name of Sample	Form(Shape)	The number of sample	
	Applied sample	Water samples Suspended particulate matter samples Samples for Ra-isotope analysis	Cartridges C18 Glass fiber filters Residues	28 (56 cartridges) 28 22	
		Analyzed sample	Water samples Suspended particulate matter samples Samples for Ra-isotope analysis	Cartridges C18 Glass fiber filters Residues	28 (56 cartridges) 28 22
Purpose of the Research/ Expected Results	The purpose of the research was to study the PAH content, vertical distribution, and to highlight factors controlling the PAH transport and transformation in the Japan Basin of the Sea of Japan.				
※Submit the application form.					

Details of the project/ Results	Samples of water and suspended matter were taken at 14 levels of two deep-water stations in December 2016. The sampling stations are labeled as St. 21 (41°29.560'N, 134°02.068') and St. 29 (41°27.647'N, 131°46.128E). The sampling depth was from 5 m to 3500 m. At the same time, samples were taken for the analysis of particulate and dissolved carbon, and ^{226}Ra and ^{228}Ra isotopes. Determination of the PAH content and ^{226}Ra and ^{228}Ra activities was carried out at the Low-Level Radioactivity Laboratory and Ogoya Underground Laboratory, Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University, Japan. Results show dissolved PAHs (DPAH) significantly prevailed over particulate PAHs (PPAH). The total PPAH concentrations (8 compounds) ranged from 0.87 ng/L to 1.64 ng/L and the mean was 1.19 ng/L. The total DPAH (9 compounds) varied from 7.97 ng/L to 15.11 ng/L with an average concentration of 9.72 ng/L. The DPAH vertical profile in surface and subsurface waters (up to 50 m) repeats the ^{228}Ra profile that indicates the DPAHs entered to the sampling area along with shelf-derived water. The mesopelagic has the highest PAH concentration compared to epipelagic and batipelagic realms. Probably this vertical PAH pattern is associated with hydrological and biogeochemical modes in the Japan basin. The most abundant PAHs were fluorene, acenaphthene, fluoranthene and pyrene which accounted for 78-93% of total content. 3-ring PAHs were strongly dominant in each sample except for PPAHs at a depth of 100 m and 1500 m at St. 21, where the contribution of 3-ring PAHs was similar to that of 4-ring PAHs. Results of principal component analysis show a loading of 4-ring DPAHs in the samples from 0-50 m. As increasing in the 4-ring PAH percentage is typical for coastal water of the northwestern Sea of Japan in the cold period that supports results of ^{228}Ra suggesting PAH polluted shelf water contributing to the Japan Basin. The vertical profiles of particulate and dissolved organic carbon differed from the PAH profiles. While the organic carbon content as expected decreased with depth due to the remineralization of labile organic matter, the PAH level remained relatively unchanged towards the bottom. A positive moderate correlation between DPAH and dissolved organic carbon was found for depths below the epipelagic. This relationship is probably reflects common pathway of input or formation of the dissolved organic matter and the DPAH in the deep water of the Sea of Japan. Calculating carbon normalized distribution coefficients of PAHs between the water and particles (k_{oc}) for the epipelagic zone, it was found that the k_{oc} of 3-ring PAHs were from 6.1 to 7.2 being much higher than the values of their octanol-water distribution coefficients (k_{ow}). Since it was found that PAHs in this work are of pyrogenic, one of the reasons for such high k_{oc} may be the PAHs entered into the water column adsorbed on soot particles. The k_{oc} and k_{ow} of higher molecular weight PAHs (with 4 and 5 rings) were quite close, indicating hydrophobicity is an important factor that influences water-particle distribution of these PAHs and determines their fate in the marine environment. ※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。
--	---

Results	Manuscript by Koudryashova Y., Chizhova T., Inoue M., Hayakawa K., Nagao S. “PAHs deep-water circulation in the northwestern Sea of Japan” is preparing to submit to the journal.
※ Write down the schedule of the published original papers, the publication without original papers, oral presentation, bachelor thesis, thesis of master degree and doctoral thesis. Applicants must report the results to the K-INET office.	

Annual Results Report
Joint Research, Institute of Nature and Environmental Technology,
Kanazawa University, 2021

Name	Bin CHEN	Date	4/28/2022	
Affiliation Position	Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences /Associate Professor			
Postal Address				
Phone Number		Facsimile		
E-mail Address				
Funding Category	☐ Key Joint Research Program ☒ Joint Research Program ☐ PhD student Support Program	☐ domestic ☒ international	Research period ☒ one year ☐ two years	☒ new ☐ continue
Research Field	☒ Understanding environmental pollution, environmental fluctuations, and the mechanisms behind these factors ☐ Investigating the effects of environmental change on human health ☐ Researching the effects of human societies on ecosystems ☐ Developing methods for the prediction of changes to local environments ☐ Researching topics related to sustainable development ☐ Interdisciplinary studies related to the Sea of Japan Sea region			
Research Theme	Comparisons of main pollutants before and during COVID-19 period at Wajima and Beijing			
Program Period	4/1/2021 ~ 3/31/2022			
K-INET Research Staff	Ning Tang			

Research Team		Name	Affiliation	Position	Role/Research Task
	Applicant	Chen Bin	Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences	Associate Professor	Plan and management of China side
	Member(s)	Li Jiandong	Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences	Associate Professor	Data analyzing
		Tan Saichun	Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences	Associate Professor	Data analyzing
		Habib Ammara	Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences	Ph.D researcher	Experiment and data Analyzing
		Dong Xiaofei	Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences	Ph,D student	Experiment and data Analyzing
		Tang Ning	Kanazawa University	Professor	Sampling
	※If there are any changes, please submit a newly revised application form to the K-INET office in consultation with K-INET staff.				
	Assay sample(s)		Name of Sample	Form(Shape)	The number of sample
Applied sample					

	Analyzed sample			
Purpose of the Research/ Expected Results	The purpose of this study as to sample and analyze the atmospheric components in different regions, especially in Wajima, Japan and Beijing, China, also in other possible regions, so as to deepen the scientific understanding of the uncertainty of aerosols and other components including the physical and chemical characteristics, optical properties and radiation properties. The aerosol optical properties observed by ground-based networks have been intensively reported over China and Japan. Based on the inversion data and meteorological data, several pollution events will be analyzed. The result will show some factors for instance poor meteorological conditions (low wind speed and high relative humidity), the hygroscopic growth of aerosol, aerosol secondary transformation, local emissions, and regional transportation usually lead to serious pollution events. Beijing, as the capital of China and the central city of the Beijing-Tianjin-Hebei region, has experienced a rapid urbanization process. Atmospheric environmental issues caused by anthropogenic aerosol emissions draw more attention. Coarse particles are usually the main aerosols in Beijing, and dust aerosol is the main type of spring. Some studies reported that the combination of poor meteorological conditions and optical properties change of aerosols result in local pollution events. At the mean time, Wajima is a typical remote spot mainly affect by the ocean air mass, which is a ideal clean background spot in the mid-latitude region, where synoptic disturbances move from west to east. The observation sites in Japan are also affected by air masses originating from the continental area. Therefore, the modification of the aerosol characteristics during the transport can be investigated by comparing the aerosol characteristics of the source and downstream cities, when more mechanisms of the reactions between climate and environment and the variation of the main pollutants including O₃ and aerosols could be understood. The relationship between the optical / radiative properties and the physical / chemical components will be analyzed deeply in this study.			
※ Submit the application form.				

Details of the project/ Results	Quantitative investigations of bioaerosols collected at Beijing, China and Tsogt-Ovoo, Mogolia were conducted. Bioaerosol particles sampling takes 15 times using a self-made biological particle sampler during dust seasons. Under microscopic observation, we found that the concentrations of bacteria and organic matter increased after dust events at both sites and the particle concentrations in Tsogt-Ovoo are higher than those of Beijing. The rarefaction curves and PCoA plots indicated that there are significant differences between Tsogt-Ovoo and Beijing. The high degree of similarity between some samples in dust events of Beijing and Tsogt-Ovoo suggests that some bacterial populations such as members of <i>Bacteroidetes</i> were transported from Tsogt-Ovoo to Beijing. The members of <i>Bacteroidetes</i> would be transported from source area to deposition area. These results suggest that the long-range transport of dust in the atmosphere may play a significant role in the dispersal procedure for bioaerosols on the scales of local, regional, and even global. Our findings would serve as a vital reference for the further cooperation of countries to reduce dust impact and improve the environmental quality. Features of dust aerosols are significant in understanding how far they can travel from their source regions. Appropriately desert aerosols concentration and size distributions in Asian deserts are not well understood. An overview of the vertical variations of dust aerosols such as number concentration, size distribution, optical depth, wind pattern and dust minerals in Chinese desert areas are conducted. Observational data from vertical profiles of aerosol particles in the free troposphere over Dunhuang strongly suggest that present mineral particles that seems originated from desert regions by local regional impacts and entrained far away in all seasons. Various studies suggested that dust particles; consistently exist in the free troposphere of Chinese desert regions, while their number concentrations are higher in spring than summers. Wind system analysis shows that a combination of prevailing westerly, in the free troposphere and the surface wind strongly controlled by the geography. The affluence of Ca-rich particles in the free troposphere differs significantly between spring and summer. The results obtained by this review will provides useful information about the Asian desert aerosols. For better understanding of the spatial and seasonal distribution of dust particles in the Asian deserts, we need more field measurements to study about the aerosols in free troposphere of Chinese desert area.
--	--

Results	1.Dong X, Chen B, Maki T, Shi G, Duan M and Khalid B (2022), Characteristic Changes of Bioaerosols in Beijing and Tsogt-Ovoo During Dust Events. Front. Environ. Sci. 10:795489. doi: 10.3389/fenvs.2022.795489 2.Ammara Habib, Bin Chen, Xiaofei Dong, Guangyu Shi and Ning Tang, Physico-optical properties of atmospheric aerosols over Chinese desert regions: A review, submitted to Atmosphere ※Write down the schedule of the published original papers, the publishment without original papers, oral presentation, bachelor thesis, thesis of master degree and doctoral thesis. Applicants must report the results to theK-INET office.

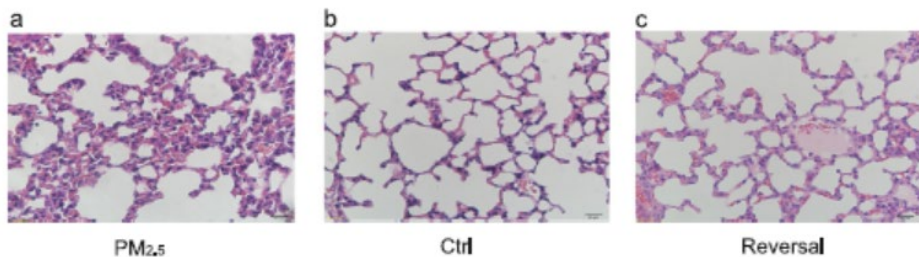
Annual Results Report
Joint Research, Institute of Nature and Environmental Technology,
Kanazawa University, 2021

Name	Yongjie Wei	Date	4/28/2022		
Affiliation Position	Chinese Research Academy of Environmental Sciences (CRAES) • Professor				
Postal Address					
Phone Number		Facsimile			
E-mail Address					
Funding Category	☐ Key Joint Research Program ☒ Joint Research Program ☐ PhD student Support Program	☐ domestic ☐ international	Research period ☐ one year ☐ two years	☐ new ☐ ☐ continue	
Research Field	☐ Understanding environmental pollution, environmental fluctuations, and the mechanisms behind these factors ☒ Investigating the effects of environmental change on human health ☐ Researching the effects of human societies on ecosystems ☐ Developing methods for the prediction of changes to local environments ☐ Researching topics related to sustainable development ☐ Interdisciplinary studies related to the Sea of Japan Sea region				
Research Theme	The effects of atmospheric particulate matter on DNA and RNA methylation of lung.				
Program Period	01/01/2021 ~ 12/31/2021				

K-INET Research Staff		Ning Tang			
Research Team		Name	Affiliation	Position	Role/Research Task
	Applicant	Yongjie Wei	CRAES	Prof.	Epigenetic study
	Member(s)	Ning Tang	Kanazawa Uni.	Prof.	PM _{2.5} sampling and chemical analyses
		Zhigang Li	CRAES	Associate Prof.	Molecular analyses
		Chen Guo	CRAES	Assistant Prof.	Molecular analyses
		Zhanshan Wang	CRAES	Assistant Prof.	Biochemical analyses
	※If there are any changes, please submit a newly revised application form to the K-INET office in consultation with K-INET staff.				
Assay sample(s)		Name of Sample	Form(Shape)	The number of sample	
	Applied sample	Particulate matter	Solid	28	
	Analyzed sample	Particulate matter	Solid	28	

Purpose of the Research/ Expected Results	At present, the outdoor air pollution and its influence on public health have become the significant issues. Because of the key development of respiratory system in juvenile stage, children are more susceptible to the air pollution than adult. In human, respiratory system keeps developing in utero to adolescence, and more than 80% alveoli were formed before 6 years old. In children stage, the detoxification and metabolic systems were immature, which make the lung more vulnerable to air pollution (Pinkerton and Joad, 2006). Moreover, the ambient pollutants as the major leading contributors on many chronic respiratory diseases, always acted on the lung firstly. Therefore, the lung in children stage was tender to the stimulation from environmental and chemical toxicants. DNA methylation is the critical epigenetic modification that regulates gene expression without changing DNA sequence. The DNA methylation at promoter regions can repress gene expression. In recent years, much attention has been attracted by 5-hydroxymethylcytosine (5hmC), the oxidized product from 5-methylcytosine (5mC) by teneleven- translocation. The 5hmC in gene has generally been involved in the activation of gene expression, which is assumed to be associated with the process of cellular differentiation, neuronal development, and aging. Meanwhile, the recent discovery has illuminated that the mRNA methylation, regulating gene expression level in post-transcription level, can influence the processes such as cell differentiation, embryonic development and stress responses in eukaryotes. In present, more and more evidence showed that, the environmental exposures have adverse. health effects by influencing the DNA methylation level of specific genes, especially by lowering the quantities of methylation. PM inhalation decreased global DNA methylation level and affected some biomarkers in blood, as well as hypo-methylation in some pro-inflammatory and inflammatory genes. Experiments supported that acute exposure to PM significantly resulted in rapid hypo-methylation of some cardiovascular biomarkers. PM exposure was also the link with the decreased DNA methylation in promoter region of the iNOS gene. But whether PM exposure affects DNA hydroxymethylation and RNA methylation level and the role of them in regulating the adverse effects induced by PM exposure need to be explored. Considering the critical period of lung development in children stage and the possibility that the altered DNA and RNA methylation could be involved in the impairment of lung derived from PM_{2.5} exposure, we investigated the global DNA and RNA methylation of lungs of juvenile mice after acute exposure to heavy PM_{2.5}. As 5-hydroxymethylcytosine was the oxidation product of 5mC, we also examined whether acute PM_{2.5} exposure influenced the global 5hmC level. The present study clearly demonstrated the actions of global DNA methylation and RNA methylation of lung after acute PM_{2.5} exposure, emphasized the needs for future study in modification of DNA and RNA methylation after exposure to air particle.
--	--

※Submit the application form.

Details of the project/ Results	As planned, we should do the comparative study in Beijing, Baoding, Shanghai, and Kanazawa, Wajima. For the COVID-19 in the world wide, we only did the experiments by using the PM sampled from Beijing. Background: Particulate matter (PM) in air pollution is a pervasive risk factor in pulmonary diseases that are always associated with gene expression level alterations in many specific-genes. DNA methylation (5-methylcytosine [5mC]) and RNA methylation (N6-methyladenine [6 mA]) influence the gene expression from transcription and posttranscription level, and the DNA hydroxymethylation (5-hydroxymethylcytosine [5hmC]) is the oxidized form of 5mC. Objective: Reveal the effect of airborne particulate matter exposure on the DNA and RNA methylation of lung. Methods: We divided the animals into 3 groups randomly, the group 1 was exposed to heavy PM for 24 h in the unfiltered chamber, the group 2 was exposed to filtered air in the filtered chamber, and the group 3 was 10 of the mice in the group 1 after 24 h exposure and then being moved to the filtered chamber for further 120 h exposure. Lung morphometric was analyzed by hematoxylin-eosin stained (HE) slide. The levels of global 5mC, 5hmC and 6 mA of lungs in experimental mice were investigated by the MethylFlash™ and Imprint® Methylated DNA Quantification Kits. The expression level of DNA and RNA methylation and demethylation transferase by Real-time PCR.  The figure consists of three panels of light micrographs of lung tissue stained with hematoxylin and eosin (H&E). Panel (a) is labeled 'PM_{2.5}' and shows significant damage to the pulmonary alveolar walls, with enlarged alveolar spaces and some consolidation. Panel (b) is labeled 'Ctrl' and shows a normal, healthy lung structure with clear alveolar walls and spaces. Panel (c) is labeled 'Reversal' and shows that after 120 hours of exposure to filtered air, the lung structure has improved, with alveolar walls appearing more normal and spaces less enlarged compared to the PM_{2.5} group. Fig. 1. Lung histology (HE stain) of mice. (a) Light microscopic examination showed the fractured pulmonary alveolar wall, enlarged alveolar space and the tendency of consolidation of lung after PM exposure; (b) No apparent impairment in alveolus after filtered air exposure (Ctrl). (c) After acute exposure to unfiltered air, the impairment of lung was relieved by air purification for 120 h (Reversal).
--	--

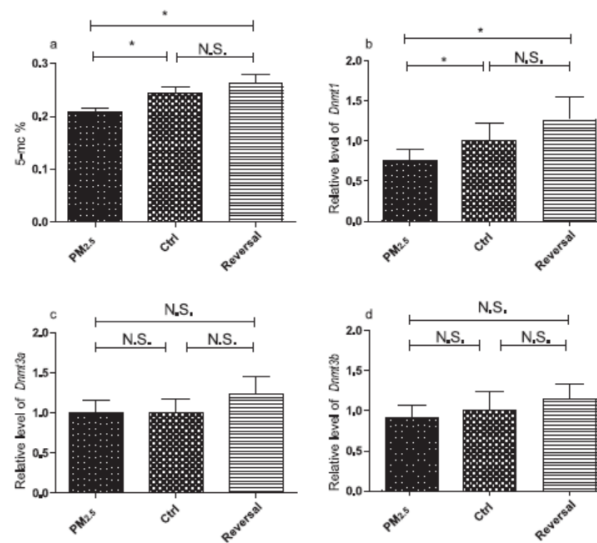


Fig. 2. The global DNA methylation level and the expression level of DNA methylation transferase of lung. (a) PM exposure resulted in the global DNA hypomethylation of lung, and air purification reversed it. (b) PM exposure induced the decreased expression level of Dnmt1, and air purification reversed it. (c) There was no significant change in the Dnmt3a expression. (d) There was no significant change in the Dnmt3a expression. * $p < 0.05$; ** $p < 0.01$; *** $p < 0.001$.

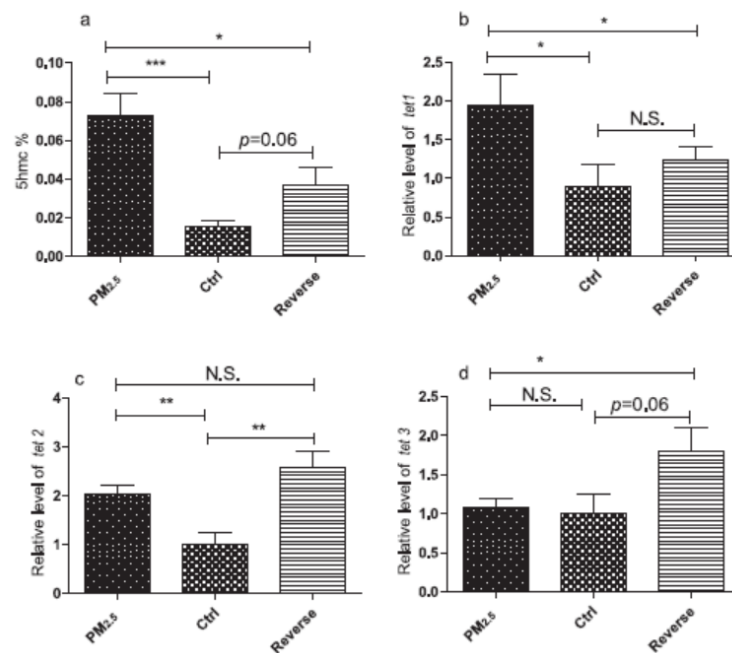


Fig. 3. The global DNA hydroxymethylcytosine level and the expression level of DNA hydroxymethylcytosine transferase of lung. (a) PM exposure induced the global DNA hypermethylation of lung, and air purification reversed it. (b-d) PM exposure significantly enhanced the Tet1 and Tet2 expression, and air purification only reversed the up-regulation of Tet1; PM exposure did not affect the expression level of Tet3. * $p < 0.05$; ** $p < 0.01$; *** $p < 0.001$.

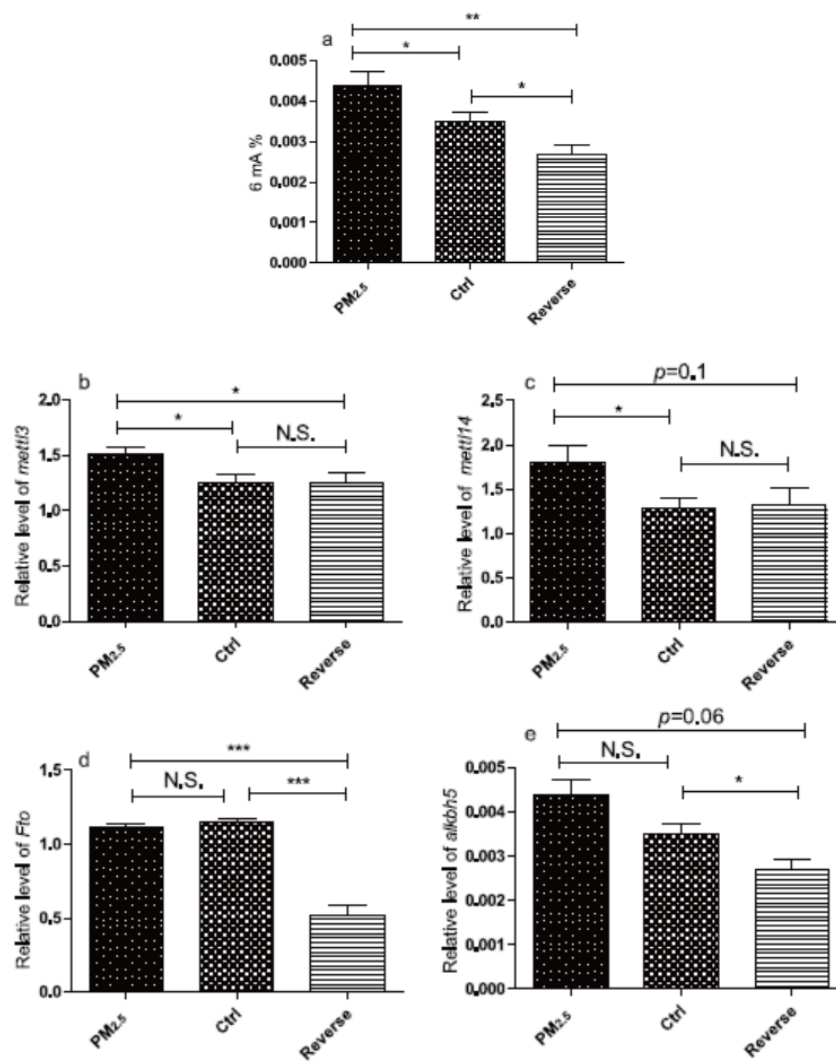


Fig. 4. The global RNA methylation level and the expression level of RNA methylase of lung. (a) PM exposure induced the global RNA hypermethylation of lung, and air purification reversed it. (b-c) PM exposure induced high expression of RNA methyltransferases, including *Mettl3* and *Mettl14* and their levels were back to the normal after air purification. (d-e) PM exposure did not affect the expression level of RNA demethyltransferases, including *Fto* and *Alkbh5*. * $p < 0.05$; ** $p < 0.01$; *** $p < 0.001$.

Results	Results: The morphology of lungs showed that acute PM exposure impaired the structure of pulmonary alveolus. Meanwhile, the global level of DNA methylation was decreased, and DNA hydroxymethylation and RNA methylation levels were increased in lungs after PM exposure for only 24 h. And the expression level of some DNA and RNA methylation and demethylation transferase were also changed. Very notably, after being exposed in purified air for 120 h, the pulmonary morphology, the global levels of DNA methylation, DNA hydroxymethylation, RNA methylation and altered expression of methylation and demethylation transferase of lungs were all reversed. Conclusion : In summary, ambient air PM exposure could impair the morphology, accompanied with significant global DNA hypomethylation and RNA hypermethylation in lungs. The DNA hypomethylation resulted in the pulmonary inflammation and could be reversed after air purification. The RNA methylation increased with high PM exposure and also reversed after air purification, however, we cannot explain the reason by now. The very notable point of the present study is that the pathologic changes and altered levels of DNA methylation and RNA methylation can recover after air purification. Our work for the first time, from the perspective of DNA methylation and RNA methylation determined that the negative impact of PM exposure could be repaired by the self-regulation of the body when pollution reduction, which provided us a new idea for intervening the adverse health effects from air pollution. Xue K, Li Z, Zhang Y, Tang N, Wei Y. TGF-β regulates m6A RNA methylation after PM_{2.5} exposure, submitted to Particle and Fibre Toxicology.
※Write down the schedule of the published original papers, the publishment without original papers, oral presentation, bachelor thesis, thesis of master degree and doctoral thesis. Applicants must report the results to theK-INET office.	

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	たなか ゆきや	提出年月日	2022 年 5 月 25 日	
申請者氏名	田中幸哉			
所属・職名	慶熙大学校 理科大学 地理学科 教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☐ 一般枠 ☒ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☐ 新規 ☒ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	モンゴル東部スフバータル県における古水文環境変動			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～2022 年 3 月 31 日			
センター 教員	長谷部徳子			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	田中幸哉	慶熙大学校	教授	総括
	分担者	長谷部徳子	環日本海域環 境研究センタ ー	教授	実験指導
		Ganbat Shuukhaaz	金沢大学自然 科学研究科	博 士 前 期 課 程 1 年 生	実験
		Kang Su-Min	慶熙大学校	博 士 前 期 課 程 1 年 生	実験
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	湖水堆積物 湖岸段丘堆積物	粉末	5	
	分析した試料	湖岸段丘堆積物	粉末	約 2 0	
研究目的・ 期待される 成果	モンゴル東部はこの太平洋からのモンスーンが入る限界線に近く、気候変化に敏感な地域である。この地域には多数の凹地が分布していて、湖岸段丘がこれらの凹地を取り巻くように多数分布している。こうした地形的な特徴から、この凹地が湖水面変動を伴った湖であったことを表している。こうした地形的な特徴は湖の拡大縮小を意味し、この地域は氷河の融解等の影響を受けないため、湖の拡大縮小は降水量の増減を表していると考えられる。降水量の増減は太平洋からのモンスーンの影響下にあることを意味し、日本海周辺の環境変化と大きく連動しているものと考えられる。2020 年度に共同研究の採択を受けたが、コロナ禍により実験のために金沢大学に行くことができず、かつ新規試料の輸出もできなかったため、既存試料の追加測定を学生アルバイトにより行うことができたのみであった。これらの試料の分析により、陸域の乾燥・湿潤の変動を調べ、環日本海域への環境影響を明らかにする。				

※申請書に記載した事項を要約して下さい。

利用・研究
実施内容・
得られた成
果

今年度もコロナの影響著しく、試料の輸出や金沢大での実験を行うことができなかったため、東部地域でなく、金沢大学に保管されている試料の分析を行なった。すでに干上がって水のない古湖底堆積物において、コア試料の粒径変動や有機物含有量、炭酸塩含有量、アモルファスシリカ含有量等の分析を行なった。分析項目はよく連動しており、含水率、炭酸塩含有量、有機物量は正の相関を示した。Pb²¹⁰ 分析により、堆積物の堆積速度を見積もった。その結果、コア上部の約 26cm が 87 年分に相当した。最近の気候に基づき、早魃指数を求めたところ、早魃指数があがるにつれて、炭酸塩含有量が増加し、炭酸塩含有量が乾燥を示すプロキシになりうることが示された。年代評価をした層準よりさらに下位の約 40cm から 100cm 深の堆積層は炭酸塩含有量が高く現在と同様の乾燥した期間であったことが類推された。しかし現在の状況は乾燥化が進んで湖が干上がってしまっているが、その時期は堆積物の堆積が行われるように水塊があったと考えられる。炭酸塩鉱物の堆積環境について明らかにするために、その時期がいつに相当するか、適切に年代測定を行い、その当時の気候環境を理解することにより、それぞれの分析結果などのような環境のプロキシとなりうるかの理解をさらに進めることが必要である。

※1,000 字以上で具体的に記述して下さい

見込まれる
成果物

Ganbat Shuukhaaz 2022 年度 9 月期修士論文

※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記

載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	インドラ チャンドラ	提出年月日	2022 年 04 月 28 日	
申請者氏名	Indra Chandra			
所属・職名	Engineering Physics, School of Electrical Engineering, Telkom University			
連絡先住所				
TEL				
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☐ 一般枠 ☒ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	Producing standard of procedures of utilization microsenors for long-term observation of environmental pollutions.			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 31 日			
センター 教員	氏名 Yayoi Inomata E-mail: yinomata@se.kanazawa-u.ac.jp ※主要設備一覧掲載の「センター教員」について記載して下さい。			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	I. Chandra	Telkom University	Assistant Professor	Low-cost sensors preparation, gathering environmental data, data validation and standard of procedure for deployment, service, and maintenance
	分担者	Y. Inomata	Institute of nature and environmenta l study	Associate d Professor	Environmental data analysis
	※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。				
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	-	-	-	
	分析した試料	-	-	-	
研究目的・ 期待される 成果	【Objectives】 The research focus on: 1) to develop low-cost calibration system for microsensors. 2) to make standard of procedures for utilization environmental sensors in the long-term field observation. 3) to analyze spatiotemporal air quality data (PM2.5, CO2, CO, SO2, O3, and NO2) and weather parameters (Temperature, Relative Humidity, Pressure, and Light intensity) for determination/prediction of emission sources and air mass behaviors. 【Output/outcomes】 The output and/or outcomes from these activities are: 1) The prototype of low-cost calibration system for environmental microsensors and its draft of patent in Indonesia. 2) Standard of procedure for: (a) development and testing the device in the laboratory, (b) deployment of devices in the field, and (c) service and maintenance during monitoring the air quality. 3) Continue data analysis for long-term observation in the Greater Bandung air basin. ※申請書に記載した事項を要約して下さい。				

In this K-INET 2021/2022 project, all the budgets are used for the partial part of the calibration systems, such as the mass flow controller, CO₂ detector, and T/RH recording device, due to the pandemic covid-19.

The following picture (Fig. 1, 2, and 3) are the results for the simple calibration of CO₂ sensors and have been submitting for the Indonesian patent.

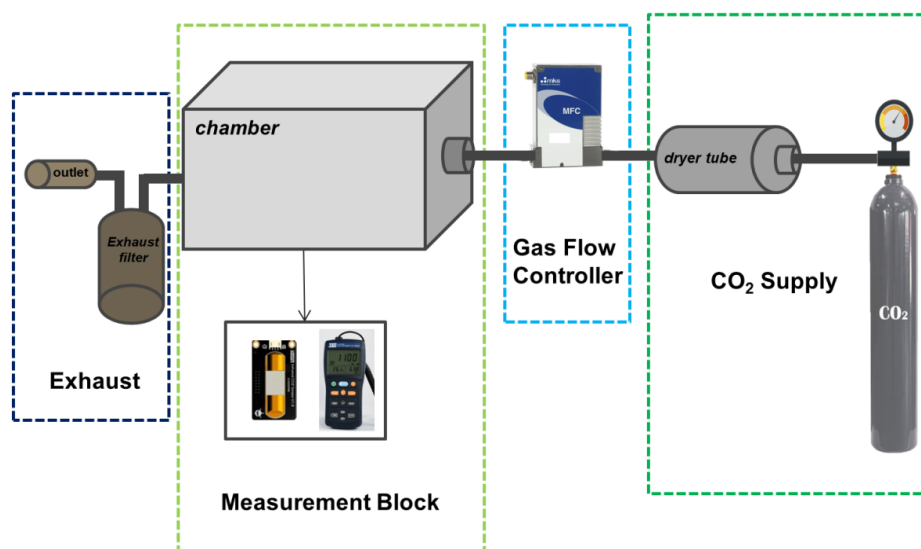


Fig. 1 Schematic of simple calibration for CO₂ sensor

利用・研究
実施内容・
得られた成
果

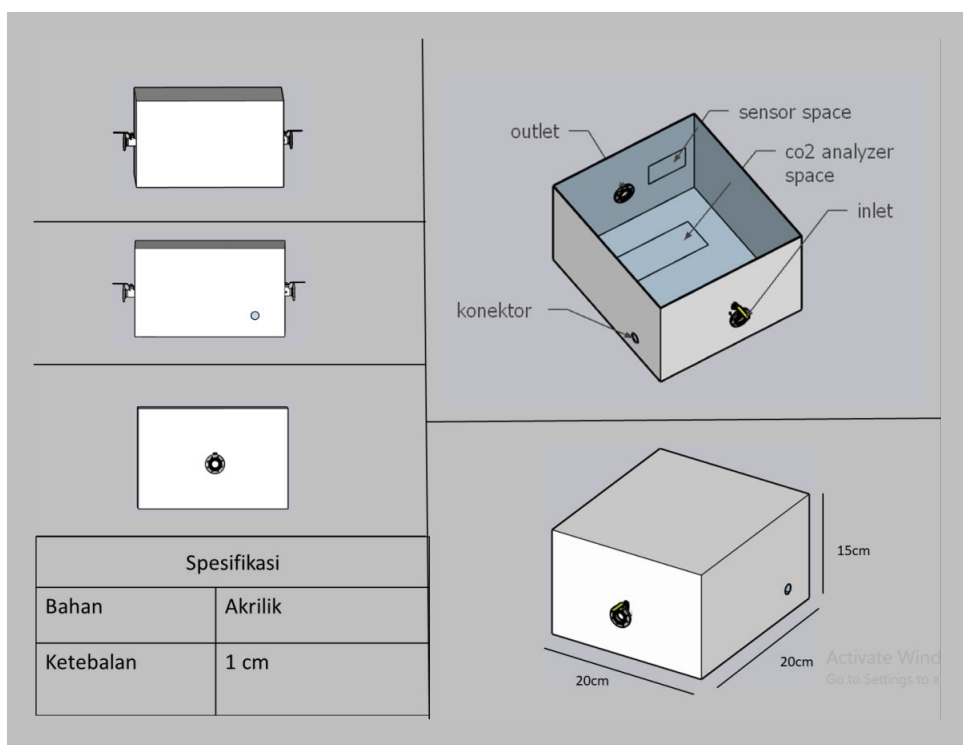


Fig. 2 Design of Chamber

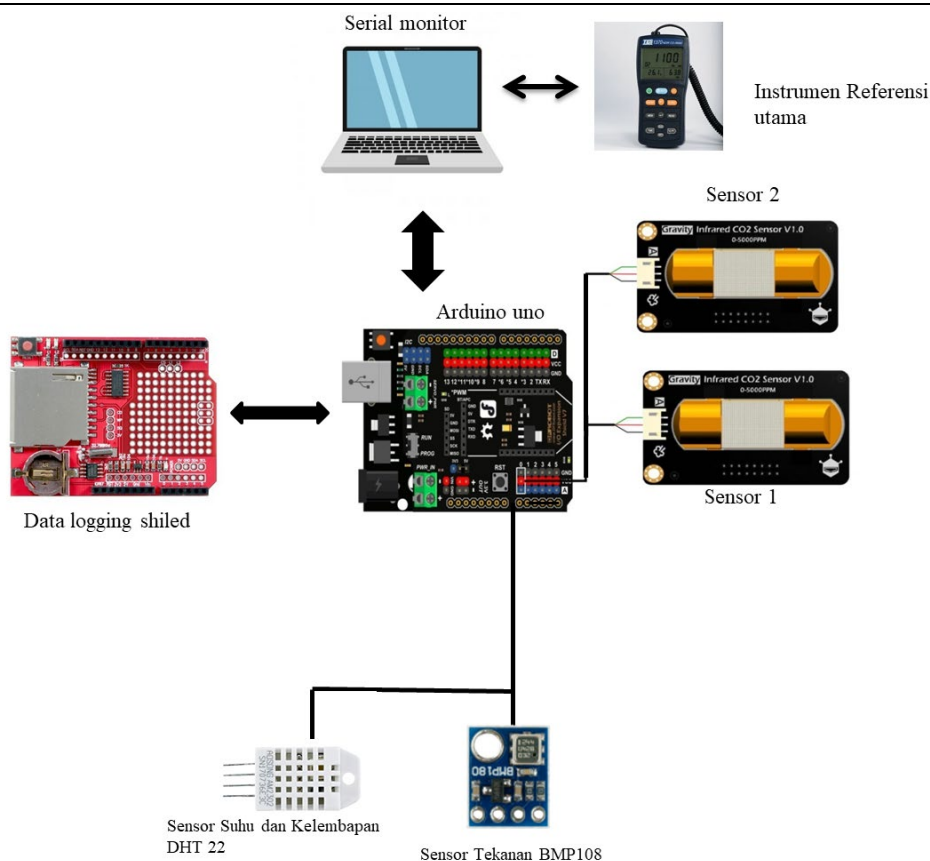


Fig. 3 Configuration of data acquisition in CO2 sensor calibration system

The standard of procedure for utilization of microsensors is consist of three parts:

- (1) development of the prototype: testing each part/module including the sensor's performance, testing the stand-alone system, testing data storage in the data logger, testing data transmission over Wi-Fi, GSM network, and/or LoRa, and testing data acquisition through the cloud server such as Thingspeak.
- (2) deployment of devices in the field, logging the problem and how to solve it, and
- (3) service and maintenance during monitoring the air quality.

For the data acquisition this year, we could not show the whole data due to the some circumstances.

※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。

見込まれる 成果物	We have gained some improvement through the program: (1) the gas source in the calibration system can be changed with another gas for other gas sensors under test, (2) SOP can be used to implement in the next project, i.e., identification of marine aerosols that caused the corrosion. (3) And also, we have another project using this calibration system, which is the radiation monitoring system (radon and air quality monitoring system using low-cost sensors).
※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。	

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	しゃ おたる	提出年月日	2022 年 5 月 16 日	
申請者氏名	夏 吾太			
所属・職名	青海民族大学経済経営学部 講師 (中国青海省)			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☐ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☐ 一般枠 ☒ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☐ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☒ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	チベット高原における生態牧畜業の普及拡大に向けた経済分析			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～2022 年 3 月 31 日			
センター 教員	西川 潮			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	夏 吾太 (シャ・オタル)	青海民族大学 経済経営学部	講師	研究総括・現地調査・統計分析
	分担者	田中 勝也	滋賀大学環境 総合研究セン ター	教授	研究指導助言
		西川 潮	金沢大学環日 本海域環境研 究センター	准教授	研究指導助言
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料			物質名	形態（形状）	試料数
	申請書に記載 した試料		なし		
	分析した試料		なし		
研究目的・ 期待される 成果	現在、チベット高原では「生態牧畜業（有機で持続可能な牧畜経営法）」の普及にむけた取り組みが進められている。この生態牧畜業は国の生態農業政策と比較しても先端的な試みであり、生態系保全に資するだけでなく、牧畜業の競争力強化、持続可能な牧畜業、地域活性化に資することも期待される。 そこで本研究では、生態牧畜業の普及のための条件を、青海省の遊牧民を対象としたアンケート調査で明らかにする。また、生態牧畜業の拡大が、遊牧民の所得、高原生物多様性、地域経済（地域活性化）に与える影響などについて、定量的な評価をおこなう。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	本研究では、青海省が独自に進めている生態牧畜業「自然と生物多様性を重視し、最新の科学と技術革新をふまえた牧畜業（Eco-friendly Animal Husbandry）」を対象に、実施ステークホルダーである果洛州、生態牧畜業協同組合、牧畜局との対話を重ねることで、生態牧畜業が現在抱えている課題を明らかにした。その上で、黄南州、果洛州、玉樹州などでの遊牧民約 600 人を対象としたアンケート調査を 2021 年 8 月に実施し、約 575 人より回答を得た（回答率 96%）。このアンケート調査は、生態牧畜業の認識を把握するとともに、ベスト・ワースト・スケーリング（BWS・case1）により、生態牧畜業に対して遊牧民が評価する属性を特定するものである。また、一般的牧畜業、生態牧畜業などの農法および農産物に対する価格を評価するため、有機飼料の割減比較と価格を（BWS・case3）により定量化することも目的としている。また、一般牧畜業から生態牧畜業に切り替える遊牧民を金銭的に支援するために、必要な交付単価を仮想評価法（CVM）により定量化することも目的としている。 現在は回収された調査票の整理済みのデータによる BWS 分析によれば、上記の三つの地域の遊牧民は生態牧畜業の取り組みによる、高い品質の農畜産物（食の安全性）の需要を重要視していることが統計的に示された。食の品質に対する生産者の関心は近年急速に高まっている。また、普通の農畜産物より生態農畜産物の価格が高いことから、生態牧畜業農産物の価格、ひいては同農法を通じた地域経済の活性化なども遊牧民が重要視していることが示された。その一方で、自然栽培農産物に関する生産者情報や、生態牧畜業に認定されるために必要な要件（有機飼料の基準など）の緩和は相対的に低い結果となった。 今後はこの BWS 分析内容を修正するとともに、生態牧畜業に対する消費者の認識やニーズなど、8 月に実施したアンケートをもとに検討を進める方針である。分析結果については、生態牧畜業・環境分野の国際誌への投稿を前提に作業を進めている。また、アンケート調査で多大なる協力を受けた地域の管理者および地域の一遊牧民に対しては、分析結果を取りまとめた成果を報告する。
※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。	
見込まれる 成果物	研究で実施したアンケート調査の結果をもとに、学術論文を農業・環境分野の国際学会で報告するとともに、関連分野の国際誌に投稿する方向で分析作業を進めている。
※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。	

form 3

Research Team		Name	Affiliation	Position	Role/Research Task
	Applicant	Pham Chau Thuy	University of Engineering and Technology, Vietnam National University	Lecturer	Samples collection, writing and revising manuscript
	Member(s)	Ning Tang	Kanazawa University	Professor	Analysis samples, Writing and Reviewing manuscript
		Akira Toriba	Nagasaki University	Professor	Review manuscript
		Kazuichi Hayakawa	Kanazawa University	Emeritus Professor	Review manuscript
※If there are any changes, please submit a newly revised application form to the K-INET office in consultation with K-INET staff.					
Assay sample(s)		Name of Sample	Form(Shape)	The number of sample	
	Applied sample	Ambient air samples	PM	28	
	Analyzed sample	PAHs			
Purpose of the Research/ Expected Results	This work was conducted to 1) investigate the differences of concentration and size distribution of atmospheric particle-bound PAHs between RS burning period and non-burning period in Hanoi, 2) investigate the differences of concentration and size distribution of atmospheric particle-bound PAHs at different distances which far and close to RS burning source in Hanoi, 3) determine emission sources of PAHs in sampling locations using diagnostic ratios of PAHs. The results of this study help to better understand the contribution of RSOB to atmospheric particle-bound PAHs and the characteristic of size distribution of particle-bound PAHs during RS burning period.				
※Submit the application form.					

Details of the project/ Results	This study found out three points 1) The difference of concentrations of particle-bound PAHs during RS burning and non-burning period in Hanoi, 2) Size distribution of PAHs mass in PM at near-RS burning site and far-RS burning site; 3) Size distribution of PAHs mass in PM during RS burning period and non-burning period and 4) Sources identification of PAHs emission by characteristic ratios. The results of this research showed that total particle-bound PAHs concentrations during RS burning period at Dong Anh and Quoc Oai (11.8 ± 5.3 and 11.0 ± 4.9 ng/m³, respectively) was higher than those during non-burning period and far-RS burning site (10.1 ± 5.3 and 7.1 ± 3.4 ng/m³, respectively). The mean concentration of BaA and BaP in PM_{0.1} and PM_{1-2.5} at QO_near-RS burning site was significant different from TM_far-RS burning site with p value <0.05. The fractions of total PAHs bound on ultrafine, fine, coarse particles during RS burning period in Dong Anh and Quoc Oai were 24.2%, 72.5%, 3.3% and 23%, 74.8%, 2.1%, respectively, whilst those during non-burning period were 31.6%, 65.6% and 2.8%, respectively. Size distribution of four- to six-ring PAHs were observed with maximum concentration in accumulation mode and total PAHs concentrations were concentrated highest in PM_{0.5-1.0}. The size distribution of 4-ring PAHs was 0.87 µm during non-RS burning period and it was shifted towards the larger particles with the peak at 1.5 µm during RS burning period. Similarly, the peak of total 4-ring PAHs showed at larger particles (1.34 µm) at the site near RS burning source as compared to that at the site far from RS burning source (1 µm). Size distribution of 5- and 6-ring PAHs was similar in all cases with a major peak at 0.8 µm. Diagnostic ratios of PAHs indicated that biomass burning were dominant sources of PAHs emission in rice cultivation areas, even during non-RS burning period. Among four diagnostic ratios, the values of BaA/(BaA+Chr) and BaP/BghiP ratios (0.31 ± 0.04 and 0.45 ± 0.06, respectively) were lowest at TM_far-RS burning site indicated that vehicular emissions was the major emission source in this site. This results suggested that biomass burning was important contribution of PAHs in suburban area of Hanoi. Overall, this study help to understand comprehensively on size distribution of particle-bound PAHs in the atmosphere with and with-out RSOB, near and far RS burning source.
Results	The results were drafted completely and plan to submit to Journal of Air Quality Atmospheric and Health Pham, C.T., , Nghiem, T.D., Le, HT., Pham, T.H.P., Sekiguchi, K., <u>Tang, N.</u>, Hayakawa, K., Toriba, A. <i>Size distribution of particle-bound Polycyclic aromatic hydrocarbons during Rice Straw burning period in Hanoi, Vietnam.</i>

※Write down the schedule of the published original papers, the publishment without original papers, oral presentation, bachelor thesis, thesis of master degree and doctoral thesis. Applicants must report the results to theK-INET office.

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	ふるさわ ゆきひろ		提出年月日	2022 年 5 月 6 日
申請者氏名	古澤 之裕			
所属・職名	富山県立大学 工学部医薬品工学科・准教授			
連絡先住所				
TEL			FAX	
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(新規) (重点共同研究のみ、複数年(2年)の申請が可能です。) ☐ 複数年(2年目) (2019年度に複数年で採択された課題については、こちらを選択ください。)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☐ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☒ 複数の研究分野に跨り推進する学際的研究			
研究課題	マイクロプラスチックの魚類生理に対する作用：腸内細菌によるプラスチックの分解			

研究実施 期間		2021年 4月 1 日～ 2022年 3 月 31日			
センター 教員		鈴木信雄			
研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	古澤之裕	富山県立大学	准教授	研究総括、解剖及び組織学的解析
	分担者	鈴木信雄	金沢大学	教授	ウロコを用いた解析
		田淵圭章	富山大学	教授	カルシトニンの分析
		本田匡人	金沢大学	助授	血液サンプリング
		服部淳彦	東京医科歯科 大学	教授	血液マーカー分析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	マイクロプラスチック	粒子	1	
	分析した試料				
研究目的・ 期待される 成果		（環日本海域との関連性がわかるように記載してください） 研究の意義 海洋汚染において、世界規模で問題になっているマイクロプラスチックの魚類生理に対する作用を解析する。<u>マイクロプラスチックは難分解性であり、海洋という低温の環境下では分解しないと信じられてきた。</u>しかし、マイクロプラスチックが低温下でも分解し、実際に海洋中にはスチレンオリゴマー（特に、スチレントリマー）が存在している（Kwon et al., Sci Total Environ, 2014）。東京湾でも、スチレントリマーが検出されており（Amamiya et al., Sci Total Environ, 2019）、スチレンオリゴマーが海洋生物に影響を与えている可能性が高い。そこで本研究では、<u>マイクロプラスチックが魚類の腸内細菌による分解の可能性を解析する。</u>腸内細菌の専門家の古澤が主体となり、魚類生理学の鈴木・服部、分析化学の本田、分子生物学の田淵により、マイクロプラスチックの魚類への影響を詳細に調べる。			

	目的 本研究では、海産魚の腸内細菌に注目して、<u>腸内細菌によるマイクロプラスチックの分解能</u>を調べる。 期待される成果 腸内細菌の専門家の<u>古澤が研究総括</u>を行う。古澤は、Nature 及び Nature Immunol. に論文を掲載された実績を有する。さらに鈴木は、<u>アメフラシの腸内より、フェノールを分解する細菌を単離した実績</u>があり (Int. Biodeterioration Biodegradation, 59: 252-254, 2007)、<u>農薬の解析で実績</u> (Honda et al., Chemosphere, 2018; Honda and Kannan, Environ Pollut., 2018) のある本田が、マイクロプラスチックの分解物であるスチロールの分析を担当する。田淵は、<u>遺伝子のネットワーク解析のエキスパート</u>であり、<u>服部は、魚類・鳥類・哺乳類など動物生理学の専門家</u>である。この研究チームで研究を実施するので、短期間で成果が上がる可能性が高い。 ※申請書に記載した事項を要約して下さい。
利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	昨年度は、海産魚の腸内からスチレンオリゴマーを分解する海洋細菌のスクリーニングを行った。本年度は、スクリーニングした菌の同定を行った。 アジから得られた菌体を以下のように同定した。 形態観察及び生理的性状試験、16S rRNA 領域の DNA(上流側約 500 bp)の塩基配列の解析及び相同性検索の結果、海洋から単離したスチレントリマー分解菌は 98.7%以上の相同性が認められた <i>Vibrio harveyi</i> に近縁の新種である可能性が示された。 以下に、単離した菌のキャラクタリゼーションを示す。形態は桿菌～短桿菌であり、運動性が見られた。グラム染色性と芽胞の試験項目は陰性だった。また、オキシダーゼ活性とカタラーゼ活性の試験項目は陽性であった。OF(Oxidation、Fermentation)試験では発酵を示した。酸素に対する態度から通性嫌気性であることが明らかとなった。特徴的集落色素は生成されなかった。V-P(Voges-Proskauer)反応は見られず、8%NaCl 存在下での生育も見られなかった。 アルギニンヒドロラーゼでは陰性、リジンデカルボキシラーゼ及びオルニチンデカルボキシラーゼでは陽性であった。また、酸の生成試験では L-アラビノースが陰性、アミグダリン及びスクロースが陽性であった。ウレアーゼは陰性であった。 以上の内容を環境毒性学会で発表した。さらに共同研究の一環として、海洋生物の熱応答に関連した論文発表も行った。 ※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。
見込まれる 成果物	河合 海, 本田匡人, 池内俊貴, 木谷洋一郎, 関口俊男, 松原 創, 道祖土勝彦, 楠井隆史, <u>古澤之裕</u>, 高橋ゆかり, 遠藤雅人, 田淵圭章, 鈴木信雄: プラスチック由来の有害化学物質 (スチレンオリゴマー) の魚類の骨代謝に対する影響評価とスチレンオリゴマーの海洋細菌による分解. 令和 3 年度日本環境毒性学会オンライン研究発表会, 福岡県 (2021, 8/26-27) web 開催 Hatano, K.*, Kawamura, R., Watabe, Y., Ogiso, S., Nagami, A., Matsubara, H., Urata, M., Matsumoto, K., Yachiguchi, K., Shimizu, N., Hirayama, J., <u>Furusawa, Y.</u>, Tabuchi, Y., Srivastav, A.K. and Suzuki, N.: Analysis of the thermal responses in Japanese pearl oysters, <i>Pinctada fucata martensii</i>. Int. J. Zool. Inv., 8: 371-378 (2022) ※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	とよた けんじ	提出年月日	2022 年 4 月 4 日	
申請者氏名	豊田 賢治			
所属・職名	新潟大学 佐渡自然共生科学センター臨海実験所・特任助教			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☐ 新規 ☒ 継続
研究分野	☐ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☒ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	沿岸性甲殻類の幼生変態における昆虫成長制御剤の毒性影響評価			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 31 日			
センター 教員	鈴木 信雄 教授			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	豊田 賢治	新潟大学	特任助教	飼育実験・薬剤暴露実験
	分担者	大平 剛	神奈川大学	教授	マイクロプレートリーダー
		鈴木 信雄	金沢大学	教授	飼育実験・薬剤暴露実験
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	20-hydroxyecdysone	液体 溶媒：100%EtOH	68	
	分析した試料	20-hydroxyecdysone Methyl farnesoate Fenoxycarb	液体	0	
研究目的・ 期待される 成果	生物を用いた化学物質の毒性影響評価は、行動異常や生死の有無を調べる急性毒性や繁殖や多世代影響を調べる慢性毒性を調べるのが一般的である。農薬の一種である昆虫成長制御剤に含まれる生理活性物質が環境ホルモン物質として作用し、ミジンコなどの標的害虫以外の水生生物に対して生存率の現象、繁殖率の低下、性比の攪乱など深刻な環境毒性を示すことが報告されている。しかし、田畑で散布された薬剤が河川を經由し沿岸生物に与える影響については十分な議論がされていない。本研究では、里山を代表する甲殻類であるベンケイガニ科のアカテガニ、クロベンケイガニ、ベンケイガニの3種を対象に、昆虫成長制御剤である幼若ホルモンと脱皮ホルモンの曝露試験から昆虫成長制御剤の毒性影響を評価することを目的とした。 本研究で対象とするベンケイガニ科3種は臨海実験施設が面する九十九湾に生息することからも、九十九湾の畑で使用している農薬の海洋生物への影響評価、アカテガニの個体数の将来予測にも貢献できる可能性が高い。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	新型コロナウイルス感染症による県外への移動自粛と申請者の豊田が夏季に大学業務が集中することから、実験に供したベンケイガニ科3種は全て新潟県佐渡市で採集した。また、当初の予定ではELISA法によってアカテガニ幼生の内在性20E濃度の変化を定量予定であったが、幼生が確保できる6-9月に出張ができなかったため本年度は断念した。 本年度は2020年度に立ち上げた12 well plateを用いたベンケイガニ科3種のメガロパ幼生までの飼育実験系を用いて、脱皮ホルモン20Eに加え、同じく昆虫成長制御剤の構成成分の一種である幼若ホルモンのmethyl farnesoate (MF:甲殻類の内在性幼若ホルモン)とそのアゴニストであるfenoxycarb (fx)を供試した。昨年度までにアカテガニ幼生を用いてこれら3物質の急性毒性試験を実施していたため、本年度は同様の試験をクロベンケイガニとベンケイガニを用いた実施した。急性毒性試験として、無給餌下の孵化後幼生(ゾエア1期)を用いて24時間と48時間目の生存率を調べた。さらに本年度は急性毒性試験の結果をもとに、ベンケイガニとクロベンケイガニは種の孵化直後のゾエア幼生からメガロパ幼生までを用いて慢性毒性試験を実施した。その結果、各物質の曝露によって脱皮タイミングが攪乱されること、ゾエアからメガロパへの変態が著しく阻害されることを見出した。これらの結果は申請者が以前に実施したクルマエビ幼生と同様の表現型であったことから、昆虫成長制御剤に含まれる幼若ホルモンや脱皮ホルモンの生理活性物質は十脚目の幼生発生や変態時に毒性を示すことを強く示唆している。また、十脚目甲殻類では幼若ホルモンの生理作用は未知な部分が多いが、昆虫類同様に幼生変態に関与していることが示唆された。以上の成果は多くの水産重要種を含む十脚目甲殻類において重要な知見であり、今後ケガニやズワイガニなどの水産重要種の幼生発生過程の解明に大きく貢献することが期待される。
※1,000字以上で具体的に記述して下さい。	
見込まれる 成果物	投稿中の原著論文 (under revision) Toyota et al., Dietary effects on larval survival and development of three Sesarmidae crabs. 投稿準備中の論文: Toyota et al., Toxic effects of methyl farnesoate and 20-hydroxyecdysone on larval mortality and metamorphosis in three Sesarmidae crabs.
※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。	

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	たぶち よしあき	提出年月日	2022 年 4 月 7 日	
申請者氏名	田淵 圭章			
所属・職名	富山大学 学術研究部薬学・和漢系・教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(新規) (重点共同研究のみ、複数年(2年)の申請が可能です。) ☐ 複数年(2年目) (2019年度に複数年で採択された課題については、こちらを選択ください。)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☐ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☒ 複数の研究分野に跨り推進する学際的研究			
研究課題	水酸化多環芳香族炭化水素類の毒性機構の解明：特に骨代謝に及ぼす影響評価			

研究実施 期間	2021年 4月 1 日～ 2022年 3 月 31日				
センター 教員	木谷洋一郎				
研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	田渕圭章	富山大学	教授	研究総括
	分担者	木谷洋一郎	金沢大学	助教	キンギョの実験
		鈴木信雄	金沢大学	教授	ゼブラフィッシュの実験
		関口俊男	金沢大学	准教授	遺伝子発現解析
		服部淳彦	東京医科歯科 大学	教授	形態学的解析
		古澤之裕	富山県立大学	准教授	遺伝子ネットワーク解析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	Benzo[c]phenanthrene	粉末	1	
	分析した試料	Benzo[c]phenanthrene	粉末	1	
研究目的・ 期待される 成果	（環日本海域との関連性がわかるように記載してください） 研究の意義 越境汚染物質である多環芳香族炭化水素類の骨代謝に対する作用（特に遺伝子発現解析）を調べ、環境汚染物質のリスク評価につなげる。<u>生物学、分子生物学に加えて毒性学の分野を融合した研究</u>により、水酸化体の毒性機構の解明を目指す。 目的 越境汚染物質である多環芳香族炭化水素類は、大気のみならず海水中にも含まれる。さらに、<u>富山湾に生息するミシマオコゼの胆汁中に多環芳香族炭化水素類が検出されている（Suzuki et al., 2018）</u>。本研究では、多環芳香族炭化水素類の魚類の骨代謝に対する毒性作用を解析する。 特色				

	多環芳香族炭化水素類の水酸化体の毒性に注目しているのは、世界で金沢大学を中心とする我々のグループのみであり、非常に独創性の高い研究である。 期待される成果 既に、鈴木教授を中心とする金沢大学臨海実験所の研究グループとの共同研究の成果として、<u>Benz[a]anthracene がキンギョのカルシウム代謝に影響を及ぼしていることを報告している (Suzuki et al., 2017)</u>。本研究では、Benzo[c]phenanthrene (BcP) とその水酸化体 (3-OHBcP) のキンギョ、メダカとゼブラフィッシュに対する影響を解析する。予備的な実験により、<u>3-OHBcP の毒性が、親化合物よりも約 1,900 倍強いことを確認済</u>であり、これに関するさらなる成果の取得が見込める。 ※申請書に記載した事項を要約して下さい。
利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	キンギョを用いて以下の実験を行った。 【実験方法】 3 種類の魚類、即ちメダカ (<i>Oryzias latipes</i>)、キンギョ (<i>Carassius auratus</i>)、ゼブラフィッシュ (<i>Danio rerio</i>) を材料として用いて、以下の 4 種類の実験を行った。 実験 1 : Chen et al. (2017) の手法を用いて、メダカの受精卵に BcP と 3-OHBcP をナノインジェクションにより投与し、BcP と 3-OHBcP の毒性を比較した。 実験 2 : キンギョのウロコを麻酔下で抜き、その後、腹腔内に BcP (0.1 ng/g of body weight) を投与して、ウロコの再生過程における BcP の影響を評価した。さらに胆汁中の 3-OHBcP を GC-MS/MS で解析した。 実験 3 : キンギョのウロコの <i>in vitro</i> の器官培養系 (Suzuki and Hattori, 2002) を用いて、骨芽細胞と破骨細胞に対する BcP と 3-OHBcP の影響を調べた。 実験 4 : ゼブラフィッシュにおいて、ウロコの骨芽細胞と破骨細胞の遺伝子発現に対する BcP と 3-OHBcP の影響を GeneChip 法を用いて網羅的に評価した。さらにキンギョの再生ウロコの骨芽細胞において、TUNEL 法 (Suzuki et al., 2016) を用いて評価化合物の細胞死に対する影響を評価した。 【結果と考察】 実験 1 において BcP と 3-OHBcP をメダカの受精卵に投与して毒性を比較した結果、BcP と 3-OHBcP の LC₅₀ は各々 5.7 nM と 0.003 nM であり、3-OHBcPの方が BcP よりも 1900 倍毒性が強いことがわかった。さらに 3-OHBcP (0.001 nM) を投与したメダカの卵を飼育した結果、3-OHBcP を投与したメダカの背骨に骨形成異常が認められることも判明した。そこで次に、骨に対する 3-OHBcP の作用を調べるために実験 2 において、キンギョのウロコの再生 (骨再生) に対する影響を評価した。BcP を投与したキンギョの胆汁中に 3-OHBcP が検出され、ウロコの再生率が有意に低下した。 また実験 3 において、BcP と 3-OHBcP の骨芽細胞と破骨細胞に対する影響を調べた結果、3-OHBcP は骨芽細胞にのみ作用して、骨芽細胞の活性を低下させた。一方、BcP は骨芽細胞には影響を与えなかった。破骨細胞においては、BcP と 3-OHBcP は共に破骨細胞の活性に有意な変化を及ぼさなかった。次に、実験 4 において、ゼブラフィッシュのウロコを用いて化合物の遺伝子発現に対する作用を調べた結果、3-OHBcP により細胞死誘導に関与する幾つかの遺伝子発現が誘導されることが示された。また、キンギョの再生ウロコの骨芽細胞において、実際に細胞死が誘導されていることを確認した。 以上より、BcP は体内において P4501A1 により 3-OHBcP などの水酸化体に薬物代謝されることを明らかにした。3-OHBcP の毒性は BcP よりも強く、骨芽細胞に細胞死を誘導して、骨奇形を引き起こしていることを証明した。以上の結果は、Ecotoxicol. Environ. Saf.に論文発表した。 ※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。

見込まれる 成果物	Suzuki, N., Honda, M., Sato, M., Yoshitake, S., Kawabe, K., Tabuchi, Y., Omote, T., Sekiguchi, T., Furusawa, Y., Toriba, A., Tang, N., Shimasaki, Y., Nagato, E.G., Zhang, L., Srivastav, A.K., Amornsakun, T., Kitani, Y., Matsubara, H., Yazawa, T., Hirayama, J., Hattori, A., Oshima, Y. and Hayakawa, K.: Hydroxylated benzo[<i>c</i>]phenanthrene metabolites cause osteoblast apoptosis and skeletal abnormalities in fish. <i>Ecotoxicol. Environ. Saf.</i>, <u>234</u>: 113401 (2022)
※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。	

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	はっとり あつひこ	提出年月日	2022 年 4 月 14 日	
申請者氏名	服部 淳彦			
所属・職名	東京医科歯科大学 教養部・教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(新規) (重点共同研究のみ、複数年(2年)の申請が可能です。) ☐ 複数年(2年目) (2019年度に複数年で採択された課題については、こちらを選択ください。)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☐ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☒ 複数の研究分野に跨り推進する学際的研究			
研究課題	多環芳香族炭化水素類の肝臓に対する毒性機構の解明			

研究実施 期間	2021年 4月 1 日～ 2022年 3 月 31日				
センター 教員	鈴木信雄				
研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	服部淳彦	東京医科歯科 大学	研究総括	研究総括、解剖及び組織学的解析
	分担者	鈴木信雄	金沢大学	メジナの 実験・サン プリング	ウロコを用いた解析
		関口俊男	金沢大学	メジナの 血液分析	カルシトニンの分析
		木谷洋一郎	金沢大学	形態学的 解析	血液サンプリング
		田渕圭章	富山大学	遺伝子解 析	血液マーカー分析
		古澤之裕	富山県立大学	ネットワ ーク解析	遺伝子発現解析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	Benz[a]anthracene	粉末	1	
	分析した試料	Benz[a]anthracene	粉末	1	
研究目的・ 期待される 成果	（環日本海域との関連性がわかるように記載してください） 研究の意義 越境汚染物質である多環芳香族炭化水素類の魚に対する作用（特に肝臓に対する作用）を調べ、環境汚染物質のリスク評価につなげる。<u>生物学、分子生物学に加えて毒性学の分野を融合した研究</u>により、肝臓に対する毒性機構の解明を目指す。 目的 越境汚染物質である多環芳香族炭化水素類は、大気のみならず海水中にも含まれる。さらに、<u>富山湾に生息するミシマオコゼの胆汁中に多環芳香族炭化水素類が検出されている（Suzuki et al., 2018 業績参照）</u>。本研究では、多環芳香族炭化水素類の魚類の肝臓に対する毒性作用を様々な学問分野の側面から解析する。				

	特色 多環芳香族炭化水素類の水酸化体の毒性に注目しているのは、世界で金沢大学を中心とする我々のグループのみであり、非常に独創性の高い研究である。 期待される成果 既に、鈴木教授を中心とする金沢大学臨海実験所の研究グループとの共同研究の成果として、Benz[<i>a</i>]anthracene (BaA) がキンギョのカルシウム代謝に影響を及ぼしていることを報告している (Suzuki et al., 2017)。さらに本年度、メジナに対する BaA の作用を調べて、論文投稿中である。本研究では、BaA のメジナの肝臓に対する作用を RNA-seq により網羅的に解析するとともに、血液成分の組成についても解析する。
利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	※申請書に記載した事項を要約して下さい。 実験材料 本研究ではメジナ (<i>Girella punctata</i>) (n = 24, 54.5±3.5 g) を用いた。臨海実験施設の周辺で釣りにより捕獲されたメジナは、約 2 週間順応させた後、実験に使用した。なお、金沢大学の動物実験の指針に従って、メジナの実験を実施した。 実験方法 メジナを low dose (1 ng/g of body weight, n = 8) 群、high dose (10 ng/g body weight, n = 8) 群及び対照群(n = 8)に分けて実験した。BaA の注射は 4 回行った (1、3、6、および 9 日目)。これらの魚は、少量の天然海水を加えながら、12 時間の明期と 12 時間の暗期のサイクルの下で 26℃ で 10 日間、それぞれの処理ごとに 1 つの水槽で飼育した。10 日後、これらの魚を 0.04% の 2-フェノキシエタノールで麻酔し、麻酔をかけた魚からの血液サンプルは、ヘパリン処理した注射器を使用して尾部血管から採取した。採取した血液を 1.5mL チューブに入れ、その後 15,000rpm で 3 分間遠心分離した。分離した血漿は直ちに凍結し、使用するまで -80℃ で保存した。血液中の肝臓のマーカーは、オリエンタル酵母の生化学的分析により依頼分析を行った。 実験結果 メジナの血液中の胆汁酸、総ビリルビン、直接ビリルビン及び鉄濃度は、BaA を投与すると、対照群と比較して有意に低下していることが判明した。BaA は、肝臓の細胞に毒性を示し、肝臓のマーカーが低下した可能性が高い。現在、肝臓の組織切片を作成して、組織学的な観点から調べている。これらの結果を論文にまとめて、Int. J. Environ. Res. Public Health に投稿予定。 さらに共同研究の一環として、カドミウムの毒性に関する論文を出版した。 ※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。
見込まれる 成果物	Suzuki, N., Kawago, U, Honda, M., Srivastav, A.K., Amornsakun, T., Matsumoto, K., Hirayama, J., Matsubara, H., Shimizu, N., Sekiguchi, T., Sasayama, Y., Tabuchi, Y., Hattori, A., Shimasaki, Y. and Oshima, Y.: <i>In vivo</i> suppression of osteoclastic and osteoblastic activities of goldfish scales in water containing cadmium. J. Fac. Agr., Kyushu Univ., 66: 199–203 (2021) ※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	かつみ なおや	提出年月日	2022 年 3 月 23 日	
申請者氏名	勝見 尚也			
所属・職名	石川県立大学・講師			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☐ 新規 ☒ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	農用地におけるマイクロプラスチックの分析方法の確立と動態把握			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 31 日			
センター 教員	長尾誠也			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	勝見尚也	石川県立大学	講師	研究代表
	分担者	長尾誠也	金沢大学	教授	分析・解析
		松木篤	金沢大学	准教授	分析・解析
		落合伸也	金沢大学	助教	分析・解析
		松中哲也	金沢大学	助教	分析・解析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	土壌	粉体	20	
		河川懸濁物質	粉末	20	
	プラスチック	粉末	50		
	分析した試料	プラスチック	粉末	10	
研究目的・ 期待される 成果	研究目的 マイクロプラスチック(5mm 以下のプラスチックによる海洋汚染は新たに生じた環境問題として注視されている。これらのプラスチックは海洋生物に誤飲されることで、消化管の閉塞や、吸着していた有害物質や可塑剤の体内への移行などが懸念されている。海洋マイクロプラスチックは陸域に発生源があるため、汚染拡大を防ぐためには陸域発生源からのフラックスを明らかにし、各排出源に対して対策を講じることが効果的である。本研究ではこれまで発生源として見逃されてきた農耕地におけるマイクロプラスチックの動態に着目し、(1) 水田からのマイクロプラスチックの流出、(2) 水田土壌へのマイクロプラスチックの蓄積、(3) 海洋への移行実態について明らかにすることを目的とした。 期待される成果 本研究は農耕地におけるマイクロプラスチックの実態を明らかとすることを目的に、(1) 顕微レーザーラマンを用いた土壌中マイクロプラスチックの定量方法の確立と、(2) モニタリングをベースとした農用地におけるマイクロプラスチックの動態解析を行う。これらの課題を遂行することで、マイクロプラスチックのシンクおよびソースとしての農耕地の機能性評価、そして、陸域から海域への動態解明に一翼を担うことが期待される。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

1. 七か用水におけるマイクロプラスチックの実態把握

被覆肥料に由来するマイクロプラスチック（被膜殻）の陸域から海域への輸送量を評価するため、七か用水の河口にてモニタリング調査を実施した。七か用水が加越海岸に流れ込んでいる地点は全部で8箇所あり、その中でも大川（4-5支線）が海洋へ流れ込んでいる箇所を試料採取地点とした（36° 32'01.9"N 136° 31'34.3"E）。この地点は試料採取に使用するプランクトンネットを流心に吊るすことができる橋があることに加え、七か用水土地改良区が大川の流量観測を行っている。さらに、この地点より先に農業用水の合流がないため、大川流域からの負荷を直接的に評価することができる。このような経緯を踏まえこの地点を本調査の対象地とした。

大川における被膜殻濃度の日変動を明らかにするため、2021年4月24日9時から26日18時にかけて30分毎に試料を採取した（集中観測）。試料の採取にはデジタルろ水計（General Oceanic製）をセットしたプランクトンネット（離合社製簡易プランクトンネット、口径20cm、目合1mm）を使用した。橋の上から河川の流心にプランクトンネットを吊るし、5分後回収した。さらに、農業用水における被膜殻濃度の季節変動を明らかにするため、4月16日から9月29日まで定期的に試料を採取した（定期観測）。4月16日から6月9日の期間は3日に1度、それ以降は2週間に1度の頻度で試料を採取した。定期観測は採取日の11時～12時の間に、5分間の採取を連続して5回実施した。なお、9月29日以降は河川の流量が極端に減少したため試料採取ができなかった。試料採取に用いたプランクトンネットとデジタル濾水計は集中観測と同じものを使用した。

採取した試料は実験室に持ち帰り、60℃で2日間乾燥させた。乾燥後、試料全体の重量を測定し、それらに含まれる被膜殻の数と重量を測定した。大川の流量は採取地点の水位からマニング式を用いて算出した。なお、水位データは手取川七か用水土地改良区から提供を受けた。

定期観測から、大川における被膜殻濃度は4月23日から5月14日の間に高濃度で推移することが明らかとなった（中央値 49.2 mg/m³）。しかし、5月25日以降、濃度が急速に低下し、6月以降はほとんど検出されなかった。したがって、本研究サイトにおいて被膜殻の海域への移行は4月中旬から5月下旬の約1カ月半に集中していることとなる。この期間は水田からの流出時期とほぼ一致しており、水田から流出した被膜殻が比較的短時間で海域まで到達していることが示唆された。なお、調査期間を通じて大川の流量と被膜殻の濃度の間には相関関係はなかった。

集中観測の結果、被膜殻の濃度は時間変動が大きく（最大値：783mg/m³、最小値：7 mg/m³）、その差は110倍に達することが明らかとなった。定期観測と同様、被膜殻濃度と流量の間には相関がなかった。日中（6:00～18:00）と夜間（18:00～6:00）の濃度を比較したところ、日中の濃度の方が高かった（ $p<0.01$ ）。被膜殻は代かきや強制落水など人為的な作業により流出するため、日中の方が高濃度になったと考えられる。ただし、夜間においても高濃度となる時間帯があることから、（1）夜間においても水田から流出している、あるいは（2）手取川扇状地の土流から時間をかけて流下している可能性も考えられた。

2. 水田土壌におけるマイクロプラスチックの鉛直分布

マイクロプラスチックは海洋だけではなく河川、土壌や大気からも検出されており、我々が飲料水として利用している地下水においても汚染が確認されている。地下水へのマイクロプラスチックの流入経路は諸説あるが、現時点では地上で発生したマイクロプラスチックが土壌層を浸透して地下水に移行する経路が注視されている。しかし、その根拠の一つとなる土壌中マイクロプラスチックの鉛直分布を示した報告は無く、実際にマイクロプラスチックが土壌層を浸透できるのか定かではない。そこで本研究は、深度別に土壌中マイクロプラスチックを分析することで、その可能性を探ることを目的とした。

石川県立大学付属実験農場 7 号水田において土壌断面を作成し、0～50 cm の間を 5 cm 毎に 3 点採取した。採取した土壌は実験室に持ち帰り、凍結乾燥した。土壌中のマイクロプラスチックは昨年度までに確立した手法を用いて定性・定量分析した。

深度別に検出されたマイクロプラスチックの個数濃度を比較すると、0～5 cm の表層部分で最も高い値を示した。耕盤層（15～20 cm 付近）より下では、表層付近と比較して個数濃度が大きく減少した。しかし、深さ 50 cm までも、マイクロプラスチックは一定数確認されたことから、マイクロプラスチックが土壌断面内を鉛直移動することが推察された。マイクロプラスチックの材質の種類を深度別に比較すると 0～5 cm が最も多様であった。本圃場はポリエチレン製の被覆肥料を 15 年以上連用しているものの、それらに由来する二次マイクロプラスチックは少なく、全層を通じてポリプロピレンが多く検出された。

3. マイクロプラスチックに吸着したクロムの化学形態

生物がマイクロプラスチックを誤食することにより、それらに吸着した重金属などの有害物質が生体内へ移行・蓄積することが懸念されている。しかし、マイクロプラスチックへの重金属の吸着メカニズムや脱着特性が明らかになっていないため、それらがどの程度重金属のキャリアーとして機能するか評価できていない。そこで、本研究ではマイクロプラスチックへのクロムの吸着メカニズムおよび脱着特性の解明を目的とした。

マイクロプラスチックのサンプルとしてポリエチレン製、ポリウレタン製の被覆肥料を使用した。未使用の被覆肥料から肥料成分を溶出させたものを新規試料、海岸にてサンプリングしたのち洗浄したものを環境試料とした。マイクロプラスチックへのクロムの吸着特性を明らかにするため、バッチ吸着試験を行った。実験によって得られた吸着量と平衡濃度をラングミュア式にフィッティングさせ、各マイクロプラスチックの最大吸着量を算出した。マイクロプラスチックに吸着したクロムの化学形態を明らかにするため、あいちシンクロトロン光センターにて X 線吸収微細構造解析（XAFS）を実施した。

クロムの最大吸着量はポリエチレン新規試料が 0.06 mg/g、ポリエチレン環境試料が 0.12 mg/g、ポリウレタン新規試料が 0.35 mg/g、ポリエチレン環境試料が 0.16 mg/g だった。これらの吸着量は pH の上昇に伴い増加したことから、クロムはマイクロプラスチック表面に生じた変異電荷に吸着したことが示唆された。XAFS によるクロムの化学形態解析の結果、マイクロプラスチックに吸着したクロムはすべて三価クロムの状態で存在した。さらに、いずれのスペクトルも酢酸クロムのものとほぼ一致した。以上のことから、プラスチック表面で Cr-O-C 結合が形成されていることが明らかになった。

※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。

見込まれる
成果物

原著論文

- 1) Katsumi, N., Kusube, T., Nagao, S., Okochi, H. (2021) The input-output balance of microplastics derived from coated fertilizer in paddy fields and the timing of their discharge during the irrigation season. Chemosphere 279, 130574.

学会発表

- 1) 川崎美佐子、勝見尚也、楠部孝誠、長尾誠也、大河内博：日本土壌肥料学会（2021）「被覆肥料に由来するマイクロカプセルの環境動態」
- 2) 勝見尚也、二上栞、大河内博：日本土壌肥料学会（2021）「土壌マイクロプラスチックの分析手法の開発」
- 3) 勝見尚也、二上栞、大河内博：第 29 回環境化学討論会「土壌中マイクロプラスチックの分析手法の開発」
- 4) 勝見尚也、楠部孝誠、長尾誠也、大河内博：第 29 回環境化学討論会（2021）「陸域における被覆肥料に由来するマイクロプラスチックの動態解明」

講演

- 1) 公開セミナー「プラスチックの未来を考える会プレセミナー」（主催：一般社団法人 JAIST 支援機構 共催：国立大学法人北陸先端科学技術大学院大学エクセレントコア推進本部、2022 年 3 月 18 日、オンライン）にて講演
- 2) 肥料由来のマイクロプラスチックに関する研修会（主催：福井県、2022 年 3 月 8 日、オンライン）にて講演
- 3) おおさかプラスチック対策推進プラットフォーム流出対策分科会（主催：大阪府、2022 年 1 月 26 日、オンライン）にて講演
- 4) 日本土壌肥料学会中部支部特別講演会「持続可能な食糧生産における土壌肥料の新展開」（2021 年 12 月 2 日、じゅうろくプラザ）にて講演
- 5) 応用生態工学会金沢 WEB 研修会「海辺のグリーンリカバリーを考える」（主催：応用生態工学会、2021 年 11 月 17 日、オンライン）にて講演
- 6) 金沢大学市民講演会「豊かな海を守るためには?? -海洋における地球環境問題と SDGs への取り組み／持続可能な社会環境構築を目指して-」（主催：金沢大学、2021 年 10 月 23 日、金沢大学サテライトプラザ）にて講演
- 7) 企画講演会「データ農業と SDGs」（主催：関西農業食料工学会 2021 年 9 月 30 日、オンライン）にて講演
- 8) プラスチックを使用した被覆肥料の被膜殻の流出防止に向けた勉強会（主催：農林水産省 2021 年 7 月 26 日、オンライン）にて講演

卒業論文

- 1) 川崎美佐子 マイクロプラスチックに吸着したクロムの化学形態とその脱着特性 2021 年度石川県立大学卒業論文
- 2) 吉田夏子 水田土壌におけるマイクロプラスチックの鉛直分布 2021 年度石川県立大学卒業論文

受賞

2022 年度 日本土壌肥料学会北海道大会 若手優秀発表賞受賞

※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	ひらやま じゅん	提出年月日	令和4年 4月10日	
申請者氏名	平 山 順			
所属・職名	公立小松大学保健医療学部 臨床工学科・教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☐ 新規 ☒ 継続
研究分野	☐ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☒ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	大気汚染物質、多環芳香族炭化水素類が体内時計に与える影響の解明			
研究実施期間	2021年4月1日 ～ 2022年3月31日			
センター 教員	鈴木 信雄 教授			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・学部 生は利用時の年 次	分担内容
	申請者	平山 順	公立小松大学 保健医療学部 臨床工学科	教授	研究の総括および実施
	分担者	鈴木 信雄	金沢大学 環日 本海域環境研 究 セ ン タ ー 臨海実験施設	教授	組織切片の解析
		服部 淳彦	東京医科歯科 大学 教養部生物学 教室	教授	形態学的解析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	ゼブラフィッシュの 組織切片	顕微鏡観察用 スライド試料	15 枚	
	分析した試料	ゼブラフィッシュの 組織切片	顕微鏡観察用 スライド試料	15 枚	
研究目的・ 期待される 成果	Benz[α]anthracene (BaA) といった多環芳香族炭化水素類は、環日本海域の主要な大気汚染物質の一つである。急性毒性や発癌性を有することが報告されている一方で、その生体への影響に関しては未だ不明な点が多く存在する。 体内時計は多様な生理機能に約 24 時間の周期変動を作り出す装置である。「光を利用し自然界の昼夜の変化に対し体内環境を最適化する」という重要な役割を担っている。体内時計は、生物個体の細胞に内在する遺伝子発現のネガティブフィードバックループ（細胞時計）が基本単位であるが、その維持には細胞時計の日周性が適切に制御されることが必須である。申請者は、この日周性形成における、1) リン酸化酵素に依存した細胞内シグナル経路および 2) 翻訳後修飾を介した細胞時計制御因子の機能調節の役割を報告してきた。 本研究は、BaA の体内時計に対する影響を解明することを目的に行った。また本研究に期待される成果は、体内時計障害の誘発という多環芳香族炭化水素類の新規の生体への影響の同定およびその分子機構の解明である。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究実施内容・得られた成果	BaA の細胞時計の日周期性に与える影響の解析 脊椎動物の細胞時計の実体は CLOCK、BMAL、CRY、および PER の時計蛋白質により構成されるフィードバックループである。CLOCK:BMAL 二量体は <i>Cry</i> と <i>Per</i> 遺伝子の転写を活性化し、CRY と PER はこの二量体の転写能を抑制する。この転写の活性化と抑制は、約 24 時間の周期で繰り返される。その結果 CLOCK:BMAL 二量体が調節する時計標的遺伝子の発現に概日リズムが形成される。細胞時計が、個体レベルの体内時計を適切に制御するためには、細胞時計が光情報を利用して、組織内で同じ時刻に同調することが必須である。 これまでの研究では、細胞時計を光同調させる時計分子 (zCRY1a と zPER2) を見出している。特に、zCRY1a と zPER2 の遺伝子発現は光刺激により誘導されるがこれらの遺伝子発現の光誘導は、細胞時計の光同調に必須の過程である。本研究では、BaA の細胞時計の光同調に与える影響を検証するために、BaA 処理したゼブラフィッシュ稚魚における zCRY1a と zPER2 の遺伝子発現の光誘導を Real-Time PCR と <i>in situ</i> ハイブリダイゼーション法により解析し、BaA 処理を行っていない稚魚における発現パターンと比較した。その結果、BaA 処理により zCRY1a と zPER2 の遺伝子発現の光誘導が変化することを示唆する結果を得た。 BaA の細胞時計の光同調に与える影響をリアルタイムで解析する系の構築 体内時計の制御遺伝子の光依存的な発現パターンを <i>in situ</i> ハイブリダイゼーション法や Real time PCR などにより解析する場合、0.5-1 時間ごとに 2-3 日間サンプリングを行い、実験試料を調整する。そのため、時間解像度には限界があり、BaA により細胞時計の日周期性の変化の検出が安定しないことが懸念された。この背景より、本研究では、より時間解像度が高い細胞時計の日周期性の評価系を次の通り準備した。ゼブラフィッシュ培養細胞の細胞時計を生物発光レポーターを用いて可視化する系を構築した。このレポーターは、<i>zCry1a</i> 遺伝子のプロモーター下でルシフェラーゼを発現するものである。また、導入した細胞のレポーター活性は、リアルタイム生物発光計測装置を用いて、自動的に 1-5 分ごとに測定することができる。従って、この系の構築により、BaA による細胞時計の光同調を制御する時計分子の光誘導の変化を、高い時間解像度で解析することが可能になった。 本研究課題に関連する成果物（2019 年度-2021 年度） (申請書;二重線、分担者;一重線) 英文原著 1. Hatano K, Kawamura R, Watabe Y, Ogiso S, Nagami A, Matsubara H, Urata M, Matsumoto K, Yachiguchi K, Shimizu N, <u>Hirayama J</u>, Furusawa Y, Tabuchi Y, Srivastav AK, <u>Suzuki N</u>. Analysis of the thermal responses in Japanese pearl oysters, <i>Pinctada fucata martensii</i>. Int. J. Zool. Inv., 8 371-378 2022 2. Igarashi-Migitaka J, Maruyama Y, Seki A, <u>Hirayama J</u>, Kamijo-Ikemori A, Hirata K, Kawamura R, Matsubara H, Srivastav AK, Tabuchi Y, Mishima H, <u>Hattori A</u>, <u>Suzuki N</u> Oral administration of melatonin increases plasma calcium and magnesium and improves bone metabolism in aged male mice. Mel. Res. 4 586-596 2021 3. Furusawa Y, Yamamoto T, <u>Hattori A</u>, <u>Suzuki N</u>, <u>Hirayama J</u>, Sekiguchi T, Tabuchi Y. De novo transcriptome analysis and gene expression profiling of fish scales isolated from <i>Carassius auratus</i> during space flight: impact of melatonin on gene expression in response to space radiation. Mol. Med. Rep. 22. 2627-2636. 2020 4. Yamamoto T, Ikegame M, <u>Hirayama J</u>, Kitamura K, Tabuchi Y, Furusawa Y, Sekiguchi T, Endo M, Mishima H, Seki A, Yano S, Matsubara H, <u>Hattori A</u>, <u>Suzuki N</u>. Expression of sclerostin in the regenerating scales of goldfish and its increase under microgravity during space flight. Biomed. Res. 41 279-288 2020
------------------	---

	5. Yamamoto T, Ikegame M, Kawago, U Tabuchi Y, Hirayama J, Sekiguchi T, Furusawa, Y Yachiguchi K, Matsubara H, Urata M, Hattori A, Suzuki N. Detection of RANKL-producing cells and osteoclastic activation by the addition of exogenous RANKL in the regenerating scales of goldfish. Bio. Sci. Space. 34. 34-40. 2020 6. Igarashi-Migitaka J, Seki A, Ikegame M, Honda M, Sekiguchi T, Mishima H, Shimizu N, Matsubara H, Srivastav AK, Hirayama J, Maruyama Y, Kamijo-Ikemori A, Hirata K, Hattori A, Suzuki N. Oral administration of melatonin contained in drinking water increased bone strength in naturally aged mice. Acta Histochem. 122. 151596. 2020 英文総説 *Corresponding author 1. Okamoto-Uchida Y, Nishimura A, Izawa J, Hattori A, Suzuki N, Hirayama J*. The use of chemical compounds for identification of regulatory mechanisms of vertebrate circadian clocks. Curr. Drug Targets 20, 2020 2. Okamoto-Uchida Y, Izawa J, Nishimura A, Hattori A, Suzuki N, Hirayama J*. Posttranslational modifications are required for circadian clock regulation in vertebrates. Curr. Genom. 20. 332-339. 2019 招待講演 1. 平山 順 Regulation of behavioral rhythms and locomotor activity by light-inducible components of the circadian clock in zebrafish 第 126 回日本解剖学会総会・全国学術集会 第 98 回日本生理学会大会 合同大会： 解剖と生理の時計（Web 開催）2021 年 2. 平山 順 ゼブラフィッシュモデルを用いた体内時計の光制御機構の解明 難治疾患共同研究拠点シンポジウム（東京医科歯科大学）2019 年 3. 平山 順 遺伝子改変魚類を用いた体内時計研究 北里大学海洋生命科学部 特別講義 II（北里大学）2019 年 4. 平山 順 遺伝子改変ゼブラフィッシュを用いた体内時計の光制御に関する研究 富山大学 生命科学先端研究支援ユニット 学術セミナー（富山大学）2019 年
見込まれる成果物	※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。 本研究により得られた、BaA の体内時計を構築する細胞時計の制御に与える影響に関する成果を原著論文にて発表することを計画している。 ※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	ささ きみかず	提出年月日	令和4年 4月 30日	
申請者氏名	笹 公和			
所属・職名	筑波大学 研究基盤総合研究センター応用加速器部門・准教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☐ 単年 ☒ 複数年(2年)	☐ 新規 ☒ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	能登半島における1950年以降の原子力施設由来放射性ヨウ素129の沈着量変動			
研究実施期間	令和3年 4月 1日～ 令和4年 3月 31日			
センター 教員	松中 哲也			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	笹 公和	筑波大学	准教授	研究総括、加速器質量分析の高度化
	分担者	松中 哲也	金沢大学	助教	堆積物中 ^{137}Cs ・ ^{210}Pb の測定
		落合 伸也	金沢大学	助教	試料採取
		末木 啓介	筑波大学	教授	堆積物中 ^{129}I の測定
		松村 万寿美 高橋 努	筑波大学	技術職員	堆積物中 ^{129}I の前処理・測定
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	湖底堆積物	プラスチックケース 内に圧縮した乾燥堆 積物をビニール袋で 密封した状態	20	
	分析した試料	湖底堆積物	プラスチックケース 内に圧縮した乾燥堆 積物をビニール袋で 密封した状態	20	
研究目的・ 期待される 成果	<u>研究の目的</u> 地球温暖化に対する日本海における海洋循環の応答性を検知するために必要な海洋循環トレーサーとして、長寿命の ^{129}I ($T_{1/2}$: 1570 万年) の利用が期待されている。しかしながら、日本海におけるその主な供給源、供給プロセス、および供給量の実態を把握する必要がある。本研究は、越境汚染物質の 1 つであり主に 1950 年以降の核燃料再処理や核実験に起因する ^{129}I について、環日本海域における沈着量変動を明らかにすることを目的とする。 <u>研究の特色</u> 研究例が少ない日本海におけるハロゲン元素の ^{129}I について、西暦 1950 年代以降の大気からの沈着量変動を評価すること、および放射能比 ($^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$) を用いてその起源を推定することが特色である。 <u>期待できる成果</u> 西暦 1950 年代以降、人類の核活動によって大気中に放出されてきた人為起源 $\text{I}-129$ の環日本海域における沈着量変動史が明らかになり、日本海における新しい海洋循環トレーサーの確立に向けた基盤的情報の整備が期待される。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	<u>利用・研究実施内容</u>
	能登半島の七尾市の貯水池（ビシャグソ池）において、2011 年 12 月に採取された B11-1 コア（長さ 63 cm）について 1 cm 毎に分割した堆積物を分析試料とした。均一化した乾燥堆積物（乾燥重量：1.5 g 程度）をプラスチック容器に密封し、金沢大学 LLRL の Ge 半導体検出器を用いて Pb-210 と Cs-137 を測定した。堆積物からの I-129 の抽出・精製を実施するための前処理システム（熱加水分解法と溶媒抽出・逆抽出）は I-129 バックグラウンドが低い金沢大学 LLRL で新たに立ち上げ実施した。堆積物（0.5 g）から生成した燃焼ガスをトラップしたアルカリ溶液に対し、1 mg の ^{127}I キャリア（Deepwater iodine, $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$: $\sim 1 \times 10^{-14}$）を加えて同位体希釈を行った後、ヨウ素を溶媒抽出・逆抽出で精製し、硝酸銀を添加してヨウ化銀ターゲットを作製した。筑波大学応用加速器部門の加速器質量分析計でターゲットの $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比を測定し、Purdue 1 ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$: 8.38×10^{-12}) を標準として規格化した。ICP-MS を用いて試料の ^{127}I 濃度を測定した後、^{129}I 濃度を算出した。試料（B11-1 コア）の放射性核種（Cs-137・Pb-210、I-129）測定を行い、Cs-137 と Pb-210 に基づく堆積層の形成年代と主に核燃料再処理施設から大気経由で供給される I-129 の沈着量変動を解析した。
	<u>得られた成果</u>
	堆積物中の余剰 Pb-210 ($^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$) 濃度は、表層から深度 29 cm において 84.2-739 Bq/kg（試料採取日に壊変補正済）の範囲にあり、深度 29 cm 以深では未検出であった。質量深度（Mass depth: g/cm²）に対する余剰 Pb-210 の自然対数の深度分布を基に、堆積速度を解析した結果、表層から 0.836 g/cm²/yr（深度 0-7.5 cm）、0.0638 g/cm²/yr（深度 7.5-15.5 cm）、0.219 g/cm²/yr（深度 15.5-24.5 cm）、及び 0.0332 g/cm²/yr（深度 24.5-29.0 cm）と変化することが分かった。一方、Cs-137 濃度は、表層から深度 29 cm までにおいて 8.6-71.2 Bq/kg（試料採取日に壊変補正済）の範囲にあり、深度 26-27 cm に極大を示す深度分布であった。この Cs-137 の極大層は、Pb-210 から算出した堆積速度を基にすると西暦 1962 年に形成されたことが分かった。従って、対象とした堆積物は大気核実験に起因する Cs-137 を明瞭に記録していること、及び余剰 Pb-210 に基づく年代モデルが正しいことが確認された。今年度は、堆積物中の ^{210}Pb・^{137}Cs・^{129}I 測定を詳細に実施して 1950 年以降の大気からの ^{129}I 沈着量変動を細かく評価した。特に、堆積物中の I-129 について、試験測定時の問題を解決し、新たに 17 試料の前処理と測定を行った。堆積物中の I-129 は 0.13-93.0 μBq/kg の範囲にあり、沈着量に換算すると 0.004-77.8 nBq/cm²/yr であった。I-129 沈着量は、西暦 1946 年以前は 0.004-0.025 nBq/cm²/yr と低いレベルであったのに対し、西暦 1946 年以降増加し、西暦 1980 年と西暦 2011 年に極大を示す深度分布であった。この傾向は、西暦 1950 年以降の核燃料再処理、及び西暦 2011 年の福島原発事故に伴って、大気放出された ^{129}I の沈着量が増加したことを示唆していると考えられる。
	※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。

見込まれる 成果物	原書論文 得られた成果を Journal of Environmental Radioactivity 誌に投稿予定である。 報告書 <u>T. Matsunaka</u>, S. Nagao, M. Inoue, Y. Taniuchi, H. Kasai, <u>T. Takahashi</u>, <u>M. Matsumura</u>, <u>K. Sueki</u>, <u>K. Sasa</u>, 2021, Surface distribution of iodine-129 in the Okhotsk Sea, <i>UTTAC ANNUAL REPORT 2020</i>, UTTAC-90, 20. <u>M. Matsumura</u>, <u>K. Sasa</u>, <u>T. Takahashi</u>, A. Sakaguchi, <u>T. Matsunaka</u>, <u>K. Sueki</u>, The Performance of Iodine-129 AMS measurements at the University of Tsukuba (FY 2020), 2021, <i>UTTAC ANNUAL REPORT 2020</i>, UTTAC-90, 21-22. 口頭発表 <u>K. Sasa</u>, <u>M. Matsumura</u>, <u>T. Takahashi</u>, Development of Non-Radiocarbon Accelerator Mass Spectrometry at the University of Tsukuba, Technical Meeting on Developments in Non-Radiocarbon Accelerator Mass Spectrometry Techniques and Relevant Applications (Virtual Event), International Atomic Energy Agency (IAEA), 11-14 October 2021. <u>笹公和</u>, 落合悠太, <u>松村万寿美</u>, <u>高橋努</u>, <u>松中哲也</u>, 加速器質量分析法を用いた長半減期放射性ハロゲン ^{36}Cl と ^{129}I の高感度検出による降下量変動の比較研究, 第 82 回応用物理学会秋季学術講演会, 名城大学オンライン, 2021 年 9 月 10-13 日. 西塚魁人, 坂口綾, <u>笹公和</u>, <u>高橋努</u>, <u>松村万寿美</u>, 三浦勉, 浅井志保, 和田彩佳, 高久雄一, 山崎信哉, 末木啓介, 水環境中における有機・無機ヨウ素同位体定量の試み, 2021 年度日本地球化学会第 68 回年会, オンラインおよび弘前大学会場ハイブリッド開催, 2021 年 9 月 1-15 日. ※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。
--------------	---

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	さかとく あきひろ	提出年月日	2022 年 4 月 12 日	
申請者氏名	酒徳 昭宏			
所属・職名	富山大学学術研究部理学系・講師			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☐ 新規 ☒ 継続
研究分野	☐ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☒ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	七尾湾に特異的な底質環境の解析：海底堆積物中の溶存遊離アミノ酸の変動と微生物群集との関係			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～2022 年 3 月 31 日			
センター教員	鈴木信雄			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	酒徳昭宏	富山大学	講師	研究統括・微生物群集構造解析
	分担者	上田宏	北海道大学	名誉教授	試料採集
		沖野龍文	北海道大学	教授	溶存遊離アミノ酸分析
		鈴木信雄	金沢大学	教授	試料採集
		松原創	金沢大学	教授	飼育行動解析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	七尾湾海底堆積物	砂泥	100 検体	
	分析した試料	七尾湾海水と堆積物	液体と砂泥	16 検体	
研究目的・ 期待される 成果	目 的： 日本近海を回遊し、七尾湾の底質に産卵するトラフグの産卵回遊機構を明らかにするために、産卵場の海底堆積物中の溶存遊離アミノ酸と、それらを産生している微生物群集構造を明らかにする。七尾湾に特有の溶存遊離アミノ酸や微生物群集構造が存在するかを調べることで、特有の底質環境を創出するメカニズムの解明を目指す。また、トラフグの嗅覚による産卵場の選択メカニズムを解明する第一歩として、トラフグの飼育行動解析も行う。一方で、これまでの貴センター共同研究で、興味深いことに、トラフグ産卵場においてテトロドトキシン（TTX）産生細菌が検出された。近年、トラフグ稚魚が TTX を嗅覚により受容することが報告されたことから、トラフグ親魚が嗅覚により TTX を感受して七尾湾の海底を産卵場として選択している可能性も考えられた。本年度の微生物群集構造解析では、TTX 産生細菌が再確認されるかも合わせて調べる。 期待される成果： 七尾湾の特定の底質環境を創出するメカニズムが解明されることで、トラフグの産卵回遊機構の解明に繋がる知見を蓄積することができ、魚類生態学及び魚類資源学に貢献できる。このように溶存遊離アミノ酸や TTX と魚類の行動に注目した研究は行われておらず、国内外においても、先駆的かつ独創的な研究である。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究
実施内容・
得られた成
果

2021 年度も、新型コロナウイルス感染症拡大の影響を受け、計画していた研究を十分に行うことができず、計画を変更せざるを得なかった。それでも、非産卵期である 10 月と産卵期の 5 月に、産卵場と非産卵場の底泥を採取することができたため、両地点の細菌群集構造を次世代シーケンサーmiseq（イルミナ）を用いて調べた（図 1）。その結果、非産卵期（10 月）・産卵期（5 月）ともに Proteobacteria 門の細菌が約 50%と優先していたことから、七尾湾の底泥中には季節を問わず Proteobacteria 門の細菌が優占していることが推察された（図 1a）。また、非産卵期には Actinobacteria 門細菌が、産卵期には Cyanobacteria 門細菌の割合がそれぞれ増加することが見いだされ、緩やかな季節変動をしていることも推察された。一方で、堆積物と海水中の細菌群集構造を比較した結果、堆積物と海水では生息している細菌に違いが見られました。特に堆積物には、嫌気性細菌も多数属する Verrucomicrobia 門、Planctomycetes 門、Chloroflexi 門の細菌が高い割合で生息している一方で、海水には Cyanobacteria 門の細菌が優占していることが明らかとなった。今後、他の試料や他の季節の試料の解析を進めることで、季節変動やその周年性、七尾湾の細菌群集構造の特徴を明らかにし、他の海域との違いや環境の変化による群集構造への影響を調べていきたい。

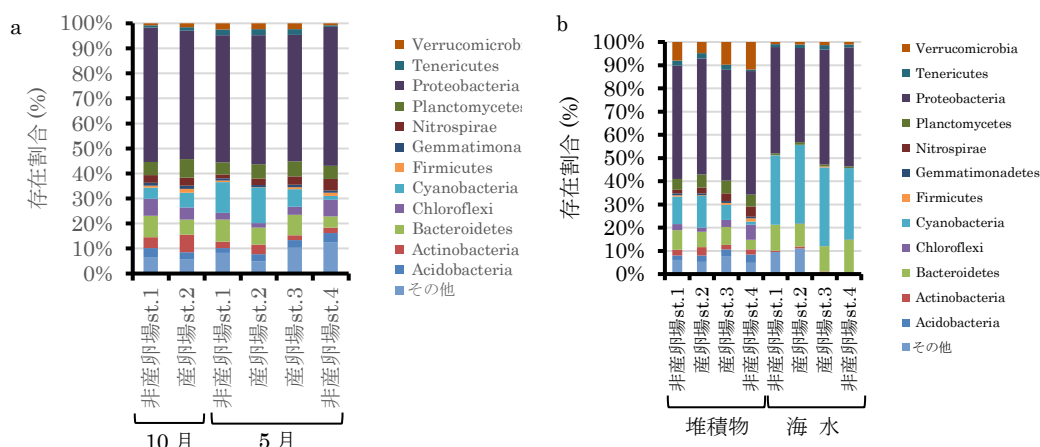


図 1. 七尾湾の堆積物と海水中の細菌群集構造。a: 非産卵期（10 月）と産卵期（5 月）の堆積物中の細菌群集構造, b: 産卵期の堆積物と海水中の細菌群集構造。

※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。

見込まれる
成果物

本研究成果は、更なるデータが得られた際に、関連する学会や学術誌で発表する予定である。

※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	おとさか しげよし		提出年月日	2022 年 4 月 21 日
申請者氏名	乙坂 重嘉			
所属・職名	東京大学大気海洋研究所・准教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☐ 新規 ☒ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	天然放射性核種を用いた海洋における粒子フラックス分布解明			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～2022 年 3 月 31 日			
センター 教員	長尾 誠也			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	乙坂 重嘉	東京大学	准教授	海洋観測,主要・微量成分分析
	分担者	長尾 誠也	金沢大学	教授/セン ター長	動態解析
		井上 睦夫	金沢大学	准教授	放射性核種分析
		落合 伸也	金沢大学	助教	放射性核種分析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	硫酸バリウム・水酸化鉄混 合物	固体（フィルター）	20	
		酸化マンガン	固体（フィルター）	10	
	分析した試料	酸化マンガン	固体（フィルター）	20	
研究目的・ 期待される 成果	大気や河川を通じて海洋に運ばれた陸起源物質や、海洋表層で生産された生物粒子の一部は、海水中の懸濁粒子を形成し、凝集・分解を繰り返しながら海底へと運ばれる。海水中を沈降移動する粒子（沈降粒子）は、海洋表層の汚染物質を効果的に深海へと運ぶ役割を持つため、沈降粒子の輸送フラックス（単位面積・単位時間当たりの粒子輸送量として定義され、粒子束と呼ぶ）の分布を高い空間分解能で明らかにすることは、汚染物質の海洋における行方を追跡するうえで重要である。 沈降粒子束の計測は、セジメントトラップ実験などの比較的大規模で長期にわたる海洋観測を必要とするため、観測海域や測点数が限られる。一方で、海水中の親粒子性天然放射性核種（Th 同位体等）濃度を計測し、その生成量と存在量の海水柱内での収支から、これらの放射性核種の粒子束を見積もることができる。また、海水をろ過して得られる粒子について、上述の天然放射性核種と任意の目的成分の粒子中での濃度比を計測することで、目的成分の粒子束を間接的に見積もることができる。 本申請では、金沢大学が持つ微量放射性核種分析技術と、申請者らが持つ海洋観測および微量元素分析技術を組み合わせることで、上記の観測手法を確立することを目的とする。確立される方法は、本年度に実施済みの日本海での研究に加えて、2022 年度以降に実施予定の調査航海でも適用し、北西太平洋及びその縁辺海における様々な粒子状物質について、空間分解能の高い粒子束の解析を可能とする。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

1. はじめに

本研究では、2021 年度までに確立した海水中の ^{228}Ra - ^{228}Th 非平衡法による粒子束計測を実海域に展開し、海洋表層及び亜表層から海洋内部への物質フラックス評価の高解像度解析について検討を進めた。申請者らによる研究実績があり、近年の地球規模の環境変化による海洋への影響が顕在化している日本海南東部海域を検討対象海域とした。

2. 方法

2.1 海水・懸濁粒子試料の採取

2021 年 7 月に、日本海北東部の日本海盆（観測点 GM1、海底水深 3580 m）、南東部の大和海盆（観測点 JS2、海底水深 2950 m）及びその東部縁辺の対馬暖流域（観測点 JS3、海底水深 806 m）で海水及び懸濁粒子試料を採取した（図 1）。試料採取は学術調査船「新青丸」KS-21-13 航海で実施した。

本研究では、粒子束の季節的、経年的な変化が特に大きいと考えられる水深 1000 m 以浅に着目した。各観測点における深度 10 m から 1000 m までの 6 層で 20~40L の海水を採取し、ただちに試料容器内で二酸化マンガ（ MnO_2 ）を生成、 ^{228}Th 及び ^{228}Ra を吸着させ、 MnO_2 をメンブレンフィルター上に回収した。

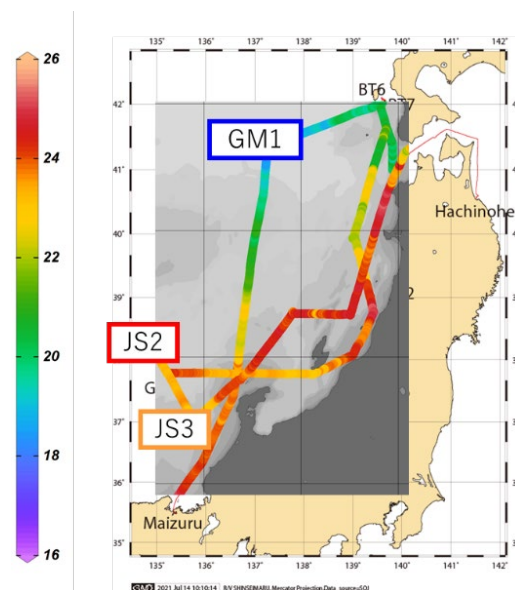


図 1 本研究の観測点と、新青丸 KS-21-13 航海（2021 年 7 月）航走時の表面水温（ $^{\circ}\text{C}$ ）

2.2 微量放射性核種の計測

MnO_2 を回収したフィルター試料中の ^{228}Th 及び ^{228}Ra を金沢大学の低レベル放射能実験施設（LLRL）のゲルマニウム半導体検出器で計測した。 ^{228}Th 及び ^{228}Ra の計測に先だって、同試料については、 ^{234}Th 分析のための β 線計測と、懸濁粒子試料の分析を東京大学大気海洋研究所（千葉県柏市）で実施した。

3. 結果と考察

3.1 海水循環

本研究では、日本海東部を南北に縦断する調査航海を実施した。多くの観測研究で報告されているとおり、日本海は北緯 39 度から 40 度付近の前線を隔てて冷暖の 2 つの循環系に分けられ、観測点 GM1 は北側の、観測点 JS2 と JS3 は南側の循環系に位置していた（図 1）。本研究の航海における詳細な物理観測の結果、観測時は JS2 の北側に対馬暖流によって形成される直径 100~150 km 程度の冷水渦が、JS2 と JS3 の間には同スケールの暖水渦が存在していた。観測点 JS3 では、暖水渦の縁辺が水深 400m 程度に達しており、それ以深では濁度（懸濁物濃度の指標）が有意に高かった。いずれの観測点でも、水深 150m 程度まで有意に高いクロロフィル a （生物生産の指標）濃度が観測された。

3.2 放射性核種濃度分布

海水中の ^{234}Th 濃度は、29~41 mBq/L の範囲で分布しており、全体として表層付近で親核種である ^{238}U 濃度（38~41 mBq/L）に比べて低く、いわゆる非平衡の状態であった（図 2）。

海盆中央部の観測点である GM1 と JS2 における海水中的 ^{234}Th 濃度は、水深 100m 付近までが親核種と非平衡で、100m 層で平衡に達していた。一方で、大和海盆縁辺の

観測点 JS3 における ^{234}Th 濃度は、水深 800m まで ^{238}U と非平衡の状態にあった。

^{228}Th 及び ^{228}Ra は、いずれも ^{232}Th の系列核種であり、その多くは陸域から海洋表層を経由して海洋内部へと運ばれる。本研究においても、海水中の ^{228}Th 及び ^{228}Ra 濃度は、いずれも全体として深さと共に減少する鉛直分布の傾向を示した (図 2)。いずれの観測点でも、水深 100m から 200m で濃度極大を示し、特に縁辺の観測点 JS3 では、陸からの物質供給の影響がより深いところまで見られた。 ^{234}Th (半減期 24 日) に比べて長い 1.9 年の半減期を持つ ^{228}Th は、概ね水深 500m で ^{228}Ra と平衡に達した。

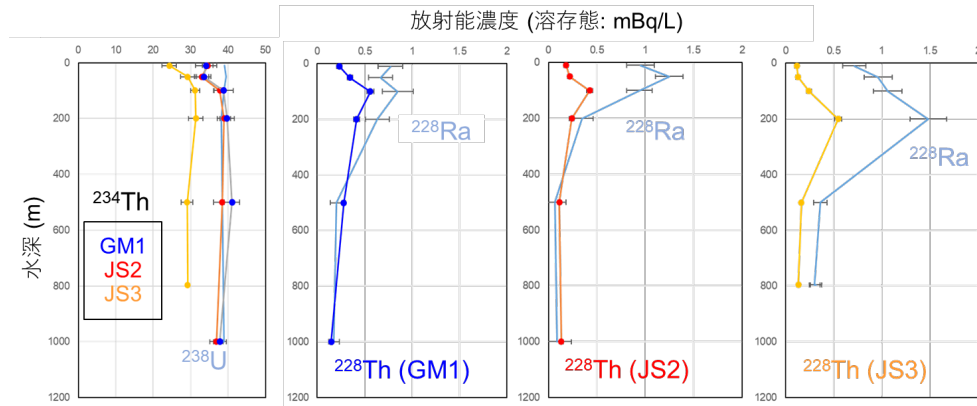


図 2 各観測点における放射性核種の鉛直分布

3.3 粒子フラックス

各観測点における ^{234}Th 及び ^{228}Th の粒子束を、それぞれ下記の式 (1) 及び (2) で求めた。

$$F(^{234}\text{Th})_z = \int_0^z \lambda ([^{238}\text{U}] - [^{234}\text{Th}]) dz \quad (1)$$

$$F(^{228}\text{Th})_z = \int_0^z \lambda ([^{228}\text{Ra}] - [^{228}\text{Th}]) dz \quad (2)$$

式において、 $F(^{234}\text{Th})_z$ 及び $F(^{228}\text{Th})_z$ は深度 z における ^{234}Th 及び ^{228}Th 粒子束 ($\text{mBq}/\text{m}^2/\text{day}$)、[核種] は各核種の海水中での溶存濃度 (mBq/L)、 λ は娘核種 (^{234}Th または ^{228}Th) の壊変定数である。各観測点で得られた粒子束の鉛直分布を図 3 に示す。

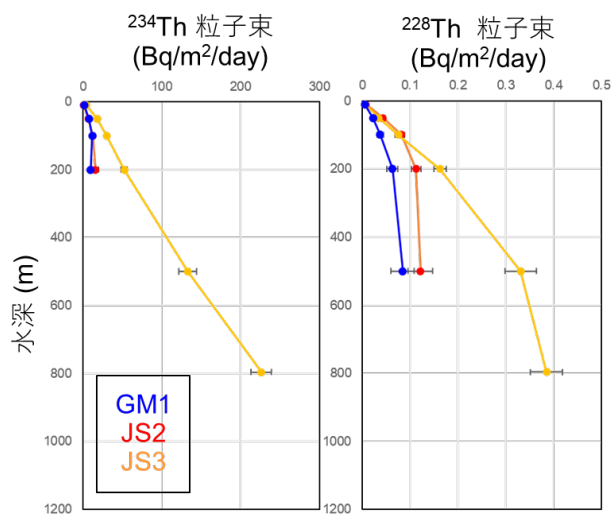


図 3 各観測点における ^{234}Th 及び ^{228}Th 粒子束

^{228}Th 及び ^{234}Th の沈降粒子束は、いずれも観測点 JS3 > JS2 > GM1 の順であった。大和海盆の中央部 (観測点 JS2) における ^{228}Th 粒子束 ($0.008\sim 0.1 \text{ Bq}/\text{m}^2/\text{d}$) は日本海盆のそれ (観測点 GM1: $0.005\sim 0.07 \text{ Bq}/\text{m}^2/\text{d}$) 約 1.5 倍であり、1990 年代から 2000 年代にかけて日本海の広域で実施したセジメントトラップ実験の分布の特徴と整合的であった。大和海盆東縁 (観測点 JS3) における ^{228}Th 粒子束 ($0.006\sim 0.38 \text{ Bq}/\text{m}^2/\text{d}$) は海盆中央部の同水深の約 3 倍であった。観測点 JS3 の深層における海水中的の $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 比と、海水をろ過して得

られる ^{228}Th の粒子態濃度から、この層における懸濁粒子の滞留時間は 200 日程度と見積もられた。観測点 JS3 の深層で見られた高い粒子束は、大和海盆縁辺の海底で再懸濁した粒子が数ヶ月規模で交換しながら移動し、海盆縁辺での粒子束を増大させたものと推測された。

4. まとめ

本共同研究では、金沢大 LLRL 諸氏のご協力により、海水中 ^{228}Ra , ^{228}Th 非平衡法による粒子束計測手法を確立した。2021 年度は、海洋表層及び亜表層から海洋内部への物質フラックス評価方法を検討した。日本海における沈降粒子束データは、これまで海盆の中央部における係留観測でのみ得られてきたが、本研究により海盆縁辺における活発な粒子輸送が初めて浮き彫りとなった。 Th 同位体を用いた観測により、空間的に解像度の高い粒子束分布の描像が期待される。

本研究で検討した手法は、2022 年度以降に西部北太平洋で実施される調査航海に適用し、様々な粒子状物質について、北西太平洋及びその縁辺海における粒子束の観測を展開する予定である。

※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。

見込まれる
成果物

直近の予定として、上記の結果を、2022 年度に口頭発表及び原著論文で発表することを見込んでいる。成果の公表は、2022 年度 9 月より順次開始する予定である。

具体的なトピックスは下記のとおりである。

- ・日本海における暖水渦の詳細構造と、海水中の物質、特に有機炭素の海洋内部への輸送フラックスの連動性
- ・粒子態有機炭素及び主要・微量元素の海洋内部への輸送フラックスの過去 20 年間の変動傾向とその要因

※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	さとね ひな	提出年月日	2022 年 4 月 30 日	
申請者氏名	佐藤根 妃奈			
所属・職名	潟食料農業大学食料産業学部食料産業学科・講師			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☐ 新規 ☒ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	魚類における有害有機フッ素化合物の体外排出に関する研究			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 31 日			
センター教員	本田匡人			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	佐藤根 妃奈	新潟食料農業 大学 食料産業学部 食料産業学科	講師	LC-MS/MS 分析
	分担者	本田匡人	金沢大学 環日本海域環 境研究センタ ー 陸域環境領域 附属植物園	助教	分析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	ペルフルオロオクタン スルホン酸	ヒラメの血液、筋 肉、臓器、皮膚、 体表粘液など	56 尾	
	分析した試料	ペルフルオロオクタン スルホン酸	皮膚、筋肉、体表粘 液、および、血液、 肝臓、腎臓、腸、生 殖腺、鰓、胆のう、 骨	全 605 試料のうち 190 試料を分析済み	

研究目的・
期待される
成果

有機フッ素化合物の一種であるペルフルオロオクタンスルホン酸(PFOS)は、残留性、生物への毒性影響から使用が制限されているが、10 年以上前から環日本海域を含む地球規模で汚染が確認されており、現在でも環境中への流出は続いている。魚介類はヒトへの PFOS の供給源となっているが、魚介類体内における詳細な動態や蓄積等に関わる分子についての知見が不足している。前年度にヒラメに対する PFOS の腹腔内投与試験を実施し、各組織における PFOS の濃度分析を現在進めている。その結果を踏まえて、腹腔内から体表粘液へと排泄されるまでの代謝過程における存在形態を明らかにすることで、PFOS の解毒の可能性を探る。

※申請書に記載した事項を要約して下さい。

利用・研究
実施内容・
得られた成
果

昨年度、ヒラメに対するペルフルオロオクタンスルホン酸(PFOS)の腹腔内投与試験を実施した。そこで採取した各組織における PFOS の蓄積傾向、および、肝臓における遺伝子発現を調べた。

1. 各組織における PFOS の蓄積傾向

各組織からの PFOS の抽出は、Ankley ら(2005)の方法を用いた。試料に 0.50 mL の超純水を加えて超音波ホモジナイザーによりホモジナイズした後、1 mL の 100 mM KOH を加えて、50℃で 20 分振とうした。骨サンプルは 1 M HCl により脱灰処理後、当量の 1 M NaOH で中和した。そこに 1.5 mL の 2 M NaCl と 2.5 mL のメチル tert-ブチルエーテル(MTBE)を加え、室温で 20 分振とう抽出した。遠心分離後(室温、5,000×g, 10 分)、MTBE 層を回収し、水層にさらに 2.5 mL の MTBE を加えて、同様に振とう抽出した。同様に遠心分離して回収した MTBE 層は、窒素ガスを吹き付けて乾固し、900 μL のメタノールに溶解した。そこに内部標準としてメタノールに溶解した M₈PFOS 標準液(100 ng/mL)を 100 μL 加えて、分析用試料とした。PFOS 濃度の分析は、LCMS-8045(SHIMADZU)を用いて行った。カラムは WakoPak Ultra C18-3 (φ 2.00×100 mm)(Fujifilm Wako Pure Chemical Co.)で、移動相の A 液に 0.01%ギ酸含有 2.5 mM 酢酸アンモニウムを、B 液にアセトニトリルを用いて、A 液の濃度を 5%から 95%に上昇させて PFOS を溶出し、MRM 分析により PFOS 濃度を測定した。モニタリングした *m/z* は、M₈PFOS は 507.00>80.00(確認イオン: 507.00>99.00)、PFOS は 499.00>80.00(確認イオン: 499.00>99.00)とした。

皮膚、筋肉、体表粘液、血液、肝臓、骨の全期間のサンプルについて分析を終えたので報告する。尚、皮膚、筋肉、体表粘液の 0 日目～21 日目のサンプルについて昨年度報告した内容は直鎖のみのピークで濃度を計算していたため、改めて分岐鎖も含めた PFOS 全体の濃度を報告する。PFOS は特に血液と肝臓に高濃度で検出された。3 日目にそれぞれ 3185±523.1 ng/mL、3693±892.9 ng/g で、28 日目でもそれぞれ 2647±443.8 ng/g、3623±1815 ng/g で試験期間を通して減少せず、蓄積していた。また、骨でも 3 日目に 705.9±149.2 ng/g、28 日目に 585.2±91.98 ng/g で蓄積していた。また、体表粘液では 3 日目に 1281±1092 ng/g、28 日目に 172.2±141.9 ng/g で減少傾向は見られなかったが、14 日目と 21 日目に検出限界の個体が複数あった。一方、皮膚では 3 日目に 508.9±1688.0 ng/g、7 日目に有意に減少し(*p*<0.05)、28 日目に 107.8±43.9 ng/g となった。筋肉も 3 日目に 1183±683.1 ng/g で 14 日目に有意に減少し(*p*<0.01)、21 日目に 45.2±49.9 ng/g となったが、28 日目に 389.6±132.5 ng/g となり増加に転じた。以上の結果から、筋肉や皮膚などの可食部では PFOS が排泄される機構があると考えられた。また、血液、肝臓の他に骨に蓄積することがわかった。PFOS の蓄積に関わるタンパク質は、ヒラメではいずれの組織においても明らかにされていない。骨には有機質が約 22%含まれ、主成分のコラーゲンやオステオカルシン、Gla タンパク質など複数のタンパク質が含まれ、これらと PFOS の結合性について検討する必要がある。

2. 肝臓におけるビタミン D 代謝に関わる遺伝子発現

PFOS が骨に蓄積していたことから、骨におけるビタミン D 代謝に関わる遺伝子 CYP24a1, hepcidin 1, calreticulin の肝臓における遺伝子発現をリアルタイム PCR により検証した。RNAlater (Thermo Fisher Scientific)に浸漬して-80℃に保存していた肝臓サンプルから、RNA 抽出キット(Quick-RNA Miniprep Plus Kit, Zymo Research, CA, USA)を用いて total RNA を抽出した。その後、SuperScript VILO cDNA Synthesis Kit (Thermo Fisher Scientific)を用いて cDNA を合成した。ハウスキーピング遺伝子を β-アクチンとして、TB Green Premix Ex TaqII (Tli RNaseH Plus)(Takara)を用いてリアルタイム PCR を行った。

その結果、calreticulin は 7 日目に対照区と比べて有意に減少したが(*p*<0.05)、CYP24a1 および hepcidin 1 には有意な発現変動は見られなかった。骨に PFOS が蓄積することの影響については、細胞などを用いて詳細に調べる必要がある。

※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。

見込まれる
成果物

学会等での発表、および卒業論文としてまとめる予定である。

※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	いしかわなおと	提出年月日	2022 年 4 月 27 日	
申請者氏名	石川尚人			
所属・職名	富山大学都市デザイン学部地球システム科学科・教授			
連絡先住所				
TEL		TEL		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☐ 新規 ☒ 継続
研究分野	☐ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☒ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	日本海形成過程の解明: エチオピア・アフール地域のプレート拡大軸域の地球電磁気学的構造に基づく研究			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～2022 年 3 月 31 日			
センター教員	長谷部徳子			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	石川尚人	富山大学都市 デザイン学部	教授	総括
	分担者	長谷部徳子	環日本海域環 境研究センタ ー	教授	年代学的解析
		望月伸竜	熊本大学	准教授	古地磁気解析
		劉 浩田	熊本大学	修士 2 年	年代学的解析
		加々島慎一	山形大学	准教授	岩石学的解析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料			物質名	形態（形状）	試料数
	申請書に記載 した試料		火山岩	粉末あるいは固体	約 1 0
	分析した試料		火山岩	粉末あるいは固体	約 2 0
研究目的・ 期待される 成果	日本海は大陸分裂から海洋底拡大を経て形成された背弧海盆で、その形成過程の理解には海洋地磁気縞状異常の解析が大きな役割をなした。しかし、そのほとんどが海洋下で起こっている海洋底の地磁気縞状異常の獲得形成過程を、我々が直接的に探査することは難しい。そこで、大陸分裂が進行し、現在、海洋底拡大の開始段階にあり、海洋底拡大軸が陸上に露出していると考えられているエチオピア・アファール地域において、地磁気縞状異常の構造とその形成過程を陸上で直接的に探究する目的で、地球電磁気学的探査（空中・地上磁場探査、MT 探査）、地表溶岩流の岩石学的／古地磁気学的／年代学的解析を進めている。研究対象は Dabbahu 火山周辺域で、そこでは 2005-09 年にかけて、活発な地震活動と正断層系の形成を伴うプレート拡大現象がおき、巾 8m、長さ 60km、深さ 2～10km の範囲で岩脈の貫入があったと推定されている。陸上において、海洋底拡大軸域に対し岩石試料採取を伴う直接的な調査研究を行うことが本研究の特色で、すでに拡大軸を挟む約 50km の測線において、地球電磁気学的探査／試料採取を済ませている。 本研究により、アファール地域の海洋底拡大軸域の磁気異常分布／電磁気学的構造／溶岩流の形成史・化学的進化史から、地球電磁気学的な構造とその形成過程を明らかにすることは、日本海の拡大形成をふくむプレート拡大軸域の地学現象への理解を深める上で、有意義な情報を与えることが期待される。				

※申請書に記載した事項を要約して下さい。	
利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	Dubbahu 火山周辺域を含む Tendaho Graben (幅約 50km) において、地球電磁気学的探査、地表溶岩流の岩石学的・古地磁気学的研究を行った。Tendaho Graben の拡大方向に設定した約 80km の測線での探査の結果、磁気探査では測線上に長周期 (約 20km) の正負の磁気異常が確認され、MT 探査からは Graben 中央部に幅約 5km で深度 20km ままでに及ぶ低比抵抗帯 (熱源の存在を示唆) とその両側に高比抵抗帯が存在が推定された。それら結果に基づき、Graben 中央部に熱源の存在による非磁化領域を含む幅約 10km の正帯磁領域、その両側に逆帯磁領域が存在する予察的な磁化構造モデルを構築した。地表溶岩流の古地磁気極性解析から Graben 中央の幅約 40km が正磁極期、その両端が逆磁極期に噴出した溶岩流であることがわかった。地表溶岩流の古地磁気極性分布と地下の磁化構造の磁気極性分布とに食い違いがあることが示唆された。岩石学的解析の結果、玄武岩類は E-MORB ~ Within Plate Tholeiite に分類されること、1.1Ma より古い溶岩流は高 SiO₂・高 K₂O で特徴づけられること、Graben 内を広く覆う 0.6Ma より若い溶岩流は地域的に系統的な化学組成変化を示さないことがわかった。若い溶岩流は Graben 内の至るところで噴出があった可能性を示唆する。地表溶岩流の年代情報を得るために本研究課題においてルミネッセンス法による年代測定を試みた。昨年度の本共同利用研究で 100-450℃ の青色の熱ルミネッセンスを測定したところ、試料により発光温度が異なり、かつ放射線量に対して安定した発光量の変化を見出せず安定な検量線を求めることができなかったため、通常分析法では線量の見積もりを適切にできないことがわかった。そこで他の発光色 (赤色領域および紫外領域) での熱ルミネッセンス測定を行なったが、これらの領域ではシグナル強度が弱く、測定に適していなかった。既存の長石の熱ルミネッセンス測定では 600℃ の高温での発光を利用した例もあるため、より高温で発光する成分によるデータの取得を試みた。装置の特色から 500 度以上の高温で測定することが難しかったので、光励起ルミネッセンス測定で利用される赤外光照射を利用し、赤外光照射を併用しながら熱ルミネッセンスを図ることを試みた。またその際には一部装置の改変を行なった。得られたシグナルはすべてで赤外光照射の有無により大きく変化をしなかったため、この方法は有効ではないことが明らかになった。熱ルミネッセンスの発光プロファイルは昇温速度に依存することから、次は昇温速度をより遅くすることにより、よりエネルギーを必要とするルミネッセンスサイトからの発光を促す工夫をすることを目指す。
※1、000 字以上で具体的に記述して下さい。	
見込まれる 成果物	劉 浩田・望月 伸竜・加藤 千恵・Kidane Tesfaye・Muluneh Ameha・藤井 昌和・吉村 令慧・加々島 慎一・乙藤 洋一郎・石川 尚人, Paleomagnetism of volcanic rocks in the Tendaho Graben, Afar Depression, Ethiopia: Implications for formation of volcanic rocks at the spreading center, 日本地球惑星科学連合 2022 大会, SEM15-09, 2022 年 5 月 22 日, 口頭。
※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。	

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	なら ふみこ	提出年月日	2022 年 4 月 18 日	
申請者氏名	奈良 郁子			
所属・職名	名古屋大学環境学研究科日本学術振興会特別研究員			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☐ 新規 ☒ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	湖底堆積物中の微量元素分布に基づく 1950 年以降の能登周辺における重金属汚染と黄砂の影響評価			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～2022 年 3 月 31 日			
センター教員	松中 哲也			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	奈良郁子	名古屋大学	JSPS-RPD	解析・化学分析・試料調整
	分担者	松中哲也	金沢大学	助教	堆積物放射能測定
		渡邊隆広	日本原子力研 究開発機構	研 究 副 主 幹	微量元素分析
		落合伸也	金沢大学	助教	試料採取
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	湖底堆積物	プラスチックケース 内に圧縮した乾燥堆 積物をビニール袋で 密封した状態	20	
	分析した試料	湖底堆積物	プラスチックケース 内に圧縮した乾燥堆 積物をビニール袋で 密封した状態	20	
研究目的・ 期待される 成果	環日本海域に位置する能登半島は、日本海を経由した大気中の微粒子（エアロゾル）や黄砂といったユーラシア大陸からの物質輸送に起因する環境への影響に加え、能登周辺での人間活動によるローカルな環境負荷を受けている地域である。従って、能登半島で採取した試料を用いて環境変動の要因を評価するためには、大陸からのグローバルな影響と能登周辺からのローカル影響を分けて議論する必要がある。そのためには、周辺の環境変動に関する既存の情報と、新たな手法で得られた分析結果を正確な年代値に基づいて、対比することが重要である。湖底堆積物中の微量元素分析は、過去における重金属汚染や黄砂の影響を明らかにすることができる。昨年度の研究成果として、過去約 50 年間に於いて、能登半島湖底堆積物中での、大陸由来元素の明らかな増加を確認できた。本研究では、能登半島の湖底堆積物から、年代測定と微量化学分析にくわえて、元素分析(有機炭素量、窒素量)およびこれらの安定同位体比($\delta^{13}\text{C}$, $\delta^{15}\text{N}$) 分析を行うことで、近代における能登半島における湖環境の環境変動および整粒活動変動乗り海を目指す。本研究により、近年における能登半島の湖沼環境における環境負荷を議論するための新たな知見が得られると期待できる。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	本研究では、能登半島の付け根に位置する人工池(ビシャグソ池、七尾市)にて採取された堆積物を用いて、Pb-210 および Cs-137 年代測定、無機元素分析(主要元素: SiO₂, TiO₂, Total Fe₂O₃, Al₂O₃, CaO, K₂O, 微量元素: Cl, V, Cr, Cu, Zr, Zn, Rb, Sr, Pb, U)、に加え、元素分析(有機炭素量: TOC、窒素量: TN)、およびこれらの安定同位体比($\delta^{13}\text{C}$, $\delta^{15}\text{N}$)分析を実施した。放射年代測定には、金沢大学低レベル放射能実験施設に設置されている Ge 半導体検出器(LO-AX-51370-20, ORTEC, USA)を、無機元素分析には波長分散型蛍光 X 線測定器(ZSX PrimusII, Rigaku)および携帯型エネルギー分散型蛍光 X 線測定器(portable XRF; Niton XL3t-950S, Thermo Fisher Scientific)を、元素分析および安定同位体比分析には、総合地球環境学研究所保有の Delta V Advantage (Thermo Fisher Scientific)を用いた。放射年代測定結果から、本研究において使用した堆積物試料(B11-1, 堆積物試料長: 62cm)は、堆積深度 24-25cm 間において Cs-137 の増大ピークを示したことから、この堆積深度が西暦約 1960 年付近であると見積もることができる。TOC および TN の分布は、堆積物試料を通して下部から上部へかけて上昇する傾向を示した(TOC; 約 1.5 % から 8 %, TN; 約 0.1 % から 0.8 %,)。TOC および TN は互いに非常に高い相関を持ち($r^2 = 0.962$)、y 軸を TOC とした時にその切片が正の値を取る(0.23)であることから、ビシャグソ池野堆積物中に存在する有機物中には陸由来の炭素が含まれていることがわかる。この結果は、比較的軽い$\delta^{13}\text{C}$ 値(-32.2‰ ~ -26.2‰)からも支持される。更に、$\delta^{13}\text{C}$ および$\delta^{15}\text{N}$ の分布は、堆積物下部から上部にかけて、多少の振幅はあるが、ともに調和的に緩やかな減少傾向を示した(それぞれ、-26.2‰ から -32.2‰、および 4.5‰ から -0.39‰)。湖沼における$\delta^{13}\text{C}$ および$\delta^{15}\text{N}$ を決定する要因として、(1) 陸由来及び湖内由来有機物寄与量の変化、(2) 酸化還元状態の変化を主たる要因として挙げるができる。本研究においては、有機物起源を推定するためのもう一つの指標である C/N 比変動が$\delta^{13}\text{C}$ 分布と特に変動ピークを示す堆積層において調和的な分布が示された。一方で$\delta^{13}\text{C}$ および$\delta^{15}\text{N}$ の分布は、酸化還元環境の指標の一つである無機元素、Mn および Fe の分布とも整合性は示されなかった。さらに、TOC 濃度が同位体分布に対して調和的に増加を示すことから、ビシャグソ池では$\delta^{13}\text{C}$ および$\delta^{15}\text{N}$ から、陸由来有機物の寄与が継続的に増加していたことが考えられる。ビシャグソ池の集水域から池にもたらされる有機物負荷量が増加していることが予測される。
※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。	
見込まれる 成果物	本研究成果を国際学術誌である Limnology 誌に投稿予定である。
※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。	

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	やまむら ひろし	提出年月日	2022年5月22日	
申請者氏名	山村 寛			
所属・職名	中央大学理工学部・教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☐ 単年 ☒ 複数年(2年)	☐ 新規 ☒ 継続
研究分野	☐ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☒ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	NOM の固体励起-蛍光スペクトルデータベースの拡充			
研究実施期間	2020年4月1日～2022年3月31日			
センター教員	長尾 誠也 教授			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	山村 寛	中央大学	教授	NOM の固体 EEM 分析
	分担者	長尾 誠也	金沢大学	教授	NOM 試料の提供
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	*humic acid *fulvic acid *NOM *JHSS 試料 *琵琶湖水フルボ酸	粉末	5	
	分析した試料	*humic acid *fulvic acid *NOM *JHSS 試料 *琵琶湖水フルボ酸	粉末	5	
研究目的・ 期待される 成果	3 次元励起蛍光分光分析法（EEM）は、簡単かつ高感度に蛍光物質を定性、定量しうる分析手法として、これまで、海水および淡水における腐植物質の挙動解明に大いに貢献してきた。EEM スペクトルの解釈には、これまでの研究により得られた膨大なスペクトルデータベースがベースとなっている。 水試料の分析には EEM が有効な一方で、土壌や堆積物などの固体試料に対して EEM を適用した例は極めて少ない。従来は、固体試料から腐植物質を酸・アルカリ、樹脂等を用いて抽出したものを分析していたが、多大な手間と時間、コストがかかるため、複数試料への適用が困難であった。我々は、これまでに固体試料に励起光を照射し、試料表面から発する蛍光を検出することに成功している。この技術を利用すれば、固体試料についても、過度な前処理を必要とせず、含有する有機物についての情報が得られるものと考ええる。 本研究では、固体試料に EEM を適用する Solid-Phase EEM (SP-EEM) の腐植物質への適用可能性について検討すると共に、様々な標準試料を測定することで、SP-EEM のデータベース構築を目的として研究を実施する。SP-EEM を腐植物質に適用した例は世界でもほとんど例がなく、データベースの構築は、今後の腐植物質を取り扱う研究分野にとって重要な研究になりうると考える。 本研究が推進されることで、自然界における腐植物質の挙動解析だけでなく、水処理工程におけるバイオフィーム形成挙動等にも応用できるものと期待する。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究
実施内容・
得られた成
果

膜ろ過法の効率的な運転には、ファウリング原因物質を把握した上で、その成分に適した前処理や運転条件の設定が不可欠となる。我々は膜ファウリング物質を非破壊かつ In-situ で検出する手法として、3次元固体励起蛍光分光法（SPF-EEM）を開発した。一方で、膜面着色によって蛍光強度が低下するクエンチング現象が観察され、SPF-EEM を用いたファウリング物質の定量評価が課題となっている。

本研究は、着色による蛍光強度低減効果の補正を目的として、固体試料の吸光率に着目した補正手法を新たに開発する。具体的には、ウシ血清アルブミン（BSA）粉末を標準蛍光物質とし、様々な顔料と混合した着色 BSA 粉末試料について、拡散反射率から算出される K-M 関数を利用することで、粉末試料に含まれる蛍光成分を定量する。

実験方法

（１）着色粉末試料の作成

試験で使用した BSA 粉末、ホウ酸および顔料は、メノウ鉢ですりつぶした後に、ふるいにかけたものを使用した。BSA 粉末に着色顔料として 5wt%の赤または黒の顔料粉末および白色のホウ酸粉末を混合することで、6種類の BSA 濃度（1、5、10、20、50、95 vol%）について、多様な色彩、色度を有する BSA 粉末試料を作成した。

（２）測定項目および方法

粉末試料を石英製のセルに均一に封入したものを円形の固体試料ホルダーに装着した後、SPF-EEM（蛍光分光光度計、F-7100）、拡散反射率（紫外・可視分光光度計、U-3900）をそれぞれ測定した。SPF-EEM は、ホトマル電圧 400 V、スリット幅 2.5 nm、励起光間隔 5 nm、蛍光間隔 1 mm、スキャンスピード 30,000 mm/min の条件で測定した。拡散反射率は、酸化アルミニウム板を標準試料として用いた。各波長の拡散反射率を式 1 に代入することで、固体試料の吸光率を示す K-M 関数に変換した。

$$KM(\lambda) = \frac{[1 - R(\lambda)]^2}{2R(\lambda)} \quad (\text{式 1})$$

なお、 $KM(\lambda)$ は波長 λ を変数とする K-M 関数、 $R(\lambda)$ は波長 λ における拡散反射率を示す。

結果および考察

固体試料分析では、光源から入射する励起光のうち、固体試料中の色度成分に吸収されたり、散乱する光を除いた光量が有効照射量として試料に到達する。また、試料から放射された蛍光のうち、試料中で再吸収されたものを除いた光が有効蛍光量として検出される。このような、励起光の吸収・散乱および蛍光の再吸収が、固体試料の蛍光分析における、蛍光強度減衰（クエンチング）現象の主因とされる。

図 1 に、色彩と濃度が異なる BSA の蛍光強度（ $E_x/E_m = 280/330 \text{ nm}$ ）測定結果を示す。BSA の蛍光強度は、濃度の増加に伴って、蛍光強度が飽和する対数増殖曲線を描いた。飽和曲線は、試料の色度によって異なり、色度が増加するほど、飽和蛍光強度が低下する傾向が観察された。これは、色度成分による励起光の吸収が蛍光強度に影響したものと推測する。

励起光の吸光度を K-M 関数により算出した結果、蛍光強度と K-M 関数（280 nm）の積が、質量%濃度に対して線形的な関係になることを発見した（図 2）。これにより、蛍光強度と K-M 関数の積から、任意成分の質量%濃度が推定可能になった。

K-M 関数は、分光光度計を用いて測定した拡散反射率を利用したが、励起光の散乱は、蛍光測定時のレイリー散乱光にも同様に反映されると考える。着色粉末試料と酸化アルミニウム板のレイリー散乱光強度から拡散反射率を算出した結果、BSA 濃度が 20wt%以上において、図 2 と同様の線形関係が得られた。低濃度域では、レイリー散乱光の強度が低いため、散乱光の検出が難しかったものとする。

以上の結果より、SPF-EEM のうち、蛍光強度とレイリー散乱を利用することで、

簡易かつ高精度に、任意の固体蛍光物質を定量できる可能性が示された。

結論

有色固体試料の SPF-EEM におけるクエンチングには、色度成分による励起光の吸収が大きな影響を及ぼしており、蛍光強度と K-M 関数の積を用いることで、任意の蛍光物質の定量分析が可能になることが示された。

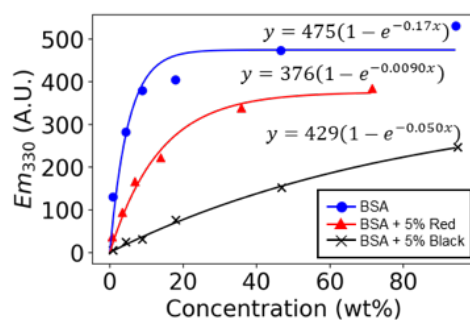


図 1.各濃度の着色 BSA 試料の蛍光強度

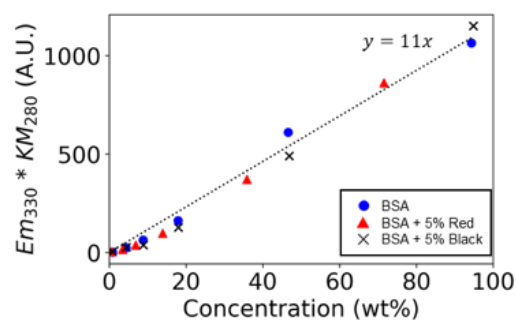


図 2.蛍光強度と K-M 関数の積と濃度の関係

※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。

見込まれる
成果物

卒業論文
富田彩花、2021 年度 卒業論文

口頭発表
第 56 回 日本水環境学会年会、3 月、2022 年

※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	なかむら たく	提出年月日	2022 年 5 月 24 日	
申請者氏名	中村 琢			
所属・職名	岐阜大学教育学部・准教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☐ 新規 ☒ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	南極におけるベリリウム7の観測と日本海域との比較研究			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～2022 年 3 月 31 日			
センター教員	井上睦夫 准教授			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	中村琢	岐阜大学	准教授	試料測定・解析・統括
	分担者	井上睦夫	金沢大学	准教授	試料測定
		三輪美代子	岐阜大学	技術専門職 員	試料測定・解析
		平沢尚彦	国立極地研究 所	助教	試料作製・解析
		田阪茂樹	岐阜大学	名誉教授	試料測定・解析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料			物質名	形態（形状）	試料数
		申請書に記載 した試料	ベリリウム 7 (7Be)	ガラス繊維フィルタ ーで捕捉したエアロ ゾル	200
		分析した試料	ベリリウム 7 (7Be)	ガラス繊維フィルタ ーで捕捉したエアロ ゾル	184
研究目的・ 期待される 成果	本研究は南極昭和基地における大気中のベリリウム-7 (7Be) を観測し、日本海域の測定データと比較するものである。7Be は成層圏もしくは対流圏上層において、宇宙線と大気中の酸素、窒素の原子が衝突して、原子核破砕反応で生成する宇宙線生成核種である。生成後、周囲のエアロゾルに付着してエアロゾルと同様な挙動をすると考えられるため、南極地域および日本海沿岸地域の大気の挙動の可視化が期待される。南極地域の大気中塵の採取は第 60 次南極地域観測隊 (JARE60) において 12-23 時間周期で行われている。COVID-19 の影響により試料回収が遅れたため、これまで岐阜大学で測定した方法では測定できない。そこで金沢大学の低バックグラウンドの半導体検出器において約 1 年 2 か月前に採取した試料中の 7Be 濃度の有限値を得ることを目的とする。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究
実施内容・
得られた成
果

本研究は 2020 年度からの継続研究である。2019 年 12 月から南極大陸の昭和基地において、第 61 次南極地域観測隊 (JARE61) でエアロゾルの採取を開始した。本研究は試料交換を 1 日ごとに行い、エアロゾル試料に含まれるベリリウム-7 (^7Be) の濃度を日別で測定することが特徴である。 ^7Be の半減期は 53.3 日と短いため、物理的減衰を考慮して速やかな測定が必要となる。当初 2020 年 11 月に試料の回収を予定していたが、新型コロナウイルス感染症 (COVID-19) の拡大に伴い、2021 年 12 月までできなくなった。この時点で古い試料はすでに 14 か月経過しており、地上に設置した半導体検出器では検出が難しい。本研究では岐阜大学の半導体検出器で測定できない試料について、金沢大学の極低バックグラウンドの半導体検出器を使用して、極低濃度の ^7Be の放射能濃度を測定した。

(1) 試料の作成

大気中のエアロゾルは、ハイボリュームエアーサンプラー (Shibata, HV-500F) を用い、ガラス繊維フィルター (ADVANTEC, GB-100R) で捕集した。1 日あたり 23 時間捕集し、都度フィルターを交換した。大気の流量は 800L/min, 1 試料当たり 1100 m^3 である。

(2) 測定方法の検討

試料の測定は 1 日分ずつ行うことを基本とした。岐阜大学で測定できる試料とできない試料に弁別し、できない試料は金沢大学用の容器に加工した。試料捕集から時間経過により、物理的減衰で 1 枚の試料で検出限界以下となるものは、2 日分を積層して測定する。2 日分でも検出できないものは 3 枚目というように、1 枚ずつ試料を増やしていく方法で測定した。金沢大学では校正線源の形状にあう円筒形のプラ容器を用い、最大で 11 枚まで積層できる方法を確認した。

(3) 南極大陸の大気エアロゾルの ^7Be 濃度測定

南極大陸で捕集したエアロゾルの試料は、ガラス繊維フィルター 269 枚である。フィルターの回収時期に合わせて 3 期に分け、1 期 (2020 年 1 月 11 日 - 2021 年 1 月 21 日), 16 試料, 2 期 (2020 年 1 月 28 日 - 10 月 2 日), 184 試料, 3 期 (2020 年 10 月 3 日 - 2021 年 4 月 22 日), 69 試料からなる。測定は、1 期は 2020 年 4 月 3 日 - 4 月 30 日に岐阜大学において、2 期は 2021 年 3 月 31 日 - 7 月 19 日に金沢大学において、3 期は 2021 年 3 月 19 日 - 4 月 22 日に岐阜大学においてそれぞれ行った。1 期の試料は全 16 試料で ^7Be を検出した。2 期の試料は 149 試料で ^7Be を検出し、35 試料は検出限界以下となり検出できなかった。3 期の試料は全 69 試料で ^7Be を検出できた。本研究で行った JARE61 の試料は過去の JARE46 (2005 年 - 2006 年) の検出率 45% を大幅に上回る 87% を達成した。

(4) JARE46 と JARE61 の比較

JARE62 で得られた ^7Be の結果と JARE46 の結果を比較すると、 ^7Be の濃度は夏に高く、冬に低い傾向が再現された。JARE61 は全体的に JARE46 よりも ^7Be 濃度が 1~2mBq/ m^3 程度高くなり、夏に 8Bq/ m^3 、冬に 6mBq/ m^3 程度であった。また、7 月 - 9 月の冬季には ^7Be 濃度がその前後と比べて若干高くなる傾向が観測された。これは JARE46 を再解析したところ、わずかに同様の傾向が見られた。

さらに ^7Be とオゾン濃度を比較した。オゾンは ^7Be と同様な低分子量であり成層圏で生成され循環によって運ばれることから、 ^7Be とオゾンの挙動の類似性が期待される。JARE46 では 11 月 ~ 12 月では、オゾンと ^7Be がともに上昇する期間が 3 度観測された。JARE61 では JARE46 と同様な傾向となり、11 月 ~ 12 月にオゾンと ^7Be の同時に急上昇する期間を複数確認された。

※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。

見込まれる 成果物	Norihiko Hirasawa, Taku Nakamura, Miyoko Miwa, Kazuma Aoki, Tetsuro Ojio, Kyohei Yamada, Shigeki Tasaka, 7Be concentrations in surface air over the Indian sector of the Southern Ocean and at two Japanese coastal Antarctic stations in the summers of 2014/15, 2016/17, and 2017/18. Polar Data Journal. 2022. T. Nakamura, N. Hirasawa, M. Miwa, S. Shirayama, H. Yasuda, S. Tasaka, Be-7 concentration of surface air at Syowa Station, Antarctica in 2020. International Join Symposium, Institute of Nature and Environment Technology, Kanazawa University. 2021. 安田悠人, 大気中の Be-7 濃度および変動要因の観測, 岐阜大学卒業論文, 2022.
--------------	--

※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	かとう しゅんご	提出年月日	2022 年 5 月 9 日	
申請者氏名	加藤 俊吾			
所属・職名	東京都立大学 都市環境学部 環境応用化学科			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☐ 単年 ☒ 複数年(2年)	☐ 新規 ☒ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	日本海沿岸地点における大気中の揮発性有機化合物および水素の長期観測			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 31 日			
センター 教員	松木篤			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	加藤俊吾	東京都立大学	准教授	観測
	分担者	松木篤	金沢大学	准教授	データ管理
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	揮発性有機化合物 水素・一酸化炭素	大気（ガス） 大気（ガス）	60 個	
	分析した試料	揮発性有機化合物 水素・一酸化炭素	大気（ガス） 大気（ガス）	60 個	
研究目的・ 期待される 成果	WHO の報告では現在大気汚染で年間 420 万人もの人が死亡すると報告されているが、その中でも問題になっているものに対流圏オゾン（光化学オキシダント）と PM2.5（微小粒子）がある。オゾンや微小粒子の生成には揮発性有機化合物（VOC）が深くかかわっている。VOC はさまざまな種類がありそれぞれ反応特性もことなり、どの程度オゾンや粒子を生成するかが違っている。そのため、VOC を各成分ごと分けて測定をする必要がある。 VOC の測定は主に都市域で行われているが、離島や沿岸部などの清浄地域での観測はごくかぎられている。日本海に面した珠洲での観測により、VOC などの大気微量成分がどの程度外国から国内に輸送されているのかを知ることは重要である。また、大気中の水素は化石燃料からの代替エネルギーとして将来利用増加が予想されるが、水素の全球的な増加は地球環境にも影響を与えることが指摘されている。そのため、現在からリモート地での水素濃度がどのようなものなのかモニタリングをして情報を蓄積していくことは今後の大気質の変遷を見守るために必要となる。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	石川県珠洲の能登半島スーパーサイトにおいて週一回の頻度で大気観測を行った。金属容器に大気をダイアフラムポンプによるサンプリングを週一回、現地スタッフの協力により行った。6 月には高頻度でのサンプリングもおこなった。サンプリング済みの金属容器は、宅配便で東京都立大学におくり、濃縮装置による処理のあと GC/FID により分析した。VOC58 種混合の標準ガスの分析結果との比較により、各 VOC 成分の濃度を決定した。 また、大気サンプルを GC/RGD（還元性ガス検出器）でも分析を行い、水素および一酸化炭素濃度も測定した。 大気サンプリングポンプ等のメンテナンスが必要になったため、2021 年 11 月に現地を訪れて作業を行った。またその際に、秋季に新粒子生成が活発になる原因として植物起源の VOC が関与していないかの調査のため、通常は行っていない夜間の大気サンプリングを行った。 VOC の定期的な観測により、リモート地点での各 VOC についての一般的な季節変動が得られてきており、ほとんどの VOC は夏季に低濃度となっている。これは日射により生成される OH ラジカルが VOC を除去するからだと考えられる。しかし、植物から放出される VOC については植物活動が活発となる夏季に高濃度となる傾向が見られた。 珠洲で 11 月に夜間にも新粒子生成が多くみられるという報告があるため、この期間に夜間でどのような植物起源 VOC 濃度になっているのかの測定を行った。11 月に測定した結果からは、植物起源 VOC は主に β-pinene などのテルペン類となっており、夏期と比べて低濃度となっていた。そのため、秋の夜間になにかしらの影響で植物起源 VOC が高くなり粒子生成の核としてなっているのでは、という仮説は支持されない測定結果となり、別の新粒子生成プロセスが重要であろうことが確認できた。 また、珠洲で観測される VOC についてその場での粒子生成にどの物質が寄与しうるかを見積もる二次有機粒子生成ポテンシャル (secondary organic aerosol potential) を用いて、各 VOC からの粒子生成能を見積もったところ、toluene, xylene などの芳香族炭化水素の寄与が大きくなった。バックワードトラジェクトリーでの解析を用いると、これらの成分はとくに空気塊の輸送起源によって濃度差が見られなかった。また、benzene を除いて大気中の寿命はそれほど長くないため、これらの報告族炭化水素は長距離輸送ではなくローカルな発生源の影響をうけている可能性が高いのではないかと考えられる。
見込まれる 成果物	東京都立大学 卒論論文 「能登半島珠洲における VOC の測定と粒子生成への寄与の検討」 対馬悠介, 2022 年 3 月

※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。

※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	たかた ひょうえ	提出年月日	令和4年 4月 18日	
申請者氏名	高田 兵衛			
所属・職名	福島大学 環境放射能研究所・特任准教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☐ 新規 ☒ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	日本の東西沿岸域における東電福島第一原発由来放射性 Cs の動態把握			
研究実施期間	2021年 4月 1日～ 2022年 3月 31日			
センター教員	金沢大学環日本海域環境研究センター 井上睦夫			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	高田兵衛	福島大学環境放射 能研究所	特任准教授	試料採取 前処理
	分担者	井上睦夫	金沢大学環日本海 域環境研究センタ ー	准教授	ゲルマニウム半導体検出器による測定
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	河川水 沿岸水	弱酸性 （20L プラスチック容 器）	約 40	
	分析した試料	河川水 沿岸水	弱酸性 （20L プラスチック容 器）	約 10	
研究目的・ 期待される 成果	（環日本海域との関連性がわかるように記載してください） 東電福島第一原発事故後、『日本の西海岸側』に位置する日本海沿岸において、北太平洋に沈着した事故由来の放射性 Cs が、対馬暖流に乗って東シナ海から対馬海峡を介して流入し、日本海の沖合を中心に放射性 Cs 濃度を高めていることがわかっている。この暖流による影響は、陸に近い沿岸域の海水でも見られたことが平成 28－29 年度の本共同研究による調査で明らかとなった（Takata et al.、2018）。これまでの結果に、平成 30 年度の同共同研究の結果を加え、放射性 Cs 濃度の経年的な変化を確認することが可能となり、沿岸海水の放射性 Cs の濃度レベルは若干の減少傾向に転じていることが分かった。加えて、2021 年度には 2020 年度に引きつづき、日本海側の河川として、手取川の調査を行い、放射性 Cs は不検出であることが分かった。 これらのことから、上記対馬暖流によってもたらされた放射性 Cs が、日本海側における沿岸海水の放射性 Cs 濃度レベルに影響を及ぼしていることが明らかとなった。ただし、日本海側での河川調査は単年度のみの結果であり、経年的な影響がないことを明らかにする必要がある。 一方、『日本の東海岸側』の福島県南部から茨城県の沿岸域では未だに事故前のレベルを超える海水中の放射性 Cs 濃度が検出されている（Takata et al.、2020）。これは、東電福島第一原発施設からの直接漏洩だけでは説明出来ない局所的な上昇のため、陸域に沈着した放射性 Cs が、河川を介して同沿岸域へ流入する可能性を否定できない。2021 年度については様々な河川に焦点を置いて調査を行い、河				

川からの放射性 Cs の流出量を見積もった。その結果、同原発からの直接漏洩による流出量の 10% 程度の流出量と推定された。

これまでの継続的な共同研究によって、東西での沿岸海域における海水中の放射性 Cs 濃度レベルを支配する要因は異なることがわかり始めている。

調査域を両沿岸側に拡大することで、

『日本の東海岸側』では同原発からの直接漏洩と、河川流入によって

『日本の西海岸側』では対馬暖流によって

放射性 Cs レベルに影響を与えることがわかってきた。しかしながら、各海域での支配要因について、今後は経年的な調査の積み重ねによって定量的な評価をする必要がある。

そこで、引き続き両海岸での同事故由来の放射性 Cs の動態や濃度レベルを支配する因子（西海岸側：対馬暖流、東海岸側：同原発からの直接流出及び河川）の影響について定量的に比較し、また、両者を比較することで、その支配因子の理解がより深化すると考える。そこで、本研究では以下の 2 調査を行う。

『日本の東海岸側』調査：福島県の東電福島第一原発の帰還困難区域を除く河川と沿岸における調査を行う。

『日本の西海岸側』調査：日本海側の沿岸域における放射性 Cs 濃度レベル把握のための石川県における河川—沿岸域調査。特に、日本海側に注ぐ河川（手取川を中心に）での調査を行う。

本調査は、両沿岸側での放射性 Cs 濃度レベルが異なる支配要因について、これらの影響を定量的に評価することを目的とする。

※申請書に記載した事項を要約して下さい。

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	研究は以下のように行った。 <u>調査および実験</u> 『日本の西海岸側』調査：日本海側の沿岸域における放射性 Cs 濃度レベル把握のための石川県における河川―沿岸域調査、特に、日本海側に注ぐ河川（手取川）での調査を行った。 『日本の東海岸側』調査：福島県の東電福島第一原発周辺に位置する河川から沿岸での調査を行った。これら河川は福島県の沿岸域における海水中放射性 Cs 濃度に影響を与える要因と考えられる。 試料採取について、西海岸側では 2021 年に石川県小松市の沿岸において、40L の海水を採取した。手取川下流において、200L の河川水の採取を行った。東海岸側の河川及び沿岸海水については各 40L 採取し、出来る限り西側と同時期に採取を行った。各試料を福島大学に持ち帰り、孔径 $0.45\mu\text{m}$ のメンブレンフィルターにてろ過を行い、ろ液を溶存態、フィルター上の粒子を粒子態に分けて、溶存態に濃硝酸を添加し弱酸性とし、リンモリブデン酸アンモニウム（AMP）を添加し、セシウムを AMP に吸着させ、その AMP を捕集、乾燥後、低バックグラウンドゲルマニウム半導体検出器で放射性 Cs を測定した。また、放射性 Cs である ^{137}Cs の検出下限値は 0.1 Bq/m^3 であった。なお、^{137}Cs 濃度は、採取日に減衰補正した。 <u>結果</u> 西海岸側の手取川では溶存態 ^{137}Cs 濃度が検出下限値未満であった。小松市の沿岸の海水中の溶存態 ^{137}Cs 濃度は約 2 Bq/m^3 であり、例年通りの数値であったが、河川中の溶存態 ^{137}Cs 濃度よりも高い結果となった。また、粒子態 ^{137}Cs は河川、海水のいずれでも検出されなかった。今年度は河川中の粒子を 200 L もの大量ろ過を実施し 1 g 程度の粒子が採取できたが、同軸型のゲルマニウム半導体検出器での測定であったため、ジオメトリによる検出効率があまり良くなかった。今後は試料の減容化も考慮にして、井戸型のゲルマニウム半導体検出器で検出できるように検討する。 東海岸側においては河川中の溶存態 ^{137}Cs 濃度は 1 Bq/m^3 未満から最大約数十 Bq/m^3 の範囲であった。沿岸海水中の溶存態 ^{137}Cs 濃度も河川と同様の濃度レベルであった。また、帰還困難区域以外の河川においては粒子態 ^{137}Cs 濃度は 100 Bq/m^3 近くまで上昇することもあり、土砂が河川水に流れ込み、その結果粒子態が高まったと考えられる。更に、河川から海洋へと流れ込んだ粒子態 ^{137}Cs のうち、一部は海水中に含まれるカリウムなどのイオンとの間で行われるイオン交換反応によって、溶存態へと移行したことも示唆された。 以上のことから、西海岸側の沿岸海水中の放射性セシウム濃度は河川からの影響は見られないことが分かった。なお、沿岸海水中の溶存態 ^{137}Cs 濃度は福島第一原発事故前に比べ高いことから、これは事故直後、北太平洋の表層に沈着した放射性 Cs のうち、一部が対馬海流によって日本海へと到達し、それが海岸まで至っていること、更にその影響が現在でも継続していることを確認した。 ※1、000 字以上で具体的に記述して下さい。
--	--

見込まれる 成果物	原著論文 日本海側に流入する河川中の放射性セシウム濃度検出に向けた検討（着想段階）
※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。	

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	あおき かずま	提出年月日	2022年 5月 12日	
申請者氏名	青 木 一 真			
所属・職名	富山大学学術研究部理学系・教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☐ 新規 ☒ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	富山湾を挟むエアロゾルの光学的特性の変動			
研究実施期間	2021年 4月 1日～ 2022年 3月 31日			
センター 教員	松木 篤			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	青木一真	富山大学学術 研究部理学系	教授	研究統括 エアロゾル解析
	分担者	松木篤	金沢大学	准教授	分担するセンター教員
		佐藤真樹	富山大学大学 院理工学教育 部	博士 3 年	データ解析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	太陽光及び周辺光の各 波長の輝度	デジタルデータ	晴天時 1 分おき	
	分析した試料	エアロゾルの光学的特 性	デジタルデータ		
研究目的・ 期待される 成果	2009 年より環日本海域環境研究センター（松木篤准教授）と共同で、能登大気観測スーパーサイト珠洲測定局の立ち上げからエアロゾルの光学的特性の観測を行ってきた。この地域では環日本海域、とりわけ富山湾に長距離輸送される大気汚染物質や黄砂などの影響をモニタリングが重要であり、珠洲の観測はもちろん、富山や立山で同様な観測研究を行ってきた。2020 年度にはじめて共同利用研究を申請させて頂きましたが、新型コロナの影響で観測的研究が進まなかったため、さらに環日本海域の環境モニタリング観測を継続し、新たな他分野融合研究の開拓も含め、改めて申請するものである。今までの観測結果などについては、論文や国内・国際学会などで発表し評価を得ている。また、2018 年 12 月に打ち上げられた気候変動観測衛星「しきさい (GCOM-C)」: JAXA の地上検証地としても期待される観測サイトである。				

※申請書に記載した事項を要約して下さい。

利用・研究
実施内容・
得られた成
果

2009 年より環日本海域環境研究センター（松木篤准教授）と共同で、能登大気観測スーパーサイト珠洲測定局で、太陽光とその周辺光の放射輝度を連続観測を行ってきた。本共同研究としては、今年度がはじめてである。本研究は、珠洲市上空のエアロゾルの光学的特性を観測し、同様に観測を行っている富山湾を挟んだ富山などと比較し、水平距離約 100 k m 範囲の大気環境の変動を調査する。観測は、太陽光とその周辺光の放射輝度を 7 波長で自動観測出来るスカイラジオメーターを使って行った。新型コロナの影響で、今年度も観測サイトに行くことができなく、測器のメンテナンスが出来なかった。図は、2002 年 4 月から 2021 年 11 月までの富山における $0.5 \mu\text{m}$ のエアロゾルの光学的特性の月平均値を示したものである。長期的な傾向としては、2000 年代中盤あたりから徐々に減少傾向しながら、季節変化を繰り返している。春に黄砂などによる影響による最大値、春から初夏にかけての大陸から越境する人為起源の大気汚染の影響、秋から冬にかけて最低値を迎える。ただし、本観測からはわからないが、光化学オキシダントは減少しておらず、金沢大学の観測と比較しながら検証していく必要がある。また、新型コロナによる経済活動などによる影響は、想像していたよりは影響がないようである。今後はさらに、様々な他の観測データや他地点との比較をしながら、さらに研究をすすめていきたい。

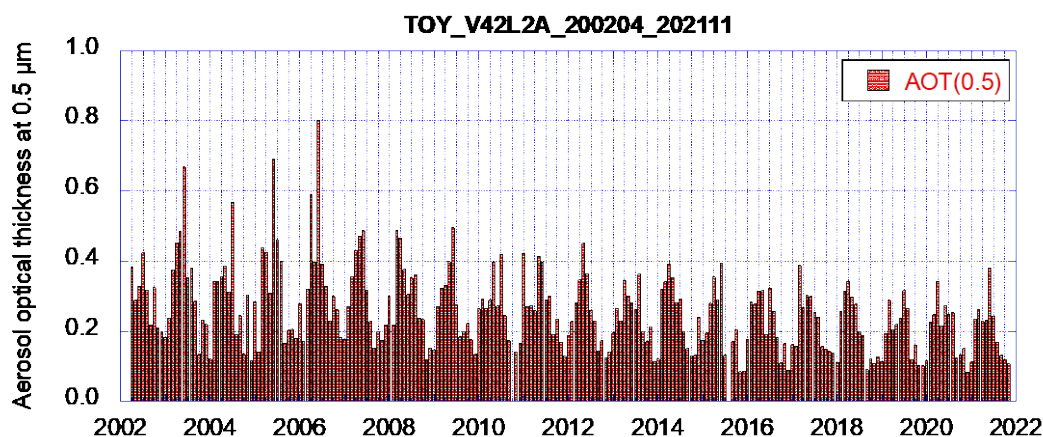


図 2002 年 4 月から 2021 年 11 月までの富山における
 $0.5 \mu\text{m}$ のエアロゾルの光学的特性の月平均値

※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。

見込まれる 成果物	(関連する成果) 1. Amba Masahiro Momoi, Hitoshi Irie, Miho Sekiguchi, Teruyuki Nakajima, Hideaki Takenaka, Kazuhiko Miura & Kazuma Aoki,; Rapid, accurate computation of narrow-band sky radiance in the 940 nm gas absorption region using the correlated k-distribution method for sun-photometer observations. Prog Earth Planet Sci 9, 10 (2022). https://doi.org/10.1186/s40645-022-00467-6. (査読有) 2. Teruya Maki, Kevin C. Lee, Stephen B. Pointing, Koichi Watanabe, Kazuma Aoki, Stephen D.J. Archer, Donnabella C.Lacap-Bugler, Akira Ishikawa,: Desert and anthropogenic mixing dust deposition influences microbial communities in surface waters of the western Pacific Ocean, Science of the Total Environment (2021), https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2021.148026. (査読有) 3. 青木一真: 立山における大気エアロゾル・雲・雪の観測的研究 (MIS23-10, JpGU Meeting 2021、オンライン、2021 年 6 月 4 日) 【招待講演】 4. 卒業論文 2 編 (その他) 報道 (テレビ 1 件、ラジオ 2 件、新聞 1 件)、高大連携 (27 件) ※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。
--------------	--

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	しまさき ようへい	提出年月日	2022 年 4 月 30 日	
申請者氏名	島 崎 洋 平			
所属・職名	九州大学大学院 農学研究院 ・准教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail	simasaki@agr.kyushu-u.ac.jp			
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	植物プランクトンに及ぼすエアロゾル由来汚染物質および水温上昇の複合影響評価			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 31 日			
センター教員	鈴木信夫 唐寧 関口俊男 本田匡人			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	島崎洋平	九州大学農学 研究院	准教授	エアロゾル採取 暴露試験 重金属分析
	分担者	鈴木信雄	環日本海研究 センター	教授	暴露試験
		唐寧	環日本海研究 センター	教授	エアロゾル採取 PAH 分析
		関口俊男	環日本海研究 センター	助教	暴露試験
		本田匡人	環日本海研究 センター	助教	PAH 分析
		大嶋雄治	九州大学農学 研究院	教授	暴露試験
		森裕樹	九州大学農学 研究院	助教	重金属分析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	PAH 類	粉末状	50	
	分析した試料	PAH 類	ガラスフィルター 付着物	18	
研究目的・ 期待される 成果	意義・目的：日本海域は対岸諸国からの大気汚染に曝されている。大気中のエアロゾルは PAH や重金属等を含む場合があり、海域に負荷された汚染物質の水圏生態系への影響が懸念されるが、エアロゾルから抽出した汚染物質群の水生生物への毒性を直接評価した報告は少ない。一方、地球温暖化による海水温上昇が日本海域でも近年確認されており、これらの複合的な影響評価が急務である。本申請では海域の主要な基礎生産者である植物プランクトンを対象生物とし、増殖および光合成活性に及ぼすエアロゾル付着汚染物質群および水温上昇の複合影響を評価することを目的とする。 本研究の特色：エアロゾルには多様な汚染物質が付着していると予想され、エアロゾル由来の汚染物質と水温上昇との複合的影響を評価する点に特色がある。 期待される成果：植物プランクトンのエアロゾルを介した海洋汚染および海水温上昇は今後も継続することが予想されるため、現在および将来におけるこれらのストレスが海洋の基礎生産に及ぼす影響予測に関する重要なデータを提供すると期待される。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	エアロゾル採取：九州大学伊都キャンパス（福岡県福岡市西区元岡744）west5号館屋上にハイボリウムエアサンプラ（MODEL-120SL，紀本電子工業）を設置した。2020年度は2020年8月から10月までは2週間に1回、11月以降は週1回、ガラスフィルター（TX40HI20-WW, Pall）上にエアロゾルを24時間採取した（1 m³/分，合計約1450-1470 m³）。2021年度はさらに継続して2週間に1回の頻度で周年採取した。採取前および後のフィルターは2日間デシケータ内で乾燥後、それぞれ重量を測定してエアロゾルの重量を秤量した。その後-20℃でフィルターを冷凍保存した。2021年度のフィルターサンプル中のPAH類等濃度については現在未分析であり、今後順次分析を行う予定である。 植物プランクトンへのエアロゾル曝露試験：今年度はジクロロメタン：ヘキサン（1:1）画分の植物プランクトン（海産珪藻）への影響評価法の確立を行った。2020年8月5日から2021年1月13日の期間に採取したエアロゾルサンプルのうちPAH類の合計値（フルオランテン+4環以上）が異なる4サンプル（9月10日分：351.7 pg/m³、10月7日分：6971.4 pg/m³、11月12日分：5240.5 pg/m³、12月1日分：2097.6 pg/m³）のフィルター25 cm²を1 cm²未満のサイズに裁断後、ジクロロメタン：ヘキサンに浸漬して超音波抽出を行った（3回）。抽出液を窒素気流下（40℃）で約5 mLに濃縮後、フィルター由来と思われる白色の微細な残渣を遠心分離により除去した。上澄みをさらに窒素により乾固させた後、アセトンを約5 mL添加して攪拌により乾固物を溶解させ、さらに100 μLまで濃縮した。それぞれの抽出液100 μLのうち、10 μLをプランクトン培地約19 mLに添加・混和後（アセトン濃度0.05%）、浮遊性海産珪藻 <i>Thalassiosira pseudoana</i> を10000 cells/mLとなるように添加し、トータル20 mLに調整した試験培養液を4本のネジロ試験管に4 mLずつ分注した。水温20℃、100 μmol photons/m²/s、12L:12Dの光条件下で72 h培養し（N=4）、0, 24, 48, 72 hごとにin vivo クロロフィル蛍光を測定することにより増殖をモニターした。昨年度測定したエアロゾル中PAH類濃度から計算した培養液中のPAH類濃度は、9月10日分：5.1 ng/mL、10月7日分：106.8 ng/mL、11月12日分：84.7 ng/mL、12月1日分：32.4 ng/mLであった。72時間培養後の増殖速度を算出した結果、9月10日分は溶媒対照区の99.9%、10月7日分は96.6%、11月12日分は98.1%、12月1日分は98.4%と大きな影響は観察されなかったが、PAH類濃度が最も低い9月10日分以外は全て有意（Dunnett test: P<0.01）に増殖速度が減少していた。またPAH類濃度と増殖速度の間に高い相関（r=-0.94、単回帰分析:P=0.057）が観察された。昨年度のピレンを用いた同生物・水温・光条件下での試験でも10 ng/mLでは増殖に影響がなかったが、50 ng/mLおよび250 ng/mLで有意な増殖阻害が観察されており、今回の有意な増殖阻害が観察されたPAH類の推定濃度範囲（32.4 ng/mL以上）と大きな乖離はなく、観察された増殖阻害は、主にエアロゾル抽出液に含まれるPAH類による可能性が考えられ、本法によるエアロゾル含有PAH類の基礎生産に及ぼす有害性評価が可能であると考えられた。今後はさらにサンプル数を増やして本法の有用性を検証していく予定である。 ※1,000字以上で具体的に記述して下さい。
見込まれる 成果物	環境毒性学会（2023年度） ※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	ちょう けい	提出年月日	令和4年 5月30日	
申請者氏名	張 勁			
所属・職名	富山大学学術研究部 (理学系)・教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☐ 新規 ☒ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	複数の化学トレーサーを用いた東シナ海外部陸棚域の水塊形成と時空間的物質輸送過程の把握			
研究実施期間	令和3年4月1日 ～ 令和4年3月31日			
センター 教員	長尾 誠也			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	張 勁	富山大学学術 研究部（理学 系）	教授	研究統括
	分担者	長尾誠也	金沢大学環日 本海研究セン ター	教 授	機器分析指導
		片境紗希	富山大学大学 院理工学教育 部	D3	試料採取；放射能分析
		Zhu Siteng	富山大学大学 院理工学教育 部	D2	現場観測；化学分析
		大塚進平	富山大学理学 部	M1	試料採取；放射能分析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	海水	粉末状（濃縮作業 済試料）	20	
	分析した試料	海水	粉末状（濃縮作業済 試料）	8	
研究目的・ 期待される 成果	本研究では、広大な大陸棚を持ち、その縁辺部を黒潮が流れる東シナ海において、陸水と外洋の影響を受けた陸棚水の形成過程および陸棚を通した陸起源物質の外洋への輸送状況の定量的評価を目的とする。東シナ海陸棚域から黒潮周辺海域および日本海への物質輸送の時空間的挙動を見積もることで、外洋と縁辺海との物質交換、特に沿岸域から外洋への物質輸送に基づいた海洋環境の包括的な理解を目指す。本研究の特色は、実測による化学トレーサーを用いた海洋循環構造の推定と、個々の物質輸送に直接関与する海水混合など素過程の研究をリンクさせることであり、東シナ海の環境変化が日本海や西太平洋に及ぼす影響を明らかにできることが期待される。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					
利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	東シナ海（ECS）の大陸棚は、黒潮につながる世界でも有数の豊かな漁場である。しかし、1990年代以降、漁獲量は減少の一途をたどっている。主な原因は乱獲であるものの、地球温暖化による海水温の上昇だけでなく、海洋環境の変化もその一因であるとされている。地球温暖化が海洋に及ぼす悪影響の代表的な現象として成層化が挙げられるが、これにより上層と下層・底層間の物質輸送が抑制され、海面付近からの酸素供給が減少し、最終的に底層で低酸素水塊が発生する。本研究では、Ra、希土類元素（REE）を含む微量元素組成を用いて、(1) ECS 外縁棚の海洋構造変化、(2) 地球温暖化に伴う動的層の強化・長期化により拡大する低酸素・低酸素水塊の進化機構を明らかにすることを目的とした。				

2021 年に計画されていた長崎大学水産学部練習船「長崎丸」の研究航海は新型コロナウイルス感染症拡大の影響により中止となった。そこで、2021 年度は過去に採取した海水試料の分析と観測データ解析を中心に行い、ECS の水塊構造および鉛直混合過程を明らかにするとともに、底層の低酸素水の起源と粒子状物質の寄与を定量的に評価することとした。

過去数十年における観測データを解析した結果、ECS において、2004～2020 年の夏季期間に低酸素水が観測された。この低酸素水の起源を希土類元素、温度、塩分を取り入れた混合モデルで同定して定量的評価を行ったところ、内部・中央陸棚（28-72%）と外部陸棚（81±3%）で黒潮亜表層水が低酸素水の形成を支配することが明らかとなった。加えて ECS における栄養塩輸送を推定したところ、主に(1)栄養塩に富む貧酸素底層水のとの混合と、(2)中央・外部陸棚での有機物の分解であることが示された。中央・外部陸棚上の貧酸素底層水への再生栄養塩のフラックスは、夏季に長江から供給される DIN の 18～37%、DIP の 2～5 倍と推定された。本研究の結果で得られた低酸素水が黒潮や対馬暖流に沿って他の海域（特に日本海）に輸送される可能性を考慮すると、これまで大陸棚上の低酸素水等により栄養塩輸送の影響が過小評価されている可能性が考えられた。さらに、大陸棚の低酸素水（～33%）と黒潮水（～67%）の相互作用について、希土類元素と Ra のデータを用いることで定量的な評価も行った。今後は、2022 年 7 月に実施予定の航海にて追加採取を行い、各種化学分析を行うことでより詳細な黒潮と外層棚の間の物質輸送を解析する必要がある。また、間隙水と低酸素水との間の物質輸送を堆積物分布や DOC のデータからより正確に推定、ECS の環境変化が日本海や西太平洋に与える影響についてさらに検討する。

※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。

見込まれる
成果物

Wenjie Deng, Jing Zhang, Siteng Zhu, Keiji Horikawa, Takahiro Endoh, Takeshi Matsuno, Quantitative study on the composition and origins of low-oxygen water in outer shelf of the East China Sea via chemical Tracers
2021 年度日本海洋学会秋季大会
Zhu Siteng、鄧文傑氏の博士論文等で取りまとめる予定である。

※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	よしだ まさあき	提出年月日	2021年 4月 26日	
申請者氏名	吉田 真明			
所属・職名	島根大学生物資源科学部・准教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究
研究分野	☐ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☒ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	環境 DNA による日本海で変動する無脊椎生物相モニタリングと環境汚染物質との関連性			
研究実施期間	2020年 4月 1日～2021年 3月31日			
センター教員	関口 俊男			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	吉田真明	島根大学	准教授	採水・分子実験
		川瀬優花	島根大学	B4	採水・分子実験
		関口俊男	金沢大学	助教	センター担当者
		長尾誠也	金沢大学	教授	シミュレーション
		松中哲也	金沢大学	助教	PAH の測定
		鈴木信雄	金沢大学	教授	海水の前処理
		小木曾正造	金沢大学	主任技術 職員	海水の前処理
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	海水ろ過試料	フィルター吸着物	なし	
	分析した試料	九十九湾の海底泥試料	抽出 DNA (液体)	8	
研究目的・ 期待される 成果	研究の目的: 地球規模での環境変動により、海洋生物と強く関連しており、広範囲の生物相を網羅的に解析することが必須である。本研究は、海洋生物資源の予測にも貢献できる。さらに、継続的に実施している PAH の海水サンプリングとのデータを比較することにより、環境汚染物質との関連を解析する。生態学、分子生物学、環境化学の分野が融合した研究である。本研究では環境 DNA という手法を用いて、日本海の海洋生物の分布調査を周年実施する。さらに日本海を移動している代表的な無脊椎動物(頭足類、棘皮動物類)を対象とした新規環境 DNA 手法を開発する。 特色及び期待される効果: 現在のところ日本海の年単位の変動予測は現状困難である。まず、現状の分布調査と周年変化に関する基礎データを取ることが必須である。この基礎データを基として、これまで、隠岐・能登・佐渡に継続的に測定している PAH の分析データと比較することにより、環境汚染物質との関連についても解析する。 本課題では地域環境の将来予測につなげるべく、日本海を移動している代表的な無脊椎動物(頭足類、棘皮動物類)を対象とした新規環境 DNA 手法を開発する。現在北進している棘皮動物は有毒な危険種も多いため、これらの結果を速やかにプレスリリースすることで地元コミュニティと協力した駆除事業などへ発展させ、地域社会との共生においても波及することが期待される。				

※申請書に記載した事項を要約して下さい。

利用・研究
実施内容・
得られた成
果

「小さな大洋（ミニチュア・オーシャン）」とも呼ばれている日本海は、ミニチュアであるがゆえに、気候変動の影響が大洋よりも早く現れる可能性がある。つまり、日本海をモニタリングすることで今後起こりうる環境変動の影響を見積もることにつながる。隠岐で現在生じている磯焼けや南方生物の定着は、今後徐々に北方に移行していくことが予想され、北陸地域への短期・中期の影響を見積もる上でも重要な情報となると考えられる。また、日本海および周辺域の大気・海洋には、経済発展著しい大陸から流れてくる PM2.5 に付着した有害化学物質が流れてきている。これまでに、隠岐・能登・佐渡の3地点の協力から、日本海の海洋変動と汚染実態を明らかにしつつある。2021年度は改めて連携して研究に当たることを期して、相互に連携協定を結び、越境汚染研究を強化・推進することとした。今回新たに、大気エアースンプラーを隠岐・三瓶に設置し、得られた大気中の微粒子サンプルから、PAH と重金属の同時計測を開始した。

また本年度は、海水循環を探る極めて重要なトレーサーとしてトリウムの放射性同位体を利用して、日本海南西域における対馬暖流第二分枝の循環と動態について明らかにしてきた。さらに、隠岐・能登・佐渡で測定している PAH の採水分析は継続的に行っている。毎月の採水を継続し、環日本海研究センターに海水サンプルを送付した。現在 2019 年までの隠岐近海の PAH のデータ、およびトリウムについて、現在原著論文を投稿中である。

明らかになった海水循環と比較可能なバイオマーカーを作成しすることを目的に研究を行った。本年度は、能登の九十九湾に特異的に産出する浅海性のヒゲムシ動物であるマシコヒゲムシについて着目しサンプリングを行なった。能登臨海実験施設に訪問し、マシコヒゲムシの生体と生息環境の泥を採集し、DNA 抽出を行なった。今後得られたサンプルを用いて、放出される幼生を観測する DNA マーカーを作成するとともに、生息環境である泥中の環境微生物を観測し、他地域と比較して能登に特異的に生息する要件について検討する。また海洋細菌の観測データから、日本海の流れを捉えるのにふさわしい環境 DNA マーカーを検索していく。

※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。

見込まれる
成果物

環境 DNA 解析の成果、特に全国一斉魚類相調査と Tara-JAM BIO マイクロプラスチック合同調査の結果について、センター間で共通した手法を提案し解析結果についても共有する。後者のデータから予備的な解析として日本海特有の要素を示す。本研究は、島根大学自然科学研究科の修士論文の一部として研究を行う予定である。

海産無脊椎動物の環境 DNA 分析の結果について学会発表を行う。これにより環日本海の基本的なデータとサンプリングについて周知することで、広く多様な研究機関によるセンター利用に繋げる。

PAH の測定結果について、共著で原著論文を発表する。

現在 “Seasonal variations in marine polycyclic aromatic hydrocarbons off Oki Island, Sea of Japan, during 2015–2019” というタイトルで原稿をまとめ、Marine Pollution Bulletin に投稿中である。また、Continental Shelf Research にも関連する論文を投稿中である。

※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	しろたにゆうへい	提出年月日	2022 年 5 月 20 日	
申請者氏名	城谷勇陸			
所属・職名	公益財団法人海洋生物環境研究所 中央研究所 海洋環境グループ 研究員			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☐ 新規 ☒ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	襟裳岬周辺海域において検出された福島第一原発事故由来放射性セシウムの日本海及び太平洋からの寄与の推定			
研究実施期間	2022 年 4 月 1 日～2023 年 3 月 31 日			
センター教員	井上睦夫 准教授			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	城谷勇陸	(公財) 海洋 生物環境研究 所	研究員	分析及びデータ解析
	分担者	井上睦夫	金沢大学環日 本海域環境研 究センター	准教授	ガンマ線測定
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態 (形状)	試料数	
	申請書に記載 した試料	海水	バリウム・鉄共沈 物	25	
	分析した試料	海水	バリウム・鉄共沈 物	20	

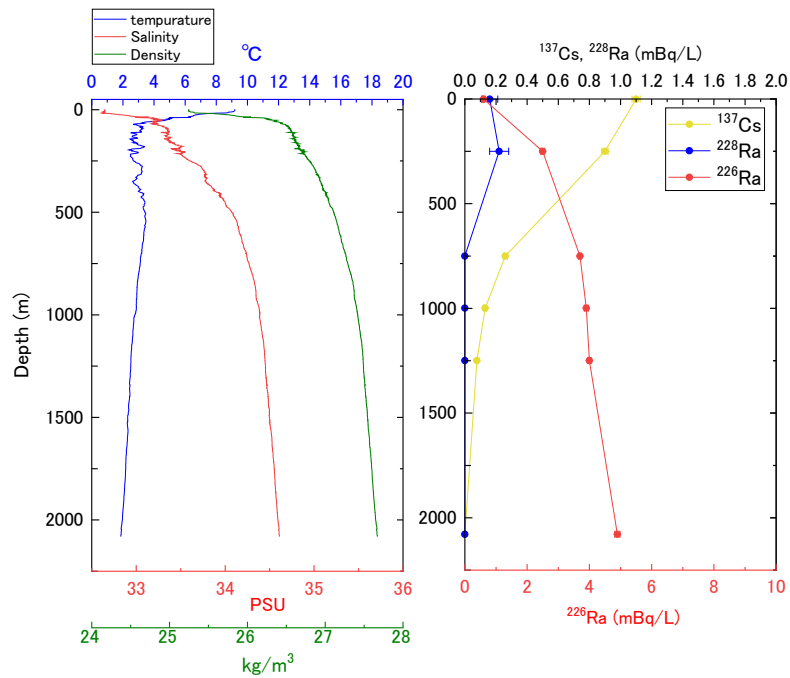
研究目的・
期待される
成果

2016-2017 年にかけてベーリング海にて福島第一原発事故由来の ^{134}Cs が検出された (Kumamoto et al., 2018)。これは、大気から降下した放射性セシウムと直接漏洩した放射性セシウムが、黒潮続流・北太平洋海流によって北太平洋中緯度域を東に表面輸送され、事故後約 4~5 年でアメリカ西海岸に到達し、さらにアラスカ海流によって運ばれたものであると考えられる。今後、アラスカンストリーム・アリューシャン海流による亜寒帯循環に沿って日本近海に回帰することが予想される。当研究所では襟裳岬周辺に測点を設けており、2018、2019 年にはこの測点で福島第一原発事故由来である ^{134}Cs の検出がされ、今後は ^{137}Cs 放射能濃度が上昇する可能性がある。一方で、襟裳岬周辺海域は津軽暖流や親潮、黒潮続流の影響を受け、水塊が複雑な海域である。T-S ダイアグラムのみでは ^{134}Cs が検出された水塊が日本海対馬暖流由来なのか親潮（亜寒帯循環）由来なのか判断が難しい。そこで海洋の水塊分類に有効なラジウム同位体を測定することでより詳細な水塊分類が可能であると考えられる。本研究では襟裳岬周辺海域において検出された福島第一原発事故由来放射性セシウムの起源が日本海もしくは太平洋なのかを推定し、その移行・循環過程の解明をすることを目的とする。この研究により襟裳岬周辺海域の水塊における日本海対馬暖流と親潮の混合割合や親潮による放射性セシウムの回帰が確認できることが期待できる。

※申請書に記載した事項を要約して下さい。

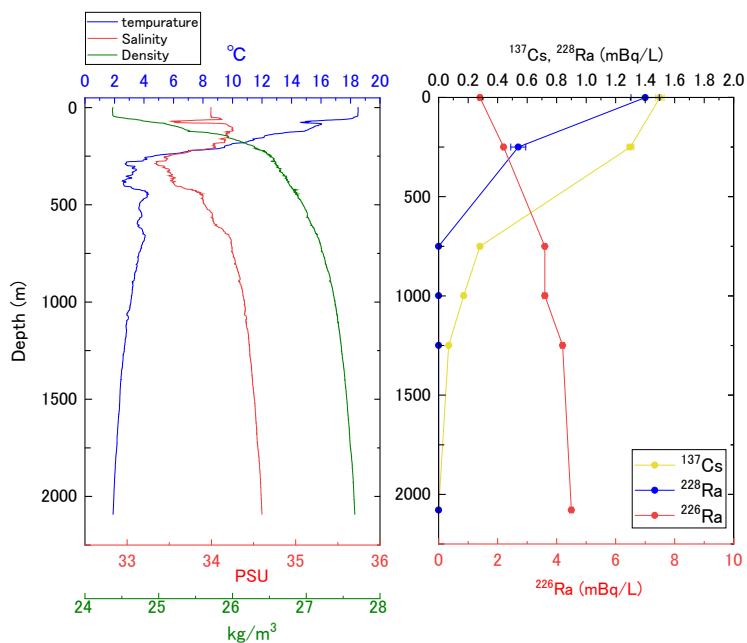
2018 年 6 月に襟裳岬周辺の測点で採取済みの海水 20 試料についてラジウム同位体 (^{226}Ra , ^{228}Ra) の濃度を測定し、下図に示す鉛直分布を得た。

E11(6 月)

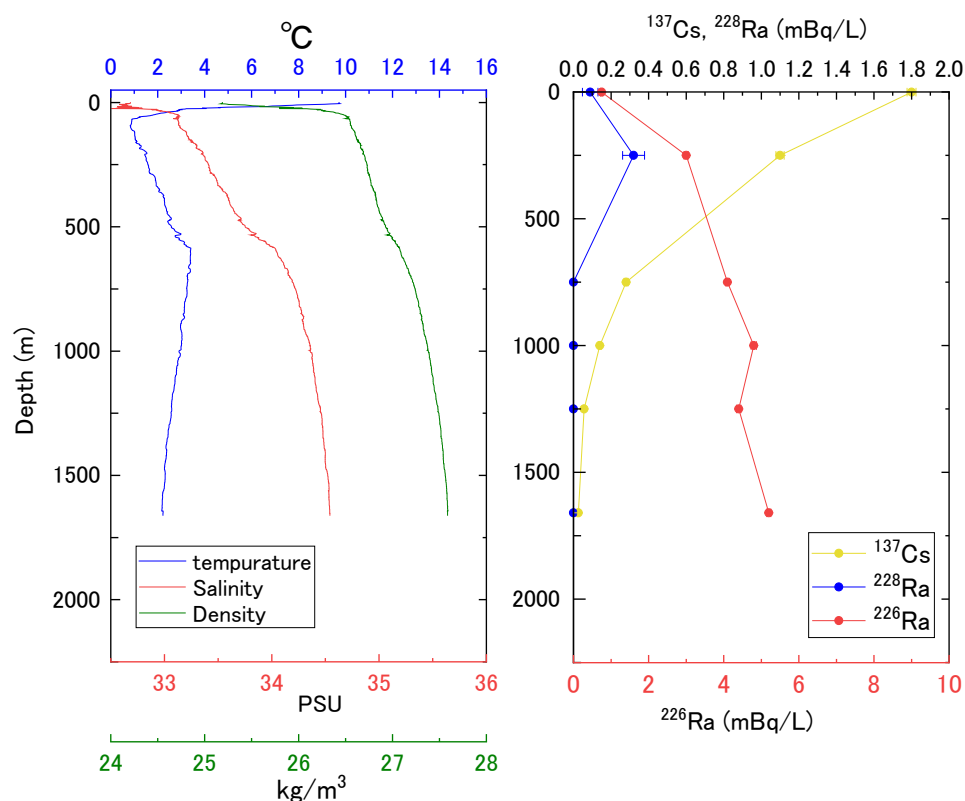


利用・研究
実施内容・
得られた成
果

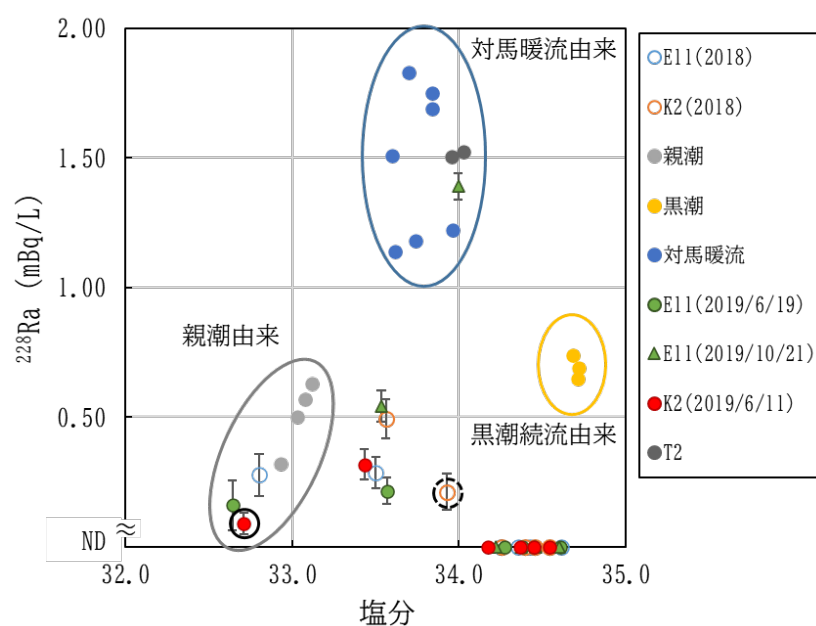
E11(10 月)



K2 (6 月)



鉛直分布から ^{226}Ra 放射能濃度は両測点ともに深度とともに放射能濃度が上昇する傾向がとらえられた。 ^{228}Ra 放射能濃度は測点 E11 では 6 月と 10 月で異なる鉛直分布を示した。表層と水深 250m では 6 月が低く、10 月が高い放射能濃度が確認された。一方で、測点 K2 では水深 250m 層に放射能濃度の極大値が確認された。塩分及び水温の鉛直分布は水深 250m 付近で急激に変化している。これらのことから、水深 250m 付近は表層とは異なる水塊が存在していることが示唆された。



上図に ^{228}Ra 放射能濃度と塩分の関係を示す。黒潮続流と親潮は Kawakami et al., 2008 を、津軽暖流は Inoue et al., 2006 を参照した。これにより、黒潮続流、親

潮、対馬暖流は以下のように特徴づけることができる。

- ・黒潮続流（高塩分、低 ^{228}Ra 放射能濃度）
- ・親潮（低塩分、低 ^{228}Ra 放射能濃度）
- ・津軽暖流（中塩分、高 ^{228}Ra 放射能濃度）

上図の関係から、E11 の 10 月に観測された高い ^{228}Ra 放射能濃度は対馬暖流由来であることが推察される。K2 において採取された海水は黒潮続流と親潮の混合が主であり、ほとんど対馬暖流の影響がみられないと考えられる。2019 年に採取された K2 の表層海水は親潮の影響を強く受けていることが推察された。今後、3 成分の水塊の混合比を計算することで襟裳岬周辺海域への放射性セシウムの寄与の推定を目指す。

※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。

見込まれる
成果物

襟裳岬周辺海域において検出された福島第一原発事故由来放射性セシウムの起源が日本海もしくは太平洋なのかを推定し、その移行・循環過程の解明をする。これらの知見を 2021 年度以降に学会（日本海洋学会を想定）で口頭発表を行うとともに学術論文（Journal of Environmental Radioactivity に投稿を想定）を作成することで成果とする。

※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	かつた ながよし	提出年月日	2022 年 4 月 1 日	
申請者氏名	勝田 長貴			
所属・職名	岐阜大学教育学部・准教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	堆積物の Pb-210 と Cs-137 年代測定に基づく古気候代替指標の確立			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～2022 年 3 月 31 日			
センター教員	落合伸也、長尾誠也			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	勝田長貴	岐阜大が鵜 k	准教授	試料作成・データ解析
	分担者	落合伸也	金沢大学	助教	Ge 測定及び解析
		長尾誠也	金沢大学	教授	解析結果の議論
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	堆積物	粉末	50	
	分析した試料	堆積物	粉末	50	
研究目的・ 期待される 成果	世界人口が集中する東アジア中緯度の気候は、モンスーンと偏西風によって支配されており、これらの変動は近年の温暖化で頻発する豪雨や干ばつなどの異常気象に関与してきた。本研究では、このような変動が気象観測データを利用できる期間（1950 年以降）を超える長期においても生じてきたのかを明らかにすることを目的としており、湖底堆積物を用いて陸域の古気候復元を行えるようにすることが特色となる。堆積物を用いた古気候復元では、高精度の年代軸と信頼性の高い代替指標の確立が重要となるが、本研究の遂行によって、気象観測データとシームレスで繋がる代替指標が得られ、環日本海域を含む東アジアの気候変動の詳細が明らかになると期待される。本課題では、モンゴル湖沼堆積物と北海道南西部大沼湖底堆積物が主な研究対象となる。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究
実施内容・
得られた成
果

【モンゴル高原・ブンツァーガン湖湖底堆積物研究】2014年8月にブンツァーガン（BT）湖で採取した不攪乱の表層湖底堆積物コア（全長28 cm）を用いて、古気候指標の分析と共に金沢大学 LLRL 設置の Ge 半導体検出器により、Pb-210 と Cs-137 年代測定を実施した。年代モデルは、 ^{210}Pb のフラックスが常に一定であるという仮定をおいた CRS（constant rate of supply）が用いられ、1963 年の層準が ^{137}Cs ピークを示す年代軸を確立することができた。BT 湖の湖底堆積物年代は、 ^{210}Pb – ^{137}Cs 年代測定から 1740 年～2014 年と推定された。この年代軸をもとに、堆積物の成分要素と気象データを解析し、次のような古気候指標を導き出した。

湖底堆積物の炭酸塩含有量は一般に湖水の塩濃度指標となり得る。BT 湖底堆積物の炭酸塩含有量変動は、集水域の 1950 年代以降の気温データから見積もった蒸発散変動と同調することから、BT 湖の塩濃度変動は気温上昇に伴う蒸発散に起因するものと見なすことができる。一方で、湖底堆積物の鉱物粒径は、湖水位と流域からの碎屑物量の 2 つの原因が考えられる。BT 湖底堆積物の鉱物粒径変動は、衛星画像から求められた 1990 年代～2010 年代の BT 湖面積変動と極めて良い一致を示す。従って、BT 湖の鉱物粒径は相対的な湖水位変動の指標と見なすことができる。この解釈は、流域の年間降水量が期間を通じてほぼ一定であることから支持される。

BT 湖底堆積物の全硫黄の安定同位体比 $\delta^{34}\text{S}$ は堆積期間を通じて約 -15‰ ～ $+6.7\text{‰}$ へ徐々に上昇傾向を示し、1940 年代以降のモンゴル年間平均気温と良い一致を示す。流入河川の SO_4^{2-} の $\delta^{34}\text{S}$ は 6.2‰ 、湖水は 31‰ であることから、湖水の SO_4^{2-} の $\delta^{34}\text{S}$ は地下水流入によって支配される。また、湖底堆積物最表層と湖水の $\delta^{34}\text{S}$ の差は約 23‰ であり、これは硫酸イオンの制限されない条件での硫酸還元による同位体分別効果によって説明できる。さらに、硫黄同位体マスバランスの計算から、硫酸塩と硫化物の $\delta^{34}\text{S}$ の差 ($\Delta_{\text{Sal-CRS}}$) は現在にかけて上昇傾向を示した。こうした堆積物中の $\delta^{34}\text{S}$ と $\Delta_{\text{Sal-CRS}}$ の上昇傾向は、現行の温暖化に伴う、湖水の塩濃度の増加と集水域の活動層における硫酸還元で生成される重たい硫黄同位体組成から成る SO_4^{2-} の流入によると推察される。

【北海道南西部大沼の湖底堆積物研究】北海道南東部の大沼の湖底堆積物は、マンガンに富む炭酸塩鉱物（菱マンガン鉱、 MnCO_3 ）から成る縞状構造を示す。その形成は、応募者らの先行研究により、夏季の鉛直循環停止期における貧酸素水塊で生じていることが明らかになっている。そこで、本研究は、菱マンガン鉱の形成過程を解明するため、湖水から底質の Mn に関わる物質（化学状態、化学種、微生物相）の研究を最深部（水深約 11 m）で実施した。窒素雰囲気下のインラインフィルターで採取した懸濁物フィルタの XANES スペクトル解析結果は、湖水の Mn 含有量と溶存酸素濃度に比例して、表層から深層にかけて Mn^{4+} から Mn^{2+} へ連続的な変化を示した。メタ 16S 解析から、*Alphaproteobacteria*、*Gammaproteobacteria* 等の Mn 酸化細菌が確認された。湖水の Mn 濃度も同様に、表層から深層にむけて上昇傾向を示し、水深 10 m 以下は、 MnCO_3 に過飽和であった。一方、窒素雰囲気下で採取した間隙水は、堆積物深度 20 cm から湖底表層にかけて上昇傾向を示し、その濃度は、湖水の深層水塊に比べて 1.5 倍以上であった。また、堆積物深度 5 cm は硫酸イオン濃度が検出限界以下（0.1 mg/L）であり、嫌気的な環境であることを示す。これらの結果は、埋没後の続成過程で生じた間隙水中の Mn は水-堆積物境界さらに湖水に向けて拡散していることを示唆する。その深層水塊は菱マンガン鉱に対して過飽和であり、SEM-EDS 分析から懸濁物の菱マンガン鉱はフィラメント状、堆積物中は自形の菱形を示すことから、堆積物中で見られる縞状構造は、水塊で生じた非晶出 MnCO_3 が堆積し、埋没後の続成作用で結晶成長して生じたものと考えられる。金沢大学 LLRL・Ge 半導体検出器による ^{210}Pb – ^{137}Cs 年代測定で求めた湖底堆積物の Mn 含有量記録は 1970～1990 年代に一時的にピークを示し、先行研究で示される化学的酸素要求量の上昇と整合することから、湖底への Mn 固定は流域からの負荷と関連付けて考えることができる。

※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。

見込まれる 成果物	モンゴル・ブンツァーガン湖の研究成果は、現在、欧文誌投稿に向けた論文執筆と追加試料の分析中である。北海道南西大沼の研究については、ブンツァーガン湖の論文が終了次第、論文執筆に取り組む予定である。
※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。	

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	あらき ゆうじ	提出年月日	2022年4月29日	
申請者氏名	荒木 祐二			
所属・職名	埼玉大学教育学部・准教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☐ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☒ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	表土の粒度組成に着目した湿生草本群落の分布特性			
研究実施期間	2021年5月1日～2022年3月31日			
センター 教員	塚脇真二			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・学部生 は利用時の年次	分担内容
	申請者	荒木祐二	埼玉大学 教育学部	准教授	統括・土壌分析
	分担者	塚脇真二	金沢大学 環日本海域環境 研究センター	教授	質問紙作成・分析
		本田匡人	金沢大学 環日本海域環境 研究センター	助教	植物標本の維持管理
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	河岸の土壌	粒子	50 程度	
	分析した試料	河岸の土壌	粒子	90 サンプル	
研究目的・ 期待される 成果	河畔植生は、河岸保護や水質浄化に加え、生物多様性や景観の保全などの役割を果たしている。河畔植生の成立には微地形や冠水頻度といった環境条件が複合的に関係し、とくに土壌の粒度組成が関与することが知られるものの、さらなる研究事例の蓄積が待たれている。わが国日本海側を代表する一級河川手取川の流域は、多雨・多雪地帯であることによる洪水被害が古くから多発することで知られる。治水事業が進められつつも、増水のたびに河床攪乱による土壌の粒度組成が著しく変容する。そこへいち早く侵入する植物が湿生草本であり、土壌表面の状態に応じて異なる湿生草本群落が発達する。本申請研究では、表土の粒度組成と湿生草本群落の分布の関連性を、日本海側を代表する河川である手取川で明らかにすることを目的とする。局所的な降雨による洪水が頻発する昨今の状況を考えると、河川管理の面からも河畔植生の詳細な動態把握が求められる。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	2021 年 6 月 4 日～5 日に現地視察を行い、日本海側の一級河川である手取川と梯川の河口から上流まで移動し、調査候補地を選定した。調査候補地の中でオギ群落とヨシ群落が発達した 2 地点において、7 月 16 日～18 日にフィールド調査を実施した。手取川と梯川の河畔に成立するヨシ群落とオギ群落内に 1m×1m の方形区を 30 カ所設置し、植物社会学的手法による植生調査を実施するとともに、土壌サンプルを採取した。採土にあたっては、土壌の深さを 0～2cm, 2～5cm, 5～10cm に区分し、各領域から約 50g の土を採取した。なお、本調査には埼玉大学から 2 名の調査補助者が同行した。採土したサンプルを実験室に持ち帰り、土壌粒度組成を分析した。自然乾燥させた土壌サンプルを目開き 3mm, 2mm, 1mm, 500μm, 250μm, 100μm のふるいにかけ、各粒径の土壌を電子はかりで計測し、粒径ごとの含有率を求めた。得られたデータを DCA 解析にかけ、オギとヨシの被度と土壌粒度組成の関連性について分析した。 結果として、ヨシ群落の土壌は深さ 0～2cm の表土において粒径 2～3mm の大型の礫が占める割合が 30%以上になり、オギ群落の 30%未満に比して有意に高くなった。深さ 2～5cm および 5～10cm では、オギ群落とヨシ群落との間で粒径 2～3mm の礫の割合に有意差が認められなかった。また、オギ群落にて深さ 0～2cm の表土で粒径 100μm 未満の極細砂の割合が 2～18%となり、ヨシ群落の 8%未満に比べて高くなった。同様に、オギ群落の深さ 2～5cm で粒径 250～500μm の中砂の割合が 20～40%となり、ヨシ群落の 25%未満より高かった。オギ群落の土壌は、深さ 5～10cm でも粒径 250～500μm の中砂の割合がヨシ群落を上回った。これらの結果から、河畔に侵入する同じイネ科草本であっても、ヨシはオギに比べて礫（粒径>2mm）の割合が高い地表面で優勢すると考えられる。一方、オギは極細砂（粒径<100μm）の割合が高い地表面に侵入し、深さ 2～5cm と 5～10cm の中砂（粒径 250～500μm）の割合がより高い立地で優占群落を形成することが示唆される。本研究ではオギ群落とヨシ群落にみられる土壌の粒度組成の差異を比較した。しかし、植物量を Braun-Blanquet (1964) の被度で大まかに評価（6 段階評価）したことから、両群落の成立要因を決定づけるにいたらなかった。今後は、粒度組成分析を継続しつつ、採土地点におけるオギとヨシのバイオマス（乾燥重量）を測定し、土壌粒度組成の差異がオギ群落とヨシ群落の成立に及ぼす影響についてより詳細な分析を試みたい。
※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。	
見込まれる 成果物	2022 年度も研究を継続し、2021 年度の結果と併せて成果発表する予定である。
※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。	

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	どうみつ はなこ	提出年月日	2022 年 4 月 28 日	
申請者氏名	堂満 華子			
所属・職名	滋賀県立大学環境科学部・准教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	鉛 210・セシウム 137 法による琵琶湖コアの年代モデル構築			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 31 日			
センター 教員	落合 伸也			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	堂満 華子	滋賀県立大学	准教授	試料作製
	分担者	臼杵 達也	滋賀県立大学	環境科学部 4 年生	試料作製
		後藤 直成	滋賀県立大学	准教授	試料採取
		塚脇 真二	金沢大学	教授	試料採取
		落合 伸也	金沢大学	助教	γ 線測定
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	シルト質・粘土質の 堆積物	乾燥粉体試料	15	
	分析した試料	シルト質・粘土質の 堆積物	乾燥粉体試料	30	
研究目的・ 期待される 成果	日本海の底層水中の溶存酸素濃度は 300 年後にはゼロになるペースでこの数十年にわたり漸減している。これに先んじて琵琶湖では定期観測開始の 1979 年以降、2007 年、2019 年、2020 年に底層に大規模な貧酸素水塊の形成が認められている。地球温暖化にともなう気温上昇や北西季節風の弱화가日本海においては熱塩循環の弱화를、琵琶湖においては冬季全循環の停止をもたらしたがために底層水中の酸素濃度が減少したと考えられ、その影響は日本海よりも小規模な琵琶湖においていち早くより顕著に顕在化したといえる。すなわち、日本海よりも気候変動に鋭敏でかつ堆積速度の速い琵琶湖の堆積物には、過去数百年（近過去）の気温変化や冬季モンスーンの強弱が、琵琶湖の全循環を通じた湖底の有/貧酸素の痕跡として高解像度で記録されている可能性がある。本研究では、近過去の琵琶湖における全循環変動の復元をめざし、鉛 210・セシウム 137 法により琵琶湖コアの年代モデルを構築する。 琵琶湖堆積物の貧酸素の痕跡から全循環停止の有無や発生頻度を読み解こうとする試みは現時点では他に例がない。日本海の海洋環境に重要な要素である冬季モンスーン変動解明に資する情報となる可能性が期待される。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	2021 年 4 月 30 日から 5 月 1 日に低レベル放射能実験施設にて研究打合せならびに鉛 210・セシウム 137 測定用試料作製法の確認をおこなったうえで、8 月 20 日に琵琶湖の水深 96 m および最深部 104 m の各地点からそれぞれ 2 本ずつの柱状堆積物（コア）を、HR 型不攪乱柱状採泥器（内径 11 cm, パイプ長 50 cm）を用いて採取した。各地点それぞれ 1 本のコアを観察記載用、もう 1 本を分析用とした。観察記載用コアについては、堆積物断面の肉眼観察・記載後に軟 X 線写真撮影試料を採取した。分析用コアについては押出器を用いて試料を 0.5 cm 厚で連続的に採取した。その後 10 月初頭までに琵琶湖最深部コアの鉛 210・セシウム 137 測定用試料を 33 点作製した。同試料を低レベル放射能実験施設の Ge 半導体検出器を用いて 10 月 10 日から 12 月 24 日まで測定し、計 25 点の鉛 210・セシウム 137 の濃度を得た。この間、11 月 24 日から 11 月 27 日までは低レベル放射能実験施設にて、それまでに得られたデータの検討会ならびに今後の研究打合せをおこなった。12 月から 2022 年 3 月までは得られたデータの計算処理や解析そして 5 点の追加測定をおこない、その結果については随時メールで分担者との検討を重ねた。 12 月までに得られた計 25 点の測定データを用いて、琵琶湖最深部コアの重量深度に対する鉛 210 濃度変化から CIC モデルで堆積速度を算出した結果、同コアの堆積速度はコア最下部から表層に向かって 0.017 g/cm²/y（コア深度 24.25～12.25 cm）、0.071 g/cm²/y（同 12.25～6.75 cm）、0.022 g/cm²/y（同 6.75～4.75 cm）、0.156 g/cm²/y（同 4.75～1.25 cm）、そして 0.011 g/cm²/y（同 1.25～0.75 cm）へと変化した。また、1963 年とみなせる大気圏内核実験によるセシウム 137 の極大値は深度 8～7.5 cm に位置し、鉛 210 の堆積速度から求めた 1963 年相当の深度 7.75 cm ときわめてよく一致した。これまで報告されている琵琶湖の堆積速度は場所や測定時期に違いはあるもののおよそ 0.02～0.2 g/cm²/y とされ、本コアで算出された堆積速度 0.01～0.16 g/cm²/y はこれとほぼ同程度となった。したがって、本研究による琵琶湖最深部コアの年代モデルは信頼性が高いと判断した。この年代モデルにもとづけば、同コアは西暦 1884 年から 2021 年までの過去 137 年間の記録であり、その連続性は比較的良好である。 最深部コアについて、堆積物の色調ならびに全有機炭素・全窒素・全硫黄の含有率そして粒度組成を分析した。その結果、全有機炭素量・全硫黄量の記録は琵琶湖底層の溶存酸素環境の変化を反映する可能性が高いことが判明した。本研究による年代モデルにもとづけば、1952 年以前の約 70 年間は現在のような琵琶湖湖底の大規模な貧酸素化現象は起こっていなかった可能性が高い。 ※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。
見込まれる 成果物	臼杵達也「琵琶湖最深部コアの全有機炭素量および全硫黄量の記録と琵琶湖溶存酸素観測記録との比較」滋賀県立大学環境科学部環境生態学科 2021 年度卒業論文（指導教員：堂満華子） 投稿論文準備中 学会発表を予定 ※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	つつい ひでと	提出年月日	2022 年 4 月 21 日	
申請者氏名	筒井 英人			
所属・職名	長崎大学水産学部 特任研究員			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☐ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☒ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	富山湾深層水中の生物源粒子の時系列変動			
研究実施期間	2022 年 4 月 1 日～ 2023 年 3 月 31 日			
センター 教員	鈴木信雄			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	筒井 英人	長崎大学水産 学部	特任研究員	(株)能登町ふれあい公社能登海洋深層 水「あくあす能登」濾過作業・標本管理・ 生物源沈降粒子観察
	分担者	鈴木 信雄	金沢大学環日 本海研究セン ター臨海実験 所施設	教授	観測・考察支援
		千手 智晴	九州大学応用 力学研究所 地球環境力学 部門	准教授	観測・考察支援
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	海洋深層水に含まれる 動植物プランクトン・ 陸上由来の生物源沈降 粒子	47mm/0.45um 孔径 濾過フィルタ (平均8枚 x11 セッ ト)	11ヶ月分(1ヶ月1 濾過)	
	分析した試料	珪質鞭毛藻・円石藻・ 珪藻などの植物プラン クトン・花粉・植物珪 酸体(プラントオパー ル)などの生物源沈降粒 子	光学顕微鏡用スライ ドガラス 92枚	11	
研究目的・ 期待される 成果	本研究の富山湾深層水中に含まれる生物源沈降粒子の観察目的は、主に 1) 地球環境のインジケータとしてのプランクトン群集構成に基づく環境指標の推移、2) 能登半島・富山湾の水産資源を推定あるいはその動態を明らかにすることである。 海洋深層水に含まれる動植物プランクトンが地球環境のインジケータとして観測の意義は、実は彼らが微細プランクトンであるだけに、海洋温暖化・海洋酸性化・海洋循環弱化といったわずかな環境変化にたいし非常に敏感であるからこそその間接的な指標として有用である。実際に日本海沿岸の各地点における表層水温は 1950 年から 2020 年までに約 3℃近くも上昇しており、実際に温暖な環境を好む小型ナマコが日本海の兵庫県東部にまで迫っている(山脇ほか, 2021; Tsutsui et al., 2022, submitted) こと、能登半島の禄剛崎での夏季におけるプランクトン群集が東シナ海のものと同じであることなどを考え合わせると、深層水中の生物源沈降粒子を長期時系列で観察を続けることで、温暖化する日本海の指標として有用である。 深層水中に含まれる生物源沈降粒子は季節変動が認められ、例えば春には珪藻が、秋には円石藻が卓越するほか、陸源由来の沈降粒子としての火山灰・微粒砂・花粉が春先に、秋には花粉が卓越する。こうした季節変動のほか、2021 年 10 月あたりから 2022 年 3 月にかけて、富山湾では水産上非常に付加価値の高い白エビやコペポードといった第 1 次消費者が非常に多かったが、2022 年 4 月に富山湾でホタルイカが豊漁のニュースを考え合わせると、ホタルイカ豊漁は、深層水中の生物源沈降粒子の状態が前年の秋から連動していた結果とも考えられる。				

[ここに入力]

	このように、能登海洋深層水に含まれる生物源沈降粒子は環境指標・生物動態を知るための有用なインジケータであるばかりか、水産資源の予測指標としての側面も併せ持つことが明らかになった。引き続き観察を続けることで、1)今後どのように生物群集や多様性が変化していくか、2)水産資源としての予想指標としての信頼性に与える評価だけでなく、濾過フィルタを残しておくことで、3)現在が 50 年前、100 年前といった過去とよばれる時点での比較用タイムアーカイブ資料としての性格も併せ持つ。
※申請書に記載した事項を要約して下さい。	
利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	1. 研究実施内容(手法) 本研究は富山湾の深層水に含まれる生物源沈降粒子、例えば動植物プランクトン、花粉や火山灰といった陸源物質の時系列観察をもとに、海洋温暖化・酸性化などの地球規模での環境変化、水産資源の動態予測を可能にすることを目的としている。そこで株式会社 能登町ふれあい公社 能登海洋深層水施設「あくあす能登(石川県鳳珠郡能登町小木 34-15 番地)」から深層水原水をロンテナ 1 個分(公称 10 リットル、実質約 12 リットル)を毎月 1 回冷蔵宅配便で提供をうけ、長崎大学水産学部附属練習船「長崎丸」船内の循環式アスピレータ AS-01 で弱真空濾過を行い、直径 47mm/孔径 0.45um の ADVANTEC 社製ニトロセルロースフィルタ A045047 へ、原水を約 2 ないし 3 リットル展開・濾集、清水で脱塩した。その後、濾過フィルタは室内温度で乾燥させ、直径 10mm の丸パンチで切り取り、光学顕微鏡で観察可能な光学スライド標本としてメルクミリポア社製顕微鏡用インマージョンオイル IO-100 で油浸封入し、光学観察を行った。同社の深層水原水にはどのような生物が含まれるか、基礎的な記載・先行研究すらないため、観察の容易な植物プランクトンのうち、光学顕微鏡でも容易に分類可能な単細胞の微細藻類の 1 つである「珪質鞭毛藻」に着目、この個体数をもとに季節変動を明らかにする。他にも円石藻・珪藻・渦鞭毛藻、動物プランクトンなど多くの海洋起源の生物源沈降粒子のほか、花粉・火山灰・昆虫と思われる鱗粉などの陸源生物由来の沈降粒子も含まれることがわかった。 写真 1 は乾燥させた濾過フィルタ、写真 2 はろ過フィルタから作成した観察スライドガラスの一部である。



写真1 深層水のろ過結果例

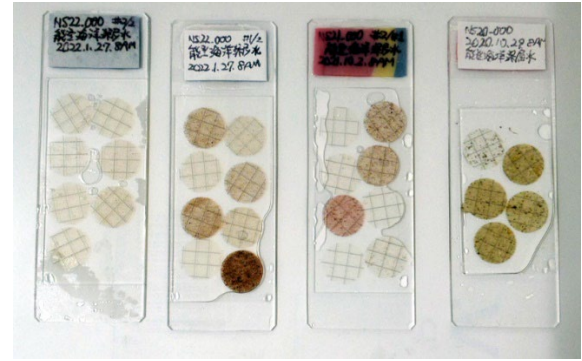


写真2 光学観察可能な状態のスライド標本

2. 観察結果

2021年4月からの濾過フィルタの観察・計数の結果、珪質鞭毛藻は *Stephanocha speculum* (= *Distephanus speculum*, 寒冷系), *Dictyocha fibula* (温暖系), *D. cf. subclinata* (温暖系), *Octactis pulchra* (= *Octactis octanaria*, 温暖系) が見いだされた。円石藻は *Emiliania huxleyi*, *Gephyrocapsa oceanica*, *Umbilicosphaera sibogae*, *Braarudosphaera bigelowii* など、比較的温暖な環境を好む種が多く、珪藻では *Coscinodiscus* spp., *Nitzschia* spp., *Rhizosolenia* spp., *Chaetoceros* spp., *Pleurosigma normanii* など、やはり温暖を好む種を中心に沿岸の珪藻が卓越することがわかった。渦鞭毛藻類は *Ceratium* spp., *Scripsiella* spp., *Ginonidium* spp. などを中心に、沿岸-内湾に多く見られる温暖種が見いだされた。陸源由来の生物源沈降粒子としては、トウヒ・ハンノキ・カバノキ・マツ・ヒノキ・ブナ・シダ胞子を中心とするやや寒冷系広葉-針葉樹林系のものが、やはり樹木系の植物珪酸体(プラントオパール)が多数見いだされることがわかった。また、植物の樹皮片と思われるものも見いだされることがわかった。

3. 考察

3-1. 珪質鞭毛藻(植物プランクトン)の季節変動

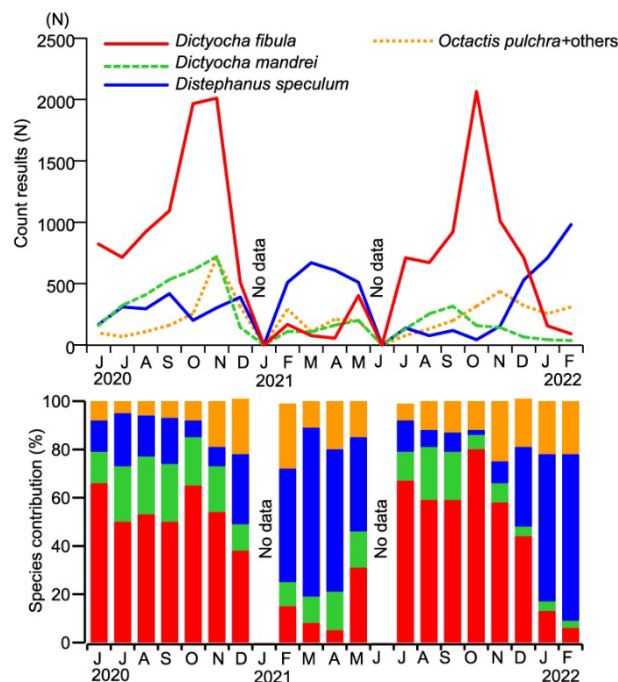


図1 「あくあす能登」深層水中に見出された珪質鞭毛藻の年間推移

図1は植物プランクトンの珪質鞭毛藻に着目した場合の「あくあす能登」深層水から見出された単位水量中の換算結果である。赤・橙色は *D. fiubla*, *O. pulchra* といった大まかに温暖な環境を好む種、緑は温暖からやや寒冷に分布する種 *D. mandrei*, 青は寒冷種の *S. speculum* (= *D. speculum*) である。観察を始めた2020年6月から厳冬期の3-4月を除く一年を通じ温暖な種が見出されるが、寒冷種が1月から出現し始め、3-4月に温暖種と入れ替わることがわかった。図1でNo DATAの箇所は試料が得られなかった、あるいは計数作業途上にあり、データが出揃っていないことを意味する。「あくあす能登」深層水試料中に見出されるプランクトンは、1) 温暖・寒冷両方のプランクトンが明瞭に季節変動を示すだけでなく、2) どちらかといえばやや温暖よりであり、3) ご当地における第1次生産力が連続して、すなわち季節によって途切れることがないと考えられる。同試料中から見出される植物プランクトンは円石藻や珪藻、渦鞭毛藻も普通に見られることから、今後、4) 季節変動に着目した第1次生産者の推移、5) 細胞の大きさに基づく生産力、6) 多様性、7) 場合によってはこれまでにご当地では発見できなかった新種やさらに温暖な環境を好む種の発見など、多様かつ多側面からの考察が可能である。

3-2. 海洋温暖化の兆候



写真3 能登半島禄剛崎(石川県珠洲市狼煙町)沖の表層ろ過結果
(長崎大学附属練習線「長崎丸」表層海水ろ過結果)

写真3は能登半島禄剛崎(石川県珠洲市狼煙町)沖の表層ろ過結果である。同試料は長崎丸練習航海 NS21-070 で得たもので、大まかに初夏にあたる。珪藻は *Rhizosolenia* spp., *Chaetoceros affinis*, *Chaetoceros* spp., *Bacteriastrum* spp., *Pesudonitzia* spp.などが、写真中央の8角形は珪質鞭毛藻の *O. pulchra* である。この写真の群集構成は実は長崎沿岸から東シナ海の漁場にかけて見られる群集構成であり、ほかにも温暖な環境を好む円石藻類が多数見出される。これは能登半島の、1) 中央日本の日本海側の表層プランクトン群集がすでに東シナ海と同様であること、2) ご当地を基準にして考えると能登半島は温暖・寒冷の入れ替わりが明確であり、これからの海洋温暖化が進行した場合の指標になる。すなわち高水温期が長期化すればするほど生物の多様性は上昇していくが、3) 今までご当地では見なかった種が入り込んでくると同義であり、このまま温暖な状態が長期化・常態化すれば沿岸の海洋生物の入れ替わりが懸念される。

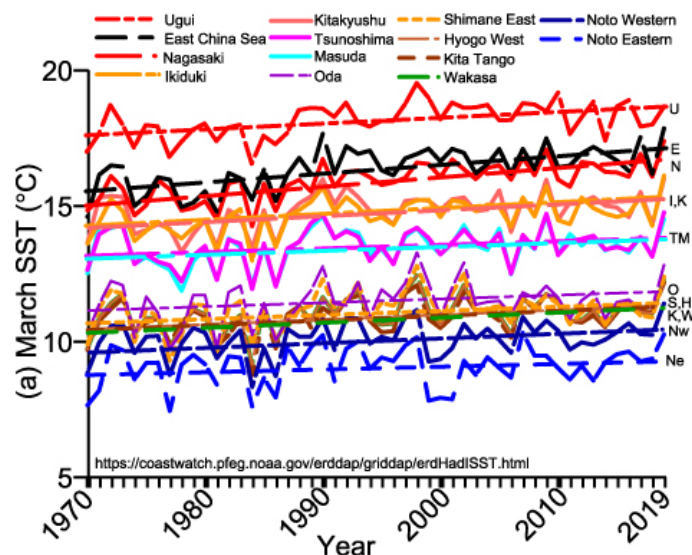


図 2 日本海沿岸各地の 1970 年から 2019 年にかけての 3 月の表層水温推移

図 2 に示すように、日本各地で最も水温が低下する 3 月の日本海沿岸各地の表層水温は上昇し続けており、1970 年を基準とした場合、約 50 年で 1℃から 1.7℃近く変化した。当然ご当地における多様性などの生物群集構成に着目した場合、変化が進行しつつあると考えねばならない。事実、本助成で観察される深層水の中の群集は比較的温暖を好む傾向にある種が多いことから、今後の推移を注意深く観察を行うとともに、生物資源の変化をどう捉えて対処していくべきか考えるべき事態になりつつあることを示している。

3-2. 富山湾の水産資源との関連

同深層水観察結果の特筆すべき点として、2021 年 10 月から 2022 年 3 月にかけての深層水の濾過には、それ以前では濾過フィルタの数にして 6 枚程度であったものが大量のコペポダ類(ミジンコ、写真 3)などで 10 枚、12 枚と増加し、2022 年 1, 2, 3 月には富山湾において高付加価値水産物である「白エビ」*Metapenaeopsis cf. lata*, *Pasiphaea cf. japonica* (写真 4)と思われる大型のエビが立て続けに見いだされた。これは 2020 年 6 月に同深層水の観察を開始以来のできごとである。その後、2022 年 4 月 13 日の北日本経新報、4 月 15 日の日本経済新聞に「富山湾 ホタルイカ豊漁 平年の 4 割増」の記事が掲載された。ホタルイカの消化管物にはコペポダが見いだされるが、昨年 10 月からの深層水に見いだされるコペポダ類の推移と連動していると思われる。これがたまたまなのか、それとも連動しているのかを明確にするため、2022 年度の 9 月以降の生物源沈降粒子の推移に期待されるところである。



写真 3 深層水試料中に見出されたコペポダ類



写真 4 同試料中から見出された「白エビ」と考えられる標本

※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。	
見込まれる 成果物	同成果は以下のような発表を予定している： 1)筒井ほか(2022, 9, 日本海洋学会秋季大会)の と 小木海洋深層水施設「あくあす能登」深層水にみられる動植物プランクトンとその季節変動. 2)筒井ほか(2022, 12, 日本海洋学会西南支部)の と 小木海洋深層水施設「あくあす能登」深層水と東シナ海沿岸に見られる生物多様性. 3)筒井ほか(2023, 2, 生物海洋学会) の と 小木海洋深層水施設「あくあす能登」深層水にみられる珪質鞭毛藻(または円石藻)の季節変動. 4)Tsutsui et al. (2022, AGU) Seasonality changes of marine primary(biological) productions in Noto/Toyama deep, Central Japan. (すべて口頭, 4)発表はリモートで可能な場合にかぎる. 発表 3 と 4 はシンポジウム・学会テーマによっていれかわり, テーマを変更することがある)
※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。	

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	はるみ たつお	提出年月日	令和4年 4月 18日	
申請者氏名	春見 達郎			
所属・職名	旭川医科大学解剖学講座（顕微解剖）・助教			
連絡先住所				
TEL		FAX	0166-68-2319	
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☐ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☒ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	日本海産魚類の受精におよぼす多環芳香族炭化水素類の影響			
研究実施期間	令和3年 4月 1日～ 令和4年 3月 31日			
センター教員	臨海実験施設 教授 鈴木信雄			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	春見達郎	旭川医科大学	助教	研究統括・精子の運動解析・精子の卵 門進入解析
	分担者	松原創	金沢大学	教授	試料採集・受精卵の初期発生におよ ぼす PAHs の効果解析
		柳町隆造	ハワイ大学	名誉教授	研究助言
		鈴木信雄	金沢大学	教授	試料採集・PAHs の供給
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	日本海産魚類（さよ り、あかむつ等）	卵、精子	10 種 100 検体	
	分析した試料	日本海産魚類（スズ キ、マダラ）	卵、精子	2 種 25 検体	
<u>研究目的</u> 魚類の受精は、種毎の多様性はあるが、そのほとんどで、初めに精子の卵への接近、精子の卵表面での接触遊泳（thigmotaxis）、そして最後に卵膜表面に 1 か所開いている卵門内に精子が進入して卵と受精する、という段階を経る。 申請者らのグループは、水浸レンズを用いた顕微鏡下でのビデオ動画撮影により、これまで数十種類の魚類の受精過程の解析、特に「精子の運動性の解析」「精子の thigmotaxis 解析」「精子の卵門進入解析」を行ってきた。本研究では、これらの受精過程に対して、多環芳香族炭化水素類が影響するかどうかを検討する。加えて、受精後、受精卵を多環芳香族炭化水素類に暴露し、孵化への影響も同時に検討する。これらの実験を通して、PAHs の魚類の受精事象におよぼす効果を環境リスク評価の一手段として利用することを検討する。 <u>特色と期待される成果</u> これまでの PAHs のリスク評価は、生体や細胞内での代謝、および生体や細胞への毒性など主に生化学的な分析に基づいて行われてきた。申請者のグループの専門である、精子の運動性や、精子と卵の受精など、顕微鏡下での「動的現象の解析」を PAHs のリスク評価の一つとして検討することは新しい試みである。受精という基本的な生命現象に、PAHs のような人為的な環境変化が影響を与えるとすれば、社会に対して新たな警鐘となりうる。					
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究
実施内容・
得られた成
果

本研究課題は、種々の毒性が知られている多環芳香族炭化水素（PAH）が、魚類の受精や発生にどのような影響をおよぼすのかを調べる共同研究である。発表者のグループは、これまで北海道産の数十種類の魚種を用いて、それらの受精機構を解析してきた。

魚類の受精は他の動物種と異なり、非常に特徴的である。卵は、硬い卵膜で覆われており、精子はその卵膜を通過できない。卵膜には、卵門と呼ばれる通常 1 か所小さな孔が開いている（図 1 上段、図 2 上段参照）。精子は、その卵門と呼ばれる孔に進入し、卵と受精する。卵門の形態および卵門周囲の構造、さらに精子の卵門への進入様式は、まさにその魚種ごとに異なっている。精子の卵門進入を観察するために適した魚種を選ぶことは、本研究課題を進めるにあたり重要な選択である。

コロナ禍の 1 年であったが、2022 年 1 月、環日本海域環境研究センター臨海実験施設および理学部附属海洋水産センターにおいて、富山湾産魚類の研究有用種の探査を行った。本時期において、産卵期を迎える魚種は多数あるが、実験期間の短さに加え、水産市場に出回り購入できる魚種、そして実験試料として十分に配偶子が得られる魚種は限られ、今回、スズキ（*Lateolabrax japonicus*）とマダラ（*Gadus macrocephalus*）を実験材料として用いた。

スズキの卵は浮遊卵でガラスシャーレおよびプラスチックシャーレに付着しない。そのため、海水表面に浮いた状態の卵を振動させず、かつ対物レンズを低倍化（20 倍）する必要がある。卵および卵の色は透明の上、卵膜も薄く、卵門を同定するのに困難を極めた（図 1 上段）。精子の卵門進入も稀であったが、その記録には成功した（図 1 下段）。

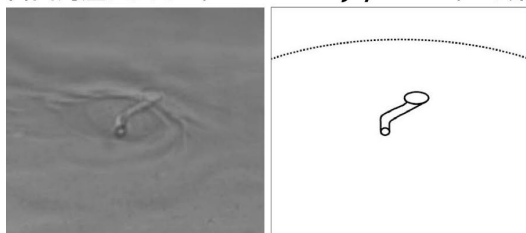
マダラの卵は沈降卵ではあったが、やはりシャーレへの粘着性は低かった。沈降卵であることにより、観察には高倍の水浸対物レンズ（40 倍）が利用することができた。卵および卵の色は比較的透明であったが、卵膜が厚いため卵門の同定は容易であった。媒精によって、精子の卵門進入も容易に観察できた（図 2 上段）。動物の卵細胞は、受精後、細胞質表面近くに分布する表層粒が崩壊し、内容物であるカタラーゼにより卵膜が硬化し、受精膜となる。この表層粒崩壊は、卵膜や卵の透明度などの条件がそろった種の卵でないと観察できない。マダラの卵は、表層粒崩壊が観察できた非常に貴重な材料である。受精後（精子が卵門進入終了後）、30 秒で表層粒崩壊が開始し、約 2 分で終了した（図 2 下段）。

今回用いたスズキとマダラの受精卵は少なかったが、発生におよぼす海水内 PAH の効果を調べるパイロット実験を 1 回だけ行った。16 種類の PAH

(Naphthalene, Acenaphthylene, Acenaphthene, Fluorene, Anthracene, Phenanthrene, Fluoranthene, Pyrene, Chrysene, Benz[a]anthracene, Benzo[b]fluoranthene, Benzo[k]fluoranthene, Benzo[a]pyrene, Dibenz[a,h]anthracene, Indeno[1,2,3-cd]pyrene, Benzo[ghi]perylene、各 1 μM) を含む海水で、スズキおよびマダラの受精卵を発生させた。残念ながら、各サンプルでの卵数が少なく（2, 3 個）、また正常海水群でも発生が進まず、受精卵の胚発生におよぼす PAH の影響を確認するに至らなかった。

今回の観察から、冬季から早春にかけて産卵期を迎える日本海の魚種では、マダラが受精観察の実験材料として有用であると考えられる。今後、実験に適した魚種の探索に加え、受精および受精卵の胚発生、さらに精子の運動などにおよぼす PAH の影響を、それらの魚種を用いて、十分に成熟しかつ過熟にならない卵や精子の適した時期に実験を行う必要がある。

図 1
富山湾産スズキ (*Lateolabrax japonicus*) の卵門



スズキ精子 (矢印) の卵門進入 (動画から抜粋)

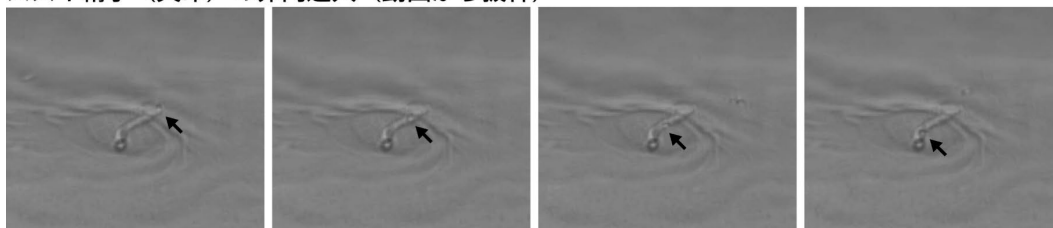
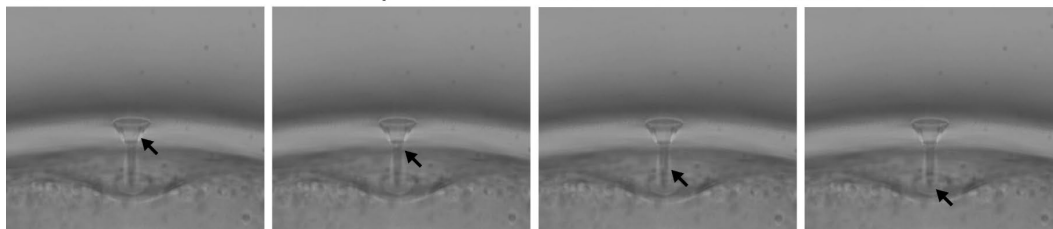
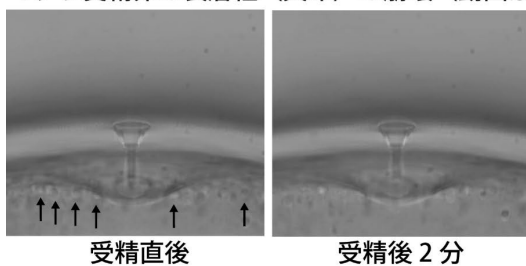


図 2
富山産湾マダラ (*Gadus macrocephalus*) 精子 (矢印) の卵門進入 (動画から抜粋)



マダラ受精卵の表層粒 (矢印) の崩壊 (動画から抜粋)



※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。

見込まれる
成果物

日本動物学会第 94 回大会口頭発表（2023 年 9 月）

※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	あべ ともひさ	提出年月日	2022 年 5 月 23 日	
申請者氏名	阿部 智久			
所属・職名	日本原子力研究開発機構 廃炉環境国際共同研究センター・技術員			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	大気浮遊じんの粒径分布と放射性核種の移動性に関する研究			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～2022 年 3 月 31 日			
センター教員	長尾誠也 教授			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	阿部智久	JAEA	技術員	試料採取、処理、解析
	分担者	吉村和也	同上	研究主幹	解析
		舟木泰智	同上	研 究 副 主 幹	試料採取、解析
		中西貴宏	同上	グ ル ー プ リーダー	統括
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料			物質名	形態（形状）	試料数
		申請書に記載 した試料	大気浮遊じん	アルミ箔（φ 20mm）に内包	30
		分析した試料	大気浮遊じん	アルミ箔（φ 20mm）に内包	8
研究目的・ 期待される 成果	福島第一原子力発電所（1F）の事故により環境中に放出された主要な核種は放射性セシウムである。放射性セシウムの陸域から海域へかけた移行挙動は、沿岸から太平洋、東京湾と広く研究がなされてきたが、大気を介した移行については、初期沈着を除きほとんど明らかとなっていない。これは、大気中の放射能濃度が複数の機関でモニタリングされているものの、その移行挙動に大きく影響する大気浮遊じんの放射能中央粒径が明らかとなっていないためである。放射能中央粒径は、吸引被ばく線量の評価など放射線防護上も必須の情報である。本研究では、放射能中央粒径の通年での変動を 1F 事故後で初めて評価するものであり、環境科学、保健物理の両側面で重要な意義を有する。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究
実施内容・
得られた成
果

(手法)

大気浮遊塵は、福島県大熊町の特定復興再生拠点区域内に設置したカスケードインパクター（DEKATI 社製 ELPI+）により、令和 2 年 4 月から令和 3 年 3 月の期間で毎月粒径ごとに分級し採取した。大気を採取する吸入口の高さは地表面から約 1m とし、採取流量は 10 L min^{-1} 、採取期間は平均約 2 週間（336 時間）とした。大気浮遊塵は粒径 $6\text{nm} \sim 10 \mu\text{m}$ の範囲で 14 段に分級し、 $\phi 20 \text{ mm}$ のアルミ箔上に捕集した。

粒径ごとにアルミ箔上に捕集された大気浮遊塵試料は、試料採取後の重量を測定した。その後、付着した塵が飛散しないようにラップでおさえ、測定試料とした。本年度の測定は、2021 年 5 月に採取した $0.26 \mu\text{m} \sim 10 \mu\text{m}$ （8 段）の大気浮遊塵試料とした。試料中の放射能濃度がごく微量であることが予想されたため、Cs-137 が検出可能な条件を検討することを目的とし、測定試料は 1 枚、ないしは隣接する粒径分画と重ね併せた 2 枚を円筒型チューブの壁面に沿うよう配置し、試料が動かないようその内側にスポンジを詰めて固定した。

採取した大気浮遊塵試料中の放射性 Cs について、金沢大学のゲルマニウム半導体検出器を用いて放射能を測定した。本研究における測定試料中の放射性 Cs の検出が可能な検出器を検討するため、測定には同軸型と well 型検出器を用いた。測定時間は 500000～1100000 秒で実施した。

(結果)

上述した大気浮遊塵試料のうち、 $0.26 \mu\text{m} \sim 4.4 \mu\text{m}$ （6 段）に分級された大気浮遊塵試料を 1 枚ごとに同軸型検出器で測定した結果（stage7 ($0.26 \sim 0.4 \mu\text{m}$) 602141 秒、stage8 ($0.4 \sim 0.64 \mu\text{m}$) ;865820 秒、stage9 ($0.64 \sim 1 \mu\text{m}$) ;1117082 秒、stage10 ($1 \sim 1.6 \mu\text{m}$) ;1041970 秒、stage11 ($1.6 \sim 2.5 \mu\text{m}$) ;602284 秒、stage12 ($2.5 \sim 4.4 \mu\text{m}$) ;600335 秒)、Cs-137 のピーク（661.7 keV）は検出されなかった。そこで Cs-137 の検出効率を高めるため、大気浮遊塵試料のうち、 $0.26 \mu\text{m} \sim 10 \mu\text{m}$ （8 段）に分級された測定試料のうち、隣接する粒径分画分 2 枚を重ねて円筒型チューブに封入した試料を用い、well 型検出器により測定した（stage7+8 ($0.26 \sim 0.64 \mu\text{m}$) ;1041970 秒、stage9+10 ($0.64 \sim 1.6 \mu\text{m}$) ;686003 秒、stage11+12 ($1.6 \sim 4.4 \mu\text{m}$) ;610343 秒、stage13+14 ($4.4 \sim 10 \mu\text{m}$) ;589297 秒)。その結果、stage9+stage10 と stage13+stage14 で Cs-137 のピークが確認された。今回検出された分析における平均の測定時間はおよそ 640000 秒であり、試料重量などの条件によるが今後の測定時間の目安を得た。また、本結果から、放射能分析の定量性をより向上させるために、測定試料枚数の増加や試料採取期間を延ばして測定する方針を定めた。

本研究課題は 2022 年度金沢大学環日本海域環境研究センター共同研究において採択されたため、以上の結果を参考に測定条件の改善を試みつつ、継続して調査を実施する。測定条件の設定後、この条件に適した検量線を作成し、Cs-137 について大気放射能中央粒径とその季節変動を評価する予定である。

※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。

見込まれる 成果物	2022 年に継続して調査した上で、期待される成果が出た際に見込まれる成果物は以下のとおりである。 ・環境放射能研究会 Proceedings
※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。	

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	にしもと そうご	提出年月日	2022 年 4 月 9 日	
申請者氏名	西本 壮吾			
所属・職名	石川県立大学 生物資源環境学部・准教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	申請区分
研究分野	☐ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☒ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	多環芳香族炭化水素類の免疫系に対する作用			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 31 日			
センター教員	環日本海域環境研究センター 鈴木 信雄 教授			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	西本 壮吾	石川県立大学 生物資源環境 学部 食品科 学科	准教授	細胞評価
	分担者	鈴木信雄	金沢大学環日 本海域環境研 究センター	教授	PAH 類提供
		本田匡人	金沢大学環日 本海域環境研 究センター	助教	PAH 類提供
		湊 律子	石川県立大学 生物資源環境 学部 食品科 学科	4 年生	細胞評価
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料				
	分析した試料	Naphthalene Acenaphthylene Acenaphthene Fluorene Anthracene Phenanthrene Fluoranthene Pyrene Chrysene Benz[a]anthracene Benzo[b]fluoranthene Benzo[k]fluoranthene Benzo[a]pyrene Dibenz[a,h]anthracene Indeno[1,2,3-cd]pyrene Benzo[ghi]perylene	乾燥体	16	

研究目的・
期待される
成果

環境中に流出された PAH 類は内分泌かく乱作用を示すことが懸念され、とりわけ生体防御に必須である免疫系に及ぼす影響を評価することは、PAH 類に対するリスクを明らかにすることに繋がる。そこで、本研究では、金沢大学環日本海域環境研究センターの鈴木 信雄 教授、本田 匡人 助教の協力のもと、16 種類の PAH についてアレルギー誘導能の有無について評価を実施した。

※申請書に記載した事項を要約して下さい。

利用・研究実施内容・得られた成果	私たちは金沢大学環日本海域環境研究センターの鈴木 信雄 教授、本田 匡人 助教の協力のもと、16 種類の PAH についてアレルギー誘導能の有無について評価を実施した。アレルギーのトリガーとなる IgE 抗体の産生を指標に <i>in vitro</i> のバイオアッセイを行い、PAH 類がアレルギーを助長するか評価を行った。 その結果、免疫細胞に対する毒性を示す PAH 類が存在し、生細胞数の低下が見られた。この免疫細胞が分泌するヒト IgE 抗体量を生細胞数あたりで評価したところ、細胞あたりの IgE 抗体産生量が増加した PAH 類が存在した。 16 種の PAH 全てが同様の IgE 産生促進を示すのではなく、特徴的な影響を示す PAH が存在することが明らかとなった。興味深いことに、環境中に存在する PAH 濃度域で IgE 産生促進活性を示したことは、日常生活の恒常的な摂取によるアレルギー素因の高まりを助長すると考えられる。 今後は継続して PAH の構造と IgE 産生活性の相関性について評価を進め、アレルギー誘導化学物質の特徴を示して健康リスクへの提言につなげる予定である。
※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。	
見込まれる成果物	本研究を通じて得られた成果は、2022 年度中に学会発表および投稿論文として公表する予定となっている。
※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。	

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	オオコウチ ヒロシ	提出年月日	2022 年 5 月 22 日	
申請者氏名	大河内 博			
所属・職名	早稲田大学創造理工学部・教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail	hokochi@waseda.jp			
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	日本海沿岸遠隔地における大気中マイクロプラスチックの動態解明			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 31 日			
センター 教員	松木篤			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	大河内博	早稲田大学	教授	研究統括
	分担者	勝見尚也	石川県立大学	講師	試料採取/分析
		松木篤	金沢大学	准教授	研究助言
		吉田昇永	早稲田大学	M2	試料採取/分析
		谷 悠人	早稲田大学	B4	試料採取/分析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	エアロゾル フォールアウト	粒状/破片状/繊維状 液体	48 試料 24 試料	
	分析した試料	エアロゾル フォールアウト	粒状/破片状/繊維状 液体	8 試料（分析中も） 0	
研究目的・ 期待される 成果	プラスチック生産量は 1950 年以降に急増し、2050 年には 400 億トンに達する。生産量の約 10%が海洋に流入し、海洋生態系の破壊が懸念されている。このため、持続可能な開発目標(SDGs)で海洋プラスチックが取り上げられ、プラスチック使用量削減のために 2020 年に国内でレジ袋が有料化された。 しかし、大気中マイクロプラスチックの存在はこれまで見過ごされてきた。報告例の大部分は都市域の大気沈着であり、大気中濃度は数例しかない。海洋で微細化したプラスチックが大気へ放出され、陸域への輸送量は年間14万トンとの推計もあり、大気を通じたマイクロプラスチックによる地球規模汚染の実態解明は喫緊の課題である。 本研究では、マイクロプラスチックの大気動態、発生源、健康影響の解明を目的として、日本全国でマイクロプラスチックの大気中濃度と大気沈着量の解明を解明する研究の一環として日本海側における大気マイクロプラスチックのバックグラウンド濃度を明らかにするとともに、越境大気汚染の影響を解明する。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	・利用・研究実施 2021 年 12 月に大気中マイクロプラスチック (AMPs) 採取用のエアロゾルサンプラー (MCI サンプラーによる 3 段分級: 2.5 μm 以下, 2.5-10μm, 10 μm 以上) とフォールアウト採取装置を設置し, 冬季として 2022 年 1 月に一週間毎の連続採取, 春季として 3 月に一週間毎の連続採取した. フォールアウト採取装置は降雪対策が不十分であったことから冬季の採取は行わなかった. 採取した試料は, 誤判別を防ぐために 30% H_2O_2 により MPs 表面有機物を除去した後, 5.3 M NaI 溶液を用いた密度分離により鉍粒子を除去した. 密度分離した上澄み液は孔径 0.20 μm アルミナフィルターの $\phi 4$ mm の領域に吸引ろ過した. アルミナフィルター上の試料がスポットされた領域のうち無作為に選んだ 4 つの領域 (1 領域: 750 $\mu\text{m} \times 750$ μm) を顕微 FTIR (Spectrum3/Spotlight400, PerkinElmer) ATR イメージング測定 (4000-695 cm^{-1}) を行った. これにより, 全体の 17.9% をカバーした. AMPs の候補物質を C-H 伸縮振動 (3000-2700 cm^{-1}) と C=O 伸縮振動 (1740-1710 cm^{-1}) の赤外吸収帯でスクリーニングし, ライブラリー検索による検索スコアとポリマー由来の吸収ピークの目視による確認で AMPs の候補粒子を同定した. また, 大気中マイクロプラスチックの起源推定のために, ハイボリウムエアサンプラーを用いて 1000 L/min で石英繊維フィルター上に SPM を捕集し, フミン様物質 (Humic-Like Substances, HULIS), 生物起源一次 (PBOA) および二次有機エアロゾル (BSOA), 微量微量元素 (重金属およびレアアース) を分析した. PBOA としてバイオマス燃焼マーカーであるレボグルコサン, 孢子マーカーであるアラビトール, マンニトール, トレハロース, 花粉マーカーであるスクロース, フルクトースである. また, α-ピネン由来 BSOA としてピノン酸, ピン酸, 3-Methylbutane-1,2,3-tricarboxylic Acid (MBTCA) の分析も行った. エアロゾル捕集したフィルターは 20 mm ポンチで切り抜き, メタノール超音波抽出して窒素濃縮後に LC-MS で定量した. HULIS 濃度測定は DEAE-UV 法を使用した. また, フィルターに純水を加えて超音波抽出を行った溶液を PTFE 製シリンジフィルターでろ過を行い, ろ液は親水性エアロゾル成分の酸化能 (OP^{WS}), 残渣に関してはメタノールで再び超音波抽出を行った後, ろ液は疎水性エアロゾル成分の酸化能 (OP^{WI}) として測定を行った. これらの抽出液に DTT とリン酸カリウム緩衝液を加えて反応させ, 反応停止剤である TCA 溶液とトリス緩衝液, DTNB を加えて紫外可視分光光度計を用いて波長 412 nm の吸光度を測定した. ・得られた成果 冬季試料の分析は終了した. 冬季に AMPs 個数濃度は能登で 5.65 MP/m^3, 新宿で 3.68 MP/m^3 であり, 冬季には能登で新宿より 1.5 倍高く, 越境大気汚染の影響の可能性が高い. 能登では $\text{PM}_{2.5}$ で最大濃度 3.60 MP/m^3 を示し, 新宿では $\text{PM}_{10\text{C}}$ で最大濃度 1.50 MP/m^3 を示し, 能登における AMPs $\text{PM}_{2.5}$ 個数濃度は新宿の 4 倍を越えた.
見込まれる 成果物	※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。 1. Yuto TANI, Hiroshi OKOCHI, Norihisa YOSHIDA, Hiroshi HAYAMI, Masaki TAKEUCHI, Atsuyuki SORIMACHI, Yusuke FUJII, Norimichi TAKENAKA, Takashi YAMAGUCHI, Naoya KATUSMI, Atsushi MATSUKI, Mizuo KAJINO, Kouji ADACHI, Yasuhiro ISHIHARA, Yoko IWAMOTO, and Yasuhiro NIIDA, Occurrence, behavior, fate, and health impact of airborne microplastics (1): Distribution of concentration and deposition flux in Japan, The 12th Asian Aerosol Conference (AAC) 2022 2. Kazumasa Shinohara, Hiroshi Okochi, Hiroshi Hayami, Naoya Katsumi, Atsushi Matsuki, The behavior, origin, and environmental risk of humic-like substances in the atmosphere (3), The 12th Asian Aerosol Conference (AAC) 2022 3. 谷悠人, 大河内博, 吉田昇永, 速水洋, 竹内政樹, 樫本真央, 反町篤行, 大気中マイクロプラスチックの起源・動態・健康影響 (3): 日本全国に多ける AMPs 濃度および大気沈着量分布, 境化学物質 3 学会合同大会, ポスター発表 (富山; 2022 年) 4. 篠原和将, 大河内博, 速水洋, 勝見尚, 松木篤, 大気中フミン様物質の動態・起源・環境リスクに関する研究 (4), 環境化学物質 3 学会合同大会, ポスター発表 (富山; 2022 年) 5. 篠崎大樹, 大河内博, 速水洋, 加藤俊吾, 和田龍一, 勝見尚也, 松木篤, 森林由来一次・二次有機エアロゾルの動態と豪雨形成に及ぼす影響 (3), 環境化学物質 3 学会合同大会, ポスター発表 (富山; 2022 年) ※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	さだなが やすひろ	提出年月日	2022 年 5 月 9 日	
申請者氏名	定永 靖宗			
所属・職名	大阪府立大学 大学院工学研究科 准教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	東アジアから越境輸送される窒素化合物等大気汚染物質の経年トレンド解析			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 31 日			
センター教員	松木 篤 准教授			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	定永靖宗	大阪府立大学 大学院工学研 究科	准教授	研究総括，窒素化合物観測
	分担者	大原 和	大阪府立大学 大学院工学研 究科	修士 2 年	窒素化合物観測
		松木 篤	環日本海域研 究センター	准教授	エアロゾル観測
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料			物質名	形態（形状）	試料数
	申請書に記載 した試料		反応性総窒素酸化物 (NO _y)，硝酸，窒素酸化 物，オゾン，一酸化炭素	すべて気体	すべて連続
	分析した試料		反応性総窒素酸化物 (NO _y)，硝酸，窒素酸化 物，オゾン，一酸化炭素	すべて気体	すべて連続

研究目的・
期待される
成果

2010 年代になって中国では情報公開や法整備など積極的な大気汚染物質の削減政策を行ってきており、近年では中国における大気汚染物質の排出量は、減少傾向に転じている。一方、排出量の減少度合いは大気汚染物質によって異なっている。具体的には、2017 年の SO_x 排出量は最大値から 6 割程度減少しているのに対し、 NO_x に関しては 2 割程度の減少である。そのため、例えば大陸から越境輸送される $\text{PM}_{2.5}$ の濃度は減少しているが、 $\text{PM}_{2.5}$ を構成する組成の割合は変化しており、実際に近年では硝酸アンモニウム濃度が増加しているという報告もある。

このような状況下、我々は金沢大学能登学舎や、長崎県五島列島福江島において、窒素酸化物の総和である反応性総窒素酸化物 NO_y とその主要成分である NO_x ($= \text{NO}, \text{NO}_2$)、無機全硝酸 (T.NO_3) 等の長期連続観測を行っている。本研究では、これらの観測を継続するとともに、これまで蓄積されたデータを使用して、東アジアから越境輸送される NO_y や T.NO_3 など大気汚染物質についての経年トレンドを調べ、近年の中国における大気汚染物質の排出動態の変化が、主に窒素酸化物種の越境輸送に与える影響について評価する。

大気中の窒素酸化物種は最終的には海洋や地表面に沈着し、地球上の窒素循環の一部を担うことになる。大陸から越境輸送される窒素酸化物種の多くは日本海やその周辺地域に沈着すると考えられ、本研究で得られる知見は単なる大気環境だけではなく、日本海など海洋環境に与える影響を評価する上でも重要であると考えられる。また、本研究で得られる観測結果は、将来的に窒素循環に関するモデル、特に環日本海域をはじめとした東アジア域におけるモデルを構築するための基礎データの一つとなることが期待される。

※申請書に記載した事項を要約して下さい。

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	石川県珠洲市に位置する金沢大学能登学舎内の金沢大学能登半島大気観測スーパーサイトにおいて、O_3, CO, 反応性窒素酸化物 (NO_y) と NO_y の構成成分である、$NO_x (=NO, NO_2)$、無機全硝酸 ($T.NO_3$) の連続観測を行なった。O_3 と CO については市販の装置を用い、それ以外の成分については、先行研究で開発した装置を用いた。 本研究では、これらの大気汚染物質について、2013 年 1 月から 2021 年 9 月までの観測データを用いて経年トレンド解析を行なった。また、経年トレンドの気塊由来別による比較についても行った。気塊の輸送経路の判定にはアメリカ海洋大気局 NOAA により提供されている後方流跡線解析モデルである HYSPLIT を使用し、中国北東、中国+韓国、日本、ロシアの 4 種類の地域に分けて気塊の由来を分類した。 本報告書では主に能登学舎で観測された、NO_y, $T.NO_3$ の観測結果について述べる。NO_y, $T.NO_3$ 濃度はともに 2013~2020 年では減少トレンドを示していた。一方で、2020 年から 2021 年に関しては濃度が上昇していたことも明らかとなった。また、気塊由来別に分類して経年トレンドを求めたところ、気塊由来に関係なく、同様な (2013~2020 年では減少トレンドを示し、2020 年から 2021 年にかけては濃度が上昇した) 経年変動が見られた。また、これらの経年変動は統計的に有意であることも確認された。2020 年から 2021 年にかけて濃度が上昇した理由としては、2020 年において Covid-19 による中国で社会活動が停止となったことが要因であると推察された。実際に、人工衛星 TROPOMI による NO_2 カラム濃度の観測では、中国において 2020 年の濃度は低くなっており、2021 年には濃度が上昇していることが確認されている。 研究目的の項目で、近年硝酸アンモニウムの濃度が上昇しているという報告があることを述べたが、今回の経年トレンド解析結果からは、越境輸送される窒素酸化物種全体に関しては、硝酸アンモニウムとは異なり、大陸における窒素酸化物の排出量変化自体が能登学舎で観測された NO_y, $T.NO_3$ 濃度の経年変動に影響していると考えられる。 また、O_3, CO 濃度についても、NO_y, $T.NO_3$ 濃度と同様の長期変動を示していることが明らかとなった。CO については NO_y, $T.NO_3$ と同様、大陸からの影響を反映していると考えられるが、二次生成物である O_3 についての変動要因は現在のところ不明であり、更なる解析が必要である。今後は、季節変動も反映させた解析など、更なる経年トレンドについての解析を進めるとともに、同時観測を行っている長崎県五島列島福江島での経年トレンド解析結果の比較も行うことを考えている。
見込まれる 成果物	※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。 【学会発表】 ○大西佑樹, 松木篤, 佐藤啓市, 椎木弘, 定永靖宗 「能登半島珠洲における大気汚染物質の経年変動解析」 2021 年度大気環境学会近畿支部研究発表会、2021/12/27、大阪市。

※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	とりば あきら	提出年月日	2022年 4月27日	
申請者氏名	鳥羽 陽			
所属・職名	長崎大学大学院医歯薬学総合研究科 (薬学系)・教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☐ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☒ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	越境大気汚染物質の化学的特性と毒性に関する研究			
研究実施期間	2021年 4月 1日～2022年 3月31日			
センター教員	環日本海域環境研究センター 教授 唐 寧			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	鳥羽 陽	長崎大学大学 院医歯薬学総 合研究科（薬 学系）	教授	研究総括
	分担者	唐 寧	金沢大学環日 本海域環境研 究センター	教授	試料捕集，分析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	粒子状物質	個体	56	
	分析した試料	粒子状物質	個体	60	
研究目的・ 期待される 成果	近年日本国内において、近くに大きな発生源のない地域でも長距離輸送された大気汚染の影響による PM_{2.5} 濃度の増大や光化学スモッグ注意報の発令など、大陸からの越境汚染に注目が集まっている。地元由来の汚染源の少ない石川県能登地域でも、大陸から大気汚染物質が輸送され、その過程で大気粒子の変質・毒性化が起これと考えられる。目立った一次発生源がない能登地域は、越境汚染を鋭敏に反映することから、越境汚染に伴う有機汚染物質の生成メカニズムを明らかにするのに最適な環境である。そこで本研究では、能登大気観測スーパーサイトや金沢市内において捕集した大気粒子に含まれる多環芳香族炭化水素類などの有機汚染物質を季節ごとに解析し、同時に活性酸素種（ROS）産生に基づく毒性を評価することで粒子の長距離輸送と毒性との関係を明らかにすることを目的とする。本研究は、黄砂飛来時や大陸からの長距離輸送が顕著な時期における有機物質濃度と喘息による病院受診件数との関係といった健康影響に関する知見について、含有化学物質の毒性の観点からを裏付けることを可能とし、低汚染地域における越境大気汚染の脅威を明確にする。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	能登大気観測スーパーサイト（輪島測定局）に設置された微小粒子状物質自動計測器（紀本電子工業、PM-714）を用いて 12 時間ごとに春季（4 月～5 月）に捕集された微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 試料（日中と夜間）について多環芳香族炭化水素 (PAH) のキノン誘導体 (PAHQ) の測定を実施した。テープろ紙上の PM_{2.5} 粒子をジクロロメタンで 2 回超音波抽出し、濃縮した抽出物について水とトルエンを加え遠心分離した後、トルエン相を分取し、濃縮した後にアセトニトリルに転溶して亜鉛粒、ジチオスレイトール及びトリメチル化 (TMS) 誘導体化試薬を加え、80℃で 30 分間反応させて TMS 誘導体とした。水とヘキサンによる液-液抽出でヘキサン相を分取した後、減圧濃縮しガスクロマトグラフータンデム質量分析計 (GC-MS/MS) を用いて PAHQ を測定した。カラムは DB-5MS (30 m×0.25 mm i. d., 0.25 μm, J&W) を使用し、EI モードによる選択反応モニタリング (SRM) 法で 2～5 環の PAHQ 33 種を測定した (Toriba et al., <i>J. Chromatogr. A</i> 1459, 89-100, 2016)。 輪島で捕集された PM_{2.5} 試料中の PAHQ を測定したところ、33 種の測定対象のうち定量下限以下であった 7 種を除き定量することができ、使用した GC-MS/MS による分析法が微量なテープろ紙上の粒子試料の分析にも十分な感度を有していることがわかった。PAHQ の総濃度の平均は 150 ± 75.5 pg/m³ で、母核の PAH に匹敵する濃度で存在していた。また、日中と夜間の試料間での濃度差はほとんどなかった。PAHQ の組成について、9,10-アントラキノ (9,10-AQ) がもっとも高濃度に存在し、PAHQ 総濃度の最大 71%を、次いでベンゾ[a]ピレン-6,12-キノ (BaP-6,12-Q) が最大 19%を占め、次に 7,12-ベンゾ[a]アントラセンキノ (7,12-BaAQ) が最大 15%の含有量であった。高濃度で存在する PAHQ は、母核 PAH が比較的不安定で、反応しやすい位置が酸化されて PAHQ となっていることから、発生源に関係なく反応性の影響が大きいと考えられる。また、都市大気中での 9,10-AQ や 7,12-BaAQ は以前から高濃度に存在することが報告されているものの、ベンゾ[a]ピレンのキノ (BaPQ) 類が高い割合で存在していることは報告されていない。輪島では周辺に顕著な一次発生源がないと予想できることから、BaPQ 類は大気内で二次生成したものと推定できる。今後、異なる捕集年度や季節の試料についてさらに分析して大陸からの長距離輸送などについて考察する予定である。
見込まれる 成果物	学部 4 年生が卒業研究として本試料の分析を実施しており、今後卒業論文として成果をまとめ、学会での口頭（ポスター）発表を行う予定である。また、十分なデータ解析を行った後に国際誌に原著論文を投稿する予定である。

※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。

※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	やまぐち けいこ	提出年月日	2022 年 4 月 15 日	
申請者氏名	山口 啓子			
所属・職名	国立大学法人 島根大学・教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☒ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☒ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	二枚貝殻体に含有する微量元素を利用した汽水湖の環境変化解読手法に関する研究			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～2022 年 3 月 31 日			
センター 教員	長谷部徳子			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	山口啓子	島根大学	教授	試料採集
	分担者	三原正太郎	島根大学	学部 4 年	試料観察測定
		長谷部徳子	環日本海域環 境研究センタ ー	教授	化学分析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	二枚貝殻体	粉末あるいは固体	約 30	
	分析した試料	二枚貝殻体 堆積物	粉末あるいは固体 粉末あるいは固体	18 9	
研究目的・ 期待される 成果	中海は日本海と接続する内湾汽水湖である。日本海の閉鎖性に起因する潮汐の弱さによって水域の海水交換が制限される性質を持つ。一方、中海は干拓淡水化計画にともなう堤防建設などの人為的な環境変化をうけ、それを機にさらなる海水の流入の変化や貧酸素化が起こったとされている。本研究は、この水域特性を利用し、閉鎖性の変化による貧酸素化と化学物質の変化を二枚貝殻体中の微量元素濃度変化によって読み解くことを試みる。2020 年度の共同研究の成果から、サルボウガイ殻体の Mn 濃度が貧酸素化の程度に応じて大きく変化している可能性が示唆された。そこで、2021 年度は水域内の環境傾度を利用して貧酸素化の程度の異なる地点でサルボウガイの殻体を採取し、水質・底質などの生息環境の測定値と二枚貝殻体から数年間の環境変化を読み解く。本研究では二枚貝分析を併用することが特色であり、生物擾乱がある柱状試料からも環境変化を読み解く新たな手法を開拓することを目指す。				

※申請書に記載した事項を要約して下さい。

利用・研究
実施内容・
得られた成
果

内海・内湾のような閉鎖性水域では海水交換が制限され、人為的環境改変も加わって、貧酸素化や底質の還元化が生物の生息にもたらす影響が問題となっている。中海はその代表であり、日本海の閉鎖性に起因する潮汐の弱さによって水域の海水交換が極めて制限され、夏期を中心に著しい貧酸素水塊の発生が知られている。本研究は、この水域特性を利用し、貧酸素の程度や変化を二枚貝殻体中の微量元素濃度変化によって読み解く手法の開発を目的とした。材料としたサルボウガイ *Anadara kagoshimensis* は、かつて中海の主要水産物であったが、中海の水質悪化により激減したと考えられている。2020 年度の共同研究によりサルボウガイ殻体の Mn 濃度は貧酸素化の程度に応じて変化している可能性が示唆された。そこで、2021 年度は水域内の環境傾度を利用して貧酸素化の程度の異なる地点でサルボウガイの殻体を採取し、殻体の微量元素分析によって、その個体が生息した 1-2 年間の環境変動と関連づけることを試みた。境水道からの海水の流れに沿うように設定した 15 地点において、2021 年 10-11 月に貝桁引きによって現生のサルボウガイを採集した。採集地点は、貧酸素の程度の指標となる底質の AVS 濃度をもとに、I・II・III の 3 段階に区分し、各区について各 3 個体を貝殻の分析試料とした。殻体を樹脂包埋し、切断、鏡面研磨を施したのちに走査型電子顕微鏡で観察した。成長線の分布と形状から形成時期を推定し、1 年以上と判断した範囲を微量分析に供した。金沢大学環日本海環境研究センターにて LA-ICP-MS を用いて、成長方向にそってラインスキャン分析およびスポット定量分析により微量元素を測定し、パターンの検出をおこなった。

ラインスキャン分析およびスポット分析の結果、ほとんど全てのサンプルにおいてそれぞれ Mn/Ca 強度比、 ^{55}Mn 濃度が高くなる期間と低くなる期間が交互に出現し、両分析の結果は同様の変動パターンを示した。I・II・III 間の Mn 濃度の平均値およびピーク値は、AVS 濃度が低い I 区で低く、AVS 濃度が高い II・III 区分で高い値を示した。ピーク値では、II と III の区分で大きな差は見られなかった。これはある程度貧酸素の期間が長くなると、殻体形成が抑制されるためであると考えられた。

また各スポットの構成元素（13 種）の類似性について考察するため、得られたスポット分析値に対してクラスター解析を行った。その結果、Mn 濃度および Zn 濃度の高低で大きくグループが分かれた。これらクラスターを分けた殻体中の微量元素のうち、Mn は生息環境の還元状態、Mg は水温、Sr は塩分によってそれぞれ値が変動するとの報告があり、本研究では、その中でも Mn 濃度が大きく寄与すること、すなわち、殻体内の微量元素濃度の変動が、酸素環境の変動を大きく反映していることが示唆された。以上のことから、サルボウガイ殻体の Mn 濃度は貧酸素状態の程度により変動し、生息する水域環境の貧酸素の経時的な変化を推定するツールとして有効である可能性が示された。

※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。

見込まれる
成果物

三原正太郎 島根大学生物資源科学部 卒業論文
「サルボウガイ殻体中の Mn 濃度を用いた貧酸素環境推定手法の検討」

※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	しみず けいすけ	提出年月日	2022 年 4 月 28 日	
申請者氏名	清水 啓介			
所属・職名	東京大学大学院農学生命科学研究科・特任研究員			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	海洋酸性化による巻貝幼生の貝殻形成への影響評価に関する研究			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 31 日			
センター 教員	鈴木信雄			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	清水啓介	東京大学	特任研究員	研究の遂行
	分担者	鈴木道生	東京大学	准教授	研究の補助
		鈴木信雄	金沢大学	教授	研究の補助
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	クサイロアオガイ	生体	50	
	分析した試料	クサイロアオガイ	生体	50	
研究目的・ 期待される 成果	背景：水圏環境の変化による生物影響を分子レベルで理解することは水圏生態系動態の予測に必要不可欠である。しかし、水産有用種を対象とした研究が数多く行われている一方で、海洋生態系の中核に位置する無脊椎動物の幼生を含む動物プランクトンに関する知見は乏しい。 目的：海洋酸性化による貝殻形成への影響を分子レベルで明らかにするための基盤研究として巻貝の幼生の貝殻(幼殻)に含まれる基質タンパク質を同定し、貝殻成長への影響評価に必要な分子マーカーを確立する。 期待される成果：軟体動物における生物影響の研究の多くはカキやアワビのような水産有用種に着目している。しかし本研究では、沿岸域の生態系を支えるプランクトン生活をする巻貝幼生への影響を評価する際に有用な知見が得られることが期待される。また、貝殻基質タンパク質をコードする遺伝子の中で環境ストレスにより影響を受ける遺伝子と影響を受けない遺伝子を比較することで、貝殻成長の緻密な制御メカニズム自体に迫る知見を得られる可能性がある。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究実施内容・得られた成果	潮間帯に生息するクサイロアオガイ (<i>Nipponacmea fuscoviridis</i>) を採集し、実験室内で人工受精を行った。受精卵を 22℃ の海水で飼育し、受精後 40 時間 (40 hpf: 40 h post fertilization) のベリジャー幼生を 100% EtOH で固定した。幼生の貝殻の成長プロセスを明らかにするため、受精卵を 22℃ の海水で 1 週間飼育した。その結果、受精後 7 日目以降に着底して稚貝へと変態した個体が観察された。そこで、稚貝へと変態するまでの貝殻の成長を定量的に解析するため、受精後 1 日目、3 日目、5 日目の幼生を 100% エタノールで固定した。次にサンプルを十分乾燥させ、マイクロ X 線 CT (MXCT) により撮影した。その結果、これまで解析が困難であった非常に小さい幼生の貝殻の厚みや炭酸カルシウム密度を定量的に解析することが可能であることが明らかとなった。また、受精後 1 日目から 3 日目にかけて貝殻の厚みと炭酸カルシウム密度が増加していることを明らかにした。一方、3 日目から 5 日目の間では貝殻の厚みと密度が変化しないことを明らかにした。 次に海洋酸性化状態を模倣した pH の異なる海水を用いた飼育実験を行なった。海水の pH 条件は 8.02, 7.94, 7.65, 7.54 の 4 種類を用いた。飼育実験は受精後 40 時間まで行い、貝殻形成への影響を観察した。その結果、初期卵割にはほとんど影響は見られなかった。しかし、コントロールの海水 (pH8.02) 以外の 3 種類の海水では貝殻形成への影響が見られた。より詳細な影響を調べるため、MXCT を用いて貝殻の形態解析を行った。その結果、低 pH の海水で飼育した個体の貝殻は薄くなり、相対的な殻密度も低下していることが明らかとなった。 本研究により、(1) 海洋酸性化により幼生の貝殻形成への影響が危惧されること、(2) 100 μm 程度の軟体動物の幼生の貝殻の厚みや殻密度を定量的に解析することができることが明らかとなった。また本手法の確立により、(3) 骨格形成への影響を種間・分類群間で定量的に比較することができるようになった。
※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。	
見込まれる成果物	発表済みの成果 研究集会での口頭発表 <u>清水啓介</u>, <u>根岸瑠美</u>, <u>胡桃坂仁志</u>, <u>鈴木信雄</u>, <u>遠藤一佳</u>, <u>鈴木道生</u>. 軟体動物腹足類における幼殻基質タンパク質の進化. 第 16 回バイオミネラルセッションワークショップ (2021 年 11 月 10 日)
※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。	

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	かわの じゅん	提出年月日	2022 年 4 月 28 日	
申請者氏名	川野 潤			
所属・職名	北海道大学大学院理学研究院・地球惑星科学部門・地球惑星システム科学分野 准教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	モンゴルのアルカリ塩湖に第7の炭酸カルシウムを見出す			
研究実施 期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 31 日			
センター 教員	福士圭介教授			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	川野潤	北海道大学	准教授	鉍物分析・第一原理計算
	分担者	福士圭介	金沢大	教授	合成実験
		酢山真衣	金沢大	博 士 前 期 課程 1 年	合成実験
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	$\text{CaCO}_3 \cdot 0.5\text{H}_2\text{O}$	粉末	1	
	分析した試料	$\text{CaCO}_3 \cdot 0.5\text{H}_2\text{O}$	粉末	63	
研究目的・ 期待される 成果	カルシウム炭酸塩は地球上に普遍的に存在し、炭素循環に関与する重要な媒体である。これまでカルシウム炭酸塩として 6 つの鉍物種が認識されてきたが、これらに加え 2019 年におよそ 100 年ぶりに 7 つ目の炭酸カルシウムの結晶相 ($\text{CaCO}_3 \cdot 0.5\text{H}_2\text{O}$) が室内合成実験から見出された。$\text{CaCO}_3 \cdot 0.5\text{H}_2\text{O}$ は地球上に豊富に存在する元素から構成されており実験室では簡単に合成することができるが、自然界における生成は報告されていない。第 7 の炭酸カルシウムが自然界で見過ごされていることは、この物質が関わっている自然科学的プロセスを我々が見落としているからに他ならない。本共同研究は、世界に先駆けて第 7 の炭酸カルシウムを自然界に見出すことを目的とする。 21 年度は予察的な検討として、$\text{CaCO}_3 \cdot 0.5\text{H}_2\text{O}$ の生成条件を様々な水質条件における室内合成実験から検討した。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究
実施内容・
得られた成
果

炭酸塩鉱物合成のために、2 mol/kg の CaCl_2 ストック溶液と $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ストック溶液、1 mol/kg の Na_2CO_3 ストック溶液を 1 L のテフロンビーカー中に作成した。50 mL または 100 mL のポリプロピレン容器中で CaCl_2 溶液と $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 溶液とイオン交換水を混合し、 Na_2CO_3 溶液を添加した。初期溶液の Ca 濃度は 0.05 mol/kg で一定とし、 Mg 濃度は 0, 0.005, 0.01, 0.02, 0.03, 0.04, 0.05, 0.06, 0.07 mol/kg、 CO_3 濃度は 0.01, 0.02, 0.03, 0.04, 0.05, 0.06, 0.07, 0.08, 0.09, 0.10, 0.11 mol/kg の範囲に調製して、全 63 通りの条件で合成実験を行った。 Na_2CO_3 溶液を添加した時間を反応開始時間とし、25℃のインキュベータ内で混合ローターにより 60 分攪拌した。攪拌後、懸濁液の pH を事前に電極の pH 較正を行った pH メーターにより測定した。pH 測定後、0.2 μm 混合セルロースエステル製メンブランフィルターを通してアスピレーターを用いて減圧濾過による固液分離を行った。固相はすぐに液体窒素で凍結し、凍結乾燥機により凍結乾燥させた。凍結乾燥後、粉末状にした固体に対して $\text{CuK}\alpha$ 線を用いた粉末 X 線回折(XRD)分析を行うことで、生成物の同定を行った。固液分離により得られたろ液のうち、30 mL をマイクロピペットで別のポリプロピレン容器に移しアルカリニティ滴定に供した。アルカリニティはろ液の pH を測定しながら 0.1 規定の H_2SO_4 溶液を添加し、pH 4.8 に達するまでの添加体積に基づき算出した。残ったろ液は、 HNO_3 濃度が 0.6% になるように、超高純度 60% HNO_3 を体積にして 1% 分になるように添加した。得られた溶液を 0.6% HNO_3 溶液を用いて 1000 倍に希釈し、誘導結合プラズマ発光分光分析装置によって Ca 、 Mg 、 Na 濃度を測定した。

XRD パターンから同定された生成物と、初期溶液中の Mg 濃度と CO_3 濃度の関係を図 1 に示す。XRD パターンからはカルサイト、ファーテライト、モノヒドロカルサイト(MHC)、非晶質炭酸カルシウム(ACC)、 $\text{CaCO}_3 \cdot 0.5\text{H}_2\text{O}$ (CCHH) の 5 種類の生成物が確認された。XRD パターンにおいて $2\theta = 31, 45^\circ$ の位置にブロードなバンドが確認された場合に、ACC が存在すると認定した。反応生成物の鉱物組み合わせは(1)ACC、(2)ACC+MHC、(3)カルサイト、(4)カルサイト+ACC、(5)カルサイト+ファーテライト、(6)CCHH+カルサイト、(7)CCHH+カルサイト+ACC、(8)CCHH+カルサイト+ファーテライト、(9)CCHH+カルサイト+ファーテライト+ACC、(10)CCHH+ファーテライト+ACC、(11)CCHH+ACC の計 11 種類に分類された。63 個のサンプル中、CCHH の回折ピークが検出されたサンプルは 30 個であり、そのうち 27 サンプルは CCHH とカルサイトまたはファーテライトと共存していた。

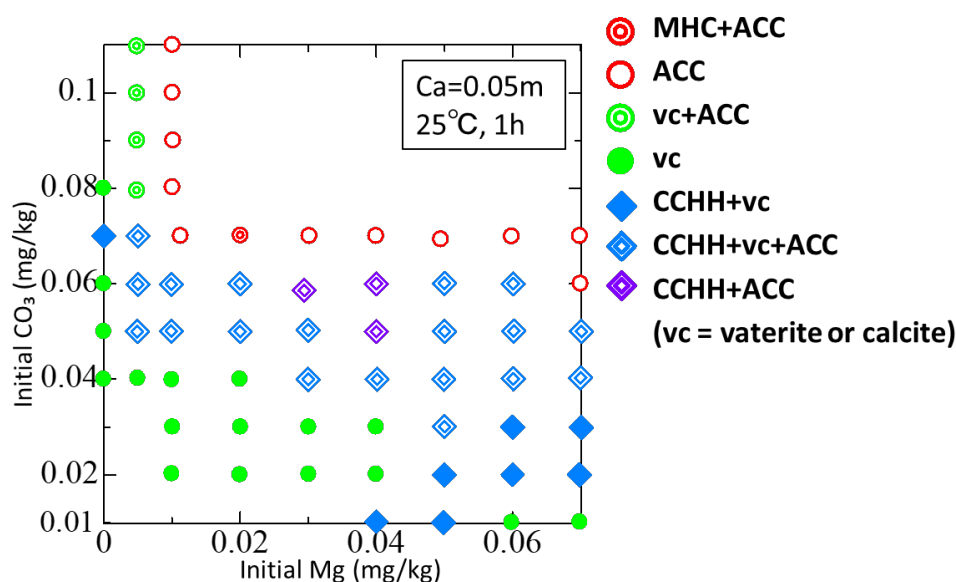


図 1 生成物と初期 Mg 濃度と初期 CO_3 濃度との関係

CO_3 濃度が 0.04 mol/kg 以上では ACC が含まれる傾向にあり、0.03 mol/kg 以下では結晶相のみのサンプルがほとんどである。 Mg 濃度 0 mol/kg においては CO_3 濃度に関係なく ACC は含まれなかった。 Mg 濃度と CO_3 濃度が共に低い濃度条件ではカルサイトとファーテライトのみが検出された。また CO_3 濃度が高い(0.08 mol/kg 以上)の条件であっても Mg 濃度が低い場合(0.05 mol/kg 以下)、カルサイトとファーテライトのみが検出された。さらに Mg 濃度が高い(0.06 mol/kg 以上)であっても、 CO_3 濃度が低い(0.01 mol/kg 以下)場合、カルサイトとファーテライトのみが検出された。 CO_3 濃度が 0.07 mol/kg 以上かつ Mg 濃度が 0.01 mol/kg 以上の条件では ACC および一部 MHC の存在が認められた。 Mg 濃度が特に高い条件(0.07 mol/kg)では 0.06 mol/kg の CO_3 濃度でも ACC が単独で生成した。 Mg 濃度が高く(0.05 mol/kg 以上) CO_3 濃度が低い(0.03 mol/kg 以下)では CCHH とカルサイトまたはファーテライトの混合物が認められた。また、 Mg 濃度 0 mol/kg、 CO_3 濃度 0.07 mol/kg においても CCHH とカルサイトおよびファーテライトの混合物が生成した。 Mg 濃度 0.03, 0.04 mol/kg かつ CO_3 濃度 0.05, 0.06 mol/kg の条件では CCHH と ACC の混合物が生成した。上記以外の領域では CCHH とカルサイトまたはファーテライトおよび ACC の混合物が検出された。 Mg 濃度 0 mol/kg において 4 回サンプル作成したが内 3 回 CCHH が形成された。

このように、CCHH はこれまで認識されていなかった物質ではあるが、短時間では幅広い水質条件で生成することを明らかにした。

※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。

見込まれる 成果物	川野 潤, 鉍物溶解/成長時の pH およびイオン濃度分布変化を可視化する: 蛍光プローブを用いた試み, 日本地球化学会第 68 回年会, オンライン, 2021.09.7 (招待講演) 他、原著論文投稿準備中
※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。	

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	きむら まこと	提出年月日	2022 年 5 月 12 日	
申請者氏名	木村 誠			
所属・職名	公立小松大学 国際文化交流学部 准教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般 ☐ 国際	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☐ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☒ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	木場潟における植物への認知的評価の特性～調和的水辺環境の創成へ向けて～			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 31 日			

センター 教員		塚脇真二 教授			
研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	木村 誠	公立小松大学 国際文化交流学部	准教授	統括・実験実施・分析
	分担者	塚脇 真二	金沢大学 環日本海域環境研究セ ンター	教授	画像標本作成・分析
		本田 匡人	金沢大学 環日本海域環境研究セ ンター	助教	画像標本作成・分析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料			物質名	形態（形状）	試料数
		申請書に記載 した試料	なし		
		分析した試料	なし		
研究目的・ 期待される 成果		木場潟のさまざまな自然、とくに湖畔や湖内の植生は、水質の安定や生物多様性の保全などの役割を果たしている。その一方で、木場潟は訪問者の憩いの場としても機能しており、その豊かな自然は人々の心身の健康の維持にも大きく寄与している。植物とのふれあいがもたらす心理的影響については多くの知見が得られているものの、特定の自然公園を対象とした植生の心理的影響に関する研究はない。 そこで本研究では、木場潟に例をとって、そこに自生する植物に対する認知的評価の特性についての実験室実験を行う。植物の画像を用いた印象評定を主とした心理測定法によってデータを収集し、木場潟の自然環境との接触が訪問者の心にも与える影響を心理学的に解析する。この成果を研究機関や自治体に提供することで、訪問者の心理的健康の視点を取り入れた、人と自然と動物との調和的な水辺環境の創成に貢献できることが期待される。本申請期間においては、大学生を実験参加者として、植物に対する SD 法を用いた印象評定の実験を実施する。実験手続きとして、刺激呈示ソフトを用いて植物の画像をディスプレイ上に提示し、それぞれの植物画像に対する主観的な評定を得る。木場潟に自生する植物の他、木場潟を有する小松市が施策の一環として整備を進めているバラ園、花壇に用いられている植物種を刺激として提示する植物として採用し、反応傾向を比較分析する。この実験により、木場潟の植生の心理的効果の特徴を明らかにする。また、他の対象地の植生についての結果と比較分析を行うことにより、木場潟の自然環境の独自性について心理学的な知見を得ることを目指す。			
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	本研究では、小松市に存在する植物を自然植栽と人工植栽に分類し、植物の画像を用いた印象評定法によってデータを収集した。自然植栽として木場潟に自生する植物を 20 種選定した。それらをさらに「湖内」「湖畔」「花」「樹木」の 4 カテゴリに分類して実験に用いた。人工植栽として、小松市内のバラ園および花壇で用いられている植物の内、使用頻度の高いものを 10 種選定した。また、木場潟の特徴を詳細に検討するため、木場潟にて選定した植物種 20 種には重要種を 8 種含めた。なお、植物の選定は、小松市役所緑花公園課と木場潟公園協会の協力を得て実施した。 実験手続きとして、植物の画像をディスプレイ上に提示し、それぞれの植物画像に対する主観的な評定を得た。評定方法は正反対の意味を持つ形容詞対（例：美しいー醜い）によって構成される質問項目について 7 段階で印象を評定させる SD 法を用いた。大学生 36 名が本実験に参加した。なお、本実験に先立ち、SD 法に使用する形容詞対の選定のために予備調査を実施した。予備調査では、10 名の大学生から得られた 30 種の植物の印象に関する自由記述を 3 名の研究実施者・協力者によって分析し、出現頻度の高いカテゴリを最も適切に表現する形容詞対を 18 選定した。 結果の分析では、小松市に存在する植物について、人工植栽と自然植栽の印象の差異を比較検討するとともに、木場潟に自生する植物のカテゴリ間の印象の比較を行った。人工植栽と自然植栽の印象評定の比較においては、18 の形容詞対の内、16 の形容詞対について有意な差が認められ、両群間において明確な印象の差異が存在することが示された。因子分析（主因子法・プロマックス回転）を用いて因子負荷量 0.4 以上の条件にて植物の印象評定に影響する因子の抽出を行った結果、4 因子が抽出された（因子名：非活動性、否定的評価、冷徹、荘厳）。因子得点に基づいた人工植栽の特徴として、バラ園では、美しさ、かわいらしさ、明るさなどを感じるが、親しみやすさ、懐かしさは喚起されにくいことが示唆された。一方、木場潟の植物の特徴としては、遊歩道などから鑑賞できる湖畔の植物や樹木は、美しさ、かわいらしさ、明るさなどの印象は与えないが、親しみやすさ、懐かしさが喚起される傾向が示された。これらの結果から、自然植栽と人工植栽は景観・環境整備において異なる役割が与えられうると考えられるため、小松市の環境整備に資する知見が得られたといえる。そればかりでなく、木場潟の植生が鑑賞者に与える印象の特徴から、「なつかしさ」が与える心理効果の観点から、木場潟の研究を進めるといふ今後の木場潟研究の展望を得ることができた。 ※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。
見込まれる 成果物	【口頭発表】 1. 日本心理学会第 86 回大会における口頭発表（2022 年 9 月予定） 【原著論文】 1. 心理学の諸領域第 12 巻（投稿予定） ※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	かしわばら てるひこ	提出年月日	2022 年 4 月 28 日	
申請者氏名	柏原 輝彦			
所属・職名	海洋研究開発機構海洋機能利用部門海底資源センター・副主任研究員			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☐ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☒ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	陸上の鉄マンガン酸化物への元素濃集実態の解明に向けた表面化学的アプローチの検討			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 31 日			
センター教員	福士圭介教授			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	柏原輝彦	JAMSTEC	副 主 任 研 究 員	化学分析
	分担者	福士圭介	金沢大	教授	表面錯外モデリング
		奥山晃浩	金沢大	博 士 前 期 課 程 2 年	吸着実験
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料			物質名	形態（形状）	試料数
	申請書に記載 した試料		水酸化鉄	粉末	3
	分析した試料		マンガン酸化物	粉末	5g 程度
研究目的・ 期待される 成果	目的と意義：本研究の目的は、様々な陸上環境で採取された鉄マンガン酸化物が (i) どのような元素を濃集するのか？ (ii) その要因は何か？を解明することである。かつて鉱山活動が盛んであった北陸地方採取した鉄マンガン酸化物の化学組成や表面官能基の解析を通して、多様な水環境に産出する陸上の鉄マンガン酸化物への元素濃集についての有効な解析法を検討する。 特色：金属資源として有望視され、研究が進んでいる海底の鉄マンガン酸化物との比較しながら、鉱物表面の化学プロセスを解析していく点に特色がある。 期待される成果：複雑な微生物-鉱物混合体である陸上の鉄マンガン酸化物への元素濃集が、海底鉱物に対してどのような特徴を持つのか理解する足掛かりが得られる。また得られた知見は、陸上鉱物が有用金属資源として有望かどうか、といった資源科学的な観点からも重要な指針を与える可能性がある。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究
実施内容・
得られた成
果

1.はじめに 海洋に見られる鉄・マンガン酸化物は海水からモリブデンを効果的に取り込むことが知られている。陸上においても鉄・マンガン酸化物がモリブデンの有効な取り込み媒体として機能するかを理解するためには、海水よりも多様な水質条件における吸着挙動を理解する必要がある。また、海洋においてモリブデンはマンガン酸化物に吸着することにより、大きな同位体分別が生じることが報告されている。もしも陸水環境においても大きな同位体分別が生じるのであれば、探査のための有効なツールとなる可能性がある。そこで本年度は鉄酸化物およびマンガン酸化物に対するモリブデンの吸着挙動を実験的に検討するとともに、表面錯体モデリングによる解析を行った。また予察的に様々な水質条件における吸着に伴うモリブデン同位体分別挙動を実験的に検討した。

2.手法 表面錯体モデリングは鉱物のイオンの吸着を定量的・理論的に扱うことが出来る手法である。拡張三重層モデル(ETLM)は分光分析と調和的な錯体形態割合を得られるモデルである(Fukushi et al., 2021)。本研究では δMnO_2 とフェリハイドライトの Mo 吸着実験を行い、吸着データを ETLM で解析し、錯体割合を推定した。さらに分光分析結果と比較し、モデルの妥当性を評価した。さらに水質による同位体分別の変化を調査するために、吸着実験を行った試料の Mo 同位体測定を海洋研究開発機構で MC-ICP-MS を用いて行った。

3.結果と考察 δMnO_2 における Mo 吸着挙動は 2 つの内圏錯体 ($>\text{S}(\text{OH})_2\text{MoO}_3(\text{H}_2\text{O})$, $>\text{S}(\text{OH})_2\text{MoO}_3\text{OH}^-$) を想定することで再現できた。フェリハイドライトは前述の 2 つの内圏錯体に加え、1 つの外圏錯体 ($>\text{SOH}_2^+ \text{HMoO}_4^-$) を用いて再現できた。結果をそれぞれ図 1a, b に示す。どちらの鉱物でも吸着挙動をうまく再現できた。この結果は分光測定から得られた表面錯体組み合わせ (Kashiwabara et al., 2011) と調和的である。同位体分別では外圏錯体と内圏錯体の割合が重要となる。モデルが錯体割合を正確に表現できているか確認するために分光分析が行われた実験条件を解析した (図 1c)。分光分析は pH4,6,8 の条件で測定されており、表面錯体モデリングはいずれの条件でも錯体割合を妥当に再現することが出来た。

MC-ICP-MS 測定により得られた δMnO_2 とフェリハイドライトに吸着した Mo 同位体測定の結果を図 1d, e に先行研究とあわせて示す。本研究では δMnO_2 による同位体分別は ~2% と先行研究よりも低い結果が得られた。吸着率も先行研究より低い 20~30% であり、 δMnO_2 においても吸着率が低い条件では同位体分別がこれまで予測されていた値より小さくなる可能性がある。フェリハイドライトによる同位体分別は pH10.03 の条件以外は 1~1.2% と先行研究と同程度を示した。pH10.03 の大きな同位体分別は実験の誤差によるものだと考えられる。吸着率が非常に低いため、わずかな同位体分別の偏りが過大評価されている可能性がある。作成したモデルによると pH が 8 から 10 に上昇すると内圏錯体の割合が増加し、Mo 同位体分別は大きくなると推測される。しかし、pH10.03 の条件を除くと測定結果は pH が上昇すると同位体分別が小さくなり、モデル予測と矛盾する。錯体割合と同位体分別が相関しない可能性があるが、実験データが不足しているためさらなる研究が必要である。

4.まとめ δMnO_2 とフェリハイドライトの Mo 吸着実験を行い、表面錯体モデルを作成した。モデルにより分光分析で観察された水質による錯体割合変化を再現できた。 δMnO_2 とフェリハイドライトによる Mo 同位体分別を調査した。同位体分別が不変であると考えられていた δMnO_2 は先行研究より分別が小さく、水質による変化も見られた。フェリハイドライトに吸着した Mo は水質による同位体変化がみられたが、錯体割合からの予測と異なる傾向を示した。

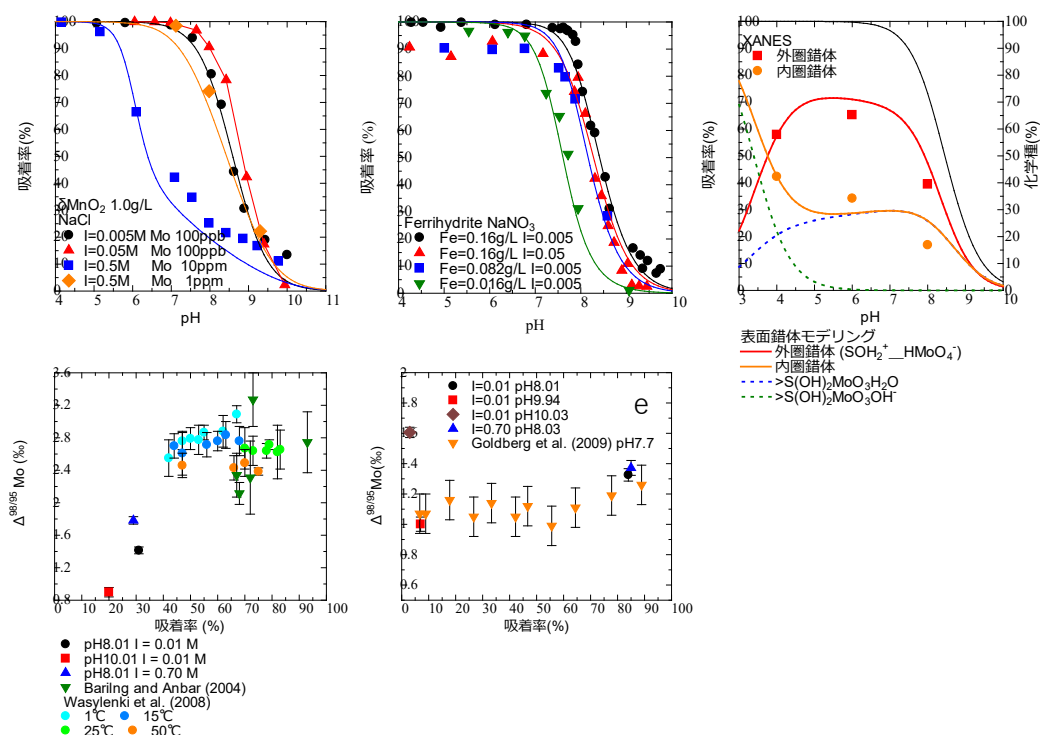


図 1 δ MnO₂ の Mo 吸着結果と表面錯体モデリング(a), フェリハイドライトの Mo 吸着結果と表面錯体モデリング(b), 分光分析と表面錯体モデリングの錯体割合(c), δ MnO₂ に吸着した Mo の同位体分別(d), フェリハイドライトに吸着した Mo の同位体分別(e)

引用文献

- Barling, J., & Anbar, A. D. (2004). Molybdenum isotope fractionation during adsorption by manganese oxides. *Earth and Planetary Science Letters*, 217(3–4), 315–329. [https://doi.org/10.1016/S0012-821X\(03\)00608-3](https://doi.org/10.1016/S0012-821X(03)00608-3)
- Fukushi, K., Okuyama, A., Takeda, N., & Kosugi, S. (2021). Parameterization of adsorption onto minerals by Extended Triple Layer Model. *Applied Geochemistry*, 134, 105087. <https://doi.org/10.1016/J.APGEOCHEM.2021.105087>
- Goldberg, T., Archer, C., Vance, D., & Poulton, S. W. (2009). Mo isotope fractionation during adsorption to Fe (oxyhydr)oxides. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 73(21), 6502–6516. <https://doi.org/10.1016/j.gca.2009.08.004>
- Kashiwabara, T., Takahashi, Y., Tanimizu, M., & Usui, A. (2011). Molecular-scale mechanisms of distribution and isotopic fractionation of molybdenum between seawater and ferromanganese oxides. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 75(19), 5762–5784. <https://doi.org/10.1016/j.gca.2011.07.022>
- Tebo, B. M., Johnson, H. A., McCarthy, J. K., & Templeton, A. S. (2005). Geomicrobiology of manganese(II) oxidation. *Trends in Microbiology*, 13(9), 421–428. <https://doi.org/10.1016/J.TIM.2005.07.009>
- Wasylenki, L. E., Rolfe, B. A., Weeks, C. L., Spiro, T. G., & Anbar, A. D. (2008). Experimental investigation of the effects of temperature and ionic strength on Mo isotope fractionation during adsorption to manganese oxides. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 72(24), 5997–6005. <https://doi.org/10.1016/j.gca.2008.08.027>

※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。

見込まれる 成果物	報告済みの成果物 奥山晃浩・福士圭介・柏原輝彦, 2021, 表面錯体モデリングによる酸化物のモリブデン吸着形態の解析. 日本鉱物科学会 2021 年年会, オンライン (2021.9.16-18) 奥山晃浩, 2022, Surface Complexation Modeling of Molybdenum Adsorption on Oxides to predict the isotope fractionation, 修士論文 (金沢大学) K.T. Goto, Y. Sekine, T. Ito, K. Suzuki, A. D. Anbar, G.W. Gordon, Y. Harigane, T. Maruoka, G. Shimoda, T. Kashiwabara, Y. Takaya, T. Nozaki, J.R. Hein, G. M. Tetteh, F.K. Nyame, S. Kiyokawa, “Progressive ocean oxygenation at ~2.2 Ga inferred from geochemistry and molybdenum isotopes of the Nsuta Mn deposit”, <i>Chemical Geology</i>, 567, 120116 (2021). Y. Fukami, T. Kashiwabara, H. Amakawa, T. Shibuya , A. Usui and K. Suzuki, “Tellurium stable isotope composition in the surface layer of ferromanganese crusts from two seamounts in the Northwest Pacific Ocean”, <i>Geochimica et Cosmochimica Acta</i>, 318, 279-291 (2022).
--------------	---

※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	ナガトゴウ	提出年月日	2022 年 5 月 11 日	
申請者氏名	長門豪			
所属・職名	島根大学、生物資源科学部			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☐ 一般共同研究 ☒ 若手研究者育成共同研究	☐ 一般枠 ☒ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☐ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☒ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	プラスチック製品からのフタル酸エステル溶出とその環境運命			
研究実施期間	3 年 5 月 1 日～ 4 年 5 月 1 日			
センター教員	本田匡人			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	長門豪	島根大学	助教	サンプリング、実験
	分担者	本田匡人	金沢大学	助教	解析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	Phthalates	Household products made from plastics	40	
	分析した試料	Phthalates	Pillows and facial masks made from synthetic fibers	> 100	
研究目的・ 期待される 成果	While environmental plastics are a major concern, their toxicity is based primarily on the compounds that are adsorbed to these surfaces. Among these plastics are microfibers, which are likely the most common type of polymer in the both the external environment and the indoor environment. Adsorbed on these surfaces are many compounds such as phthalates, which are known endocrine disruptors. While these polymers are sites for contaminant adsorption, they are also surfaces from which these contaminants will evaporate from, despite their low vapour pressures. In this context, the purpose of this study was to examine phthalate emissions from common household products. Pillows the focus of this particular study, as they pose both an inhalation and dermal contact risk of exposure. It is thought that these types of materials, particularly ones made from polyurethane and other synthetic polymers would be emitters of phthalates, particularly as their manufacturing process requires the inclusion of pliable polymers. The focus was on the emission of new products to also examine whether there was an attenuation over time. Ultimately these were compared to the phthalate concentrations found in ambient air. It is expected that the smaller, more volatile compounds will be found in greater abundance and that these concentrations will attenuate over time. However, there is currently little evidence in this regard and little basis for the “airing out” times that are recommended for these types of plastic materials.				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	Usage The costs were primarily directed at the purchase and use of a portable air pump and Tenax cartridges for the capture and extraction of gas phase phthalates, as well as the necessary solvents for their extraction. While the experiment was performed at Shimane University in glass chambers, the analyses were performed by GC-MS and this was done as a collaborative partnership with Dr. Masato Honda at Kanazawa University. Experimental procedures: Experiments were conducted in closed chambers initially for face masks and pillows. However, after preliminary experiments, the pillows became the main focus of the study. The emissions of phthalates from these synthetic materials was measured over 35 days in isolated chambers and were measured at discrete intervals using Tenax cartridges as the sorbent phase. Extractions were performed using hexane and concentrated for GCMS analyses. Various controls were also run and the emissions were characterized for 4 particular phthalates. For context, gas phase samples of student apartments were also taken and the phthalate concentrations were analyzed similarly. Results: The results indicate that new polymer products such as pillows emit an inordinately high concentration of phthalates; between 600-1800 pg/g/m³ for the measured phthalates. By contrast the average indoor air phthalate concentrations were between 40-550 ng/m³. For pillows, it was found that in the vapour phase there was no attenuation in the phthalate concentrations over the 35 days, indicating that the airing out period is not within the month and that these types of materials remain a constant hazard, long after their initial use. The main phthalates were DEHP and DBP and is consistent with what has been found in other common household products, but the high concentrations of DEHP were not expected in the gas phase. The particular hazard of these phthalate emissions from pillows is based on the susceptibility that we have in the sleep environment, where there is constant exposure – both via inhalation and dermal contact – with these materials. Ultimately, these types of materials are weathered off the main pillow and constitute a portion of indoor dust, which is eventually released into the environment.
※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。	
見込まれる 成果物	The results were originally part of a student thesis (Student name: Kusayama Ren) and have since then been written up as a manuscript for publication.
※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。	

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	ちえん びしゃ	提出年月日	2022 年 3 月 30 日	
申請者氏名	陳 碧霞			
所属・職名	琉球大学農学部・准教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☐ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☒ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	気候変動に対応する棚田の持続可能な維持管理方策			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 30 日			
センター 教員	西川 潮			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	陳碧霞	琉球大学農学部	准教授	研究全般
	分担者	邱振勉	金沢大学環日本 海域環境研究 センター	連携研究員	調査実施・データ分析
		西川潮	金沢大学環日本 海域環境研究 センター	准教授	研究課題の設定、成果の発信
		Thomas Oni Veriasa	IPB University	Researcher	調査実施・データ分析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料			物質名	形態（形状）	試料数
		申請書に記載 した試料			
		分析した試料			
研究目的・ 期待される 成果	【目的】 科学と地域的知識の統合を目指し、洪水と干ばつのリスク低減に向けて気候と生態系の変化に対する棚田の持続可能な維持管理方策を提案することを研究目的とする。具体的に、1. 地域独自の水管理システムの観点から、生態系サービスを維持するため、水管理に関する伝統的な知識システムを記録・整理し分析評価する。2. 流域内の水循環及び水文学的特徴を調査し、気候変動によって棚田維持管理に及ぼす影響を明らかにする。3. 聞き取り調査とアンケート調査結果に基づいて気候変動に起因する洪水と渇水のリスクを軽減するための適応戦略および棚田維持管理の知見を提案する。 【意義・特色】 本研究で得られた知見は、気候変動に影響されやすいと言われる環日本海域における棚田維持管理の伝統的な知識システムを明確化するとともに、過疎・高齢化により地域経済が衰退している他の農村地域の環境管理に活かせることが期待できる。 【期待される成果】 (1) 棚田の持続可能な維持管理に関するローカル知識を明らかにする。 気候変動及び農村社会変化に適応した棚田の維持管理方策を提案する。				

※申請書に記載した事項を要約して下さい。

利用・研究
実施内容・
得られた成
果

コロナ禍のため、2021 年度に予定している能登半島でのアンケート調査、ヒアリング調査でできなかった。それでは、2021 年度はインドネシア・西ジャワを事例として、気候変動がもたらす農作物収益への影響に関する水田農家の意識調査へ変更した。インドネシア・ボーゴル農業大学の Thomas Oni Veriasa 氏との共同研究を考えた。

現在、世界の農家が直面している問題は、気候変動があまりにも大規模であるため、作物の植え付けを開始する適切な時期を判断できないことである。気候変動の影響は、間接的に世界の食料供給網に支障をきたす可能性がある。アジアは世界でも有数の米の生産地であり、アジアの地域は平均して降水量が多く、米の栽培に適している。気候変動以前は、農家が作付け時期を決めるのは非常に簡単だったが、時代が進むにつれ、また発生した環境影響により、気候変動による作付け時期の不安定なシフトが発生している。特に、気候変動は米の生産量減少の原因ともなっている。気候変動は、農家が化学肥料を過剰に使用し、それが地下水を汚染することも直接の原因となる。WWF インドネシアでは、気候変動の影響を緩和するために、国家適応戦略の策定への貢献、インドネシアにおけるコミュニティベースの災害リスク管理への適応の組み込み、気候変動の影響の包括的な測定と評価の実施など、いくつかの適応策を講じている。これらの適応戦略のいくつかは、農業分野で発生する問題に適応し克服するために、関連するステークホルダーが採用することが可能である。

本年度インドネシア・ジャワ島で気候変動に対する農家の意識調査を行った。本調査研究目的は三つある。(1) 気候変動が水田経営に与える影響 (2) 気候変動に対する農家の適応策 (3) 気候変動を克服するための農家グループの役割などである。

データ収集は、2021 年 11 月から 12 月にかけて、西ジャワ州スカブミ県カバンドゥンガン郡チペウテュイ村で現地調査を実施した。回答者の選定は、Slovin 式で決定した農家数、すなわち 6 つの小村をカバーする総人口 2,230 農家世帯のうち 113 農家世帯でランダムに実施された。アンケートは、回答者の詳細なベースライン・データを収集するとともに、村の人口統計学的特性 (Malleson et al., 2008; Angelsen & Lund, 2011) と気候変動に対する農家の認識等の情報を収集した。

参加者に対しては、観察と詳細なインタビューが行われた。フォーカス・グループ・ディスカッション (FGD) は、追加データの収集とアンケート結果の検証のために実施された。FGD の参加者は、各サブビレッジの農民を代表する 5～8 名を目的別抽出で選んだ。

全部で 113 名の農家からアンケート表を収集した。現在はデータ分析を継続、原著論文を作成中である。

※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。

見込まれる 成果物	レフリー論文 Veriasa, T.O., Chen, B., Artino, A., Lubis, I., Nishikawa, U. (2022) The adaptation of climate change impacts on the paddy's rice management: A case study of Farmers' Knowledge and perception in the Mount Salak, West Java, Indonesia. (原稿作成中)
※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。	

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	はやし まさひこ	提出年月日	2022 年 5 月 6 日	
申請者氏名	林 政彦			
所属・職名	福岡大学理学部・教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	無人航空機による越境汚染気塊中の粒子生成機構の研究			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～2022 年 3 月 31 日			
センター 教員	猪股 弥生			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	林 政彦	福岡大学	教授	研究統括
	分担者	猪股 弥生	金沢大学	准教授	無人航空機計測装置運用
		吉野 彩子	国立環境研究 所	研究員	地上エアロゾル観測
		岡部 和夫	(株)四門	顧問	無人航空機運用
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料				
	分析した試料				
研究目的・ 期待される 成果	無人航空機を用いて中国大陸からの越境大気中の数 nm の超微小粒子の粒径分布，粒子生成に係るガス・粒子成分（オゾン，二酸化硫黄，窒素酸化物，水蒸気，PM2.5）の鉛直分布の経時変化を観測する。無人航空機を使用して観測を行うことで，計測対象物質の境界層内外の鉛直分布の時間変化についての知見を得ることができる。また，金沢大学が開発した超微小粒子粒径分布観測装置を搭載することで粒径分布に関する情報の時給間変動データを取得できる。地上観測データとも比較し，越境汚染気塊中における新粒子生成機構と環日本海域と沿岸域の環境変動に対する新粒子生成の役割を明らかにする。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	新型コロナウイルス感染拡大の影響もあり、無人航空機を用いた観測を実施することができなかった。分担者それぞれが関連研究を実施した。 1. 2022 年度の観測実施に向けて、エアロゾル観測装置の回収を行った。同時に福岡都市部における、マルチコプタを用いた超微粒子（直径 10nm）観測データの再解析を実施し、混合層の発達とともに、エアロゾルが上方へ輸送されること、水平風により境界層中で鉛直方向に一様になった汚染気塊や清浄気塊との入れ変わるなどにより、地表付近の生成後一日以内の超微粒子の日周変動が起きていることが示された。また、超微粒子の寿命が 1 日程度で、残余層中の超微粒子が翌日まで残存する可能性が低いことが示された。（林政彦） 2. 福岡都市部における超微粒子の粒径分布観測を実施した。観測装置の故障等により十分な機関の観測は実施できていない。2022 年度に連続観測を実施できるよう準備を進めた。（吉野彩子） 3. 第 63 次南極地域観測隊に参加し南極に至る航路上の船上観測および昭和基地における超微粒子の観測を行った。南極大気は清浄であり、参照データとしての位置づけとなる。日本から南極までの航路には、汚染地域の近くを通る部分もあり、汚染の影響を評価することにもなる。 4. 無人航空機観測において in-situ の風向風速を計測するためのソフトウェア、搭載した超微粒子、および、エアロゾル、気象要素のデータ解析を迅速に行うための処理プログラムの開発を行った。（岡部和夫） 開発されたソフトウェアを用いて、越境汚染大気中のエアロゾル生成現象の解明のために行った長崎県福江島における過去のカイトプレーン観測データの再解析を行い in-situ で風の計測が行えることを確認した。（林政彦）
※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。	
見込まれる 成果物	1. 林政彦，福岡平野の地表付近の超微粒子の日周変動，第 38 回エアロゾル科学・技術研究討論会，オンライン（熊本県立大学），2022 年 8 月 26～27 日 2. 林 政彦，無人航空機サンプルリターンによる中緯度圏界面近傍のエアロゾル，2021 年度「航空機観測による気候・地球システム科学研究の推進」研究集会，オンライン（名古屋大学），2021 年 12 月 21 日 3. 林政彦，無人航空機による in-situ 風観測，日本気象学会 2022 年度秋季大会（北海道大学），2022 年 10 月 24～27 日、発表予定
※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。	

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	わたなべ ひろこ	提出年月日	2022 年 5 月 12 日	
申請者氏名	渡辺 寛子			
所属・職名	東北大学ニュートリノ科学研究センター・助教			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☐ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☒ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	海洋底地球ニュートリノ観測に向けた検出器の極低放射性物質環境化			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 31 日			
センター 教員	落合 伸也			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	渡辺寛子	東北大 RCNS	助教	総括
	分担者	落合伸也	金沢環日本海域環境 研究センター	助教	Ge 測定
		濱島靖典	金沢大環日本海域環 境研究センター	連携研究員	Ge 測定
		池田晴雄	東北大 RCNS	助教	結果評価
		市村晃一	東北大 RCNS	助教	スクリーニング
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	226Ra 228Ra	粉末 粉末	5 5	
	分析した試料	226Ra 228Ra	粉末 粉末	3 3	
研究目的・ 期待される 成果	地球内放射性物質の崩壊時に発生するニュートリノである地球ニュートリノの観測は放射化熱量を直接観測する新たなツールとして、素粒子実験のみならず地球科学分野との学際的分野として発展している。近年では実験装置を海洋底に設置しマントル由来の地球ニュートリノの観測を目指す研究が進められている。地球ニュートリノは低エネルギーで非常に稀な反応であるため、極低放射性物質の検出器環境を実現する必要がある。本研究では開発が進められている各検出器要素に含まれる放射性物質量を測定し、要求値を満たすように開発方法にフィードバックをかけることを目的とする。本研究により検出器の極低放射性物質化を実現し、日本海域を初めとする海洋底へのニュートリノ検出器の設置の実現に向けた成果のみならず、海洋環境測定の高精度化も期待できる。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	海洋底における地球ニュートリノ観測の実現に向け、検出器要素の開発と検出器シミュレーションが進められている。地球ニュートリノ観測のバックグラウンド源となる宇宙線ミュオンを遮蔽するため、検出器を 4km の海底に設置する必要がある。このような低温(4℃)・高圧(40MPa)下での検出器の稼働はこれまでに実績がなく、既存の技術を応用しつつ新たな実験環境で安全に安定的に稼働する検出器の開発が必須である。 ニュートリノ観測には液体シンチレーター(LS)と呼ばれるシンチレーション光を発する油が用いられ、LS 内で起こった発光を周りに張り巡らされた光電子増倍管(PMT)で観測して事象を観測する。海洋底地球ニュートリノ観測機は海水による高圧が PMT に直接かかるのを防ぐため、PMT に耐水圧シールドを装着する必要がある。検出器シミュレーションにより、PMT 耐水圧シールドは LS 領域にも近く重量もあるため、地球ニュートリノを観測するためには極低放射性物質に抑える必要があることがわかった。耐水圧装置には海洋実験では一般的にガラスを用いられる事が多く、目標としている 40MPa 以上の耐水圧を保証しているガラス球も販売されている。しかし、一般的なガラスに含まれる放射性物質の量は、それぞれ(^{238}U, ^{232}Th, ^{40}K)=(10^{-7}, 10^{-7}, 10^{-7})g/g であるのに対し、シミュレーションで求めた本研究の目標放射性物質量は(^{238}U, ^{232}Th, ^{40}K)=(10^{-8}, 10^{-8}, 10^{-8})g/g と、1 桁低減する必要が生じた。 耐水圧ガラス球製作者と共に、ガラスに含まれる放射性物質の低減を目標とした開発を開始した。まずは販売しているガラス球に用いられている放射性物質を分析会社による ICP-MS 分析で確認したところ、(^{238}U, ^{232}Th, ^{40}K)=(2.8×10^{-8}, 3.4×10^{-8}, 1.6×10^{-8})g/g となり、目標量よりも数倍多く含まれていることが分かった。原材料の純度を詳しく調べたところ、25%を占める 5 分子ホウ砂が多量の放射性物質を含むことがわかり、より純度のグレードが高いものに変更することで対策した。更に、原材料の状態とガラスに溶融してからの状態で放射性物質を比較したところ、その前後で 4-10 倍の放射性物質量になっていることが判明した。ガラスを溶融する際に用いる坩堝からの混入が疑われ、坩堝の表面にプラチナコーティングを行うことで溶け込みを防いだ。これらの対策の結果、(^{238}U, ^{232}Th, ^{40}K)=(1.4×10^{-8}, $<0.5 \times 10^{-8}$, 0.34×10^{-8})g/g のガラスの製作に成功した。^{238}U は目標値よりもわずかに多いものの、シミュレーションにより地球ニュートリノの検出感度に影響は無いことを確認した。 本研究では、製作に成功した低放射性物質のガラスに含まれる元素やその量を測定し、検出器に使用することに影響が無いかどうかを確認した。ガラスの粉末サンプルをプラスチック容器に入れ、^{226}Ra-^{222}Ra-^{214}Pb 間の放射平衡のため約 1 ヶ月間静置した。その後、尾小屋地下測定室の Ge 半導体検出器で約 2 週間測定を行った。同試料を 2 回測定し測定の整合性を確認し、比較のため容器のみのブランクも測定した。ガラスサンプルの 2000keV 以下の係数率は 1.068cpm(1 回目)、1.069cpm(2 回目)となり、容器のみブランク 0.799cpm、バックグラウンドの 0.794cpm に比較して 35%ほど高い係数率を得た。得られたスペクトルの解析から、^{210}Pb、^{234}Th、^{214}Pb(2 本)、^{228}Ac(2 本)、^{40}K のピークが見られた。どれも予想の範囲の元素の種類と量であり、このガラスを検出器に利用することに問題がないことが確認された。 ※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。
--	--

見込まれる 成果物	原著論文発表、口頭発表
※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。	

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	なえむら あきひこ	提出年月日	2022 年 4 月 21 日	
申請者氏名	苗村 晶彦			
所属・職名	戸板女子短期大学総合教養センター・准教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☐ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☐ 単年 ☐ 複数年(2年)	☐ 新規 ☐ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	越境汚染および手取層群に関わる溪流水質に関する研究			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 31 日			
センター教員	猪股 弥生			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	苗村晶彦	戸板女子短期 大学総合教養 センター	准教授	フィールド調査、化学分析
	分担者	猪股弥生	金沢大学環日 本海域研究セ ンター	准教授	気象解析
		奥田知明	慶應義塾大学 理工学部	教授	化学分析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料			物質名	形態（形状）	試料数
	申請書に記載 した試料		塩化物イオン 硝酸イオン	溶存	15×1
	分析した試料		塩化物イオン 硝酸イオン	溶存	15×1

研究目的・
期待される
成果

能登半島の溪流水は、海塩由来および越境汚染の影響を受ける。2018 年度から 3 年間に 3 回行った現地調査（大型台風が日本列島を横断した直後を含む）の結果では、溪流水中の Cl^- 濃度で、輪島市門前町の桜滝において平均 $1328 \mu\text{M}$ で変動係数が 17.5%であり、台風時も平常時もほぼ同程度であったがデータを積み重ねることによってペーパーへ向けて信頼性のあるものへ繋げたい。溪流水中の NO_3^- 濃度は森林の物質循環や地形的に脱窒の影響、更に地質の影響も受けるが、首都圏およびその周辺においては人間活動の影響によって“窒素飽和”が懸念される。仁岸川源流域における 3 年間に 3 回行った現地調査では溪流水中の NO_3^- が平均 $14.2 \mu\text{M}$ ではあったが、2020 年度の結果は非常に低濃度であった。 NO_3^- 濃度が高いケースでは越境窒素汚染で報告される島根県の斐伊川源流域で報告される値（宮廻ら, 2014）に近く、低い値では降水中の NO_3^- 濃度が低い四万十帯の溪流水中の濃度（苗村ら, 2021）に匹敵するほどであった。2020 年は長崎県福江島でも新型コロナウイルス感染症の影響で大陸からの越境汚染の影響も小さいこと（吉野・高見, 2020）ことが推測された。

ところで、大気沈着とは異なる視点で、地質の影響からも調査を行う。手取川（延長 72 km）水系源流域の 2020 年度調査においても、赤谷では NO_3^- 濃度が $25.8 \mu\text{M}$ となりジュラ紀による生物死骸の影響が見られた。データを積み重ねることによって地質の影響から古生物の死骸が刻まれる岩石の影響が反映されている可能性を示す為に、手取層群の広範囲の調査を行うことによって、地質の影響かを明らかにしたい。

※申請書に記載した事項を要約して下さい。

利用・研究
実施内容・
得られた成
果

森林の溪流水質について、大気沈着の影響とは異なる視点に基づき、地質の影響からの視点でフィールド調査を今年度、本格的に調査を敢行した。主に福井県と石川県に分布する手取層（礫岩層）群であるが、白山周辺にも存在する。手取層は1億6000万年前から1億2000万年前の中生代のジュラ紀から白亜紀にかけて、ロシアの沿海州辺りにあった浅い海か大きな湖に堆積した地層である。白山周辺としては、赤谷、岩屋俣谷川および今宿谷川について2019年度から今年度にかけて4回の調査を行った。生物の痕跡の指標としての NO_3^- 濃度の平均値は $19.2 \mu\text{M}$ ($n=12$) となり、変動係数は23%だった。また、調査地毎では、赤谷、岩屋俣谷川および今宿谷川にて、 $20.4 \mu\text{M}$ 、 $19.0 \mu\text{M}$ および $18.2 \mu\text{M}$ となり、それぞれの調査地の変動係数は29%、23%および20%となった。また、それらの調査地のすぐ近くの六万山山麓の第四紀の火成岩では2回調査を行った上では、 NO_3^- 濃度は検出されなかったもので、大気沈着および森林生態系における物質循環の影響を受けないと予測され、手取層群として約 $20 \mu\text{M}$ 前後の NO_3^- 濃度が随時流出していると考えられた。溪流水中の NO_3^- 濃度については、降水中の NO_3^- 濃度が低い四万十帯において、平均 $4.27 \mu\text{M}$ と低濃度が報告され（苗村ら, 2021a）、恐竜の化石など中生代の生物の痕跡の影響が認められる手取層群では、比較上4.5倍であった。また、 SO_4^{2-} 濃度についてはそれぞれ赤谷、岩屋俣谷川および今宿谷川は、 $645 \mu\text{M}$ 、 $110 \mu\text{M}$ および $28 \mu\text{M}$ と特色あるフィールドが確かめられ、ECについてもその濃度を反映してか、赤谷は平均 $133 \mu\text{S/cm}$ であった。

また、源流と河口の環境の視点で調査を敢行した例で、苗村ら（2021b）は、越境汚染の可能性が示唆された鳥取県加勢蛇川において大気環境の指標となる大山滝における溪流水中の NO_3^- 濃度が $7.52 \mu\text{M}$ と非常に低く、ブナを中心とした森林の役割が大きいことを説いている。今回、福井県耳川の調査例では、ジュラ紀の地質の影響が見られる源流域において、溪流水中の NO_3^- 濃度が $34.6 \mu\text{M}$ で、上流域で $33.6 \mu\text{M}$ 、河口付近で $31.4 \mu\text{M}$ という結果が得られた。地質の影響によって、比較的高い NO_3^- 濃度がそのまま海水へ流入するという特色は、興味深く今後大気環境の結果と併せて解析していく予定である。

様々な北陸の流域圏において、その流域河川の源流から河口までを調べ、流域圏における特性を把握し、大きくは流域治水への基礎データを提供できればと考えている。

引用文献

苗村晶彦・初山守・奥田知明（2021a）降水中の NO_3^- 濃度が低い四万十帯における溪流水質. 環境科学会誌, **34**, 40-45.

苗村晶彦・齋藤圭・奥田知明・小寺浩二（2021b）源流と河口の環境―鳥取県加勢蛇川を事例として. 流域圏学会誌, **8**, 2-9.

※1,000字以上で具体的に記述して下さい。

見込まれる
成果物

『日本生気象学会雑誌』に論文を投稿予定（2022 年 4 月中に投稿）
『日本海域研究』に論文を投稿予定（2022 年 8 月中に投稿準備）

※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	たなか かつや	提出年月日	2022 年 5 月 23 日	
申請者氏名	田中 勝也			
所属・職名	滋賀大学経済学部・教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☐ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☒ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	成果連動支払 (PbR) による農業と生物多様性の両立に向けた制度設計に関する研究			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日 ~ 2022 年 3 月 31 日			
センター 教員	西川 潮			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	田中勝也	滋賀大学経済 学部・環境総 合研究センタ ー	教授	研究統括，選択型実験の設計・実施
	分担者	西川潮	金沢大学	准教授	生物種指標の選定
		邱燦旭	滋賀大学大学 院経済学研究 科	大学院生	選択型実験の設計・実施
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料				
	分析した試料				

研究目的・
期待される
成果

本研究の目的は、環日本海地域において効率的かつ実施可能な PbR の制度設計をおこなうことである。対象地域は、稲作が盛んであり、多様な生物種が生息し、環境に配慮した農業（自然農法）の実践が顕著である、石川県羽咋市を対象とする。

本研究の目的を遂行する上で留意が必要と思われるのは、(1) 参加農家への支払インセンティブの検討、(2) 地域や農家による違い（異質性）の考慮、(3) 生物指標の選定の3点である。(1) および (2) に関しては、申請者らが2019年に実施した調査に基づく先行研究（Tanaka et al. 2022）で得られた知見を活用した。この研究では、滋賀県内の琵琶湖岸域90集落の販売農家を対象に、仮想的なPbRに対する選択型実験を実施した。比較的単純なPbRでありサンプルも限定的であるが、農家は提示されたPbRを概ね好意的に捉え、一定の支払意思額を有していることが統計的に確認された。本研究では、この先行研究を踏まえて、より具体的で詳細なPbRシナリオに基づいた選択型実験を実施する。

※申請書に記載した事項を要約して下さい。

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	本研究では、水田の生物多様性保全を目的とした成果連動型支払（PbR）に基づく農業環境支払の可能性を、表明選好法により分析した。この目的のため、本研究では JA はくいと共同で管内の全販売農家を対象としたアンケート調査を実施し、配布した 951 通のうち 308 通を回収した（回収率 32.4%）。調査票では、上述の先行研究（Tanaka et al. 2022）を発展させて支払条件の生物種を選択可能な PbR を設計し、交付単価や公的支援などの条件が異なる中での農家の受容性を、離散型選択型実験により尋ねた。生物種については、対象地域の圃場環境、保全の重要性、確認の容易さなどを基準に検討を重ね、サギ類、アカネ類、アシナガグモ類、シャジクモ類の 4 指標とした。配布した調査票の半分には、水田の生態系保全の重要性とが理解できる囲み資料（情報ナッジ）を記載して、この情報がない場合との反応の違いに関する比較実験をおこなった。 混合ロジットモデルによる分析の結果から、調査対象の農家は全体として、PbR を選好しない傾向があることが示された。これは、対象地域における農家の保守性を反映したものであり、新規性の高い制度に取り組むよりも現状維持を選好した結果と考えられる。しかしながら、上述の情報ナッジを与えられた農家は、そうでない農家と比較して、現状維持を選好する傾向が有意に低くなることが示された。これは情報ナッジが農家の参加を後押しした結果であり、保守性の高い地域であっても、新規性の高い政策を導入・普及させる上でナッジが有効な手段となり得ることが示された。 また分析結果からは、PbR 参加農家に対する成功報酬（10 アールあたり交付単価）が高くなるほど、制度を受容する確率も高くなることが示された。全体としては PbR を回避する傾向がありながらも、十分な金銭的インセンティブがあれば農家に受容される可能性が示唆された。支払要件となる生物種に対する農家の選好は、アカネ類、サギ類、アシナガグモ類、シャジクモ類の順であることが示された。これは、出現のための保全行為の容易さをほぼ反映しており、アカネ類やサギ類を指標とすれば、一定以上の農家の参加が見込めるといえる。一方、生態系保全の観点からは重要であるが、シャジクモ類の出現には必要な保全行為のハードルが高く、実施は容易でないことが示唆された。最後に、PbR 導入の公的支援の中では、除草支援が高く選好される結果となった。これは、生物種を出現させるための農薬の低減・不使用にともなう防除の労働コストの上昇を反映したものといえる。 ※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。
見込まれる 成果物	田中勝也・西川潮・邱燦旭「石川県羽咋市と滋賀県の水稲農業における成果連動型支払いの実現可能性」日本生態学会第 69 回全国大会。（2022 年 3 月 18 日、オンライン） ※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	あおやま みちお	提出年月日	2022 年 5 月 7 日	
申請者氏名	青山 道夫			
所属・職名	筑波大学 生命環境系 アイソトープ環境動態研究センター 客員教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	日本海における福島原発事故前後の放射性セシウムの長期挙動時定数に関する研究			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 31 日			
センター 教員	猪股弥生			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	青山道夫	筑波大学アイ ソトープ環境 動態研究セン ター	客員教授	海水試料採取、データ解析
	分担者	猪股弥生	金沢大学	准教授	過去データ収集、データ解析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料			物質名	形態（形状）	試料数
	申請書に記載 した試料				
	分析した試料		表層海水	液体	5

研究目的・
期待される
成果

2011 年 3 月の東京電力福島第 1 原発事故で海に放出された 放射性セシウム (^{137}Cs および ^{134}Cs) のうち一部が北太平洋の西部亜熱帯循環 STMW 域から、数年未満の短い時間スケールで東シナ海低層部を経由して日本海表層に到達している様相が 2020 年度までの先行研究で明らかになっている。(Aoyama et al., 2017; Inomata et al., 2018, 2019; 青山 2021)。さらに、他の海域との変動の時定数の比較を 2019 年までのデータ（一部は 2019 年度までの本共同研究の枠組みで得られたものを含む）で行ってみると、日本海では他の海域よりも少し長い傾向がみられる (Aoyama et al., JpGU2021)。従って 2021 年度において、日本海入り口の佐賀唐津において採水分析を行い、日本および韓国政府のモニタリングデータを収集し解析するとともに、時定数の観点から太平洋側で行われている他の研究課題による成果と合わせて、日本海を含む日本周辺海域での、福島事故由来放射性セシウムの時空間変動を研究する。このことにより、日本海に輸送されている STMW 経由の福島事故起源放射性セシウムの輸送の動態について定量的な知見が得られると期待できる。

※申請書に記載した事項を要約して下さい。

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	2021 年に行った採水分析の結果をいれて、日本海入り口（唐津あるいは山口沖）での表層海水中のセシウム 137 の見かけの半減時間を 2017 年から 2021 年で計算すると、11.3 年となった。セシウム 137 の放射能濃度では、2017 年では 1.7 Bq m^{-3} 程度であったのが 2021 年では 1.3 Bq m^{-3} まで減少している。2017 年から見かけの半減時間を計算したのは既に報告されている北太平洋亜熱帯モード水を経由して日本海に輸送されてきた東電福島第一原発事故起源放射性セシウムが極大を示した 2015 年頃を避けて、その後の時定数を見積もるためである。過去の大気圏内核実験起源のセシウム 137 の日本海での見かけの半減時間は 16.3 ± 0.5 年（Inomata et al., 2018）であるので、それよりは速い。しかし単一の注入とみなせる大規模核実験による全球降下の影響を強く受けている 1960 年代の見かけの半減時間である数年（Aoyama, unpublished）よりは明らかに長い。 また、太平洋側の小笠原海域での著者らの観測結果から表層海水中のセシウム 137 の見かけの半減時間を 2011 年から 2021 年で計算すると、11.1 年となった。小笠原海域でのセシウム 137 の放射能濃度では、2021 年では $1.2\text{--}1.3 \text{ Bq m}^{-3}$ まで減少しており、日本海の入り口と同じ程度である。これは、東電福島第一原発事故起源放射性セシウムが北太平洋亜熱帯モード水を経由して小笠原海域に輸送される時間スケールと日本海への輸送の時間スケールが同じ程度であることを意味している。さらに、単一の注入とすれば数年である表層の見かけの半減時間よりも、両海域共に長い 11 年程度の見かけの半減時間を示していることは、依然として北太平洋亜熱帯モード水を経由した供給が続いていると結論できる。 さらに与那国海域での著者らの観測結果から表層海水中のセシウム 137 の見かけの半減時間を日本海と同じ 20171 年から 2021 年で計算すると、18.8 年となった。これは 16.3 ± 1.9 年（Inomata et al., 2022, in revise）と推定されている北太平洋亜熱帯域の大気圏内核実験起源セシウム 137 の見かけの半減時間と同程度であり、与那国海域では東電福島第一原発事故起源放射性セシウムの影響をわずかにしか受けていないことを示唆している。これは、与那国海域でのセシウム 137 の放射能濃度が、2021 年では 1.0 Bq m^{-3} 程度であることと整合的である。
※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。	
見込まれる 成果物	青山 道夫、浜島 靖典、猪股 弥生、熊本 雄一郎、高田 兵衛. 北太平洋の縁辺海の表層海水における東電福島第一原子力発電所事故由来の放射性セシウムの 10 年間の挙動, 2021JpGU
※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。	

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	いわもと ようこ	提出年月日	2022年 4月28日	
申請者氏名	岩本 洋子			
所属・職名	広島大学大学院統合生命科学研究科・准教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☐ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☒ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	「波の花」に含まれる界面活性物質の化学的性質と起源に関する研究			
研究実施期間	2021年 4月 1日～2022年 3月 31日			
センター教員	関口俊男・金沢大学環日本海域環境研究センター 臨海実験施設			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	岩本 洋子	広島大学	准教授	総括・化学分析
	分担者	関口俊男	金沢大学	准教授	海水採取
		濱崎 恒二	東京大学	教授	微生物分析
		岩田 歩	慶應義塾大学 (現 気象庁)	特任助教	化学分析・物性計測
		他 4 名	別紙記載		
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	海水 海水懸濁粒子 大気エアロゾル	液体 固体(濾紙) 固体(濾紙)	16 16 4	
	分析した試料	海水 海水懸濁粒子 大気エアロゾル	液体 固体(濾紙) 固体(濾紙)	22 4 3	
研究目的・ 期待される 成果	大気と海洋の境界には、海洋表層マイクロ層（Sea surface microlayer; SML）と呼ばれる薄い層が存在する。SML には界面活性物質が存在し、下層の水とは化学組成や生物相が異なる。SML は大気海洋間の物質循環を理解する上で重要な場と考えられるが、化学・微生物分析に十分な試料量を採取するのは容易でない。一方で、日本海の冬の風物詩である「波の花」は、藻類から浸出した界面活性物質を含む海水が空気を含み泡沫になったものと考えられており、その成分は SML と類似している可能性が高い。また、「波の花」は発生時に海面上や岩場に集積し、容易に採取できることから、SML のモデル物質として適当と考えられる。 本研究組織では 2016 年より、能登半島で「波の花」の採取と化学・微生物分析を実施しており、「波の花」の化学組成や微生物相が下層の水と大きく異なるという結果を得ている。引き続きサンプル数を増やしてデータを蓄積することで、「波の花」の一般的な性質を明らかにできる。また、「波の花」に含まれる界面活性物質の具体的な成分やその起源を明らかにすることは、SML を介した大気海洋間の物質交換を理解する手がかりとなる。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	<u>サンプリングと試料処理</u> 波の花の採取と試料処理は、2021/12/20（月）～12/25（土）に実施した。期間中、12/21、12/22、12/23 に曾々木海岸（石川県輪島市）で「波の花」が観測された。海面に集積した「波の花」サンプルを、ステンレス製スコップまたはプラスチック製スコップで採取し、ステンレス製の蓋付トレーに移して保管した。同時に、海水試料を採取した。 波の花: トレー内の「波の花」試料にドライヤーで温風を吹きかけて消泡し、液体の試料とした。全炭素および有機物組成分析用に GF/F フィルタを複数枚用いて 200–300 ml を濾過し、粒子態と溶存態を分離した。また、DNA 分析用に 35ml を 2 本冷凍保存した。 海水: 全炭素および有機物組成分析用に GF/F フィルタを用いて 250 ml を濾過し、粒子態と溶存態を分離した。また、DNA 分析用に 35ml を 2 本冷凍保存した。 <u>試料分析</u> 有機物測定: 溶存有機炭素は、純水で希釈した後に全炭素測定装置により測定した。今後粒子態有機炭素量、溶存有機炭素の蛍光特性などを測定する予定である。 氷晶核活性測定: ドロップレットフリーズ法により、「波の花」由来の有機物の氷晶核形成能を評価した。また前年度までに採取分析した「波の花」試料と同様に、それらの氷晶核活性要因の推定に向けて、加熱処理と限外濾過による氷晶核活性特性を評価する。さらに「波の花」発生の有無での大気エアロゾルの氷晶核数濃度を測定するために、低流量大気エアロゾルフィルター試料における氷晶核活性の検証測定を行った。 DNA 分析: 「波の花」と海水のフィルター試料から DNA を抽出後、PCR 法により 16SrRNA 遺伝子を増幅し、増幅産物の塩基配列を決定、データベース相同性検索によりサンプルに含まれる細菌種とその組成比を推定する。 酵素活性測定と酵素生産菌の分離: 細菌による有機物分解活性の指標として、一連の波の花サンプルに含まれるタンパク質、一般的な多糖（デンプン、キシラン、セルロース）、硫酸基が結合した硫酸化糖（フコイダン、カラギーナン）の分解酵素活性をプレートアッセイにて行った。また、硫酸化等の硫酸基を切断するスルファターゼ活性も測定した。これに加え、波の花からこれらの酵素生産菌の分離を行い、分離した 17 株の 16SrDNA 配列を基に同定を行った。 ※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。
見込まれる 成果物	2017 年以降の試料分析結果や室内実験の結果と合わせて、環境科学分野のジャーナルへの投稿を準備する Iwamoto, A., K. Hamasaki, A. Iwata, H. Takami, Y. Obayashi, Y. Kobayashi, T. Sekiguchi: “Chemical characteristics and origin of surfactants in seafoam collected at the coastal area of Japan Sea” 以下の 2021 年度の発表・修士論文を基に、微生物学分野のジャーナルへの投稿を準備する 濱崎恒二 (2021) 「海表面マイクロ層における微生物動態の解析～細菌による多糖類分解とエアロゾルの雲核活性への影響について～」寒冷圏大気-海洋間の生物地球化学的相互作用に関する研究集会 2021.3.29 オンライン（北海道大学低温科学研究所） HUANG Can（黄燦） Genomic and metagenomic analyses of seafoam microorganisms with a special emphasis on polysaccharide degradation in the ocean 東京大学大学院新領域創成科学研究科 先端生命科学専攻 令和 3 年度 修士論文 ※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

(別紙)

研究組織

その他のセンター利用予定者 氏名, 職名, 分担事項

大林由美子 講師 (微生物分析)

愛媛大学

沿岸環境科学研究センター

〒790-8577 松山市文京町 総合研究棟

E-mail: obayashi.yumiko.nn@ehime-u.ac.jp

小林陽子 学術支援職員 (微生物分析)

東京大学 大気海洋研究所

千葉県柏市柏の葉 5-1-5

E-mail: kobayashiy@aori.u-tokyo.ac.jp

高見英人 特任研究員 (酵素活性測定と酵素生産菌の分離)

東京大学 大気海洋研究所

千葉県柏市柏の葉 5-1-5

E-mail: takamih@g.ecc.u-tokyo.ac.jp

黄 燦 修士 2 年生 (微生物分析)

東京大学 大気海洋研究所

千葉県柏市柏の葉 5-1-5

益田大誠 学部 4 年生 (試料採取補助)

広島大学総合科学部

東広島市鏡山 1-7-1

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	わだ しゅういち	提出年月日	2021 年 4 月 30 日	
申請者氏名	和田 修一			
所属・職名	長浜バイオ大学・バイオサイエンス学部・准教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☐ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☒ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	海産無脊椎動物の PAH 応答における核内受容体 PXR の役割の解明			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 31 日			
センター 教員	関口 俊男			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	和田修一	長浜バイオ大学	准教授	研究総括・ホヤ胚を用いた解析
	分担者	関口俊男	金沢大学	助教	PXR、AHR、CYP 遺伝子の発現解析
		鈴木信雄	金沢大学	教授	分子生物解析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	該当なし			
	分析した試料	該当なし			
研究目的・ 期待される 成果	研究目的 環日本海域では、周辺の国々からの PAH（多環芳香族炭化水素）類の流入量が近年増加し、その影響が懸念されているが、海洋に生息する無脊椎動物が PAH 類に応答する機構については不明な点が多く残されている。そこで申請者らは、海産無脊椎動物であるカタユウレイボヤを利用し研究を進めている。脊椎動物における PAH 類の認識・応答には、AHR（芳香族炭化水素受容体）を介した経路と核内受容体 PXR を介した経路の 2 つがあることが知られ、これまでの研究によりカタユウレイボヤでも AHR が PAH 応答に関与している可能性が示唆されているが、PXR がカタユウレイボヤの PAH 応答に働いているかどうかは不明である。そこで本共同研究では、カタユウレイボヤの PAH 応答における PXR の機能および AHR との関係について明らかにすることを目的とする。 期待される成果 本研究では、CYP（シトクロム P450）3 ファミリー遺伝子上流領域を含んだレポータープラスミドと PXR の強制発現プラスミドを胚に導入することで、PXR に依存してレポーター遺伝子の発現を誘導できるレポーターアッセイ系を利用して、誘導に必要な上流領域内の配列や、PXR の機能に重要な領域の特定を行う。これにより、海産無脊椎動物の PAH 応答機構に新たな知見を得ることができる。また PXR と AHR の共発現実験などで両者の関係を調べることで、PXR や AHR の機能や発現調節における新規のメカニズムを明らかにできる。 ※申請書に記載した事項を要約して下さい。				

利用・研究実施内容

カタユウレイボヤにおけるレポーターアッセイ系を用いた CYP3 ファミリー遺伝子の上流領域、PXR の機能、PXR と AHR の関係の解析のため、(1) CYP3 オペロンの構造の解析、(2) PXR による転写誘導に必要な CYP3 上流領域の探索、(3) PXR による転写誘導に必要な PXR 内の領域の探索、(4) PXR による転写誘導に対する AHR の効果の解析、という 4 つの実験を行った。

得られた成果**(1) CYP3 オペロンの構造の解析：**

CYP3 ファミリータンパク質は PAH 類などの外来異物の解毒に関わるとされる酵素である。カタユウレイボヤのゲノム上には CYP3 ファミリー遺伝子が 3 つ並び、オペロンとして転写されている。本研究のレポーターアッセイで用いた CYP3 ファミリー遺伝子の上流領域はこれら 3 つの遺伝子の先頭の遺伝子の上流領域である。この領域の解析を進めるために、周辺の遺伝子の構造を確認していたところ、これら 3 つの遺伝子のすぐ上流にさらに 2 つの遺伝子が同じ向きに存在し（既知の 3 つの CYP3 ファミリー遺伝子に近い側の遺伝子は CYP3 ファミリータンパク質の後半部分に相当する配列をコードする遺伝子、既知の 3 つの CYP3 ファミリー遺伝子から遠い側の遺伝子は 1 本鎖 DNA 結合タンパク質をコードする遺伝子）、転写開始点の違いによって、既知の 3 つの遺伝子がオペロンとなって転写される場合と、5 つの遺伝子がオペロンとなって転写される場合の 2 通りの転写産物が生じている可能性が考えられた。そこで新たに注目した 2 つの遺伝子が本当に発現しているかどうかと、3 つおよび 5 つの遺伝子が本当に繋がって転写されているかどうかを確認するため、RT-PCR による検証を行った。その結果、新たに注目した 2 つの遺伝子が実際に発現していることが確認できた。さらに 3 つまたは 5 つの遺伝子が繋がって発現しているかどうかについては、いくつかの遺伝子間の繋がりを確認できた（残りの遺伝子間の繋がりについては確認作業が進行中である）。以上から、カタユウレイボヤの CYP3 ファミリー遺伝子は 2 通りのオペロンとして発現しており、その転写調節機構は従来考えられていたよりも複雑であることが示唆された。

CYP3 オペロンの転写調節機構を理解するためには 2 つの転写開始点の上流領域の両方を調べる必要があることが示唆されたため、5 つの遺伝子のうち先頭の遺伝子の上流領域についてもクローニングを行った。今後、この領域を用いたレポーターアッセイを行う予定である。

(2) PXR による転写誘導に必要な CYP3 上流領域の探索：

カタユウレイボヤの CYP3 オペロンに (1) で述べたような複雑さがあることが判明したが、既知の 3 つの CYP3 ファミリー遺伝子からなるオペロンの転写調節機構の解明が重要であることには変わりがないため、当初の計画通りこのオペロンの上流領域の解析を進めた。これまでの実験で、オペロンの最初の遺伝子の翻訳開始点から上流 2kbp の領域を含むレポータープラスミドが PXR による転写誘導を受けることがわかっている。この誘導に必要な塩基配列を同定するため、この領域を数百 bp ずつ短くしたデリションシリーズを作成した。これらのレポータープラスミドを PXR 強制発現プラスミドと共にカタユウレイボヤ胚に導入するレポーターアッセイを行っているが、PXR の強制発現がない場合のレポーター発現の頻度がカタユウレイボヤ胚の発生の調子に影響を受けることを示唆する結果が得られたため、どの領域が PXR による誘導に必要な領域であるかを特定する明確な結論を得るには至っていない。現在、レポーターの発現を安定させる条件を検討中である。

(3) PXR による転写誘導に必要な PXR 内の領域の探索：

カタユウレイボヤ PXR の強制発現プラスミドを、CYP3 オペロンの上流領域を含むレポータープラスミドと一緒にカタユウレイボヤ胚に導入すると、レポーターの発現を誘導できる。PXR タンパク質内のどの領域がこの誘導に必要であるかを調べるため、

PXR の DNA 結合ドメインまたはリガンド結合ドメインを欠損させた変異体を作成した。今後、この変異体を用いてレポーターアッセイを行い、これらのドメインがレポーターの発現誘導に必要であるかどうかを確認する予定である。

(4) PXR による転写誘導に対する AHR の効果の解析

カタユウレイボヤの CYP3 オペロンの転写調節における PXR と AHR の関係を探るため、CYP3 オペロンの上流領域を含むレポータープラスミドを PXR 強制発現プラスミドと一緒に、あるいは PXR 強制発現プラスミドおよび AHR 強制発現プラスミドと一緒にカタユウレイボヤ胚に導入するレポーターアッセイを行っている。こちらについても、PXR の強制発現がない場合のレポーター発現の頻度がカタユウレイボヤ胚の発生の調子に影響を受けることを示唆する結果が得られたため、レポーターの発現を安定させる条件を検討中である。

※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。

見込まれる
成果物

第 45 回日本分子生物学会年会（2022 年 11 月）でのポスター発表を予定している。

※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	やまだ まさとし	提出年月日	2022 年 4 月 28 日	
申請者氏名	山田 正俊			
所属・職名	公益財団法人海洋生物環境研究所中央研究所海洋環境グループ・研究参与			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☐ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☒ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	放射性核種を用いた環日本海域の宝石サンゴの成長速度の推定			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 31 日			
センター 教員	井上 睦夫			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	山田 正俊	海洋生物環境 研究所中央研 究所	研究参与	放射能測定・解析
	分担者	井上 睦夫	金沢大学環日 本海環境研究 センター	准教授	放射能測定
		岩崎 望	立正大学地球 環境科学部	教授	試料採取・処理・解析
		鈴木 淳	産業技術総合 研究所地質情 報研究部門	研 究 グ ル ープ長	試料処理
		林 正裕	海洋生物環境 研究所実証試 験場	主 査 研 究 員	試料飼育
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	シロサング アカサング ベニサング シロサング	γ線測定容器入（粉 末） 同上 同上 同上	27 12 5 17	
	分析した試料	シロサング アカサング	γ線測定容器入（粉 末） 同上	12 5	
研究目的・ 期待される 成果	宝石サングは刺胞動物花虫綱に属する生物であり、古来より内骨格である骨軸が宝飾品に利用されている。日本近海は地中海と並ぶ主要産地であり、アカサング、モモイロサング、シロサングが漁獲されている。近年資源の減少により、漁獲の是非や貿易の規制をめぐる国際的な議論となっている。日本では上記 3 種が準絶滅危惧種に指定されており、適切な管理が求められている。 宝石サングの持続的な利用のためには、生物学的特性を把握し、漁獲時期、漁獲量などを決める必要がある。しかし、成長速度に関する知見は少ない。本研究は、環日本海域及び比較対照海域の宝石サングの成長速度を明らかにすることで、持続的利用に資することを目指す。 環日本海域では、宝石サングは長崎五島近海で漁獲されているが、生物学的特性に基づく管理は行われていない。また、外国漁船による密漁の対象となっており、適切な管理が必要である。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究
実施内容・
得られた成
果

宝石サンゴは、海水中のカルシウムイオンと重炭酸イオンから炭酸カルシウムを生成し、樹枝状の骨格である骨軸を形成する。宝石サンゴは、この骨軸を肥大させながら太くなっていき、先端を伸長させながら成長していく。本研究では、天然放射性核種の鉛-210 (^{210}Pb : 半減期 22.3 年) を用いて、骨軸の肥大成長速度(骨軸が太る速度、骨軸横断面の半径あたりの成長速度)を推定することを目的とした。鉛-210 はウラン系列に属する放射性核種で、過去 100 年程度の時間スケールで起こる現象の年代測定に有効である。宝石サンゴ骨軸の肥大成長速度は、骨軸表面から内部方向に鉛-210 濃度を測定し、その減衰を解析して求めた。

宝石サンゴ試料中の鉛-210 濃度は極低濃度であるため、金沢大学環日本海域環境研究センター尾小屋地下実験室の高効率極低バックグラウンド仕様のガンマ線測定装置を用いて測定した。

五島男女群島近海より採取したシロサンゴ(DPC-23 e-3-u 及び e-3-b)を骨軸肥大成長速度の推定に用いた。シロサンゴ試料の切断写真を図 1 に示す。

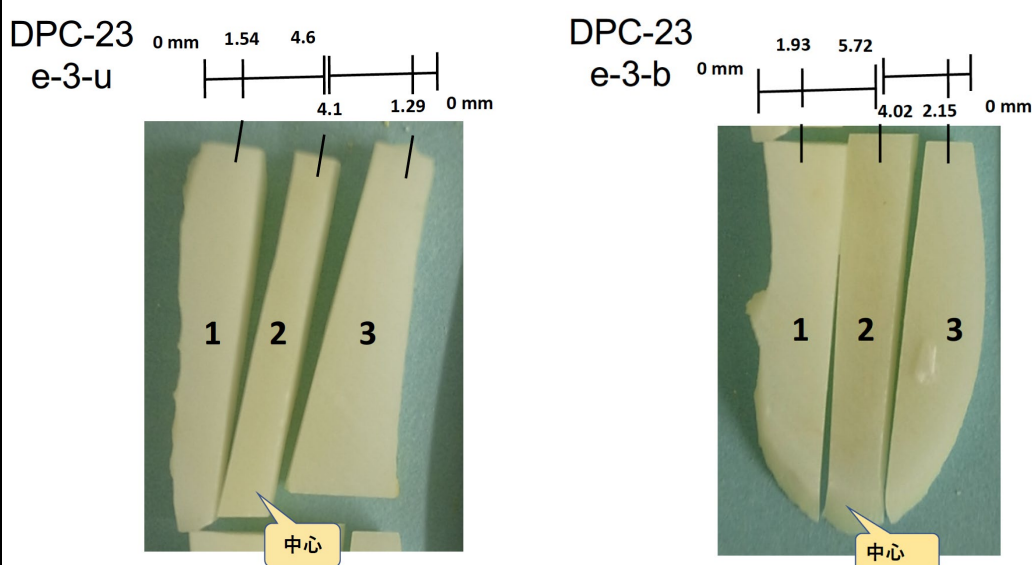


図 1 解析に用いたシロサンゴ試料

五島男女群島近海より採取したシロサンゴの鉛-210 濃度の測定結果を図 2 に示す。これによると、シロサンゴの骨軸肥大成長速度(半径)は、DPC-23 e-3-u で 0.48 mm/yr、DPC-23 e-3-b で 0.15 および 0.14 mm/yr と見積もられた。琉球諸島周辺海域から採取されたモモイロサンゴの骨軸肥大成長速度(半径)は、0.15 mm/yr と報告されており(長谷川、山田; 2008)、シロサンゴ(DPC-23 e-3-b)の成長速度はモモイロサンゴとよく一致した。一方、同一のシロサンゴ個体である DPC-23 e-3-u の成長速度とは大きく異なり、今後さらなる検討が必要である。

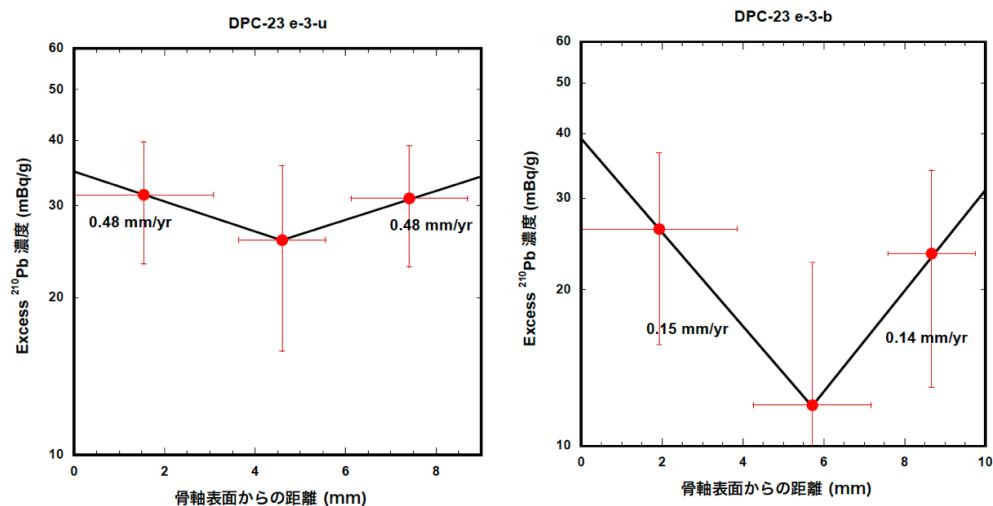


図2 半径あたりの骨軸肥大成長速度

参考文献

長谷川浩, 山田正俊. 宝石サンゴの炭酸塩骨格の化学分析. 宝石サンゴの文化誌 (岩崎望編著) 46-68 (東海大学出版会), 2008.

※1,000字以上で具体的に記述して下さい。

見込まれる
成果物

令和4年度も引き続き分析を実施し、取りまとめた成果は学会等で発表する予定である。

※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	かもがわ まさし	提出年月日	2022 年 5 月 10 日	
申請者氏名	鴨川 仁			
所属・職名	静岡県立大学グローバル地域センター・特任准教授			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☒ 一般共同研究 ☐ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☒ 継続
研究分野	☐ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☒ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	冬季雷活動に関連する学際的観測研究			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 31 日			
センター 教員	松木篤			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	鴨川仁	静岡県立大学	特任准教授	研究総括
	分担者	松木篤	金沢大学	准教授	大気化学観測
		唐 寧	金沢大学	准教授	大気化学観測
		鈴木智幸	静岡県立大学	客 員 共 同 研究員	雷位置観測
		長尾年恭	東海大学	教授	電波観測
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料				
	分析した試料				
研究目的・ 期待される 成果	近年、科学界では、第 3 の自然放射線ともいべき雷活動による放射線の発見がなされ大きな話題となっている。この雷活動起源、具体的には落雷時ないしは極めて活発な雷雲通過時に発生する自然放射線の可能性が高い。この現象は、環日本海域の冬季に頻発する冬季雷で発見がなされた。本プロジェクトの初期の 2016-2017 年度の 2 年間の計測で、雷雲起源の放射線が検知され、解析の結果、発生源が従来の説で言われていた雷雲下部ではなく雷雲内部であることを地上観測において世界で初めて示した。その成果は、Geophys. Res. Lett. にて発表された。 また、本研究では、冬季雷を統合的に研究するために、落雷位置評定を三次元かつ時間分解能高精度化、雷電波のハイサンプリング波形の取得を行い、雷に関する詳細情報を得る。そのうえで、前述の雷活動と高エネルギー放射線の研究以外にも、落雷と NOx 放出の研究も、センター教員、他のグループとも連携して行う。 同時に、本年度では、新たな試みとして、気候変動と冬季雷発生数上昇についても研究を行う。気象庁が 1931 年から取得している雷日数というデータは計測開始から現在を比較すると 5 倍程度、雷が発生した日数が冬季において増えている。本測定は気象庁職員の人的観測であるため、本研究で取得される落雷位置データと比較し、雷日数というデータの定量的な評価を行う。同時に、江戸時代の日記に記されている雷日を調査し、雷日数の長期トレンドを算出する。そして気候変動との関係性を探る。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	本研究では世界的にも特徴的な雷活動である日本海の冬季雷に関して、関連する様々な現象を多角的に調査した。 1) 落雷・雷雲に伴う高エネルギー放射線 我々は珠洲、輪島など石川県の複数地点で冬季雷・雷雲に起因する高エネルギー放射線の現象を観測している。今年度は 2020 年 12 月 18 日に内灘町で検知されたコンパクトリターンストロークという近年原因が解明された特殊な帰還雷撃に伴うショートバーストの高エネルギー放射線の検知があった。 2) 高高度放電発光現象 我々は全国の高校生とともに石川県周辺で発生している高高度放電発光現象について観測している。本現象は、高度 20-100 km で発生する雷に関係する放電発光現象であり、全国的な観測網で全体像を可視化することができる。今年度では 2020 年 12 月 18 日に能登半島付け根周辺で発生したスプライトについて、スプライト直下の地上観測データと合わせた総合的観測に成功したのでその大気電氣的構造について調査した。 3) 日本海の冬季期間の雷日数増加の理由について 気温の上昇と雷活動の活発化は広く知られている。1930 年代以降、北陸地域における雷日数（雷鳴を観測者が検知した総日数）は数倍以上になるほど増加しており、このことは多くの研究者が指摘している。本研究では、金沢における冬季雷期間における雷日数の経年的増加の理由を調べるために、海水温度および高層気象データを調べた。また雷日数の増加理由について調べた。 4) Blitzortung システムによる落雷位置評定ネットワークの検知率向上 落雷位置評定カタログでは全球のものと地域のものがある。全球のものでは、ワシントン大学が運営する WWLLN が知られている。近年、観測をボランティアで募り、全球で観測点が増え続けている Blitzortung については、検知率の評価が十分でなかった。本テーマでは、冬季雷の発生位置検知率の向上を目指すために、Blitzortung の日本海地域における落雷位置評定カタログの評価を行った。発表では珠洲、輪島に受信機を設置したあとの検知率についても調べた。 5) Drone を用いた地震先行ラドン放出起源大気電場変動の検出 地震活動が活性化した珠洲地域でドローンによる大気電場およびガンマ線観測を 2022 年 1 月に行った。今後、定期的に観測を行えば地震先行現象としての大気電氣的変動の研究が進むと考えられる。本テーマは冬季雷の内容ではないが関連事項として行った。本実験は、ドローンを用いた電離圏電位の計測の実証実験も兼ねており、その観点からも良質なデータが取れたことから実験は成功した。 ※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。
------------------------------	--

見込まれる
成果物

成果 1 ～ 5) のいずれも学会における口頭発表を行ったのちに原著論文として取りまとめる予定。現在、一部はすでに発表を行っている。

※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	よだ まさひろ		提出年月日	2022 年 4 月 27 日	
申請者氏名	依田 優大				
所属・職名	東京大学理学系研究科 地球惑星科学専攻				
連絡先住所					
TEL			FAX		
E-mail					
申請区分	☐ 重点共同研究 ☐ 一般共同研究 ☒ 若手研究者育成共同研究		☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☐ 新規 ☒ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨り推進する学際的研究				
研究課題	モンゴル南部塩湖群の結氷時における鉱物生成と水-氷-堆積物間元素分配				
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 31 日				
センター 教員	福士圭介				
研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	依田優大	東京大学理学系研究科 地球惑星科学専攻	博士後期課程 4 年	総括・鉱物分析・物質輸送モデリング

	分担者	富士圭介	金沢大学環日本海域環境研究センター	教授	地球化学モデリング
		関根康人	東京工業大学地球生命研究所	教授	地球化学モデリング
		Gankhurel Baasansuren	金沢大学大学院自然システム学専攻	博士後期課程3年	地形解析
		北島卓磨	金沢大学大学院自然システム学専攻	博士後期課程2年	熱力学データの採取
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名		形態（形状）	試料数
	申請書に記載した試料				
	分析した試料				
研究目的・期待される成果	本研究は、過去の寒冷化の程度を高精度に復元するための指標開発を、大きな目的としている。申請者の研究グループが着目しているモンゴル南部の塩湖郡（以下、モンゴル塩湖）は環境変化に対する人為的な影響が少なく、その湖底堆積物には過去の寒冷化の程度を復元するための地球化学的な知見が抽出できる可能性が残されている。 そこで本研究では2020年、2021年の過去2回におけるモンゴル塩湖のうちオログ湖、オルゴイ湖へ冬季調査を行い、計19地点で氷・湖水、堆積物を採取し、水-氷間における塩物質を介した元素分配を定量的に評価した。これにより結氷時の主要溶存成分（Na, Mg, Cl, SO₄）の大まかな挙動については理解することができたが(Yoda et al., 2021)、そのほかの成分(例えば、K, Ca)や湖水のpHの低下の要因についての言及はできていない。これについて議論するためにはまずは冬季における水質調査の実績を増やすことが必要になる。一方で、調査で得られた結氷時の湖水水質を高精度に復元するためには、従来の水質進化モデルの妥当性の議論や改良を通じて、将来の調査結果を解析するツールを準備する必要もある。 本年度の研究ではこれまでの調査で開発したモンゴル塩湖の結氷時の水質進化モデルにおける妥当性の評価、および改良（湖底堆積物との相互作用を実装）を目的した。本年度の研究活動により、従来のモデル(Yoda et al., 2021)より高精度に結氷時の湖水水質進化を評価することが期待される。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

本研究の成果は、下記 2 点である。

① GWB を用いた低温環境における水質進化モデリング

低温環境における水質化学、およびその熱力学データは近年より多くの研究グループによる検討がなされており(例えば、Marion et al., 2012; Tonar et al., 2014)、これにより GWB などの汎用的な熱力学計算ツール(以下、GWB)でも取り扱うことが可能になってきている。また GWB の場合は、先行研究で使用されている従来のモデルとは異なり、低温環境における酸化還元状態などの効果も比較的容易に実装できるため、従来のモデルよりも機能性が高い。一方で現状の GWB では取り扱える溶存成分種や析出鉱物の数が極めて限られるという問題点がある。また、標準装備されている熱力学データに関する天然の系での検証は行われていない。そこで本研究では第一段階として共同利用研究の予算を用いて購入した GWB を用いてモンゴル塩湖郡における結氷時の水質進化を計算し、2021 年の冬季調査の結果、および先行研究(Yoda et al., 2021)との比較を行った。

GWB の計算結果の場合は、結氷時の湖水の pH は湖水の濃縮により低下するが、これは GWB を使用する場合も先行研究同様に、結氷時の湖水の Ca 濃度、そして pH が再現されうることを意味する。また、先行研究の場合、pH の低下は外的な要因(例えば、生命活動による二酸化炭素の放出)に起因する解釈しているが、GWB の計算の場合は、外的な要因を考慮せずとも湖水の pH が低下するという結果になった。このような違いを生み出した理由の 1 つには熱力学データにおける溶解度積の取り扱い方法(フィッティングの形式)が挙げられる。

しかしながら、今回の GWB の計算においても観測(K, Ca, pH)を完全に再現することはできていない。特に湖水の K 濃度については、先行研究(Yoda et al., 2021)においても観測結果と計算結果の違いに関する要因の言及、定量的な調査や、そのためのモデルの構築ができていない。そこで本研究では水質進化モデルのさらなる改良のため、② GWB の熱力学データの改良、予備計算を行った。

②GWB の熱力学データの改良、予備計算

本研究では、2021 年度の観測における水質のうち、先行研究で(Yoda et al., 2021)では言及されていない K 濃度を再現するために、**湖底に存在する粘土鉱物と水—岩石反応を GWB に実装することを試みた**。これまでの夏の調査によりモンゴル塩湖の湖底にはイライトなどの粘土鉱物が存在しており、湖水の溶存成分の分配する可能性が示唆されている(Yoda et al., 2021)。そこで本研究では、仮に湖水の K がイライトとの平衡状態を保ったまま結氷が起きた場合の水質進化を、GWB を用いて計算した。なお、イライトをはじめとした粘土鉱物を構成する Al, Si のような元素や、粘土鉱物の熱力学データは、GWB には実装されていない。そこでまず、従来のモデルの熱力学データ(Marion et al., 2009)を用いて、GWB の熱力学データを改良した。さらに Wilson et al., 2006 の方法を用いてイライトを含む粘土鉱物の熱力学データを算出し、これを GWB へと実装した。

改良を加えた GWB を用いていくつかの条件で結氷時の水質進化の予備計算を行ったところ、湖水結氷時のイライトなどの粘土鉱物の析出が確認された。また、スメクタイトとイライトが共存する場合には、結氷時の湖水の pH が 2021 年の冬季調査と同程度(8 程度)まで低下することがわかった。

	これらの計算結果は、GWB を用いることで結氷時における湖水からの粘土鉱物の析出に加え、スメクタイト のイライト化などの広く知れわたった現象も取り扱うことができること示している。また、従来、イライト化が起きる条件としてはカリ長石をはじめとする K の供給源が必要になると考えられているが、本研究結果は、結氷による湖水濃縮が卓越する場合は、カリ長石などの K の供給源がなくともイライト化が起き、これにより pH が低下するということを示す。 すなわち、湖底堆積物中に特異的にイライトの存在量の大きな変動があった場合、その周囲鉱物に過去の寒冷化の度合いを復元する指標が存在するという可能性を示唆している。 一方、湖水の K 濃度については湖水の分析手法の不確定性（例えば、ICP-OES によるイオン干渉）の問題も指摘されている。今後の冬季の観測により湖水のサンプル数が相当数に増えた場合には、本研究で開発した水質進化モデルに関する信頼性の高い議論が展開されることが期待される。
※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。	
見込まれる成果物	・依田優大（2021）.「Chemistry of cryovolcanism on Ceres」,東京大学理学系研究科地球惑星科学専攻博士論文. ・Yoda, M., Sekine, Y., Fukushi, F., Kitajima, T., Gankhurel, B., Davaasuren, D., Gerelmaa, T., Ganbat, S., Shoji, D., Zolotov, M. Y., & Takahashi, Y. (2021). Field Investigations of Chemical Partitioning and Aqueous Chemistry of Freezing Closed- Basin Lakes in Mongolia as Analogs of Subsurface Brines on Icy Bodies. <i>Journal of Geophysical Research: Planets</i>, 126. ・野口里奈、臼井寛裕、庄司大悟、福士圭介、依田優大.「東南極昭和基地周辺露岩域の火星アナログサイトとしての利用可能性評価」,日本惑星連合大会（2022）, 口頭発表.
※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。	

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	なかじま としみ	提出年月日	2022 年 4 月 28 日	
申請者氏名	中島 壽視			
所属・職名	福井県立大学大学院生物資源学研究科海洋生物資源学専攻 博士課程後期 3 年			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☐ 一般共同研究 ☒ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2 年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	ラジウム同位体を用いた沿岸海域における陸水影響評価			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～ 2022 年 3 月 31 日			
センター教員	環日本海域環境研究センター 教授 長尾 誠也			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	中島壽視	福井県立大学 大学院	博士後期課 程 2 年	観測・分析
	分担者	長尾誠也	金沢大学	教授	分析
		井上睦夫	金沢大学	准教授	分析
		杉本亮	福井県立大学	准教授	観測・分析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料	^{226}Ra , ^{228}Ra	円柱形	50 個	
	分析した試料	^{226}Ra , ^{228}Ra	円柱形	22 個	
研究目的・ 期待される 成果	陸域から供給される水は沿岸海域へ豊富な栄養物質を供給しており、沿岸海域の物質循環や生物生産に大きな影響を及ぼしている。陸域から沿岸海域への水と栄養物質の輸送は河川水だけでなく、海底から湧出する淡水性地下水によっても担われている。また近年、海水成分の地下水（再循環性地下水）も一部の陸起源物質の供給源として重要であることが報告されつつある。それゆえ沿岸海域へ流入する陸水（河川水・淡水性地下水）と再循環性地下水の量を定量し、それらが陸起源の栄養物質の輸送に果たしている役割を明らかにすることは、沿岸海域の物質動態を正確に理解する上で必要不可欠である。 本研究では、若狭湾沿岸域および利根川沖合海域を対象として、Ra 同位体（^{223}Ra, ^{224}Ra, ^{226}Ra, ^{228}Ra）を利用した水塊の起源解析を行い、陸起源の栄養塩輸送過程などを評価する。さらに河口域から沖合にかけての陸水の輸送時間を Ra 同位体比から評価し、沿岸域における陸水の影響を時空間的に明らかにする。従来の海洋学的手法に Ra 同位体を用いた手法を導入することで、評価されなかった再循環性地下水を含めた水塊起源解析に加えて、陸水の混合過程に時間軸を設け、水と栄養塩類の包括的な動態を評価するところに本研究の特徴がある。本研究で導入する手法は汎用性が高く、より陸水の影響が大きいと予想される海域（伊勢湾など）への応用が可能となり、様々な起源水が時空間的に複雑に相互作用している沿岸生態系の栄養塩類動態に関する研究を活発化することが予想される。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	内湾域として若狭湾中央部に位置する小浜湾，陸棚域として利根川沖合海域を対象とし，それぞれ 2021 年 8 月および 5 月に海洋観測を実施した．小浜湾では湾内 32 測点および湾外 1 測点で海水試料を採取した．利根川沖合海域では 9 測点で海水試料を採取した．また，端成分として河川水や井戸水（淡水性地下水），砂浜地下水（再循環性地下水）も採取した．採取した試料水は Ra 同位体および栄養塩濃度の分析に供した．^{223}Ra および ^{224}Ra 濃度はラジウム遅延同時計測装置，^{226}Ra および ^{228}Ra 濃度は金沢大学低レベル放射能実験施設の Ge 半導体検出器で測定した． 小浜湾から得られた試料水の塩分は 26.4 から 31.8 の範囲であり，淡水の影響が顕著に認められた．また，ほとんどの測点（30 測点）において，海水中の Ra 同位体（^{224}Ra および ^{223}Ra）は河川水や淡水性地下水，湾外水の混合で説明される値よりも高かった．このことは，湾内の表層水においても，再循環性地下水の影響が及んでいることを示していた．そこで，湾表層海水に対する再循環性地下水、淡水（河川水＋淡水性地下水）および湾外底層水の寄与率（中央値）を，塩分と ^{223}Ra を用いた混合モデルにより推定すると，再循環性地下水は 8.4%（範囲：2.7–27.0%）であった．また，再循環性地下水を含めた陸水（淡水）および再循環性地下水の寄与率（=18.6%：中央値）は，塩分のみで評価した陸水（淡水）寄与率（=11.0%）に対して，1.7 倍高い値を示した．このことは，従来塩分だけでは評価することができなかった再循環性地下水の影響が内湾域の海水に対して無視できないほど及んでいることを示している．今後より詳細な陸水の影響を評価するために，放射壊変の効果が無視できる長寿命の $^{226}\text{Ra} \cdot ^{228}\text{Ra}$（※2022 年度継続申請により分析中）を起源解析に用いることで，海水の起源を定量し，陸水の影響を評価する予定である． 利根川沖合海域での観測は，黒潮が房総半島に接岸している期間に実施された．Ra 同位体用海水試料を採取した上層の塩分は 34.5 を上回っており，利根川からの淡水の影響を塩分から評価することは困難であった．一方，利根川沖合の測点において ^{224}Ra および ^{226}Ra の顕著な極大域が認められた．特に ^{226}Ra の極大域は河川水や黒潮続流上流側の海水の混合では説明できないことから，利根川河口域や沿岸浅海域で湧出した再循環性地下水の影響が沖合域まで及んでいるものと推察された．この結果は，陸水や再循環性地下水の影響が，河川水基準で考えられていた従来の評価結果よりも，より沖合域にまで及んでいることを示唆している．
見込まれる 成果物	※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。 1) 学会発表（2022 年度海洋学会秋季大会を予定） 2) 博士論文（2023 年 3 月予定） ※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	たかい ゆうき	提出年月日	2022 年 04 月 28 日	
申請者氏名	高井 優生			
所属・職名	九州大学大学院 生物資源環境科学府 資源生物科学科 博士後期課程二年			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☐ 一般共同研究 ☒ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	海産メダカを用いた小型マイクロプラスチックの蓄積・排出動態解析			
研究実施期間	2021 年 4 月 1 日～2022 年 3 月 31 日			
センター 教員	本田 匡人			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	高井 優生	九州大学	博士後期課 程二年	曝露試験・マイクロプラスチック定量
	分担者	本田 匡人	金沢大学	助教	マイクロプラスチック定量
		大嶋 雄治	九州大学	教授	解析指導
		島崎 洋平	九州大学	准教授	分析、解析
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料		物質名	形態（形状）	試料数	
	申請書に記載 した試料				
	分析した試料				
研究目的・ 期待される 成果	■意義、目的 近年、海洋環境ではマイクロプラスチック（MP）による環境汚染が危惧されている。中でも、環日本海域はMPのホットスポットとなっており、海洋生物がより大きな影響を受けていることが予想される。申請者の研究グループにより、MPには生体内への化学物質の取り込みを促進させるベクター効果があることや、微細MP（粒径：$\sim 2\text{-}\mu\text{m}$）はメダカの消化管内に残留しやすいことが明らかとなっている（Qiu et al., 2020, Liu et al., 2021）。微細MPによる生物への影響について知見の拡充が必要とされているが、海産魚での体内動態とその影響は明らかになっていない。よって、本研究では小型海産魚ジャワメダカを用いて微細MPの蓄積・排出動態解析およびその影響評価を行う。具体的には、微細ポリスチレンMPを用いた曝露試験を実施し、ジャワメダカの消化管から微細MPを定量してその蓄積と排出動態を観察する。また、神経伝達系に関与するアセチルコリンエステラーゼ（AChE）の活性測定および遊泳行動解析を併せて実施し、微細MPのジャワメダカ生体への影響を評価する。 ■期待される効果 本研究により、微細MPの生体内での蓄積・排出動態を明らかにすることができる。この知見は、今後顕在化・深刻化すると予想される海洋でのMP汚染に関する基礎的かつ重要な知見になり、そのリスク評価へと活用されることが期待される。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

■方法

試験魚は生後 6 ヶ月齢のジャワメダカ (*Oryzias javanicus*, 0.498 ± 0.05 g) を使用した。蛍光ラベルされた粒径 2- μ m のポリスチレン MP (2- μ m PS-MP, Polyscience 社) をジャワメダカに 50 μ g/L (低濃度 PS-MP 曝露区) および 100 μ g/L (高濃度 PS-MP 曝露区) で 7 日間曝露し (曝露期間)、その後 5 日間清浄海水で飼育した (回復期間)。試験開始後 2、3、5、7、8、10、12 日目にジャワメダカをサンプリングし、消化管内の 2- μ m PS-MP を定量した。また曝露期間最終日および回復期間最終日に脳および消化管のアセチルコリンエステラーゼ (AChE) 活性を DTNB 法で測定した。

■結果・考察

PS-MP 取込み量

図 1 にジャワメダカ消化管内の 2- μ m PS-MP 定量結果を示す。曝露期間において低濃度 PS-MP 曝露区および高濃度 PS-MP 曝露区共に、曝露開始後 2 日目には PS-MP 体内濃度が平衡状態に達していた。また、PS-MP 取込み量は高濃度 PS-MP 曝露区の方が低濃度 PS-MP 曝露区よりも多くなる傾向が観察された。本試験の結果からジャワメダカへの 2- μ m PS-MP の生物濃縮係数 (BCF) は 26 L/kg と算出され、当研究室の先行研究で報告されたヒメダカ (*Oryzias latipes*) の BCF (140, Liu et al., 2021) の約 1/5 であった。また、2- μ m PS-MP の排出について、先行研究 (Liu et al., 2021) でヒメダカを 2- μ m PS-MP に曝露した後、清浄飼育水に移行させてもヒメダカ消化管内に取り込まれた 2- μ m PS-MP の 1/100 程度が少なくとも 10 日間残留することを報告している。しかし、ジャワメダカを用いた本試験では回復期間において 2- μ m PS-MP が急速に排出されていた。そのため、魚種あるいは淡水魚と海水魚において MP の蓄積・排出動態が異なっていることが示唆された。

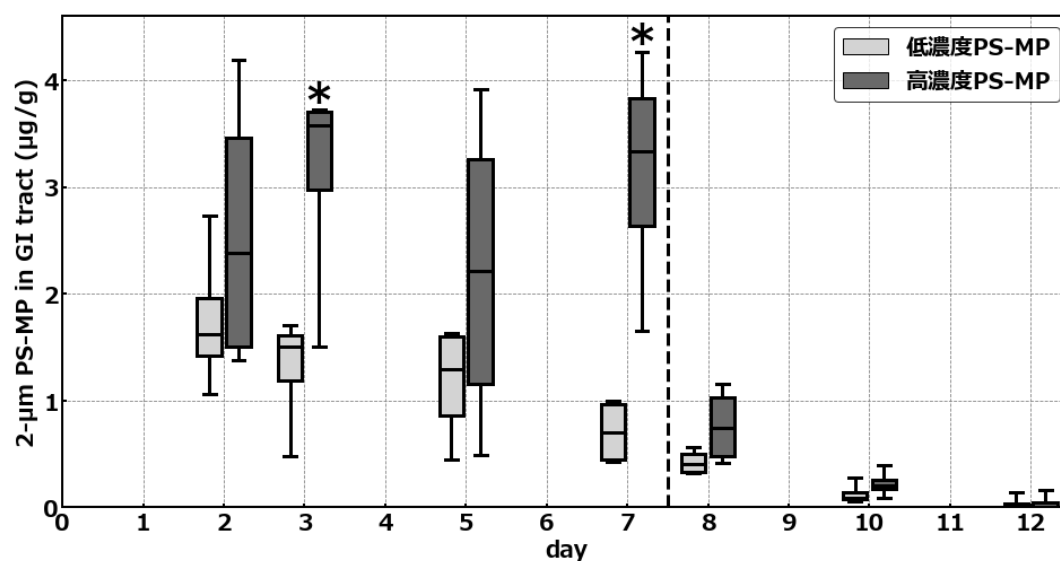


図 1. ジャワメダカの消化管内 2- μ m PS-MP 取込み量

脳および消化管の AChE 活性

図 2 に曝露期間および回復期間におけるジャワメダカの脳および消化管の AChE 活性を示す。脳の AChE 活性については曝露期間および回復期間において大きな変化は観察されなかった。しかし、消化管の AChE 活性については曝露期間の高濃度 PS-MP 曝露区で AChE 活性が約 1.5 倍上昇しており、低濃度 PS-MP 曝露区においても統計的な有意差はないものの AChE 活性が上昇している傾向が観察された。しかし、この傾向は回復期間では観察されなかったことから、消化管内に取り込まれた 2- μ m PS-MP が消化管の AChE 活性上昇に寄与していると考えられた。消化管の蠕動運動はアセチルコリンによって制御されていることが知られているため、本試験では消化管内に蓄積し

た 2- μ m PS-MP を排出するために蠕動運動が活発になっており、その結果アセチルコリンエステラーゼ活性が上昇していたと考えられた。

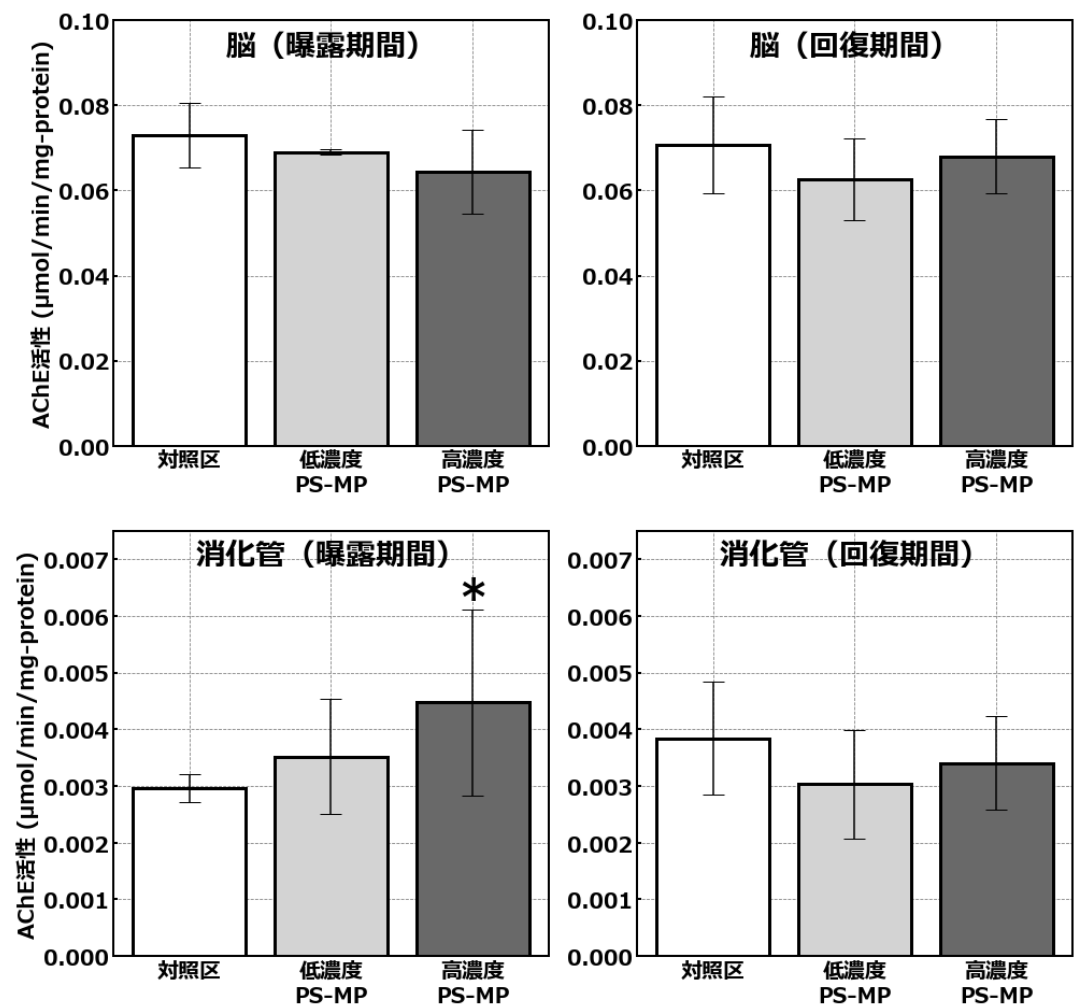


図 2. ジャワメダカの脳および消化管の AChE 活性

遊泳行動

本試験では曝露期間最終日に直径 24 cm の円形ガラス水槽にジャワメダカを 5 尾入れ、その遊泳行動を水槽上部から 15 分間撮影した。図 3 に遊泳速度の推移を示す。行動試験の結果、観察用水槽にジャワメダカを入れた直後（録画開始から 4 分間）は低濃度 PS-MP 曝露区および高濃度 PS-MP 曝露区共に対照区よりも遊泳速度が遅かった。これは対照区のジャワメダカは観察用水槽に入れた直後から不安行動または探索行動により壁面に沿った遊泳行動を行っていたのに対し、曝露区のジャワメダカはしばらく水槽中心部に留まってから遊泳行動を開始していたことに起因すると考えられる。一般的に、それまで経験したことのない環境に移された魚は不安行動から水槽の中心部は避け、壁面に沿って遊泳行動（不安行動、探索行動）を行うことが知られている。申請者の先行研究 (Takai et al., 2022) にて微細 PS-MP に曝露されたヒメダカは不安行動が低下することが明らかになっており、本試験においても微細 PS-MP に曝露されたジャワメダカは不安行動が減少していることが示唆された。

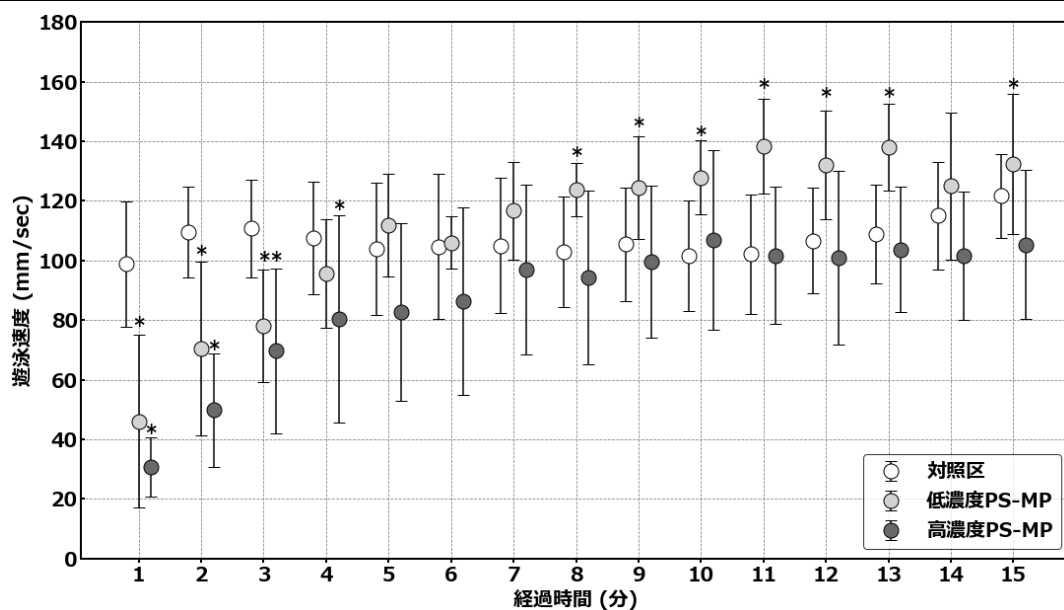


図 3. ジャワメダカの遊泳速度

■まとめ

本研究の成果により、微細 MP (2- μ m PS-MP) はジャワメダカの消化管内に蓄積するものの、清浄海水に移行した後は急速に体外へ排出されることが明らかになった。ヒメダカでは清浄飼育水に移行した後も微細 PS-MP が消化管内に残留することが報告されていることから、魚種あるいは海水魚と淡水魚で MP の蓄積・排出動態が異なっていることが示唆された。また、AChE 活性測定および行動試験の結果から微細 PS-MP が消化管の活動や魚類の遊泳行動に影響を与えていることが示唆された。本試験では 2- μ m の PS-MP のみを使用した、環境中では様々な素材、サイズ、劣化度合いの MP が混在している。今後もプラスチック汚染は深刻になっていくと予想されるため、MP が魚類に与える影響についてより詳細に調査すると共に、実際の環境に近い条件での評価を行っていく必要があると考えている。

※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。

【論文発表予定】

Aquatic Toxicology、投稿準備中

【学会発表予定】

日本水環境学会、2023. 03. 15-17

日本環境毒性学会、2023. 03

【博士論文】

高井優生、博士論文 (2023. 03)

見込まれる
成果物

※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

共同研究 成果報告書

(ふりがな)	イ ソクヒョン	提出年月日	2022 年 4 月 28 日	
申請者氏名	李 昔沘			
所属・職名	九州大学農学研究院			
連絡先住所				
TEL		FAX		
E-mail				
申請区分	☐ 重点共同研究 ☐ 一般共同研究 ☒ 若手研究者育成共同研究	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	研究期間 ☒ 単年 ☐ 複数年(2年)	☒ 新規 ☐ 継続
研究分野	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究			
研究課題	Changes in intestinal microbiomes in wharf roach dietary administrated to expanded polystyrene			
研究実施期間	2021 年 04 月 01 日～ 2022 年 3 月 31 日			
センター 教員	本田匡人			

研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院生・ 学部生は利 用時の年次	分担内容
	申請者	李 昔沄	九州大学	博士後期 2 年	フナムシの EPS 曝露実験
	分担者	本田匡人	金沢大学	助教	フナムシの飼育指導
		大嶋雄治	九州大学	教授	mRNAseq の解析
		島崎洋平	九州大学	准教授	実験統括
※ 申請時の分担組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					
分析試料			物質名	形態（形状）	試料数
	申請書に記載 した試料				
	分析した試料				
研究目的・ 期待される 成果	■目的 近年、海洋環境でマイクロプラスチック（MP）による環境汚染が危惧されている。中でも、環日本海域は MP のホットスポットとなっており、海洋生物がより大きな影響を受けていることが予想される。申請者の研究グループは金沢大学環日本海域環境研究センターとの共同研究で全国調査を行い、フナムシ消化管内から主にポリスチレン MP を検出した。（Lee, 論文準備中） さらに、ポリスチレン(PS)を与えたフナムシでは、摂食が確認されるとともに、その寿命が絶食個体より有意に伸びることを 2 回の実験で確認している。また最近の研究で meal worm 等一部の昆虫はプラスチックを消化することが報告されている。よって、フナムシも PS を消化してる可能性が極めて高い。本研究ではフナムシに PS を与えて、その影響を調べる。 ■期待される効果 本研究により、汚染の深刻化している PS の影響さらに分解者を探索することで、生態系への影響が解明され、さらに将来的には PS の分解処理が期待される。				
※申請書に記載した事項を要約して下さい。					

利用・研究 実施内容・ 得られた成 果	福岡市西ノ浦漁港でフナムシを採集した。採集されたフナムシは3日間絶食後、絶食継続区(対照)と Expanded polystyrene (EPS) feeding (ESP 区)に分けた。各区5匹を、共食いを防止するために一匹ずつ個別のガラス飼育槽に入れて実験した。飼育槽の床には砂利を敷いて海水を入れガラスシャーレを入れた。EPS 区には平均 50 mg の EPS block を餌として与え 10 日間飼育した。実験終了後を解剖して内臓を出し、Trizol reagent を用いて Genome DNA と Total RNA を抽出した。mRNA-Seq 及びショットガンメタゲノムシーケンシングは Novogene Co.,Ltd. で実施し、得られた mRNA-Seq データは Trinity(v2.13.2)で、メタゲノムシーケンシングデータは MG-RAST サーバ(v4.0.3)で解析した。Blast library は無脊椎動物を対象として検索した。mRNA-seq の結果、EPS がフナムシ中腸線の遺伝子発現量に影響を及ぼしたことが分かった。NADH dehydrogenase subunit2 (LogFC,13.6), Esterase FE4(10.5), Glutathione S-transferase (9.7), Cytochrome P450 4C1-like isoform X2 (9.3)、NADH dehydrogenase 1 alpha subcomplex subunit6(8.8)は顕著に増加し、また Multidrug resistance-associated protein 1 (-8.5), Sulfotransferase 1C4(-11.6)は大きく減少した。これらはいずれも薬物代謝関連遺伝子であり異物代謝が変化していることを示唆していた。おそらく EPS がフナムシ体内共生生物により分解されてできたスチレンダイマーやトリマーが吸収され、それらが薬物代謝系に悪影響を与えたと考えられる。EPS がフナムシの異物代謝に影響を及ぼし亜慢性的影響が示唆された。 表 EPS を摂取したフナムシの中腸線における発現変動遺伝子 <table><tr><th>Annotated Gene Name</th><th>Log FC</th><th>P Value</th></tr><tr><td>Aldo-keto reductase (NADPH) family 1 member B10 [Armadillidium nasatum]</td><td>13.598</td><td>8.60E-05</td></tr><tr><td>Esterase FE4 [Armadillidium nasatum]</td><td>10.478</td><td>1.01E-06</td></tr><tr><td>Glutathione S-transferase [Armadillidium nasatum]</td><td>9.652</td><td>1.03E-08</td></tr><tr><td>Cytochrome P450 4C1-like isoform X2 [Penaeus vannamei]</td><td>9.284</td><td>1.70E-08</td></tr><tr><td>NADH dehydrogenase [ubiquinone] 1 alpha subcomplex subunit 6 [Folsomia candida]</td><td>8.787</td><td>3.34E-05</td></tr><tr><td>NADH dehydrogenase subunit 2 [Ligia oceanica]</td><td>2.91</td><td>1.65E-07</td></tr><tr><td>Sulfotransferase 1C4 [Armadillidium nasatum]</td><td>-7.503</td><td>5.78E-06</td></tr><tr><td>Multidrug resistance-associated protein 1 [Armadillidium nasatum]</td><td>-8.501</td><td>1.22E-12</td></tr></table>	Annotated Gene Name	Log FC	P Value	Aldo-keto reductase (NADPH) family 1 member B10 [Armadillidium nasatum]	13.598	8.60E-05	Esterase FE4 [Armadillidium nasatum]	10.478	1.01E-06	Glutathione S-transferase [Armadillidium nasatum]	9.652	1.03E-08	Cytochrome P450 4C1-like isoform X2 [Penaeus vannamei]	9.284	1.70E-08	NADH dehydrogenase [ubiquinone] 1 alpha subcomplex subunit 6 [Folsomia candida]	8.787	3.34E-05	NADH dehydrogenase subunit 2 [Ligia oceanica]	2.91	1.65E-07	Sulfotransferase 1C4 [Armadillidium nasatum]	-7.503	5.78E-06	Multidrug resistance-associated protein 1 [Armadillidium nasatum]	-8.501	1.22E-12
Annotated Gene Name	Log FC	P Value																										
Aldo-keto reductase (NADPH) family 1 member B10 [Armadillidium nasatum]	13.598	8.60E-05																										
Esterase FE4 [Armadillidium nasatum]	10.478	1.01E-06																										
Glutathione S-transferase [Armadillidium nasatum]	9.652	1.03E-08																										
Cytochrome P450 4C1-like isoform X2 [Penaeus vannamei]	9.284	1.70E-08																										
NADH dehydrogenase [ubiquinone] 1 alpha subcomplex subunit 6 [Folsomia candida]	8.787	3.34E-05																										
NADH dehydrogenase subunit 2 [Ligia oceanica]	2.91	1.65E-07																										
Sulfotransferase 1C4 [Armadillidium nasatum]	-7.503	5.78E-06																										
Multidrug resistance-associated protein 1 [Armadillidium nasatum]	-8.501	1.22E-12																										
※1,000 字以上で具体的に記述して下さい。																												
見込まれる 成果物	学会発表 環境化学 3 学会合同大会(https://j-ec.smartcore.jp/M022/forum/touron30) 2022 年 6 月 14-16 日 富山国際会議場で以下を発表予定。 Changes in gene expression and microbiome of wharf roach ingested expanded polystyrene Lee SeokHyun, Yuki Takai, Masato Honda, Yohei Shimasaki, Yuji Oshima 投稿論文 Aquatic Toxicology (原稿作成中) 博士論文 2024 年 1 月発表予定																											
※原著論文発表、レビュー等原著論文以外による発表、口頭発表、卒業論文・修士論文・博士論文等の予定について記載して下さい。成果が出た場合は、別途事務局に報告して下さい。																												

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

研究集会 成果報告書

(ふりがな)	け ちゃん		
申請者氏名	Ke Zhang	提出年月日	2022 年 4 月 1 日
所属・職名	Nanjing Institute of Geography and Limnology, Chinese Academy of Sciences・教授		
連絡先住所			
TEL		FAX	
E-mail			
申請区分	☐ 一般枠 ☒ 国際枠	☒ 新規 ☐ 継続	
研究分野 区分	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☒ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☒ 地域環境の将来予測に関する研究 ☒ 持続可能な社会創成に関する研究 ☒ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究		
研究集会名称	17th East Eurasia International Workshop (EEIW)-Kunming		
開催場所	Kunming, China		
開催日	コロナ禍により中止		
参加者人数	計 名 内訳：本学（教職員_____人、学生_____人） 他大学・研究機関（教職員・研究者_____人、学生_____人） 一般等（_____人）		

得られた成果		コロナ禍により中止			
研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院 生・学 部生は 実施時 の年次	分担内容
	申請者	Ke Zhang	Nanjing Institute of Geography and Limnology	教授	主催
	分担者	Ji Shen	Nanjing Institute of Geography and Limnology	所長	主催
		長尾誠也	金沢大学	セ ン タ ー 長	共催
		長谷部徳子	金沢大学	教授	共催
		福土圭介	金沢大学	教授	共催
		落合伸也	金沢大学	助教	共催
		< 他 学 生 等 約 1 0 名 >			
	※申請時の研究組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。				

2021年度金沢大学環日本海域環境研究センター

研究集会 成果報告書

(ふりがな)	しらいわ たかゆき	提出年月日	2022 年 5 月 18 日
申請者氏名	白岩孝行		
所属・職名	北海道大学 低温科学研究所・准教授		
連絡先住所			
TEL		FAX	
E-mail			
申請区分	☒ 一般枠 ☐ 国際枠	☐ 新規 ☒ 継続	
研究分野 区分	☒ 環境汚染や環境変化の検知とその要因に関する研究 ☐ 環境変化が健康に及ぼす影響に関する研究 ☐ 生態系と人間社会の共生に関する研究 ☐ 地域環境の将来予測に関する研究 ☐ 持続可能な社会創成に関する研究 ☐ 複数の研究分野に跨がり推進する学際的研究		
研究集会名称	陸起源物質が沿岸海洋に及ぼす影響評価 (その3)		
開催場所	Webex を用いたオンライン研究集会		
開催日	2022 年 2 月 1 日		
参加者人数	計 25 名 内訳：本学（教職員 3 人、学生 7 人） 他大学・研究機関（教職員・研究者 7 人、学生 8 人） 一般等（0 人）		

得られた成果	2022年2月1日 09:30-15:00にかけて、「陸起源物質が沿岸海洋に及ぼす影響評価（その3）」と題するオンライン研究集会を実施した。まず初めに研究代表者の白岩孝行と長尾誠也が研究集会の説明を行った。その後、以下の発表が研究分担者からなされた；「グリーンランド北西部の冬期の強風がフィヨルドに供給する陸起源物質」的場澄人（北海道大学）；「河川、河口域でのコロイド画分を考慮した栄養塩測定を試み」芳村毅（北海道大学）；「北太平洋とオホーツク海における鉄とケイ素を含めた化学的プロパティの形成過程」西岡純（北海道大学）；「2021年 別寒辺牛川集中観測河川班報告」白岩孝行・的場澄人ほか（北海道大学）；「河口域・沿岸域での陸起源有機物の動態：炭素同位体比によるアプローチ」長尾誠也（金沢大学）；「海洋における溶存黒色炭素の挙動」山下洋平（北海道大学）；「オホーツク海南西域における¹³⁴Cs濃度の鉛直分布（2011-2021）」真下海成・井上睦夫・長尾誠也（金沢大学）；「アラスカ湾沿岸流域からの淡水流出量の評価」Peng Xin・三寺史夫・史穆清・白岩孝行（北海道大学） 3年間にわたる各メンバーからの研究成果の提供、ならびにこれに基づく討論により、日本海、太平洋、オホーツク海、そしてアラスカ湾というさまざまなスケールの陸海結合系において、大気および河川流域から河口域・汽水湖・沿岸域を経て外洋に輸送される各種溶存成分の挙動や輸送機構についての知見を蓄積することに成功した。				
研究組織		氏 名	所 属	職名／ 大学院 生・学 部生は 実施時 の年次	分担内容
		申請者	白岩孝行	北海道大学低温科学研究所 准教授	研究集会企画・とりまとめ
	分担者	西岡 純	北海道大学低温科学研究所	教授	オホーツク海・親潮域の海洋化学
		的場 澄人	北海道大学低温科学研究所	助教	大気由来の物質供給
		山下洋平	北海道大学地球環境科学研究所	准教授	溶存黒色炭素の動態
		芳村 毅	北海道大学地球環境科学研究所	准教授	湿原起源の鉄の挙動
		大西 健夫	岐阜大学応用生物科学科	准教授	凍土の融解が河川水質に与える影響
		三寺 史夫	北海道大学低温科学研究所	教授	オホーツク海の海洋動態
		長尾 誠也	金沢大学環日本海域研究センター	教授	懸濁態有機物の流出挙動
		落合 伸也	金沢大学環日本海域研究センター	助教	大気由来放射性核種を用いた物質動態解明
※申請時の研究組織を変更して許可を受けた場合は、変更後の組織を記載して下さい。					