道路粉塵におけるベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤の 分布特性と路上負荷量の推定

中田 晴彦, 西留明日香, 四方 規人*

熊本大学大学院自然科学研究科 (〒860-8555 熊本県熊本市中央区黒髪2-39-1)

*熊本大学理学部 (〒860-8555 熊本県熊本市中央区黒髪2-39-1)

[平成24年10月18日受付, 平成25年1月23日受理]

Benzotriazole UV Stabilizers (BUVSs) in Road Dusts and Estimation for Their Amounts on the Surface of Road

Haruhiko NAKATA, Asuka NISHIDOME and Norito SHIKATA *

Graduate School of Science and Technology, Kumamoto University
(2-39-1 Kurokami, Chuo, Kumamoto, Kumamoto 860-8555)

* Faculty of Science, Kumamoto University
(2-39-1 Kurokami, Chuo, Kumamoto, Kumamoto 860-8555)

[Received October 18, 2012; Accepted January 23, 2013]

Summary

The occurrence and ubiquitous distribution of persistent emerging pollutants, benzotriazole UV stabilizers (BUVSs), have been reported in the environment. However, little information is available on their potential sources of environmental exposure to UVSs. In this study, we analyzed four UVSs, such as UV-320, UV-326, UV-327, and UV-328, in road dust samples collected from Route 3 in Kumamoto Prefecture. UVSs were detected in most samples analyzed, at geometric mean concentrations of 0.61, 11, 3.3, and 12 ng/g dry wt. for UV-320, UV-326, UV-327, and UV-328, respectively. Significant correlations were found between UVSs concentrations in road dusts and traffic density, suggesting that automobile was a major source of UVSs in road dust. The amounts of UVSs on the surface of the Route 3 in Kumamoto city was estimated as 1,700 µg, and a samples of 60 ~ 250 µm particles was the dominant fraction to accumulate UVSs in road dust. These results indicates that road dust may be a non-point source of UVSs into the environment.

Key words: Benzotriazole UV stabilizers (BUVSs), Road dust, Potential source

1. はじめに

建材, 自動車部品, 電化製品, 雑貨等, 多様な日常生活品に含まれるベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤 (BUVSs) は, プラスチック等の劣化を防ぐ目的で世界的に使用量・使用品目の増加が認められる人工化学物質である (Fig. 1)¹⁾。ところが近年, 米国や日本において UVSs による生態系汚染が報告され, その環境負荷に注目が集まるようになった²⁾。一部の UVSs は生体毒性を有することが知られ, 雄ラットにおける UV-320 の NOAEL (最大無影響濃度) は 0.1 mg/kg/day と比較的低値であることが報告されている³⁾。一方, 雌ラットの NOAEL 値は 2.5 mg/kg/day であり, 値に明瞭な性差があることから哺乳類の内分泌系に対する影響が疑われている。また, ラットに UV-327 を 25 mg/kg/day の濃度で投与した場合, 肝臓重量の増加や血中の ALT やアルブミン濃度の上昇が報告されている⁴⁾。日本において, UV-320 と UV-327 は「化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律 (化審法)」の第一種特定化学物質

と第一種監視化学物質にそれぞれ指定され, 環境残留性や毒性に監視の目が向けられている。

最近, UVSs の環境負荷に関する新たな知見が国内外で報告されるようになった。Nakata *et al.*^{5,6)} は, 有明海より採取した底質, 貝類, 甲殻類, 魚類, 鳥類および哺乳類を対象に UVSs の分析を行い, ほぼ全ての試料から検出されたことを報告した。とくに, 大型魚類 (サメ・エイ), 鳥類 (カルガモ, マガモ), 哺乳類 (イルカ) に UV-327 の残留が確認され, 食物連鎖を通して海洋生態系の高次生物へ移行することが示された。Kameda *et al.* (2011)⁷⁾ は, 埼玉県内の河川水と底質に含まれる 22 種類の紫外線吸収剤を分析し, UV-326, UV-327, UV-328 などベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤の検出頻度が高いことを指摘した。

アジア域の 9 か国と米国西海岸から採取したイガイを分析したところ, その多くの試料から UVSs が検出された⁸⁾。概ね UV-326 と UV-328 の濃度が高く, 日本, 韓国, 中国 (香港) の一部の試料は 1 µg/g (脂肪重あたり) を超過していた。BUVSs はフィリピン⁹⁾

や米国¹⁰⁾ の環境試料からも検出されており、これらの広域汚染の存在が示されている。また、日本近海産の海生哺乳類と東京湾の柱状底質を対象に BUVSs の分析を行ったところ、過去 30 年間で濃度値が上昇する傾向が得られ、汚染が顕在化する様子が窺えた¹¹⁾。

BUVSs の環境負荷に関する知見が報告される一方で、その発生源に関する調査例は少ない。環境残留性や毒性が懸念され、一部が化審法の指定を受けた BUVSs の環境負荷を減らすには、発生源に対する定性・定量的解析が不可欠である。そこで本研究では、BUVSs の環境排出源として「道路粉塵」に着目した。具体的には、Fig. 1 に挙げた 4 種の BUVSs を対象に熊本県内の幹線道路から採取した粉塵試料を分析し、濃度値とその変動要因の解明および路上

負荷量の算出を試みた。

2. 試料と方法

2. 1 道路粉塵の採集

2011 年 7 月 27 日、熊本県南部の芦北郡佐敷町から熊本市植木町に至る国道 3 号線の 21 地点（距離：72.7 km）から道路粉塵を採取した。試料採取地点と、各地点の一日当たり車両交通量¹²⁾ を Fig. 2 と Table 1 にそれぞれ示した。熊本市中心部の 5 地点（St. 13～17）の車両交通量は、40,000～50,000 台/日であり、同市北部の 2 地点（St. 18～19）と市南部から八代市中心部に至る 6 地点（St. 5～10）においては、20,000～30,000 台/日であった。また、八

Fig. 1 Chemical structure of benzotriazole UV stabilizers (BUVSs) analyzed in this study

Fig. 2 Map showing the sampling sites of road dusts on Route 3 in Kumamoto Prefecture

Table 1 Concentrations of BUVSs in road dust collected from Route 3 at Kumamoto Prefecture and background information of sampling sites (ng/g dry wt.)

	Distance from St. 1 (km)	Traffic density (cars/day) ¹¹⁾	Carbon (%)	UV-320	UV-326	UV-327	UV-328
1-1*	0	na	4.1	<0.05	17	<0.12	4.2
1-2*	0	na	2.1	<0.05	8.1	2.4	2.4
2	3.9	2285	3.3	<0.05	1.3	<0.12	1.6
3	6.3	5041	na	<0.05	9.3	10	15
4	11.6	9902	3.7	0.60	2.5	1.4	2.1
5	13.4	16417	5.9	1.00	11	3.8	9.8
6	18.5	15727	5.0	1.07	12	3.7	11
7	19.7	21767	4.3	0.57	9.5	1.9	7.1
8	21.9	22012	na	0.88	21	4.4	23
9	31.3	19487	5.2	0.65	11	3.0	14
10	38.9	20362	2.2	0.43	2.4	0.9	6.9
11	49.8	50124	3.3	1.48	4.6	2.3	6.0
12	50.6	38351	2.7	1.62	6.9	2.2	12
13	52.9	41145	7.4	2.52	40	9.3	46
14	56.6	40818	4.3	0.66	16	5.3	17
15	59	42423	6.7	6.37	75	63	29
16	59.7	48693	6.4	1.33	34	19	18
17	61.8	52908	9.4	2.98	19	6.8	17
18	64.4	24048	4.1	0.47	9.6	3.0	13
19	65	28931	3.6	0.75	7.3	4.0	130
20	66.5	33421	4.5	0.85	22	11	20
21	72.7	31001	6.4	0.98	20	7.5	22
Geo. Mean		22786	4.4	0.61	11	3.3	12

*: Samples of St. 1 were collected in tunnel.

na: not available.

代市南部から佐敷町までの3地点(St. 2~4)は10,000台/日を下回り、最も少ないSt. 2では約2,000台/日であった。

道路粉塵の採取には、紫外線吸収剤を含有する可能性のあるプラスチック製品の使用を避け、竹製ほうきと木製塵取りを使用した。全ての試料は、採取後から分析を行うまで-20℃以下で冷凍保存した。なお、熊本県熊本地方では試料採取の前日に4.5 mm/dayの降雨を記録している¹³⁾。

2. 2 試料処理および分析方法

道路粉塵試料は、凍結乾燥して乳鉢で緩やかに均質化した後、1,000 µm, 250 µm, 63 µm, 20 µm メッシュの真鍮製(20 µmのみステンレス製)ふるいを用いて粒径別に分画した。各粒径試料のBUVSs濃度を調べるため、St. 13(交通量: 41,145 台/日)とSt. 17(同: 52,908 台/日)の2地点について、1,000~250 µm, 250~63 µm, 63~20 µm, 20 µm 以下に4分画した試料をそれぞれ分析した。その結果(3.1に記述)を基に、その他の試料は20~63 µmの粒径のみを分析に供した。

BUVSsの分析法は既報⁵⁾に従った。約1~2 gの粉塵試料を、ジクロロメタンとヘキサン混合溶液(DCM: Hex = 8:1)でソックスレー抽出した。内部標準物質(*d*₁₀-phenanthrene)を添加した抽出溶液をBio-Beads S-X3(200-400 mesh, Bio-Rad, USA)を充填したゲル浸透クロマトグラフ用のカラム導入し、5 ml/minの流速でDCMとHexの混合溶液(1:1)を滴下してBUVSsを含むフラクションを得た。当該溶液を濃縮後、5%含水シリカゲルを湿式充填したガラスカラムに添加し、1%ジエチルエーテル含有ヘキサン溶液100 mLを滴下してクリーンアップを行った。得られた溶液を200 µLまで濃縮し、ガスクロマトグラフ質量分析装置(GC-MSD Agilent 6890 & Agilent 5975 C)にインジェクションして目的物質の定性定量を行った。

GC-MSによる物質同定はSCANとSIMの両モードで行った。SIM測定時の各物質のモニターイオンには、UV-320 (*m/z*: 308, 323, 252), UV-326 (*m/z*: 300, 315, 272), UV-327 (*m/z*: 342, 344, 357), UV-328 (*m/z*: 322, 351, 336)をそれぞれ指定した。GCの昇温条件は、80℃で1分保持した後、160℃まで10℃/minで、続いて300℃まで3℃/minに設定した。キャピラリーカラムにはBPX-5(30 m × 0.25 mm id, 膜厚: 0.25 µm; SGE 社製)を、キャリアガスには高純度ヘリウムをそれぞれ用いた。また、道路粉塵中の炭素含量は元素分析装置(ヤナコ MT-5)で測定した。

2. 3 分析精度の確認

操作ブランク試験および標準溶液を用いた添加回収試験を実施した。その結果、操作ブランクからは定量に影響するBUVSsのピークは確認されなかった。添加回収試験での各物質の回収率(算術平均値±標準偏差)はUV-320: 114 ± 12%, UV-326: 122 ± 11%, UV-327: 114 ± 14%, UV-328: 110 ± 8.8%であった。*d*₁₀-phenanthreneの回収率は97 ± 16%であり、全般に良好な値が得られた。目的物質の検出下限は定量ピークのS/N比の3以上とし、検出下限値はUV-320: 0.05 ng/g, UV-326: 0.10 ng/g, UV-327: 0.12 ng/g, UV-328: 0.15 ng/gであった。また、各物質の濃度相関を調べるため、Speaman's rank test(使用ソフト: Excel 多変量解析 ver. 4.0 (Esumi, Co. Ltd, Tokyo))を行った。

3. 結果と考察

3. 1 粒径別濃度分布

St. 13と17から採取した道路粉塵を、<20 µm, 20~63 µm,

63~250 µm, 250~1,000 µmの粒径に四分画し、各試料中のBUVSs濃度を測定した。その結果、大部分の試料からBUVSsが検出され、概ねUV-328とUV-326が高値(数10 ng/g dry wt.)を示した(Fig. 3)。粒径別では、St. 17のUV-320を除く全ての物質で<20 µmの粉塵試料が最も高濃度であった。20~63 µmと63~250 µmの粉塵中BUVSs濃度はほぼ同じであり、<20 µmのそれに比べやや低値を示した。一方、250~1,000 µmの粉塵はその他の粒径試料に比べてBUVSs濃度が概ね三分の一以下であった。以上の結果から、道路粉塵中のBUVSsは主に250 µm以下の粒子に吸着し、その傾向は<20 µmで顕在化すると考えられた。ただし、道路粉塵の総重量に占める<20 µm試料の割合は2%以下と少量であるため、他地点の分析試料には20~63 µmの粒径のものを採用した。

3. 2 地理的分布および濃度値と車両通行量との関係

熊本県内の国道3号線上の21地点から採取した道路粉塵(粒子径: 20~63 µm)を分析したところ、全ての試料からBUVSsが検出された(Table 1)。全般にUV-326とUV-328が高値を示し、平均濃度はそれぞれ17 ± 17 ng/g(乾重あたり; 幾何平均値(以下同じ): 11 ng/g), 21 ± 28 ng/g(12 ng/g)であった。ただし、St. 19の試料中UV-328濃度は他に比べて極めて高く(130 ng/g)、この値を除くと平均値は大幅に減少し15 ± 10 ng/g(10 ng/g)であった。St. 19の試料にはUV-328の発生源となる特異成分が含まれている可能性があり、データの代表性に難があることから今後の考察はこの値を除外して進める。

UV-327の平均濃度は8.2 ± 14 ng/g(3.3 ng/g)であり、UV-326, UV-328の値の半分程度であった(Table 1)。UV-327は他の物質に比べて相対標準偏差が大きく、本物質は車以外に道路粉塵への負荷源が存在する可能性が窺えた。UV-320は2007年に化審法第一種特定化学物質に指定され、その製造・使用等が原則禁止されたが、低値ながら調査地点の85%を占める18カ所の粉塵から検出された(0.61 ng/g)。この理由として、化審法の指定以前に製造されたUV-320を含む自動車部品が現在も使用されており、それらの摩耗による粉塵への寄与が考えられた。

St. 1-1と1-2の両試料は、St. 2から4 km程度南下したトンネル内で採取したものである。本地点の交通量データはないが、地点間の距離は短く一本道のため、St. 2とほぼ同数の車両が通行すると思われる。St. 1-1, 1-2の粉塵中UV-326, UV-327, UV-328平均濃度は、それぞれ12 ng/g, 1.2 ng/g, 3.3 ng/gであり、いずれもSt. 2の値(UV-326: 1.3 ng/g, UV-327: <0.12 ng/g, UV-328: 1.6 ng/g)を最大で10倍上回った(Table 1)。St. 1のトンネル内は、高速道路のような積極的な排気がされておらず、閉鎖的な大気環境が粉塵中のBUVSs濃度値を高くした可能性が窺えた。

Fig. 3 BUVSs concentrations in different size of road dust particles on stations 13 and 17 on Route 3

一日当たりの車両交通量¹²⁾とBUVSsの各濃度値との関係を調べたところ、その全てで有意な正の相関が得られた (Fig. 4)。道路粉塵中のBUVSsが自動車由来であることを強く示唆しており、その傾向はUV-320とUV-326で顕著に見られた。一方、St. 15のBUVSs濃度はいずれも高値を示し、車両交通量と濃度間の回帰直線から大きく外れていた (Fig. 4)。St. 15は市内中心部のビジネス街に位置し、車両に加え自転車やバイク、歩行者の往来が他に比べて多い場所である。数m先にはガソリンスタンドも立地しており、本地点では複数かつ特異なBUVSs負荷源が存在すると考えられた。

BUVSs間の濃度相関を調べたところ、いずれも有意な正の相関が得られ、その傾向はUV-320とUV-326 ($r^2 = 0.64$; $p < 0.01$)、UV-320とUV-327 ($r^2 = 0.70$; $p < 0.01$)、UV-326とUV-327 ($r^2 = 0.76$; $p < 0.01$)、UV-326とUV-328 ($r^2 = 0.62$; $p < 0.01$)で顕著であった。このことは、自動車部品には複数のBUVSsが含まれている可能性を示している。また、UV-320と他物質との相関が得られたことから、UV-320の代替として必ずしもUV-326、UV-327、UV-328が使用されていない可能性が窺えた。また、2007年に使用禁止になったUV-320の粉塵中濃度は今後減少することが予想され、将来本物質が車の部品交換の経時的変遷を示すトレーサーになると考えられた。

道路粉塵中の炭素含量とUV-320、326、327、328の各濃度間の相関係数はそれぞれ0.29、0.48、0.30、0.41 (St. 15を除く)であり、いずれも有意な関係が得られた ($p < 0.05$)。類似の傾向は、有明海沿岸の底質試料でも観察されており⁵⁾、BUVSsはPOPsと同

様の粒子 (とくに炭素) 吸着性を有する可能性を示している。

3. 3 道路粉塵由来のBUVSs路上負荷量の推定

道路粉塵中のBUVSは降雨等で水環境中へ流出すると考えられるが、その定量評価に資する基礎データとして現時点における路上のBUVS負荷量の推定を試みた。調査区間はSt. 11からSt. 21に至る熊本市内の国道3号線上とし、始めに各区間における粒径別道路粉塵量を以下の式1で算出した。

$$W_{\text{dust}} = \sum_i D_{\text{road}} \times W_{\text{road}} \times W_{\text{d/s}} \times WR_i \quad (1)$$

W_{dust} (Weight of four fractions of road dusts [$< 20 \mu\text{m}$, $20 \sim 63 \mu\text{m}$, $63 \sim 250 \mu\text{m}$, $250 \sim 1,000 \mu\text{m}$]): 各地点間の道路粉塵量 (g)

D_{road} (Distance of road): 当該道路の距離 (m)

W_{road} (Width of road): 道路幅 (m) *

$W_{\text{d/s}}$ (Weight of road dust per square): 単位面積当たり道路粉塵量 (g/m^2) **

WR_i (Ratio of dust weight of $< 20 \mu\text{m}$ or $20 \sim 63 \mu\text{m}$ or $63 \sim 250 \mu\text{m}$ or $250 \sim 1,000 \mu\text{m}$ to total dust weight): 総道路粉塵に占める各粒径試料の重量比

i : $< 20 \mu\text{m}$, $20 \sim 63 \mu\text{m}$, $63 \sim 250 \mu\text{m}$, $250 \sim 1,000 \mu\text{m}$ の各粒径

*: 一車線の幅 ($3.5 \text{ m} \times 2 = 7 \text{ m}$) に自転車用道路の幅 ($1 \text{ m} \times 2 = 2$) を足した計 9 m と仮定。

**: 文献値¹⁴⁾ より $0.3 \text{ g}/\text{m}^2$ と仮定。

Fig. 4 Relationship between BUVSs concentrations in road dusts and traffic density of automobiles

次に、各地点間の道路粉塵中 BUVSs 量を算出するため、それぞれの粒径別濃度を以下の式 2 で算出した。

$$C_i = C_{\text{BUVSs}[20 \sim 63 \text{ mm}]} \times CR_{i[20 \sim 63 \text{ mm at St. 13 \& 17]}} \quad (2)$$

C_i (Concentrations of BUVSs of individual particle size) : 各粒子系試料における BUVSs 濃度

i : < 20 μm , 20 ~ 63 μm , 63 ~ 250 μm , 250 ~ 1,000 μm の各粒径 $C_{\text{BUVSs}[20 \sim 63 \text{ mm}]}$ (Concentration of BUVSs in 20 ~ 63 μm particle size) : 各地点における 20 ~ 63 μm 粒径試料中の BUVSs 濃度

$CR_{i[20 \sim 63 \text{ mm at St. 13 \& 17}]}$ (Concentration ratio of BUVSs in 20 ~ 63 μm sample to that of i at stations 13 and 17) : St. 13 と 17 の粒径 20 ~ 63 μm 粉塵中 BUVSs 濃度に対する < 20 μm , 63 ~ 250 μm , 250 ~ 1,000 μm の各粒径試料中 BUVSs の濃度比)

(1) および (2) 式から得られた値の積より、熊本市内の各区分における道路粉塵中 BUVSs 存在量を算出した (Table 2)。その結果、UV-320, UV-326, UV-327, UV-328 の存在量はそれぞれ 18, 530, 370, 820 μg であり、総計 1,700 μg と見積もられた。また、本区分において粒径別の存在量を試算したところ、UV-320 を除く 3 物質は 63 ~ 250 μm の粒径において卓越しており、全重量の 50 ~ 73 % を占めることがわかった (Table 3)。

熊本市内において、道路粉塵中の BUVSs がどの程度水環境中へ排出されるのか。この種の面源負荷の推定には幾つかの先行研究^{15, 16)} があるが、それには浮遊粒子 (SS) の負荷原単位を把握することが重要になる。ところが、既報における高速道路や市街地からの SS 負荷原単位量は値幅が大きく (高速道路: 314.2 kg/ha/yr ¹⁷⁾, 国内市街地: 49 ~ 2,390 kg/ha/yr ¹⁸⁾), 当該地域を試算するにあたり推定値の正確性を担保することは困難と考えられた。また、試料採取前日に一定量の降雨 (4.5 mm/d) があったことや、熊本市内の道路面積に関する知見が得られていないことから、面源負荷の推定には基礎情報の収集が不可欠であろう。一方で、道路粉塵から BUVSs が検出され、それが車由来である可能性を指摘した報告は今回が最初と思われ、今後は粉塵由来の BUVSs 負荷が

全体の環境負荷量にどの程度寄与するのか、新規試料の分析や新たなデータ解析を進める必要がある。

要 約

ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤 (BUVSs) は、難分解性を有する環境化学物質として日本や欧米を中心に注目され始めている。UV-320 と UV-327 は化審法の特定化学物質に指定され、環境残留性や毒性に監視の目が向けられているが、発生源に関する科学的知見は極めて少ない。本研究では道路粉塵を BUVSs の発生源の一つと捉え、熊本県内の国道 3 号線の 21 地点から粉塵試料を採取、分析を行った。その結果、供試した全ての試料から BUVSs が検出され、道路粉塵がこれらの環境排出源である様子が示された。粉塵試料を粒径で四分画しそれぞれ分析したところ、大部分の BUVSs が 250 μm 以下の粒径試料に含まれることがわかった。各地点における一日当たりの車両通行量と BUVSs 濃度との間には有意な相関が得られ、道路上の BUVSs は車に由来することが示された。道路粉塵中の BUVSs 濃度と粉塵量および道路の各種条件を基に、熊本市内の国道 3 号線上に存在する BUVSs 量を見積もったところ 1,700 μg と試算された。

本研究は、道路粉塵から BUVSs を検出しそれが車由来である可能性を指摘した最初の報告と思われる。今後は道路由来の BUVSs 環境負荷量についてさらに詳細な検証を加えること、他の有力な排出源と思われる排水処理施設の分析データの解析を進めていく必要がある。

謝 辞

本研究は公益信託下水道振興基金の助成を受けて実施しました。ここに深く感謝申し上げます。道路粉塵の試料採取にご協力いただいた、熊本大学大学院自然科学研究科環境毒性化学研究室の学生諸氏に感謝申し上げます。

Table 2 Amounts of BUVSs in road dusts at sampling sites on Route 3, Kumamoto Pref. (mg)

Sampling station #	UV-320	UV-326	UV-327	UV-328	Total
11	3.3	25	20	44	92
12	0.94	9.8	4.9	24	39
13	2.8	110	40	180	330
14	1.1	52	25	75	150
15	3.1	84	110	57	250
16	0.92	48	41	35	120
17	2.6	41	23	51	120
18	0.23	14	6.8	27	48
19	0.19	4.7	5.2	140	150
20	1.3	86	63	110	260
21	1.0	54	33	83	170
Total	18	530	370	820	1700

Table 3 Amounts of BUVSs in different size of road dust particles on Route 3, Kumamoto Pref. (mg)

Particle size (mm)	UV-320		UV-326		UV-327		UV-328		Total	
	Burden (mg)	Composition (%)	Burden (mg)	Composition (%)	Burden (mg)	Composition (%)	Burden (mg)	Composition (%)	Burden (mg)	Composition (%)
<20	0.26	1.5	9.9	1.9	6.9	1.9	12	1.4	29	1.7
20~63	11	60	130	25	57	15	140	17	340	20
63~250	6.8	39	390	74	190	51	460	57	1000	59
250~1000	0	0	0	0	120	32	200	25	320	19
Total	18		530		370		810		1700	

文 献

- 1) 経 済 産 業 省 HP (http://www.meti.go.jp/policy/chemical_management/kasinhou/1stkind.html)
- 2) 中田晴彦：難分解性生活関連物質による海洋生態系の汚染～ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤を例に～，水環境学会誌 **33**, 142-146 (2010)
- 3) National Institute of Technology and Evaluation, Japan. CHEmical Collaboration Knowledge database (J-CHECK). Available online at <http://www.safe.nite.go.jp/jcheck/Top.do;jsessionid=E9FD388CF12981F80CEC776C7C897DA1>
- 4) Hirata-Koizumi, M., Ogata, H., Imai, T., Hirose, A., Kamata, E. and Ema, M.: A 52-week repeated dose toxicity study of ultraviolet absorber 2-(2'-hydroxy-3',5'-di-tert-butylphenyl) benzotriazole in rats. *Drug. Chem. Toxicol.*, **31**, 81-96 (2008)
- 5) Nakata, H., Murata, S. and Filatreau, J.: Occurrence and concentrations of benzotriazole UV stabilizers in marine organisms and sediments from the Ariake Sea, Japan. *Environ. Sci. Technol.*, **43**, 6920-6926 (2009)
- 6) Nakata, H., Shinohara, R. Murata, S. and Watanabe, M.: Detection of benzotriazole UV stabilizers in the blubber of marine mammals by gas chromatography-high resolution mass spectrometry. *J. Environ. Monitor.*, **12**, 2088-2092 (2010)
- 7) Kameda, Y., Kimura, K. and Miyazaki, M.: Occurrence and profiles of organic sun-blocking agents in surface waters and sediments in Japanese rivers and lakes. *Environ. Pollut.*, **159**, 1570-1576 (2011)
- 8) Nakata, H., Shinohara, R., Nakazawa, Y., Isobe, T., Sudaryanto, A., Subramanian, A., Tanabe, S., Zakaria, M.P., Zheng, G.J., Lam, P.K.S., Kim, E-Y., Min, B-Y., We, S-U., Viet, P.H., Tana, T.S., Pridente, M., Frank, D., Lauenstein, G. and Kannan, K.: Asia-Pacific Mussel Watch for Emerging Pollutants: Distribution of Synthetic Musk and Benzotriazole UV Stabilizers in Asian and US Coastal Waters. *Mar. Pollut. Bull.*, **64**, 2211-2218 (2012)
- 9) Kim, J-W., Isobe, T., Ramaswamy, B.R., Chang, K-H., Amano, A., Miller, T.M., Siringan, F.P. and Tanabe, S.: Contamination and bioaccumulation of benzotriazole ultraviolet stabilizers in fish from Manila Bay, the Philippines using an ultra-fast liquid chromatography-tandem mass spectrometry. *Chemosphere*, **85**, 751-758 (2011)
- 10) Reddy, C.M., Quinn, J.G. and King, J.W.: Free and bound benzotriazoles in marine and freshwater sediments, *Environ. Sci. Technol.*, **34**, 973-979 (2000)
- 11) 中田晴彦，篠原竜一，磯部友彦，田辺信介：東京湾柱状底質における紫外線吸収剤濃度の経年変化とその発生源の推定 第19回環境化学討論会講演要旨集，68-69 (2010)。
- 12) 熊本県ホームページ (<http://www.pref.kumamoto.jp/soshiki/94/sensus.html>)
- 13) (財) 日本気象協会 HP (<http://www.jwaq.gr.jp/kumamoto/>)
- 14) 東京理科大学 HP (<http://www.wv.mei.titech.ac.jp/coast-env/workshop/2nd/naiyou/siryou/nihei.pdf>)
- 15) Furumai, H., Balmer, H., and Boller, M.: Dynamic behavior of suspended pollutants and particle size distribution in highway runoff. *Wat. Sci. Technol.*, **46**, 413-418 (2002)
- 16) Murakami, M. and Takada, H.: Perfluorinated surfactants (PFSS) in size-fractionated street dust in Tokyo. *Chemosphere*, **73**, 1172-1177 (2008)
- 17) 新矢将尚，小西孝明，宮西弘樹，石川宗孝：高速道路排水における汚濁負荷の流出特性，用水と排水，**44**，207-213 (2002)。
- 18) 森 明寛，藤田紀子，稲村正博，藤井宣人，松本範夫：市街地汚濁負荷原単位調査について，鳥取県衛生研究所報，**39**，58-61 (1999)。