

## 長崎県大村湾における大気中鉛の起源 Origin of atmospheric lead around Omura Bay, Nagasaki, Japan

齋藤 有<sup>1\*</sup>, 梅澤 有<sup>2</sup>, 河本和明<sup>2</sup>, 谷水 雅治<sup>3</sup>, 石川 剛志<sup>3</sup>

Yu Saitoh<sup>1\*</sup>, Yu Umezawa<sup>2</sup>, Kazuaki Kawamoto<sup>2</sup>, Masaharu Tanimizu<sup>3</sup>, Tsuyoshi Ishikawa<sup>3</sup>

<sup>1</sup> 高知大学海洋コア総合研究センター, <sup>2</sup> 長崎大学大学院水産・環境科学総合研究科, <sup>3</sup> 海洋研究開発機構高知コア研究所  
<sup>1</sup>Center for Advanced Marine Core Research, Kochi University, <sup>2</sup>Graduate School of Fisheries Science and Environmental Studies, Nagasaki University, <sup>3</sup>Kochi Institute for Core Sample Research, JAMSTEC

日本の大気質は中国をはじめとする他国からの越境汚染の影響を強く受けている。大気中の鉛等の重金属も一部は他国から飛来したものであることが明らかになっている(例えば向井ほか 1999)。ユーラシア大陸に近い九州北部は、そのような越境汚染の実態を直接捉えるのに適した地域である。2011年5月から2012年8月にかけて、長崎県大村湾東部の丘陵上において2~8日おきの高頻度でエアロゾル粒子が吸引採取された。この地域の大気中の人為起源金属元素に対する越境汚染の寄与を明らかにするため、それら試料の1M-HCl溶出成分とその残存成分について、微量元素含有量とSr-Pb同位体比を測定した。難溶の残存成分は地質由来のケイ酸塩粒子、HCl溶出成分はケイ酸塩粒子への吸着体やフューム、ミスト、海塩等の可溶成分を代表するものとみなすことができる。重金属のうちZn, Cd, Pbは、HCl溶出成分中にケイ酸塩中の8-18倍の量が含まれ、これらの元素が地質由来ではなく人為起源であることが示唆される。

ケイ酸塩成分のSr同位体比 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は、冬から春に高く(0.712-0.714)、夏に低い(0.706)傾向を示す。高いSr同位体比はユーラシア大陸に由来する黄砂に特徴的な値であり、低い値は日本の地質に典型的な値である。冬型と夏型の気圧配置による風向きの変化を反映したものと考えられる。HCl溶出成分中の人為起源元素のうち、Znの含有量と $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ との相関は弱い( $r=0.28$ )、PbとCdは正の相関( $r>0.7$ )を示す。このことから大村湾付近における大気中のPb, Cd量が、ケイ酸塩粒子に占める大陸由来成分の比率が高いほど多くなることが読み取れる。しかしながら、可溶成分の鉛同位体比は、黄砂量の最も多い3, 4月の鉛は日本由来で( $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ : 1.16,  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ : 2.44)、逆にケイ酸塩の大陸由来成分の比率がそれほど高くない9月から12月に、北京、極東ロシアあるいは中央アジアからの寄与が高いことを示唆する( $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ : 1.13-1.15,  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ : 2.42-2.43)。このことは、大気中鉛に限れば、越境汚染が発生するのは黄砂の飛来する春ではなく秋から冬であることを意味する。暖房による石炭の燃焼量の増加と冬型の気圧配置が相乗的に作用したことが考えられる。一方、黄砂の時期の鉛が現地性でかつ量が最も多いことの理由としては、まず黄砂の飛行高度が非常に高いことで中国都市部の大気の影響を受けなかったこと、そしてそれが、日本海を渡り、大村湾に降下するまでに海塩起源や現地性の大気中鉛を吸着して濃縮したことが考えられる。

本研究では大陸由来の鉛の起源に関して、中国、極東ロシア、中央アジアのどれが最も重要かを突き止めることはできなかった。大気中鉛の起源推定には鉛同位体比が広く用いられているが、分析には主に四重極型ICP-MSが用いられているためか、公表されている鉛同位体比のデータは $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ , あるいは $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ が主で、 $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ ,  $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ の精度の高いデータは稀である。今後大気中鉛の起源推定の精度を高めるためには、汚染源地域の $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ ,  $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ データの整備が不可欠と考える。

キーワード: エアロゾル, 人為起源鉛, Sr-Pb同位体比, 越境汚染

Keywords: aerosol, anthropogenic lead, Sr-Pb isotope ratios, cross-border pollution