

# 北東部太平洋側における降水中の鉛安定同位体比測定

## The lead isotope ratio in rain depositions collected in northeastern Pacific ocean side of Japan

北村 洋子 小川 武 佐久間 隆 小泉 俊一 菊地 秀夫 向井 人史\*<sup>1</sup>  
 Yoko KITAMURA, Takeshi OGAWA, Takashi SAKUMA, Syun-ichi KOIZUMI,  
 Hideo KIKUCHI, Hitoshi MUKAI

宮城県は東北の太平洋側に位置しており、東アジア大陸からの汚染物質の影響が少ない地域とされている。しかし、宮城県内では依然として酸性雨が観測されており、酸性雨をもたらす原因を解明する必要がある。今回、国設箕岳局で捕集された降水試料について鉛安定同位体比を測定するなどし、宮城県にもたらされる汚染質の起源の解明を試みた。結果として、汚染質が宮城県に達するまでに日本国内を通過してくるなど、なかなか明快な結論を得るのは困難であった。アジア大陸からの影響が懸念されている昨今、降水中の汚染質の起源・由来については今後とも継続して観測していく必要があると思われる。

キーワード：降水；鉛安定同位体比；太平洋側

Key words : rain depositions ; stable lead isotope ratio ; northeastern Pacific ocean side of Japan

### 1 はじめに

宮城県は東アジア大陸からの汚染物質の影響が少ないとされている東北の太平洋側に位置しているが、依然として酸性雨が観測されており、酸性雨をもたらす汚染質の起源について解明する必要がある。宮城県では、環境省の酸性雨対策調査の一環として、国設箕岳局で平成10年から現在に至るまで、降水試料自動捕集装置により1日毎の降水試料を捕集し降水成分の測定を行ってきた。当地周辺には大きな発生源がないことから、発地域に固有の値をとるとされている鉛安定同位体比の測定をおこない、降水中の汚染質の起源の推定を試みた。

### 2 対象および検査方法

#### 2.1 測定地点

国設箕岳局は宮城県遠田郡涌谷町箕岳山(標高222m)の中腹の標高165mに位置し、周辺10km以内には大規模発生源はない。

#### 2.2 方法

##### 2.2.1 捕集装置

局舎屋上に設置してある小笠原計器降水試料自動捕集装置US-420型(分離型)を使用し、局舎内の冷蔵庫でポリ容器に保存。

##### 2.2.2 分析装置

平成20年度の試料及び平成19年度の一部の試料について国環研のAgilent 7500 Series ICP/MSおよびASX-500 Series ICP/MS Autosamplerを借用し測定した。分析条件は積分2sec×10回、装置内で5繰り返し測定した。

##### 2.2.3 鉛安定同位体比測定用標準試料

NIST(National Institute of Standards and

Technology, 米国)のSRM981

#### 2.2.4 測定試料

捕集した降水試料を「湿性沈着モニタリング手引き書(第2版)」に従い通常の10項目(pH, EC, Cl<sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, Ca<sup>2+</sup>, Mg<sup>2+</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>)を測定した後、冷蔵保存したものについて、2%硝酸酸性試料に調整し、鉛濃度および鉛安定同位体比の測定用に供した。128試料について実施した。

#### 2.2.5 解析方法

NOAAの後方流跡線解析等

### 3 結果および考察

#### 3.1 鉛濃度について

128試料中の鉛濃度分布を図1に示す。鉛濃度の最高値は15.8ppbでH20.7.22の試料であった。春期および夏期に高い濃度の試料が多く見られた。

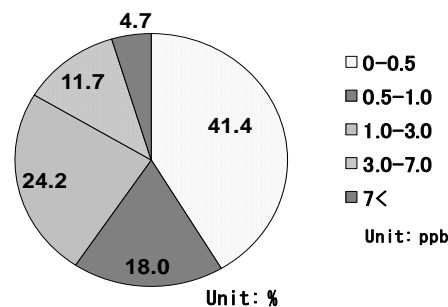


図1 降水中の鉛濃度

\*1 (独) 国立環境研究所

### 3.2 Pb 濃度と他のイオン成分との関係

Pb が他のイオン成分とどのような関係があるのかを調べるために、主成分分析を行った。その結果、第 1 主成分と第 2 主成分の因子負荷量の散点図を図 2 に示す。これから、鉛濃度変動は人為汚染質と考えられている  $nss-SO_4^{2-}$ ,  $NO_3^-$ ,  $NH_4^+$ 等のイオン成分と極めて良く連動している。

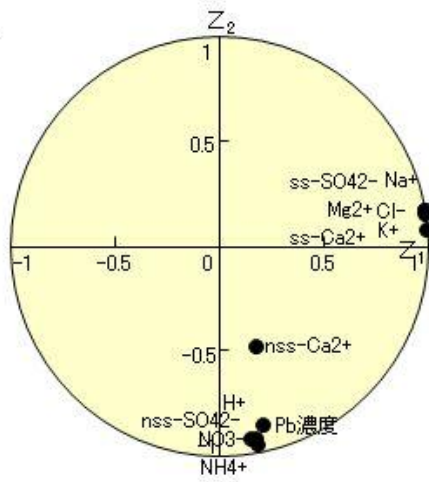


図 2  $Z_1$ と $Z_2$ の負荷量散点図

図 2 鉛およびイオン成分の主成分分析結果

### 3.3 鉛安定同位体比測定結果

鉛安定同位体比測定の結果を表 1 に示す。また、鉛安定同位体比測定時の標準偏差と鉛濃度との関係から鉛濃度 0.5ppb 以上の試料について、鉛安定同位体比を論じるのが有効であると考えられる。(図 3)

図 4 に鉛安定同位体比分布を鉛成長曲線と共に示す。これによると、ほとんどの試料は鉛成長曲線に沿って、 $Pb^{207}/Pb^{206}$  が 0.84~0.88 の間に分布している。

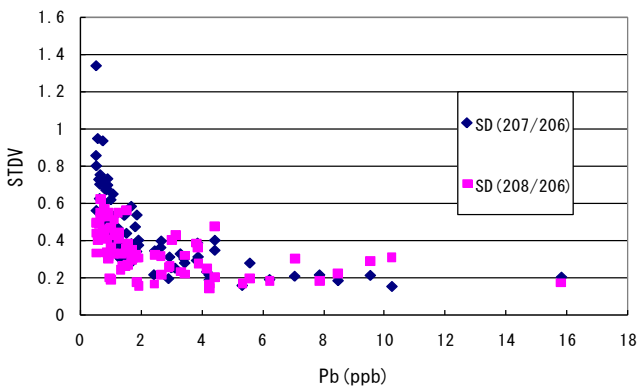


図 3 鉛安定同位体測定時の標準偏差と鉛濃度との関係 (鉛濃度 0.5ppm 以上)

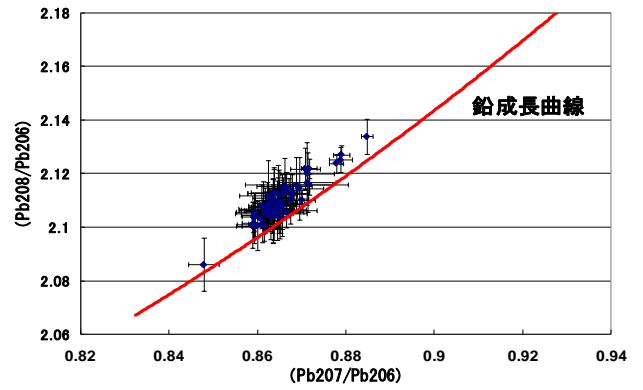


図 4 鉛安定同位体比分布

### 3.4 後方流跡線解析の結果

後方流跡線解析の結果を、経路別に示す。日本周辺を経由してきたもの 35 例 (図 5)、中国大陸から朝鮮半島以北は 21 例 (図 6)、朝鮮半島付近は 15 例 (図 7)、朝鮮半島以南を経由してきたものが 3 例 (図 8) であった。中国大陸からのものであっても、太平洋側に位置する宮城県へは日本周辺を通過してきているなど、発生源推定には複雑な要因がからんでおり、明確な推定は困難であると思われる。

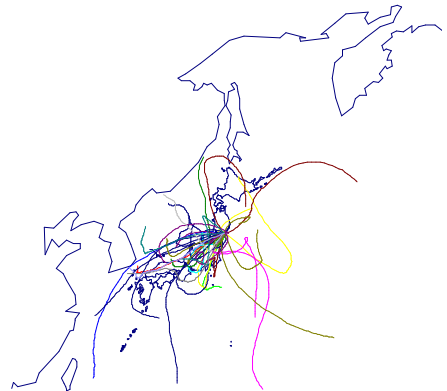


図 5 日本周辺を経由

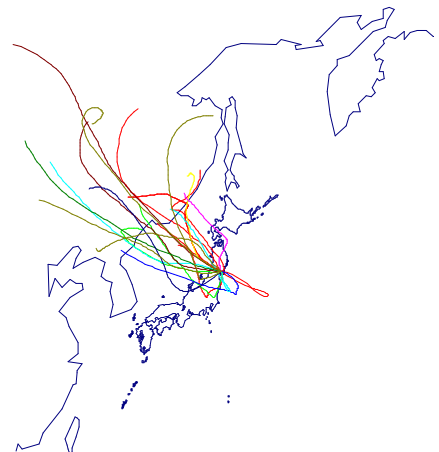


図 6 朝鮮半島以北を経由

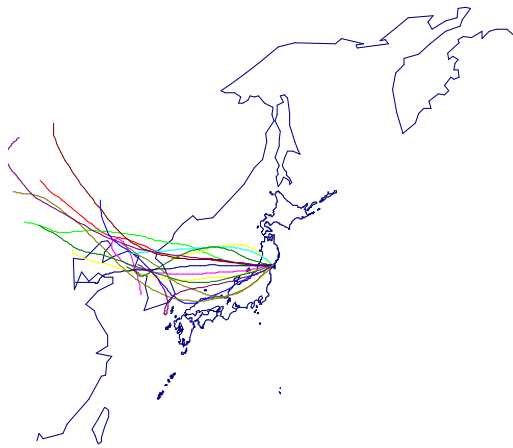


図 7 朝鮮半島経由



図 8 朝鮮半島以南経由

3.5 後方流跡線別の鉛安定同位体比分布および鉛濃度について

後方流跡線別の鉛安定同位体比の分布を図 9 に示す。これによると向井等の研究によるエリア区分では日本、北京、ソウル、ジャカルタ等の地域に分類されたが、ほとんどは日本のエリア区分内であった。

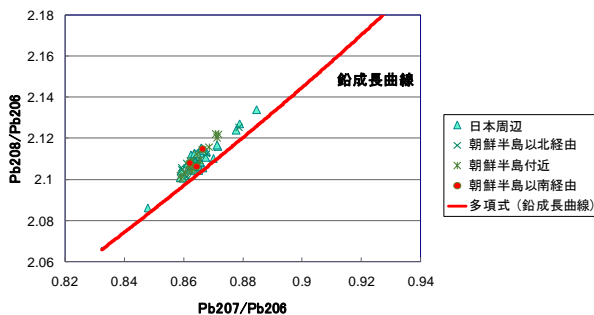


図 9 後方流跡線別鉛安定同位体比の分布

後方流跡線別の鉛濃度を図 10 に示す。これによると降水中の他の汚染物質と変動を同じくしている鉛濃度が一番高かったのは朝鮮半島経由のものであった。

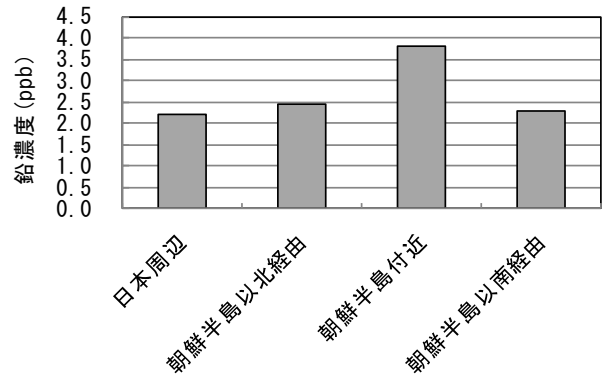


図 10 後方流跡線別鉛濃度

4 まとめ

今回は、国環研の ICP/MS を使用することにより、より信頼度の高い鉛安定同位体比の値が得られ、解析に供することができた。

しかし、昨今のエネルギー事情が反映されている鉛安定同位体比の地域分布の研究・報告等がないなどの理由により、より正確な地域区分の判断が困難であった。

しかしながら、依然としてアジア大陸からの影響が懸念される現状では、箕岳局で捕集された降水中の汚染物質の起源について継続して観測し、その変化に注目していく必要がある。

5 謝辞

本研究は、平成 21 年度地方公共団体研究機関と国立環境研究所との共同研究として行われた。国環研での ICP/MS 借用にあたり、多大なるお力添えを頂きました田中敦氏に深謝いたします。

6 参考文献

Hitoshi Mukai et al: characterization of Sources of Lead in the Urban Air of Asia Using Ratios of Stable Lead Isotopes, Environ. Sce. Technol., 1993,27,1993,27,1347-1356

表 1 鉛濃度および鉛安定同位体比（鉛濃度が $0.5\text{pp}$ 以上の試料のみ）

捕集開始 年/月/日	捕集終了 年/月/日	$^{208}\text{Pb}$ 濃度 (ppb)	鉛安定同位体比		
			$^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$	$^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$	$^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$
2007/4/8	2007/4/9	2.99	0.865	2.104	18.036
2007/4/21	2007/4/22	3.82	0.861	2.108	18.185
2007/4/24	2007/4/25	4.16	0.862	2.105	18.041
2007/4/26	2007/4/27	9.53	0.865	2.112	18.053
2007/5/2	2007/5/3	2.90	0.866	2.115	17.974
2007/5/19	2007/5/20	3.11	0.862	2.108	18.052
2007/5/25	2007/5/26	4.42	0.848	2.086	18.380
2007/8/6	2007/8/7	2.42	0.879	2.127	17.666
2008/1/6	2008/1/7	3.85	0.871	2.122	17.813
2008/4/3	2008/4/4	7.86	0.862	2.109	18.113
2008/4/8	2008/4/9	8.47	0.863	2.109	18.075
2008/4/13	2008/4/14	0.90	0.862	2.106	18.012
2008/4/17	2008/4/18	1.46	0.863	2.107	17.999
2008/4/18	2008/4/19	0.99	0.861	2.107	17.994
2008/4/24	2008/4/25	1.22	0.866	2.108	17.964
2008/4/26	2008/4/27	3.29	0.863	2.106	17.983
2008/5/5	2008/5/6	0.93	0.867	2.114	17.862
2008/5/14	2008/5/15	0.52	0.860	2.100	18.115
2008/5/16	2008/5/17	1.68	0.865	2.107	18.029
2008/5/17	2008/5/18	4.42	0.866	2.108	18.057
2008/5/19	2008/5/20	0.64	0.864	2.113	18.007
2008/5/28	2008/5/29	5.32	0.866	2.115	17.961
2008/5/29	2008/5/30	0.84	0.859	2.106	18.176
2008/5/30	2008/5/31	1.44	0.864	2.111	18.001
2008/6/3	2008/6/4	1.80	0.865	2.108	18.018
2008/6/19	2008/6/20	1.91	0.866	2.113	18.026
2008/6/29	2008/6/30	0.52	0.865	2.113	17.852
2008/7/3	2008/7/4	1.67	0.865	2.108	17.850
2008/7/5	2008/7/6	4.24	0.861	2.103	18.129
2008/7/10	2008/7/11	2.64	0.865	2.108	18.108
2008/7/11	2008/7/12	10.24	0.885	2.134	17.516
2008/7/13	2008/7/14	3.41	0.879	2.125	17.681
2008/7/17	2008/7/18	4.24	0.878	2.124	17.718
2008/7/18	2008/7/19	1.00	0.872	2.116	17.703
2008/7/21	2008/7/22	15.82	0.872	2.122	17.861
2008/7/23	2008/7/24	1.24	0.868	2.111	17.897
2008/7/24	2008/7/25	1.54	0.859	2.104	18.118
2008/7/24	2008/7/25	1.24	0.859	2.101	18.145
2008/7/27	2008/7/28	6.22	0.862	2.105	18.090
2008/7/28	2008/7/29	0.66	0.871	2.117	17.720
2008/8/14	2008/8/15	1.85	0.870	2.110	17.888
2008/8/18	2008/8/19	2.66	0.868	2.112	17.945
2008/8/19	2008/8/20	0.94	0.864	2.105	18.175
2008/8/20	2008/8/21	0.74	0.863	2.105	17.979
2008/8/23	2008/8/24	1.69	0.863	2.104	18.004
2008/8/25	2008/8/26	1.35	0.867	2.106	17.919
2008/8/29	2008/8/30	7.04	0.868	2.113	17.989
2008/9/14	2008/9/15	0.89	0.871	2.120	17.832
2008/9/20	2008/9/21	1.51	0.865	2.110	17.934
2008/9/21	2008/9/22	0.61	0.866	2.115	17.766
2008/9/22	2008/9/23	1.11	0.866	2.108	17.934
2008/10/4	2008/10/5	0.99	0.864	2.110	17.865
2008/10/5	2008/10/6	1.10	0.864	2.105	18.035
2008/10/7	2008/10/8	0.77	0.864	2.113	18.059
2008/10/23	2008/10/24	0.51	0.864	2.107	18.168
2008/10/29	2008/10/30	0.52	0.869	2.116	17.727
2008/11/17	2008/11/18	3.43	0.867	2.114	17.966
2008/11/18	2008/11/19	1.91	0.865	2.109	17.994
2008/11/27	2008/11/28	0.65	0.862	2.112	18.134
2008/12/5	2008/12/6	1.53	0.864	2.107	18.007
2008/12/21	2008/12/22	0.84	0.864	2.106	17.868
2008/12/23	2008/12/24	1.86	0.863	2.108	17.919
2008/12/28	2008/12/29	2.93	0.862	2.100	18.033

2008/12/30	2008/12/31	0.89	0.862	2.107	18.038
2009/1/12	2009/1/13	0.86	0.862	2.106	18.093
2009/1/21	2009/1/22	5.57	0.864	2.107	17.999
2009/1/22	2009/1/23	3.87	0.863	2.104	17.976
2009/1/30	2009/1/31	0.57	0.865	2.106	18.016
2009/2/13	2009/2/14	1.54	0.859	2.105	18.163
2009/2/16	2009/2/17	1.31	0.859	2.100	18.048
2009/2/25	2009/2/26	1.51	0.859	2.101	18.086
2009/3/1	2009/3/2	1.07	0.865	2.109	17.956
2009/3/5	2009/3/6	1.33	0.861	2.101	18.077
2009/3/11	2009/3/12	0.76	0.864	2.106	17.994
2009/3/13	2009/3/14	2.44	0.865	2.106	17.969