

令和 4 年 6 月 6 日現在

機関番号：34310

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K12359

研究課題名(和文) 大気降下物のマルチ同位体比による大気・地圏環境への自然・人為起源物質流入の指標化

研究課題名(英文) Effects of natural and anthropogenic substances on atmospheric deposition in the Kyoto-Osaka-Kobe area using multi-isotope ratios

研究代表者

横尾 頼子 (Yokoo, Yoriko)

同志社大学・理工学部・助教

研究者番号：00334045

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：近畿圏4地点において、同一地点で多数年にわたって季節・年ごとおよび地域別に得られる降水およびダスト試料の元素濃度パターンや同位体比を明らかにし、都市域における大気降下物に影響をもたらす越境輸送物質や地域の状況を反映する指標の構築を行った。採取された降水試料から得られる可溶性・不溶性成分の元素組成および硫黄、ストロンチウム、ネオジウムと鉛の同位体組成をマルチ分析し、後方流跡線解析による気塊の流入と合わせて、人為起源物質、周辺地質およびアジア大陸から飛来する黄砂の寄与や影響を見積った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

一つの降水試料に対して元素・同位体組成をマルチ分析することで、起源の情報を蓄積し、地域また越境からの自然起源物質や人為起源物質の大気および地圏環境への影響を見積もることができた。特に硝酸やカルシウムといった主要陽陰イオンは、森林生態系への栄養塩元素である一方で降水の酸性度にも関わることから、長期間での大気からの降下量やその起源を見積ったデータは学術的意義があり重要である。長期間の測定データは大気環境の変遷を読み解き、人為活動起源物質の流入状況が変化し前後の解析ができる試料およびデータの蓄積がされた点でも社会的意義があるといえる。

研究成果の概要(英文)：In order to evaluate the effect of natural and anthropogenic substances on atmospheric environment, elemental compositions and sulfur, lead, strontium and neodymium isotope ratios of monthly soluble particles (precipitation) and solid particles (dust) in rainwater samples were determined. Rainwater samples were collected in the Kyoto-Osaka-Kobe area. These elemental and multi-isotopic compositions of monthly precipitation and dust in rainwater samples are useful index for the geological and anthropogenic substances and eolian dust originated from the Asian continent. The Sr-Nd isotope ratios of dust during spring showed the close value of Chinese loess which is an origin substance of yellow sand, and the mixing ratios between local and eolian dust could be estimated using these Sr-Nd isotope ratios. The Pb and sulfur isotope ratios of atmospheric depositions are useful tracer to evaluate for domestic and long-distance transported anthropogenic inputs.

研究分野：環境地球化学

キーワード：大気降下物 数 黄砂 ストロンチウム同位体 ネオジウム同位体 硫黄同位体 鉛同位体 硝酸イオン 濃縮係数

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

これまでに大気降水物,特に降水の化学組成の分析項目は多岐にわたって行われており,それぞれ重要な知見を与えてくれる.国際原子力機関や世界気象機関によって,降水の酸素・水素同位体比 (^{18}O -D 値)の世界的な時間,空間変動が明らかにされている¹⁾が,地域毎の詳細なデータの蓄積が求められている.日本を含む東アジア地域では東アジア酸性雨モニタリングネットワークが2000年から稼働し,硫黄同位体 (^{34}S)によって,大陸からの硫黄の輸送が報告されている²⁾.また降水をもたらす大気の原因やダストの原因は,鉛同位体比 ($^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$, $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$)³⁾やストロンチウム(Sr)同位体比 ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$)⁴⁾,ネオジウム(Nd)同位体 ($^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$)で求めることができる.降水やダストの化学組成は分析されているが,同一地点で長期間にわたって,元素・同位体分析を行った研究例は少ない⁵⁾.特に人間活動の影響の大きい都市域の降水でのデータの蓄積は少なく,今後大気-地圏環境への人間活動の影響を評価するためには,マルチ元素・同位体分析を適用することが必要である.

2. 研究の目的

本研究の目的は同一地点で多数年にわたって得られる都市域の降水およびダスト試料の元素濃度パターンや同位体比を明らかにし,都市域における大気降水物に影響をもたらす越境輸送物質や地域の状況を反映する指標を構築することである.

3. 研究の方法

本研究の目的である季節・年ごとおよび地域別に得られる大気降水物の化学組成から季節の違いや都市活動の影響を明らかにできる指標を構築するために,近畿圏4地点(京都府京都市,京都府京田辺市,大阪府寝屋川市,兵庫県西宮市)の屋上に,直径210mmのポリエチレン製漏斗を取り付けた20Lポリエチレン製タンクを設置して1ヶ月毎に降水を採取した.本研究では,降水と共に乾性降水物の化学組成を粒径別に調べるために,ローポリウムエアースンプラー(柴田科学,AN-200)による乾性降水物の採取を計画した.購入したエアースンプラーのポンプのモデルチェンジや新型コロナウイルス感染症対策の影響による設置予定の大学屋上での設備工事の計画や実施の遅れが生じ,試料の採取は京田辺市で2021年3月から行い,黄砂時と黄砂のない時期での粒度分布を調べた.

採取した降水試料と2018年までに採取した降水試料のpHとEC(電気伝導度)を測定し,孔径0.2 μm メンブレンフィルターを用いて濾過し,可溶性成分と不溶性成分に分けて元素組成分析を行った.可溶性成分の主要イオン濃度は同志社大学理工学部設置のイオンクロマトグラフ(Thermo社製,ICS90)を,可溶性成分の微量元素濃度と不溶性成分の主要・微量元素濃度を同志社大学理工学部設置のICP質量分析装置(島津理化製,ICPM8500)を用いて測定した.さらに2018年までに採取した試料の同位体分析を行った.Sr spec樹脂やLn樹脂,陽イオン交換樹脂を充填したカラムクロマトグラフィーでSr,Pb,Ndを精製分離し,総合地球環境学研究所設置の表面電離型質量分析装置(Thermo社製,Triton)および二重収束型マルチコレクタICP質量分析装置(Thermo社製,Neptune plus)を用いて,ストロンチウム同位体比 ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$),ネオジウム同位体比 ($^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$),鉛同位体比 ($^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$, $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$)を測定した.降水試料を蒸発濃縮し,塩化バリウムを添加して,硫酸バリウムを作り,総合地球環境学研究所設置の軽元素用質量分析装置(Thermo社製,DELTA V plus)を用いて硫黄同位体比 (^{34}S)を測定した.また,アメリカ海洋大気局のプログラムであるHYSPLIT Trajectory Model⁶⁾を用いて後方流跡線解析を

行い、流入する気塊の動きを調べた。

4. 研究成果

春季の黄砂時に採取した乾性降水物では直径 11 μm 以上と 3.3-4.7 μm の重量割合が高く、花粉と黄砂の影響がみられたが、今後、化学組成や鉱物組成の検討が必要である。

降水に含まれる可溶性成分では、2006 年以降 NO_3^- の総降水量は、経年的に減少している傾向が見られ、大気中の窒素酸化物 (NO_x) の月平均値⁷⁾の経年変化と対応していた。2 月から 5 月の期間において一般化線形モデルを用いて解析を行った結果、COVID-19 の対策による影響は有意にはみられなかった。

降水の可溶性成分に含まれる非海塩性硫酸イオンの降水量は春先と冬季に多く、硫黄同位体比は夏季に低く、春先と冬季に高い値を示し、夏季には国内起源の石油燃焼の際に放出される硫黄の影響を、春先と冬季には東アジア地域で使用されている石炭の燃焼時に放出される硫黄の影響をみる指標となる。

降水に含まれる不溶性成分の元素濃度から、濃縮係数 EF (Enrichment Factor = (試料の X/Al) / (地殻の X/Al), X は任意の元素) を求めることで人為発生源である元素を評価し、大気環境に対する人間活動の影響が見られる元素の指標化を進めた。

採取した月別降水から得られた可溶性成分と不溶性成分の Sr 同位体比から、4 地点とも春季に黄砂の寄与がみられた。降水に含まれる不溶性成分は春季に高い Sr 同位体比、低い Nd 同位体比を示し、ゴビ砂漠やタクラマカン砂漠を発生源とした黄砂の影響が見られる一方で、夏季～秋季の試料は低い Sr 同位体比、高い Nd 同位体比を示す季節変化がみられた。後方流跡線解析とあわせて、Sr-Nd 同位体を用いた秋季や夏季の不溶性成分と中国黄土の二成分混合により、春季の降水に含まれる不溶性成分中の中国由来成分の割合を求めることができることから、Sr および Nd 同位体は可溶性や不溶性の大気降水物に対する風送塵の流入の指標となる。

降水から得られた可溶性成分と不溶性成分の鉛同位体比は採取時期や地点によって異なることから、鉛の起源が異なることが考えられる。Pb の降水量が多い冬季に Pb 同位体比は高く、大気の流れ線解析結果とあわせてアジア大陸由来の Pb の流入が考えられた。

このように本研究で採取した都市域の降水において、降水中の可溶性成分と不溶性成分の元素組成と同位体比は黄砂や長距離輸送物質、人為起源物質の流入の指標となることがわかった。

2019 年度には、同志社大学と同志社香里高等学校間での高大連携事業において、本研究で採取した大阪府寝屋川市の降水試料やデータを用いて、「香里の降水、日本や世界のミネラルウォーターの水質を調べる」という「1 日実験セミナー」を開催し、本研究で得られた結果や知見を高校生の環境教育に活用した。

<引用文献>

- 1) 脇山ほか (2013) 地学雑誌 122, 666-681.
- 2) 赤田ほか (2002) 雪氷 64, 173-184.
- 3) Mukai et al. (1994) Geophysical Research 99, 3717-3726.
- 4) Nakano and Tanaka (1997) Atmospheric Environment 31, 4237-4245.
- 5) Nakano et al. (2006) Atmospheric Environment 40, 7409-7420.
- 6) Draxler, R. R. and Rolph, G. D. (2011) HYSPLIT Model. NOAA Air Resources Laboratory.
- 7) 国立環境研究所 | 環境月間値・年間値データ: http://www.nies.go.jp/igreen/td_disp.html

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 R. Ando, Y. Yokoo, N. Ishikawa, K. C. Shin
2. 発表標題 Effect of natural and anthropogenic substances on atmospheric deposition in the Kyoto-Osaka-Kobe area using strontium and lead isotope ratios
3. 学会等名 JpGU Meeting 2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 安藤涼太, 横尾頼子
2. 発表標題 京阪神4地点の大気降下物のSr・Pb同位体比にみられる地点および月別変化
3. 学会等名 2019年度生物地球化学研究会長崎セッション
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 安藤涼太, 横尾頼子
2. 発表標題 京阪神4地点の大気降下物のSr・Pb同位体比にみられる地点および月別変化
3. 学会等名 第9回同位体環境学シンポジウム
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------