

平成 30 年 5 月 6 日現在

機関番号：17401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2017

課題番号：26550050

研究課題名(和文)越境大気汚染モニタリング特定湖沼の提案

研究課題名(英文)Proposal for new definition of the monitoring lake examining for long-term historical transboundary air pollutions

研究代表者

細野 高啓 (Hosono, Takahiro)

熊本大学・大学院先導機構・准教授

研究者番号：30367065

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、日本海側湖沼から既に得ている6地域6本の柱状堆積物を対象に、 $^{210}\text{Pb}$ および $^{137}\text{Cs}$ 年代推定、 $\text{Pb}$ 濃度および鉛同位体比の分析・解析を行い、日本列島全域を対象とし越境汚染の時空間的分布特性を把握することを目的とした。研究の結果、当初計画した日本列島における越境大気汚染の時空間的分布が評価できたと共に、提案した手法が他地域でも応用可能であることが立証された。本手法が応用できる湖沼は特に北日本を中心に存在し、三日月湖、鳥海湖、みくりが池はその代表的な特定湖沼と認定できる。これらの湖沼については、今後も継続して研究やモニタリングを行えるような環境を保全していく必要がある。

研究成果の概要(英文)：This study aimed to understand spatiotemporal distribution of transboundary air pollution over Japanese Islands with combination methods of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{137}\text{Cs}$  sedimentation rate determinations,  $\text{Pb}$  concentration and  $\text{Pb}$  isotopic analyses using previously archived lake sediment cores from 6 lakes. We have successfully revealed the properties of spatial distribution of the  $\text{Pb}$  pollution over north-south trending Japanese Islands and historical changes of pollution intensities with their source rejoins back to 100 years ago. Proposed methodology could most efficiently be applied in northern Japanese lakes such as Mikazuki Lake, Chokai Lake, and Mikuriga Lake, and these three lakes are proposed to be preserved for further surveys to monitor ongoing transboundary pollutions for multiple chemical factors. To further improve understanding on comprehensive transboundary air pollution high-resolution chemical and isotopic mapping is needed in future work.

研究分野：環境学

キーワード：越境大気汚染 湖沼堆積物 放射性年代 微量金属 鉛安定同位体比 環境モニタリング 環境影響評価 汚染史解読

### 1. 研究開始当初の背景

アジア大陸からの越境汚染問題が重大な社会問題となっている。この現状を受け、汚染の種類、分布特性、物質飛来ルートや観測ネットワーク、健康に対する被害、また未来予測に至るまで、大気分野を中心とした現状把握や汚染メカニズム解明に関する研究が進んでいる。しかし、我が国では長期的な視点に基づく多項目大気質の分析モニタリングは行われておらず、過去数十年に遡る中・長期的な汚染動向の解析が殆どできない状況にある。したがって、これまでの汚染現状の推移ならびにそれらを踏まえた問題解決方策の提案については、重要な問題であるにもかかわらず、あまり進んでいないのが現状といえる。

過去の大气汚染の歴史は、直接大気または雨や雪などの物質試料を継続的に採取・分析しない限り、正確な実態は把握できない。しかし、重金属など一部の物質は、大気から降下し湖底へと運搬された後に堆積物中に沈着・保存される性質を持つため、柱状堆積物中に保持されている物質ならびに年代情報をうまく読み取ることができれば、そこに刻まれる大気汚染史をある程度正確に復元できることが分かってきている。このような試みは、2010年頃から、各大学研究室単位(例えば、近畿大、静岡大、愛媛大、東北大などのチーム)で淡水湖沼堆積物を対象に調査が進められてきた(例えば隠岐、宍道湖、八幡平などにて)。

申請者が試料採取調査を着手した当時、それまで発表されていた関連研究の成果論文は2編であった。しかし、これらの研究はいずれも国内が発生源となる物質の混入や、周辺流域からの物質流入が避けられない場所で調査が行われており、厳密な大気起源汚染の評価は困難であるようにも読み取れた。一方、申請者はこうした論文が出版される以前から、日本全国を対象として上記越境汚染履歴を判読できる試料を入手できる理想的な湖沼を厳選し、これらを掘削調査によって採取してきた。

先にも述べたように、粘土成分に富む湖沼や沿岸の堆積物は、水中の汚染物質を吸着しながら沈降、堆積する性質を持つ。これらは都市部や流域を対象に、百年から数百年程度の汚染履歴を解読するための環境評価試料として利用されてきた。仮に、流域からの汚染物質の流入が無く、大気だけからの物質寄与が見込める特定の湖沼堆積物を用いれば、流域からではなく、大気からの汚染履歴情報を捉えることができるのではないだろうか。しかも、こうした堆積物を全国から採取できれば時間軸だけではなく分布特性も明らかにできると考えた。申請者は、こうした仮説を立証し全国の大気汚染史の解読を達成するために、熊本大学の学内資金の援助を受けて2008年から同調査を継続してきた。

本研究プロジェクトは、先行調査研究の援

助を受け理想的な柱状堆積物試料が収集されている状況で、かつ、国内外で同様のアイデアに基づく研究が提案されるようになってきたのと同時期に採択された。

### 2. 研究の目的

これまでの柱状堆積物を用いた汚染履歴復元研究は、周辺流域の汚染履歴復元を目的に、流域低地部や沿岸部で行うことが一般であった。本研究はこれら先行研究とは全く逆で、流域や自国からの汚染源の影響を最小限と見なせる高山山頂付近に位置する高地の湖沼、または低地でも流入河川や周辺人為活動の影響の無い湖沼をターゲットとし、越境大気汚染のみの情報を抽出することを目的としている。

本研究をデザインする上での難点は、南北に延びる日本列島全域を対象とし最良の調査地点をいかに選定することであった。結局この選定には、下記A~Eの視点に基づき、地形図判読と全国の踏襲調査に基づいて行うことになった。

A. 大陸からの大気流れを最も顕著に受ける日本海沿岸近傍の湖沼。

B. Aの条件をクリアし、標高1,000m以上の高山山頂付近に位置する湖沼

C. Aの条件をクリアし、標高1,000m以下でも近傍からの汚染の影響を受けない湖沼

D. A~Cの条件をクリアし、常に水が存在し、かつ、粘土質の底質が確認されている湖沼

E. 予察的な $^{210}\text{Pb}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 年代推定により平静な堆積環境が確認されている湖沼

調査は、高い集中力、決定力のもと冒険心と思い切りを持って断行した。

調査は北から北海道礼文島久種湖、北海道利尻島オタドリ沼および三日月湖、北海道羊蹄山、山形県鳥海湖、富山県立山みくりが池、島根県三瓶山室内池、長崎県五島列島福江島、鹿児島県トカラ列島中之島、沖縄県久米島ウフレヤナ湖の9地域で実施し、最終的に利尻島三日月湖、羊蹄山、鳥海湖、立山みくりが池、三瓶山室内池、久米島ウフレヤナ湖の6地域6湖沼を議論に用いる湖沼と定めた。

本研究は、研究期間内に日本海側湖沼(利尻島三日月湖、北海道羊蹄山、鳥海湖、立山みくりが池、三瓶山室内池、久米島ウフレヤナ湖)から既に得ている6地域6本の柱状堆積物を対象に、 $^{210}\text{Pb}$ および $^{137}\text{Cs}$ 年代推定、微量元素濃度(本研究ではPb濃度に着目した)および鉛同位体比( $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ ・ $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ )の分析・解析を行い、日本列島全域を範囲に越境汚染の時空間的特性を把握することを目的とした。

### 3. 研究の方法

#### (1) 試料処理

6本の柱状堆積物は2mm間隔にセクションング、凍結乾燥、メノウ乳鉢による粉末化の後、分析用試料としてスクリー管の中に保

存、整理されている。試料はそれぞれ2~5g程度であり、合計約2,000試料保管されている。 $^{210}\text{Pb}$ および $^{137}\text{Cs}$ 年代推定にはこの粉末試料を用いた。重金属濃度分析は同試料に対し全岩分析と弱酸(1M  $\text{HNO}_3$  + 1.75M  $\text{HCl}$ )による溶出液の二種類について行った。鉛同位体分析は後者の混酸溶解による抽出液について行った。

### (2) $^{210}\text{Pb}$ および $^{137}\text{Cs}$ 年代

堆積物中の $^{210}\text{Pb}$ および $^{137}\text{Cs}$ 強度は、米国 Eckerd College 設置の高純度 Ge 検出装置 (ORTEC, Well detector Model GWL-120-10) を用いて分析を行った。 $^{210}\text{Pb}$  および  $^{137}\text{Cs}$  年代は、それらの結果を基に、愛媛大・沿岸センター所属の加三千宣博士が Constant Rate of Supply モデルを用いて導いた。

### (3) 重金属分析

重金属濃度は粉末試料について熊本大学設置の蛍光 X 線分析装置 (SEA1000A Seiko Instruments Inc., Japan) を用いて分析した。また、混酸溶出液について熊本大学設置の誘導結合プラズマ質量分析装置 (NexION 300 Perkin-Elmer Co., Ltd., USA) を用いて分析した。

### (4) 鉛同位体分析

鉛同位体比は、熊本大学設置の誘導結合プラズマ質量分析装置 (NexION 300 Perkin-Elmer Co., Ltd., USA) を用いて、 $^{206}\text{Pb}$ 、 $^{207}\text{Pb}$ 、 $^{208}\text{Pb}$  の強度を長時間検出することで  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$  比と  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$  比を導き出した。

## 4. 研究成果

上記研究目的と手法に基づき、日本列島に及ぼす越境大気汚染の影響を調査した結果を国際雑誌 Science of the Total Environment に発表している (Hosono et al., 2016)。その結果をベースに、以下  $^{210}\text{Pb}$  および  $^{137}\text{Cs}$  推定堆積年代、Pb 濃度汚染プロファイル、鉛同位体比プロファイルを、そして最後に、得られた越境大気汚染史をまとめて本報告書に記す。

### (1) $^{210}\text{Pb}$ および $^{137}\text{Cs}$ 年代推定

$^{210}\text{Pb}$  および  $^{137}\text{Cs}$  放射性強度から算出した、各柱状堆積物の深度別年代グラフを図1に示す。鉛濃度ならびに鉛同位体比プロファイルは、ここで得られた年代指標を軸に、時代ごとの特性変化を議論した。

### (2) Pb 濃度汚染分布

得られた  $^{210}\text{Pb}$  および  $^{137}\text{Cs}$  放射性年代を軸とすることで、重金属濃度(ここでは鉛濃度)の汚染史を図示することができる(図2)。ここで、濃度はフラックスで表記した。それによると、全体として大気鉛汚染は1900年前後から顕在化しており、特に近年増加傾向にあることが確認できる。しかしながら、堆

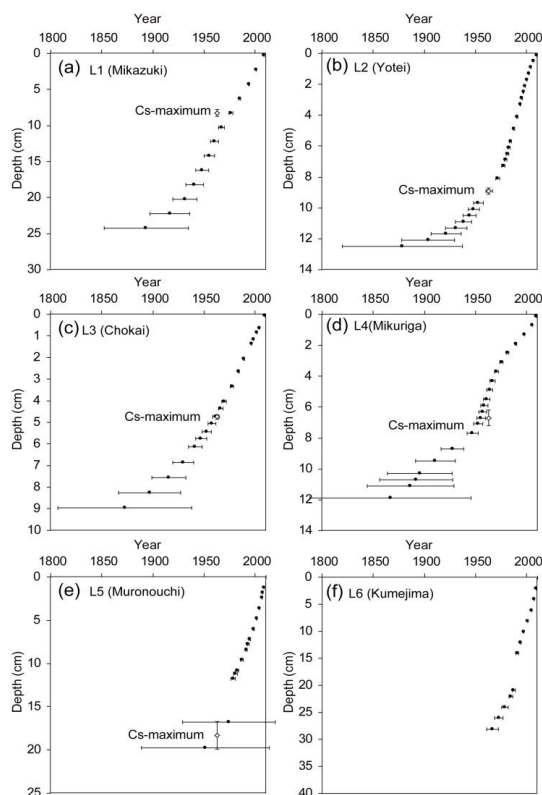


図1 各柱状堆積物における深度に応じた  $^{210}\text{Pb}$  および  $^{137}\text{Cs}$  放射性年代

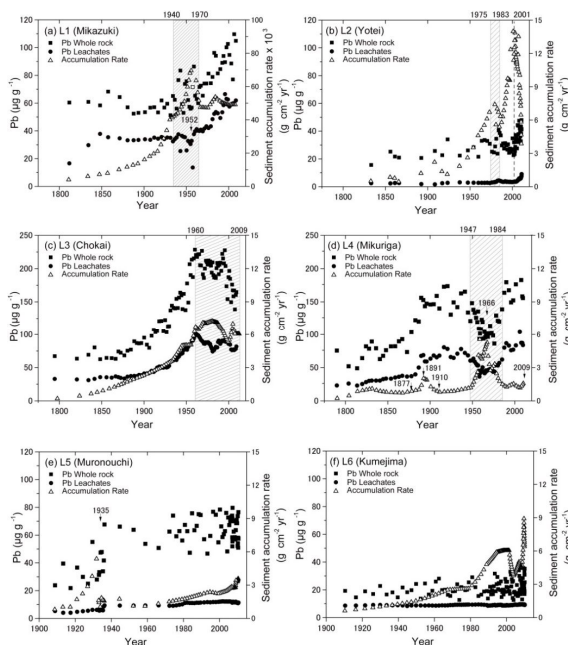


図2 各柱状堆積物における鉛汚染の時間的推移

積速度の変化に応じて濃度パターンも変動することから、細かい濃度増減については汚染強度以外の要因も考えられた。

### (3) 鉛同位体比 ( $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ ・ $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ )

$^{210}\text{Pb}$  および  $^{137}\text{Cs}$  放射性年代を軸とすることで、鉛同位体比(ここでは  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$  比)

の時間的変化を図示することができる(図3)。それを見ると、全体として1900年前後から顕在化してきた汚染大気鉛による付加が増加するとともに、特に近年において鉛同位体比が変化する傾向が認められた。このことは、鉛濃度の上昇を引き起こした原因は別の起源の鉛が新たに付加されたためであることを意味している。

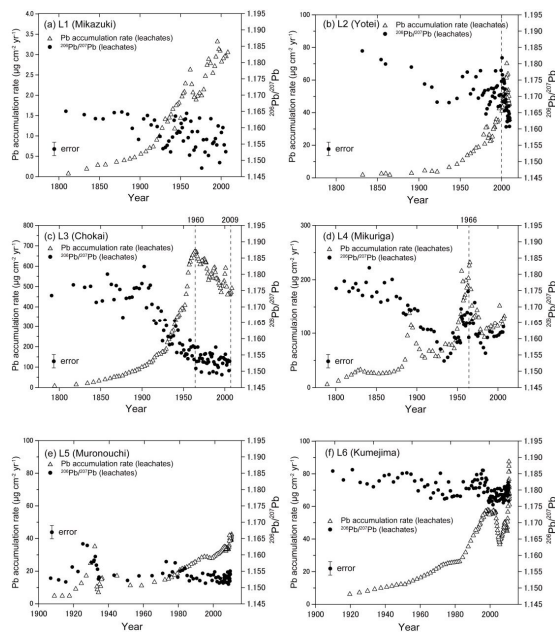


図3 各柱状堆積物における鉛同位体比(例として $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 比)の時間的推移

#### (4) 越境大気汚染史

上記の結果を踏まえ、特に顕著な鉛濃度ならびに鉛同位体比の時間的変化が認められた三日月湖、鳥海湖、みくりが池から採取された柱状堆積物の解析結果(図4)から、以下の重要な実態が明らかとなった。

- ・中部から西南日本に対して1900年ころから顕在化してきた越境汚染の飛来源は中国大陸の南部地域にあり、とくに1960年代から近年にかけての汚染の増大は同地域から供給された石炭燃焼に由来する石炭鉛の負荷が原因であると指摘できる。

- ・北日本東北地域に対して1900年ころから顕在化してきた越境汚染の飛来源は中国大陸の北部地域にあり、とくに1960年代から近年にかけての汚染の増大は同地域の石炭燃焼に由来する石炭鉛の負荷が原因であると指摘できる。

- ・北日本北海道地域に対して1900年ころから顕在化してきた越境汚染は1960年ころまではロシアに飛来源があると考えられるが、1960年から1980年代にかけて、その飛来源が中国大陸の北部地域に変化し、特に近年にかけての汚染の増大は中国北部地域の石炭燃焼に由来する石炭鉛の負荷が原因であると指摘できる。

- ・日本列島における越境大気汚染の時空間的影響を評価するために本研究で提案した

手法が有効であることが立証された。特に北日本において本手法に適した湖沼が存在し、三日月湖、鳥海湖、みくりが池はその代表的な特定湖沼と認定できる。汚染による影響の推移を今後もモニターすることができるこれらの湖沼については、後世に役立つ研究を継続できるように環境を保全していく必要がある。一方、西南日本や九州・沖縄地域は、本研究で提案した調査手法を効果的に適用できる湖沼が少ないことも明らかとなった。日本全国に対する越境汚染の影響を網羅的に把握するためには、大気降下物のサンプリングに基づく分析マッピングが不可欠であると言える。

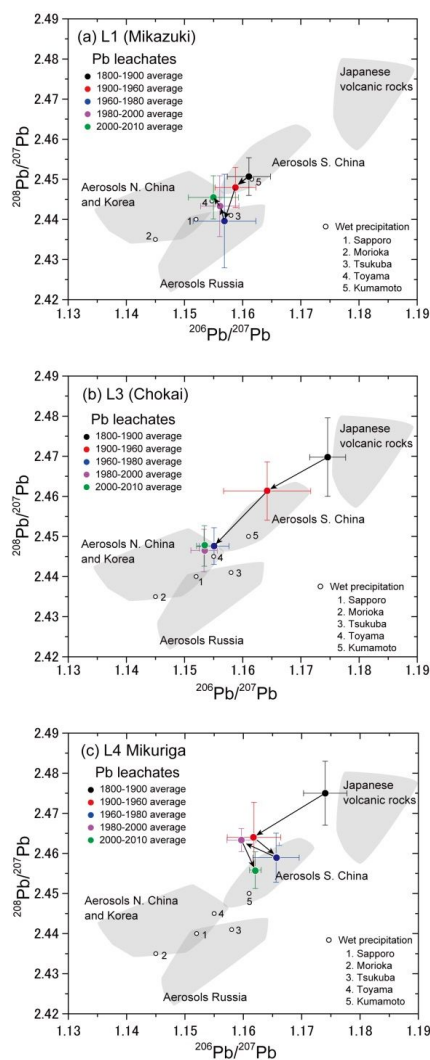


図4 三日月湖、鳥海湖、みくりが池から採取された柱状堆積物の鉛同位体組成( $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ ・ $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ )の時間的推移

#### (5) おわりに

本研究の目的で述べた、逆の発想によって発案した湖沼堆積物から大気汚染の影響を評価する新しい方法論の有効性が実証された。これにより、今後国内のみならず、国外においても大気由来汚染史全貌解明への波及効果が期待される。特に中国、韓国、台湾などの周辺国と協力関係を築き国際共同研

究へと発展していくことが重要であるといえる。

申請者は日本水文科学会の活動の一環で国内初となる全国月別大気汚染マップの作成を手掛けている。今後は、今回の調査研究結果から得られた時空間的な汚染現状の知見に、こうした高解像度降水データと重ね合わせることで実態の把握が更に加速できると考えている(図5)。今後、更なる研究の推進を試みる。

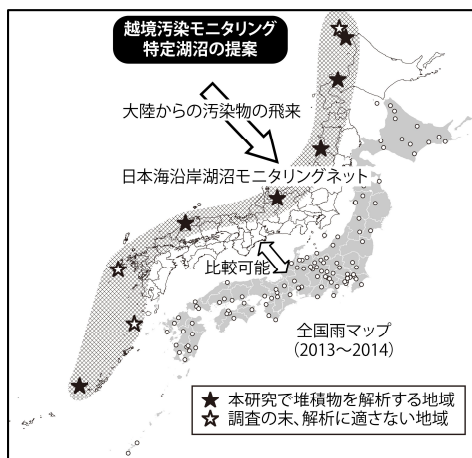


図5 本研究の結果と将来の展望

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計1件)

Hosono, T., Alvarez, K., Muwae, M. Lead isotope ratios in six lake sediments cores from Japan Archipelago: Historical record of trans-boundary pollution sources. *Science of the Total Environment*, 2016, 559, 24-37.

<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2016.03.138>

〔学会発表〕(計3件)

Hosono, T., Alvarez, K., Kuwae, M. Trans-boundary Pb pollution history in Japan archipelago deduced by lake sediment core analysis. *Goldschmidt 2015 from 16/8-21/8 in Prague Congress Centre*, 19 August 2015 in Prague, Czech Republic.

Tanimizu, M., Kohno, M., Asahara, Y., Minami, M., Hosono, T., Reconstruction of heavy element emission history from a peat-rich pond in the western pacific region. *Goldschmidt 2015 from 16/8-21/8 in Prague Congress Centre*, 18 August 2015 in Prague, Czech Republic.

Alvarez, K., Hosono, T., Kuwae, M. Lead isotopes ratios in six lake sediments cores from Japan archipelago: historical record of trans-boundary pollution sources. Summer visiting in

Kumamoto University by NTU, 10 Aug 2015.

〔その他〕

ホームページ:

<http://accaff.e.jp/hosono/index.php?FrontPage>

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

細野 高啓 (HOSONO, Takahiro)

熊本大学・大学院先導機構・准教授

研究者番号: 30367065