5. 南鳥島,小笠原父島におけるエーロゾル粒子の放射化分析

矢野 直\*,山路 勲\*,前橋紀恵子\*\*

## 5.1 はしがき

南鳥島,父島における予備観測で試料を採取し、分析した結果を述べ、これについての考察を行った。 分析法については第1部,4章において述べたのでここでは述べない。ただし、分析結果の内容には電 子顕微鏡による分析結果も含まれている。

エーロゾル粒子がその粒径によってどのような化学組成をもっているか,又どのような発生源をもってい るかというのがこの主なテーマである。

粒子を構成する元素は、南鳥島や父島においては、比較的はっきりと、発生源組成によって分類しうる ことが明らかになった。即ちある元素群は主として海水起源を代表し、又ある元素群は主として地殻組成 を代表し、それぞれの群内では存在比がよく保存されていた。ここで前2者のいずれにも属さない元素が あり、これらは第3の群に分類された。

またこれらの群内では,元素別の粒径分布が比較的よく相似しており,このことは発生機構が同じであ ることと対応していると考えられた。

# 5.2 濃縮度の定義

発生源を識別する手段として、ある発生源の組成の元素存在比からの偏りをもって示す方法がDuce (1972)によって提案された。

よく知られているように、海水中の元素組成は一部の元素を除いて世界的に均一であり、海水の元素組 成の表も公表されている(Turekian. 1969)。いまこの標準海水を考え、海水中の最も代表的な元素 であるナトリウム(Na)に対する他の元素Xの存在比を(X/Na)<sub>海水</sub>で示し、同様にエーロゾル粒子 中のNaに対するX元素の重量存在比を(X/Na)<sub>エーロゾル</sub>とし、濃縮度(Enrichment factor) EF(S)を(5.1)式によって定義した。

$$EF(S) = Log[(X / Na)_{x-\mu \sqrt{\mu}} / (X / Na)_{mk}] \qquad (5.1)$$

ここで、海水と同じような組成であれば、EF(S)の値は0に近く、正の場合は濃縮、負の場合は稀釈を 表す。

地殻物質組成については Ahrens – Taylor の値を使った(高橋,他,1970)。代表的元素としては アルミニウム(A1)をえらび,これに対する他の元素Xの存在比を(X/A1)<sub>地殻物質</sub>で示し,同様に エーロゾル粒子中の A1 に対するX元素の重量存在比(X/A1)<sub>エーロゾル</sub>とし,濃縮度 EF(C)を(5. 2)式によって次のように定義した。

\*応用気象研究部 \*\* 気象衛星センター

#### - 149 -

$$EF(C) = Log[(X \land Al)_{x-\mu \lor \nu} \land (X \land Al)_{uv}] \qquad (5.2)$$

## 5.3 汚染地域と候補地との比較

南鳥島, 父島と汚染地域との粒子中の元素重量濃度の比較を表 5.1,表 5.2 に示した。米国のシカゴ (Dams, R., and et al. 1970),日本の大阪以外の測定値は著者等によって既に測定された平均 重量濃度である。P.Oceanとあるのは,東京と父島を結ぶ航路上で測定されたものである。(Yano, et al. 1974,第I部4章に参考文献)。表中のRatio 1とRatio2はそれぞれ各元素含量について (父島/大阪)の値の比,および(父島/東京)の値の比を示している。

これらの表から、稀釈率と考えてよいRatio 1及び2は元素によってNa, Clを除いてその値は最大 0.005にまで及び都市や工業地帯の大気エーロゾル粒子中の濃度に比べて Yo から Yooo の値を示した。

## 5.4 南鳥島のエーロゾル粒子分析結果

試料採取は1975年,7月25日の午後6時から7月29日の午後6時までの期間と,7月30日の午前6時から8月10日の午前6時までの期間にわたった。しかし、実際に分析されたのは前期の試料のみであった。

試料採取地点は、東風の風上方向の海岸付近で気象庁々舎の東側にある観測露場で行われた。これは事 前調査で、気象庁と米国沿岸警備隊との発電所の排気からの汚染が確認された為である。

2 台のハイボリウム, C. P. S サンプラーが A は毎日, 18時から翌日 6 時までの夜間の12時間, A は毎日 6 時から18時までの昼間の12時間を交互に運転した。7月25日から7月29日にわたった吸引量はサンプラーA, A ともに 2,016 m である。分析用には, これを4分割したので, 504 m が使用された。

電子顕微鏡用の試料は、7月25日から7月29日の間のおもに日中の適当な時間にカスケード・インパク ターで行った。

ハイ・ボリウム・C・P・Sサンプラーで分級採取したエーロゾル粒子の分析結果を表 5.3,表 5.4,図 5.1,図 5.2に示した。

分級のステージは4段(0,1,2,3)およびバックアップ・フイルターである。それぞれのカットオフ ・ダイヤメーターは第I部,表4.1に示してある。

表中---は検出限界以下の値であることを示している。また元素名の右肩の\*印は、その試料が夜間サ ンプリング(18時より翌朝6時まで)であることを示している。又\*印のないのは、その試料が日中(6 時より18時)に採取したことを示している。

南鳥島のデーターの特徴は、図 5.1 にみられるように、海水起源と考えられる Na, C1, Mg, Br, な どの元素群がいずれも半径 10µm以上の粒子に最大値が見出せることで、この巨大粒子は、海水の"しぶ き"が多量にあったことを示している。後述するように、父島試料では、このような分布は見出せなかっ た。

# 表 5.1 都市と海洋上の粒子分析値

Ratio 1は父島濃度/大阪濃度

Ratio 2 は父島濃度/東京濃度を示す。

Particulate analysis in  $ng/m^3$  from urban areas and ocean

| Element | *<br>Chicago | K <b>aw</b> asak | **<br>i Osaka | Tokyo  | P.Ocean | Marcus<br>island | Marcus<br>island | Chichi<br>jima | Ratio l | Ratio 2 |
|---------|--------------|------------------|---------------|--------|---------|------------------|------------------|----------------|---------|---------|
| Na      | 4.6 E2       | 1.7 E3           | 1.5 E3        | 2.1 E3 | 1.6 E3  | 8.4 E3           | 9.3 E3           | 4.5 E3         | 3.0     | 2.1     |
| Cl      |              | 3.5 E3           | 3.7 E3        | 4.1 E3 | 2.8 E3  | 1.5 E4           | 1.7 E4           | •8.6 E3        | 2.3     | 2.1     |
| Mg      | 2.4 E3       |                  | 1.5 E3        |        |         | 5.4 E2           | 9.3 E2           | 7.1 E2         | 0.47    |         |
| Ъr      | 8.3 El       | 3.1 El           | 3.5 El        | 2.0 E2 |         | 6.2 El           | 7.4 El           | 1.1 EÍ         | 0.31    | 0.055   |
| Cu      | 1.1 E3       | 2.4 E2           |               |        |         |                  |                  |                |         |         |
| К       | 1.4 E3       |                  | 1.1 E3        | 2.3 E3 |         |                  |                  | 2.7 E2         | 0.25    | 0.12    |
| Th      | 1.3 E0       |                  | 9.5 E-1       |        |         |                  |                  |                |         |         |
| Sc      | 3.1 E0       | 3.1 EO           | 4.2 E-1       | 3.0 EO |         |                  |                  |                |         |         |
| Co      | 2.6 E0       |                  | 1.8 E0        |        |         |                  |                  |                |         |         |
| Mn      | 2.6 E2       | 2.4 E2           | 1.2 E2        | 1.6 E2 | 8.7 E-1 | 6.1 E-2          |                  | 3.6 E0         | 0.030   | 0.023   |
| Ti      | 1.9 E2       | 4.8 El           |               |        |         |                  |                  |                |         |         |
| Fe      | 1.4 E4       | 1.1 E4           | 2.9 E3        | 7.7 El |         |                  |                  | 8.5 El         | 0.029   | 1.1     |
| Al      | 2.2 E3       | 7.2 E2           | 2.9 E3        | 3.2 E3 | 1.0 El  | 5.6 El           | 6.0 El           | 2.4 E2         | 0.083   | 0.075   |
| Ce      | 1.3 El       |                  | 4.1 E0        |        |         |                  |                  | 9.6 E-1        | 0.23    |         |
| Sm      | 4.1 E-1      |                  | 3.5 E-1       |        |         |                  |                  | 1.3 E-1        | 0.37    |         |
| Cr      | 1.1 E2       |                  | 1.5 El        |        |         |                  | •                | 3.9 E-1        | 0.026   |         |

\* East Chicago, (Dams, 1970) \*\* (Mamuro, 1970)

- 151 -

Continue

| -1      | *       | ··· 1       | **      | m - 1- | <b>D</b> |         | 24      |         |                 |
|---------|---------|-------------|---------|--------|----------|---------|---------|---------|-----------------|
| Element | Chicago | Kawasaki    | . Usaka | токуо  | P.Ocean  | island  | island  | jima    | Ratio I Ratio 2 |
| Ca      | 7.0 E3  | · · · · · · | 7.5 E2  |        |          | 5.3 E2  | 7.0 E2  | 3.3 E2  | 0.44            |
| Cs      |         |             | 1.0 E0  |        |          |         |         | 2.4 E-2 | 0.024           |
| Hf      | 4.3 E-1 |             |         |        |          |         |         | 4.1 E-2 |                 |
| Lu      |         |             | 3.1 E-1 |        |          |         |         | 1.3 E-2 | 0.42            |
| As      | 1.2 El  |             | 1.5 El  |        |          |         |         | 1.5 E0  | 0.10            |
| Se      | 3.8 E0  |             | 2.4 E0  |        |          |         |         | 5.3 E-1 | 0.22            |
| v       | 1.8 El  | 7.3 El      | 3.0 El  | 4.9 El | 8.6 E-2  |         | 4.9 E-1 | 6.2 E-1 | 0.022 0.013     |
| Zn      | 1.4 E3  | 3.1 E3      | 3.7 E2  | 3.1 E3 |          |         |         | 1.7 El  | 0.046 0.0055    |
| Sb      | 2.5 El  |             | 9.2 E0  |        |          |         |         | 3.7 E0  | 0.40            |
| I       |         |             | •       |        |          | 6.6 E-1 | 9.1 E-1 | 7.8 EO  |                 |
| La      | 5.9 EO  |             | 1.7 EO  |        |          | -       |         | 1.5 E-1 | 0.088           |

# 表 5.3 南鳥島試料の分析結果,\*は夜間 18 時-翌日 6 時,他は昼間,6時-18 時,モードは照射条件を示す (表 4.8 参照)

|       |      | ~   |     |     |     |       |       |     | - ocușe |      |      |
|-------|------|-----|-----|-----|-----|-------|-------|-----|---------|------|------|
| elen  | nent | Br  | Br* | Ca  | Ca* | Cl    | C1*   | Mg  | Mg*     | Na   | Na   |
| mode  | 9    | S   | S   | S   | S   | S     | S     | S   | S       | S    | S    |
| stage | 0    | 46  | 56  | 14  | 400 | 11000 | 12900 | 410 | 710     | 6000 | 7130 |
|       | 1    | 14  | 13  | 520 | 300 | 3200  | 3000  | 130 | 170     | 1790 | 1550 |
|       | 2    | 1.9 | 3.3 |     |     | 730   | 840   |     | 51      | 400  | 450  |
|       | 3    |     |     |     |     | 250   | 160   |     |         | 120  | 89   |
| E     | 3.F. |     | 1.5 |     |     | 260   | 190   |     |         | 95   | 90   |
| tota  | al   |     |     |     |     | 15400 | 17100 |     |         | 8410 | 9310 |

Concentrations of various elements in each stage [ng/m<sup>3</sup>]

\* The value of chemical analysis of the sample that have taken in night time (18:00--06:00). The other show the value of chemical analysis of the sample that have taken in day time(06:00--18:00).

| Mn    | Mn*                                         | I                                                                                                                                               | I <b>*</b>                                                                                                          | v                                                                                                                                            | V*                                                                                                                                                                                           | Al                                                                                                                                                                                                                         | Al*                                                                                                                                                                                                                       | S                                                                                                                                                                                                                                                              | S *                                                                                                                                                                                                                                                                                              |
|-------|---------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| S<br> | S<br>                                       | S<br>                                                                                                                                           | S<br>                                                                                                               | S<br>                                                                                                                                        | S<br>                                                                                                                                                                                        | S<br>                                                                                                                                                                                                                      | S<br>4.4                                                                                                                                                                                                                  | S<br>                                                                                                                                                                                                                                                          | S<br>                                                                                                                                                                                                                                                                                            |
| 0.54  | 0.86                                        |                                                                                                                                                 | 0.29                                                                                                                |                                                                                                                                              | 0.054                                                                                                                                                                                        | 23.                                                                                                                                                                                                                        | 22.                                                                                                                                                                                                                       |                                                                                                                                                                                                                                                                | 7.24                                                                                                                                                                                                                                                                                             |
| 0.041 | 0.43                                        | 0.14                                                                                                                                            | 0.28                                                                                                                |                                                                                                                                              | 0.44                                                                                                                                                                                         | 5.5                                                                                                                                                                                                                        | 21.                                                                                                                                                                                                                       |                                                                                                                                                                                                                                                                |                                                                                                                                                                                                                                                                                                  |
|       | 0.014                                       | 0.16                                                                                                                                            | 0.15                                                                                                                |                                                                                                                                              |                                                                                                                                                                                              | 3.2                                                                                                                                                                                                                        | 1.9                                                                                                                                                                                                                       |                                                                                                                                                                                                                                                                |                                                                                                                                                                                                                                                                                                  |
| 0.11  | 0.098                                       | 0.36                                                                                                                                            | 0.19                                                                                                                |                                                                                                                                              |                                                                                                                                                                                              | 24.                                                                                                                                                                                                                        | 11.                                                                                                                                                                                                                       |                                                                                                                                                                                                                                                                | 0.75                                                                                                                                                                                                                                                                                             |
|       |                                             |                                                                                                                                                 |                                                                                                                     | · · · · · · · ·                                                                                                                              |                                                                                                                                                                                              |                                                                                                                                                                                                                            | 60.3                                                                                                                                                                                                                      |                                                                                                                                                                                                                                                                |                                                                                                                                                                                                                                                                                                  |
|       | Mn<br><u>S</u><br>0.54<br>0.041<br><br>0.11 | Mn         Mn*           S         S               0.54         0.86           0.041         0.43            0.014           0.11         0.098 | Mn         Mn*         I $S$ $S$ $S$ $0.54$ $0.86$ $$ $0.041$ $0.43$ $0.14$ $$ $0.014$ $0.16$ $0.11$ $0.098$ $0.36$ | MnMn*II* $S$ $S$ $S$ $S$ $$ $$ $$ $0.54$ $0.86$ $$ $0.29$ $0.041$ $0.43$ $0.14$ $0.28$ $$ $0.014$ $0.16$ $0.15$ $0.11$ $0.098$ $0.36$ $0.19$ | Mn         Mn*         I         I*         V $S$ $S$ $S$ $S$ $S$ $S$ $0.54$ $0.86$ $$ $0.29$ $$ $0.041$ $0.43$ $0.14$ $0.28$ $$ $$ $0.014$ $0.16$ $0.15$ $$ $0.11$ $0.098$ $0.36$ $0.19$ $$ | Mn         Mn*         I         I*         V         V* $S$ $S$ $S$ $S$ $S$ $S$ $S$ $0.54$ $0.86$ $$ $0.29$ $$ $0.054$ $0.041$ $0.43$ $0.14$ $0.28$ $$ $0.44$ $$ $0.014$ $0.16$ $0.15$ $$ $0.11$ $0.098$ $0.36$ $0.19$ $$ | MnMn*II*VV*Al $S$ $S$ $S$ $S$ $S$ $S$ $S$ $$ $$ $$ $$ $$ $$ $0.54$ $0.86$ $$ $0.29$ $$ $0.054$ $23.$ $0.041$ $0.43$ $0.14$ $0.28$ $$ $0.44$ $5.5$ $$ $0.014$ $0.16$ $0.15$ $$ $3.2$ $0.11$ $0.098$ $0.36$ $0.19$ $$ $24.$ | MnMn*II*VV*AlAl* $S$ $S$ $S$ $S$ $S$ $S$ $S$ $S$ $$ $$ $$ $$ $$ $4.4$ $0.54$ $0.86$ $$ $0.29$ $$ $0.054$ $23.$ $22.$ $0.041$ $0.43$ $0.14$ $0.28$ $$ $0.44$ $5.5$ $21.$ $$ $0.014$ $0.16$ $0.15$ $$ $3.2$ $1.9$ $0.11$ $0.098$ $0.36$ $0.19$ $$ $$ $24.$ $11.$ | MnMn*II*VV*AlAl*S $S$ $$ $$ $$ $$ $$ $$ $4.4$ $$ $0.54$ $0.86$ $$ $0.29$ $$ $0.054$ $23.$ $22.$ $$ $0.041$ $0.43$ $0.14$ $0.28$ $$ $0.44$ $5.5$ $21.$ $$ $$ $0.014$ $0.16$ $0.15$ $$ $3.2$ $1.9$ $$ $0.11$ $0.098$ $0.36$ $0.19$ $$ $$ $24.$ $11.$ $$ $60.3$ |

(continue)

- 154 -



これに対して図 5.2 で示した Ca, A1, Mn, V などの元素群は半径 5 μm 付近に極大値を持つような 分布を示し,またバックアップ・フイルターで捕集した半径 0.5 μm の付近でも増大していることが特徴 的であった。この元素群は少くとも海水の"しぶき"によって発生したと考えられる前述の元素群とは,その 発生機構がちがっていると考えてよいであろう。



グループ1は主として海水起源の元素群,グループ2は主として地殻物質起 源の元素群,グループ3はいづれの発生源と比べても濃縮されている元素群

そこで、海水組成に対する濃縮度 E F(S)をみてみると、Na、Br、C1、 Mg、Caは同じ群に入ると考えられる が、V,Mn、A1 は桁違いに偏りを 示していることが図5.3によって わかる。ここでCaが、これら海水発 生源の元素群に入っているのは、地殻 物質中のNaに対する存在比が海水中 の存在比に近い値を示しているためで あると思われる。

そこで、V, Mn, A1 が別の発生源 であるとし、これを地殻物質に対する 前述の濃縮度 EF(C) でみてみると、

- 155 -

Vの場合はいくらかずれているが、大体同じ存在比をもっていると考えてよいように考えられる。

この図では、 $\blacksquare$ ,  $\Box$ はEF(S)の値を示し、EF(C)を $\oplus$ ,  $\bigcirc$ で示した。また $\blacksquare$ ,  $\oplus$ は夜間,  $\Box$ ,  $\bigcirc$ は昼間の試料を示している。

沃素 I については、いづれの発生源からも大きい濃縮度をもち、第3の元素群に分類した。この元素は 後述するようにユニークな挙動をもち、例えば生物濃縮過程が考えられる。

電子顕微鏡の試料として捕集された巨大粒子の電子顕微鏡写真を図 5.4, 図 5.5, 図 5.6, 図 5.7 で示 した。巨大粒子は非常に整った正 6 面体の結晶を示した。分析された Na, C1の合計重量が全重量の 8 割 に達している事実,正 6 面体の結晶およびこの結晶の螢光 X線分析で Na, C1 が同定されたことから,こ の正 6 面体の結晶は塩化ナトリウムであることは確かである。結晶粒子の螢光 X線スペクトルは図 5.8 (A) において示した。これは電顕用のエアロゾル試料の電子線による励起による螢光 X線スペクトである。

巨大粒子はまた図 5.6,図 5.7 に示したように,Na Cl 結晶に相当数の珪藻類か菌類と思われる有機物 質とみられる物質が付着していた。

これに対して、サブミクロン粒子では図 5.9、図 5.10、図 5.11、図 5.12で示したように NaCl の結晶は 著しく減少し、そのかわりに、長方形の結晶粒子あるいは球状の粒子が多くみとめられた。これらの粒子 の大部分は溶出した痕跡を残していて、水溶性粒子であるようにみえる。この長方形粒子についての電子 ビームのスポットからの螢光X線スペクトルは図 5.8の Bのように SとSi が同定された。

## 5.5 小笠原父島のエーロゾル粒子分析結果

サンプリングは1976年10月31日の17時から11月12日の9時30分までの期間で、中間で、11月6日の16時30分から11月7日の13時までは台風のため中断した。

観測地点は父島測候所のレーダー・ドーム付近にある旧米国施設であった気球充填室が使用された。この付近は西側が切立った断崖であり、海面から150mの高さにある。三日月山へむかう自動車道路が付近 を通っているため、この排気ガスによる多少の汚染はさけられなかった。

アンダーセン・サンプラーが充塡室内に設置された。流量率は圧損補正して28.3 ℓ/分になるよう毎日 点検された。

電子顕微鏡の試料はインパクター式自動サンプラーでサンプルした。第1回目は10月31日14時30分から 11月6日16時31分まで,又第2回は11月7日13時12分から11月12日9時30分まで連続して捕集した。

これらサンプラーの捕集試料はデシケーターに入れて、研究室に持帰り、秤量した。表 5.5 には、使用 したアンダーセン・サンプラーの分級範囲とそれぞれのステージに捕集したエーロゾル粒子の重量と大気 中の濃度を示した。

総吸引量 439 m<sup>3</sup>の空気中から 7.2 mg の粒子が捕集された。これは平均重量濃度で 16.4  $\mu$ g/m<sup>3</sup>に相当 する。この粒径分布を図 5.13で示した。この図の横軸は粒子直径 ( $\mu$ m),縦軸は f (D) を示している。 但しf (D)は,累積頻度分布F (D)を log D で微分したものである。



図 5.4 巨大粒子の電子顕微鏡写真(南鳥島)A NaClの結晶(正六面体)がみられる。



図5.5 巨大粒子の電子顕微鏡写真(南鳥島) B NaClの結晶と共に有機物がみられる。



図 5.6 高倍率,巨大粒子の電子顕微鏡写真,有機物 が結晶に付着している粒子の拡大。(南鳥島)C



図5.7 高倍率,巨大粒子の電子顕微鏡写真,結晶に 有機物が付着している。(南鳥島)D



図5.9 大粒子(サブミクロン)の電子顕微鏡写真 (南鳥島)A NaCl結晶は減少し、長方形 又は不定形の粒子が多い。



図 5.10 大粒子 (サブミクロン)の電子顕微鏡写真 (南鳥島)B 図 5.9 と殆ど同様。



The fluorescent analyses

- (A) Giant particle
- (B) Aitken particle
- 図 5.8 (A) 巨大粒子で正 6 面体結晶の螢光X線ス ペクトル NaとC1のX線ピークがみ られる。
  - (B) 大粒子中の長方形の結晶の螢光X線スペクトル SとSiのX線ピークがみられる。



図 5.11 高倍率、大粒子(サブミクロン)の電子顕微鏡 写真(南鳥島)C 粒子の周囲に溶けた痕跡が ある。



図 5.12 高倍率,大粒子(サブミクロン)の電子顕微鏡 写真 (南鳥島)D

この粒径分布は、直径 4 µm 付近に最大値をもつ対数正規分布に近い形を示した。

それぞれのステージに集められた試料の放射化分析の結果を表5.6,表5.7,表5.8に示した。表中---は検出限界以下を示し、~は分析感度(あるいは統計)が十分でないことを示している。又モードについ ては第I部4章で述べたように試料の照射測定条件を示している。即ちSは短時間照射、Lは長時間照射 を示している。

父島の試料では長期寿命核種の測定が研究室内で可能となったので、25元素が定量できた。父島の分析 結果で特徴的なことは、南鳥島でみられたNa, C1, Mg, Brなどで直径10μm以上の巨大粒子の重量分 布の増大が見られない。これは、海面より150mの高さでサンプリングしたので、海水の"しぶき"粒子

表5.5 アンダーセン・サンプラーによる父島試料の分級された重量、と重量濃度

| stage | size range(µm) | weight(mg) | concentration( $\mu g/m^3$ ) |
|-------|----------------|------------|------------------------------|
| 0     | 11             | 0.1        | 0.3                          |
| 1     | 7.011          | 0.5        | 1.1                          |
| 2     | 4.77.0         | 1.3        | 3.0                          |
| 3     | 3.34.7         | 2.0        | 4.5                          |
| 4     | 2.13.3         | 1.8        | 4.0                          |
| 5     | 1.12.1         | 0.8        | 1.7                          |
| 6     | .651.1         | 0.0        | 0.0                          |
| 7     | .4365          | 0.1        | 0.3                          |
| B.F.  | *43            | 0.7        | 1.6                          |
|       | totạl          | 7.2        | 16.4                         |

Sampling weights and concentrations of aerosols

\* B.F. : Back-up filter (Sartorius SM-15903)



Particle size distribution of total aerosols at Chichi-jima Island.(Oct.31--Nov.12,1976)  $f(D)=dF(D)/d(\log D)$ F(D):Normalized cumulative frequency distribution. -159-

図 5.13 父島エーロゾル粒子の 重量粒径分布 横軸は粒子直径 ( $\mu_m$ )縦軸は f(D) = dF(D)/d(log D) を示している。但しF(D)は 規格化された累積分布 直径 4  $\mu_m$ 付近に最大値がある。

# 表5.6 各ステージの元素濃度の分析結果(アンダーセン・サンプラー)

モード S:短時間照射によって測定された元素

L:長時間照射によって測定された元素1,2,3は冷却時間の相違

Concentrations of various elements in each stage  $[ng/m^3]$ 

|       | mont |     | 7 0  | P۳   | <u> </u> | Co    | <u>C1</u> | ,<br>,          | Cr            | Ca      |
|-------|------|-----|------|------|----------|-------|-----------|-----------------|---------------|---------|
| ere   | ment | AI  | AS   | DL   |          |       |           |                 |               |         |
| mode  | !    | S   | L-1  | S    | S        | L-3   | S         | L-3             | L-3           | L-3     |
|       | 0    | 43  |      | 0.3  | 30       | 0.006 | 310       | 0.0128          | 0.047         | 0.0018  |
|       | 1    | 26  |      | 1.1  | 20       | 0.005 | 770       | 0.0112          | 0.042         | ∼0.0009 |
|       | 2    | 11  |      | 2.4  | 80       | 0.010 | 1880      | 0.0170          | 0.047         | 0.0028  |
|       | 3    | 26  |      | 3.0  | 10       | 0.012 | 2050      | 0.0145          | 0.046         | 0.0033  |
| stage | 4    | 25  |      | 2.6  | 20       | 0.013 | 1970      | 0 0067          | 0 036         | 0.0031  |
|       | 5    | 19  | 0.18 | 1.1  | 30       | 0.012 | 1090      | 0.0039          | 0.015         | 0.0021  |
|       | 6    | 9   | 0.14 | 0.2  | 30       | 0.014 | 180       | ∼ 0.001 %       | ✔0.01         | 0.0013  |
|       | 7    | 9   | 0.09 | 0.5  | 20       | 0.009 |           | <b>∼</b> 0.0021 | <b>~</b> 0.01 | 0.0021  |
|       | B.F. | 75  | 1.05 |      | 90       | 0.015 | 360       | 0.0168          | 0.136         | 0.007   |
| tota  | 1    | 243 |      | 11.1 | 330      | 0.096 | 8610      | 0.085           | 0.39          | 0.024   |

|       |    |       |        |      |               |       |        |             |       | _    |
|-------|----|-------|--------|------|---------------|-------|--------|-------------|-------|------|
| eleme | nt | Fe    | Hf     | I    | K             | La    | Lu     | Mg          | Mn    | Na   |
| mode  | ·  | L-3   | L-3    | S    | L-1           | L-1   | L-3    | S           | S     | S    |
|       | 0  | 8.    |        | 0.23 | <b>~</b> 10 € |       | 0.0033 | 40          | 0.43  | 160  |
|       | 1  | 10.   | 0.0080 | 0.21 |               |       | 0.0044 | · 90        | 0.33  | 410  |
|       | 2  | 16.   | 0.0012 | 0.45 | ≁40           |       |        | 120         | ∼0.20 | 870  |
|       | 3  | 17.   | 0.0031 | 0.74 | 58            |       |        | 170         | 0.77  | 1130 |
| stage | 4  | 12.   | 0.0082 | 2.04 | 40            |       |        | 140         | 0.72  | 1090 |
|       | 5  | 6.    |        | 2.51 | 40            |       |        | 120         | ∼0.20 | 620  |
|       | 6  | 2.    |        | 0.69 |               | 0.021 |        | <b>~</b> 30 | 0.17  | 140  |
|       | 7  | · 2.  | 0.0004 | 0.89 | 6             | 0.005 | ~      |             | 0.16  | 30   |
|       | в. | F.12. | 0.020  |      | 74            | 0.128 | 0.005  |             | 0.64  | 30   |
| total |    | 85.   | 0.041  | 7.76 | ~270          |       | 0.013  | 710         | 3.62  | 4480 |

表5.7 各ステージの元素濃度の分析結果(アンダーセンサンプラー)(続)

(continue)

表5.8 各ステージの元素濃度の分析結果(アンダーセン・サンプラー)(続)

|         | i     |        |        |       |       |      |      | <br> |
|---------|-------|--------|--------|-------|-------|------|------|------|
| element | Sb    | Sc     | Se     | Sm    | Th    | V    | Zn   | <br> |
| mode    | L-3   | L-3    | L-3    | L-1   | L-3   | S    | L-3  |      |
| 0       | 0.004 | 0.0034 | ~0.006 | 0.002 | 0.018 | 0.03 | 1.00 |      |
| 1       | 0.005 | 0.0035 | 0.009  | 0.006 | 0.013 | 0.02 | 0.73 |      |
| 2       | 0.006 | 0.0057 | ▶0.007 | 0.023 | 0.015 | 0.04 | 1.00 |      |
| 3       | 0.009 | 0.0056 | 0.033  | 0.033 | 0.041 |      | 0.62 |      |
| stage 4 | 0.016 | 0.0040 | 0.058  | 0.032 | 0.029 |      | 0.72 |      |
| 5       | 0.068 | 0.0017 | 0.068  | 0.015 | 0.008 | 0.01 | 0.64 |      |
| 6       | 0.187 | 0.0004 | 0.035  | 0.002 | 0.023 | 0.03 | 0.56 |      |
| 7       | 0.410 | 0.0003 | 0.026  | 0.001 |       | 0.14 | 0.72 |      |
| B.F.    | 3.00  | 0.0069 | 0.11   | 0.018 | 0.080 | 0.35 | 10.7 |      |
|         | -     |        |        |       |       |      |      | <br> |
| total   | 3.71  | 0.0316 |        | 0.133 |       | 0.62 | 16.7 |      |

(continue)

- 162 -

の影響がみられなかったのではないかと考えられる。しかし,海水起源の元素を除けば,殆んどの元素の 重量濃度で南鳥島の濃度より高い値を示した。

そこで,南鳥島の場合と同様に濃縮度 EF(S)を○で,濃縮度 EF(C)を●で表してみたのが図 5. 14 である。



• EF = log[(X/A1)aer./(X/A1)crus.] O EF = log[(X/Na)aer./(X/Na)sea]

図5.14 父島試料の元素別の濃縮度E F(S)及びE F(C)

○ 海水に対する濃縮度,● 地殻物質に対する濃縮度

濃縮度によって元素の主な発生源が分離された。グループ1は主に海水発生源,グループ2は主に 地殻発生源,グループ3は其他いずれよりも濃縮している。

すなわち、Na, Br, C1, Mg, K, (Ca)は海水起源を想定できるような0に近い値を示し、これに 対して他の元素群は2桁以上の偏りを示した。またEF(C)についてみると、Cs, V, Co, Mn, Cr, Sc, Fe, A1, Ce, Sm は大体地殻物質の発生源を想定できるように0に近い値に分布している。

EF(S)とEF(C)のいづれからも2桁以上の偏りを示すI,Zn,Se,Sbの元素群がある。

これらの元素は、海水や地殻物質組成に比べて桁違いに濃縮されており、人工起源や生物過程を含む起 源ではないかと考えられた。したがって、これらの元素群を図にあるように3つのグループに分離するこ とが出来た。

次に元素別の粒径密度分布(主として粗大粒子の範囲)をみてみよう。分級データーのなかで比較的統計のよいものについてラグランジ補間法の重ね合わせを用いてえがたい粒径分布を図 5.15および図 5.16で示した。

Na, C1, Br のグループ1に属する元素群は,最大値を4μm 付近にもつような対数正規分布を示 した。又Fe, Sc, Cr, Co, Csなどのグループ2に属する元素群も, 5μm 付近に最大値をもつ1山 型の分布を示した。

- 163 -







図5.15 元素別の粒径分布

図5.16 元素別の粒径分布(続)

V, Cs, Zn, Sbはサブミクロン粒子で相対的に増加する形を示した。

また,これらの元素群において注意すべきことはグループ1とことなり,サブミクロン・範囲のところ にもいくらかの増大が認められる場合が多い。

これに対して、グループ3に属する元素群はSb,Se,Zn,Asなどにみられるように、サブミクロン 粒子で密度分布が増大していることが認められ、このことは、この粒径できわめて高い数密度をも示すこ とが推定できる。

沃素の場合はしかし, 2 μm 付近に極大値をもちグループ3のなかでも特異の分布を示している。これ については別の濃縮過程を持つもので,例えば生物過程なども考えうる。

電子顕微鏡の試料からえられた内容は現在整理中なので父島については省略する。

- 164 -

# 5.6 結 論

日本の汚染地域の平均重量濃度は100µg/m<sup>®</sup>内外であるから,西太平洋上の南鳥島や父島における重 量濃度は約20µg/m<sup>®</sup>として,重量濃度からすれば約1/5程度にすぎない。

しかし、これらの島の測定には多量の海洋起源の粒子が含まれているので、これを除くと 1/10 から1 / 200 くらいの重量濃度となる。この稀釈度に相当する値は元素によって大きい相違をもち、工業的に生成する重金属などの微粒子は一般に稀釈度が大きい値を示した。

粒子中の元素の存在比は、海水の存在比とよく一致するグループ1に属する元素群,地殻物質の存在比 とよく一致するグループ2の元素,および,それらの二つの起源に比べて,そのいずれに対しても高い濃 縮度を示すグループ3が分離された。

このグループ3に属する元素群は人工的あるいは生物的に何等かの強い濃縮過程を含むものと考えられ, これら元素群は、遠くから輸送された粒子であるか、島内で生成したものであるかは不明である。しかし、 汚染地域濃度に比べて大きく稀釈されている元素ならばそれは輸送された可能性が非常に大きい。このよ うな元素として、たとえば Zn などがある。

このグループ3に属する元素群のなかで沃素は別の濃縮過程を示しているようである。工業過程で濃縮 される元素群は、一般に高エネルギー状態で生成する場合にサブミクロン粒子として大気中に拡散するの で、このグループ3の粒径分布は沃素を除いて粒径は小さいものが大部分である。

汚染地域の重量の粒径密度分布が父島のような1山型ではなく,2山型が殆んどであるということは (Whitby, et al, 1972真室,他, 1976),汚染の特徴が主としてサブミクロン粒子の人工的なもの と、自然のものの混合であると考えるとよく説明できる。

謝 辞

父島の予備観測のサンプリングは,気象研究所,地球化学研究部の川村 清室長および伏見克彦研究官 におねがいした。また,この研究を通じて東邦大学,桂川秀嗣講師,慶応大学,工学部,藤村 満氏,環 境衛生センターの大歳恒彦氏に御協力をお願いした,ここに厚く感謝したい。

### 参考文献

- Dams, R., J.A. Robbins, K.A. Rahn and J.W. Winchester, 1970: Nondestructive neutron activation analysis of air pollution particulates, Analytical Chemistry, <u>42</u>, 8, pp.861-867.
- Duce, R.A., Werner Stumm and Joseph M. Prospero, 1972: Working symposium on sea-air chemistry: Summary and recommendations. Jour. Geophy. Res. <u>77</u>, 27, pp.5059-5061.

- 165 -

真室哲雄, 溝畑 朗, 松並忠雄, 松田八束, 1976 二大気浮遊塵の粒径別元素組成に関する研究, 環境試料の放射化分析の適用に関する研究, 衛生化学, <u>22</u>, (2), pp. 94 – 104.

高橋 清,坂野昇平,1970:地球化学入門.管原 健,半谷高久,共編,丸善株式会社, 44 – 46.

Turekian, K.K., 1969: e) Distribution of elements in sea water. In: Handbook of Geochemistry, K.H. Wedepohl, editor, Springer - Verlag Berlin. pp.309-310.

Whitby, K.T., et al., 1972: The aerosol size distribution of Los Angeles smog, J. Colloid Interface Sci., <u>39</u>, p.177.