

韓国と日本の各都市における大気粒子状物質 (PM) 中の 重金属元素の起源と輸送経路

菊地良栄¹、菊池和也¹、世良耕一郎²、小川信明¹

¹秋田大学工学資源学部
018-8502 秋田市手形学園町 1-1

²岩手医科大学サイクロトンセンター
020-0173 岩手県岩手郡滝沢村滝沢字留が森 348-58

1 緒言

酸性雨は大気汚染問題として国内的に深刻な環境問題であるとともに、硫酸化物や窒素酸化物などの原因物質が排出源から数千キロも離れた地域に運ばれることから、その解決のためには国際的な協力が不可欠で、地球環境問題の一つともなっている。

わが国では 1973 年に降水による目の痛みなどが報告されたため、環境庁では酸性物質だけでなくアルデヒド等有機物質も含めた「湿性大気汚染」として、各都道府県において状況把握を行い、引き続き、酸性雨対策調査を実施している。それにより北米での沈着量に匹敵するとの結果が得られたが、これまでのところ土壌や生態系には顕著な影響は報告されていない。

上記の酸性雨対策調査地点に含まれておらず、酸性雨の系統的調査・報告がほとんどなされていない秋田県において、我々の研究グループでは、秋田市での酸性降水の状況を調べるために、1993 年頃から秋田市（秋田大学教育文化学部 3 号館屋上）の降水を一日毎にサンプリングし、主要イオンの化学分析を行い、降水の酸性化や汚染の要因について解析してきた¹⁻⁶⁾。これにより、秋田市の降水は酸性降水の定義から示される pH5.6 よりも、pH が低い値で推移していることがわかった。また、秋田市の冬季降水の酸性化は、主に、 H^+ とともに濃度が推移する非海塩起源の硫酸イオンによるものだという結論が得られたものの、その輸送の機構を十分に理解することは出来なかった。

1997 年からは、秋田市降水のほかに、通常の降水より酸性度が高いと言われている霧水の酸性要因を解析するため、秋田八幡平(6 月-9 月)で霧を採集し、イオン組成と気象条件との関係について解析を行ってきた⁷⁾。これにより霧は、イオン性汚染物質の活性化及び成長過程に風向、天気図パターン、空気塊の輸送経路の影響を受けていることがわかった。

さらに我々の研究グループでは秋田市の降水、秋田県八幡平の降水・霧水中のイオン成分につ

いて、統計学的手法である因子分析法を酸性雨解析のために改良した制限斜交回転因子分析法といわれる手法を用い、定量的な解析を行なった。その結果、汚染物質は雲凝結核(CCN)としてよく知られている $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ が最も高い寄与を示し、海塩がその次に高い寄与を示した。さらに $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ のような比較的小さなエアロゾルがCCNになった場合は比較的小さな霧粒を生成し、海塩のような大きな粒子は大きな霧粒を生成するという教科書にもでてくる記述がフィールドワークのデータから初めて明らかになった^{6, 8, 9-12}。

また、大気粒子状物質(PM)は大気化学のみならず、その健康影響の面からも注目されており、国際的な連携により精力的な研究が進められている分野である。大気粒子状物質(PM)は人為的発生源(自動車の排気、バイオマスや化石燃料燃焼等)、自然発生源(土壌粒子、海しぶき)から生ずる^{13, 14}。PMの微細粒子は人の健康(例えば、呼吸器疾患)¹⁵や気候変動と地球温暖化¹⁶に影響を与えることから、排出量の削減が求められている。それを受けて、PM_{2.5}に関する環境基準が2009年9月9日に環境省から通知された。

アジアは黄砂だけではなく、人為的発生源のエアロゾルについても主な供給源のひとつである。特に、北東アジアは高い人口密度とエネルギー消費の増加のため、多量の汚染物質(例えば、 SO_2 と NO_x)を放出している。多くの研究者が、北東アジアの地域で微細粒子($d < 2.5 \mu\text{m}$ 、PM_{2.5})と粗大粒子($10 \mu\text{m} > d > 2.5 \mu\text{m}$ 、PM_{10-2.5})エアロゾルの排出源の寄与を調査した¹⁷⁻²⁰。それらの研究が、都市部のPM_{2.5}とPM₁₀(微細粒子+粗大粒子)の平均濃度が郊外や田舎よりも高く、PM_{2.5}中の主な成分は二次粒子である硫酸塩や硝酸塩そしてアンモニウム塩であり、PM₁₀中の主な成分は土壌粒子と海塩であることを示唆している。

日本においても長距離輸送の影響に関する多くの研究がなされてきた²¹⁻²⁴。例えば、Kikuchiらは、空気塊が中国北東部から輸送される場合に、霧が不溶性成分として黄砂を含むことを報告した。さらに、Kikuchiらは、PMと霧の間でCl-lossの度合いが異なり、それは、霧が塩化水素を取り込んだためであることを明らかにした²⁵。また、幾つかの論文においてEnrichment Factor解析、特有の元素間の比率そして後方流跡線解析を用いてPMの発生源を明らかにした²⁶⁻²⁷。Fangらは、10以下のEF値を持つ元素は土壌起源そして10以上のEF値を持つ元素は人為的発生源であると報告した²⁶。さらに、ArditsoglouとSamaraは、As、PbそしてSeの発生源に関しては、特有の元素比を用いることが有効であると報告した²⁸。

そこで、本研究では、韓国大邱市、福井県福井市、兵庫県加東市で採集したPMにおける人の健康に影響を与える元素の発生源をEnrichment Factorを用いた解析、特有の元素間の比率そして後方流跡線解析を用いて明らかにすることを目的とした。

2 実験

2.1 大気粒子状物質(PM)のサンプリング

PMは韓国の大邱(テグ)市、日本の福井県福井市、兵庫県加東市で行った。大邱市、福井市及び加東市では東京ダイレック株式会社のアンダーセン型PMサンプラー(ホルダーのみを使用)に小型吸引ポンプを接続して、 $2.5 \mu\text{m}$ 以下の粒子(PM fine)と $2.5-10 \mu\text{m}$ の粒子(PM coarse)そして $10 \mu\text{m}$ 以上の粒子に分粒して採集した。

採集した PM は岩手県滝沢村にある日本アイソトープ協会仁科記念サイクロトロンセンター (NMCC)にある荷電粒子励起 X 線放射(PIXE)分析装置を用いて元素分析を行った。

空気塊の輸送経路は地球環境研究センターの Metex からダウンロードした。

2.2 濃縮係数 (EF 値) について

元素成分について起源を評価するため、Thomas ら多くの研究者が用いている方法として濃縮係数(EF 値 = Enrichment Factor)がある^{29,30,31-34}。EF 値は次式で定義される。

$$EF = \frac{([E] / [R])_{\text{sample}}}{([E] / [R])_{\text{crust}}}$$

E: element
R: reference element in crust
(Al, Fe, Si, Mg, Ca など)

この計算式において分子は採集した PM 中の評価したい元素 E と地殻を主な起源とする参照元素 R の濃度の比を、分母は地殻存在度とよばれる地殻中の元素 E と参照元素 R の濃度³⁵関係を示す。参照元素 R は Al, Fe, Si, Mg, Ca など数元素に限られる^{30,32-34}。R は測定の条件や対象物によって、研究分野によっても異なる。

この計算式により得られた EF 値が、10 以下となるものは地殻を主とする自然発生源の元素であり、10 以上となるものは人為発生源の元素であると評価される^{30,31-34}。EF 値は一般に空気中に浮遊する全粒子について評価されるため、本研究では全粒子を PM₁₀(= PM_{fine} + PM_{coarse})として評価した³⁰。

3 結果と考察

3.1 各都市で採集された PM の元素濃度

Fig.1 には大邱市、福井市及び加東市で採集された、PM₁₀(= PM_{fine} + PM_{coarse})の濃度を示した。また、Table 1 には各都市における PM₁₀の濃度と秋田八幡平における PM₁₀の濃度を示した。

後に述べる EF 値から人為起源であると考えられる元素の中で、Se、As、Ni、Cr、Cu、Pb として S は加東市、福井市、大邱市の順に高くなり、山岳部の八幡平と比較すると大邱市では 2 ~10 倍の濃度であった。また、同じ人為起源の元素の中で、Y、Ga、Br、Co そして Hg は八幡平では観測されなかった。本研究で PM をサンプリングした各都市は明らかに中国大陸の影響を受けているものと考えられるが、中でも中国大陸に近い大邱市が最も強く影響が表れていることがわかった。

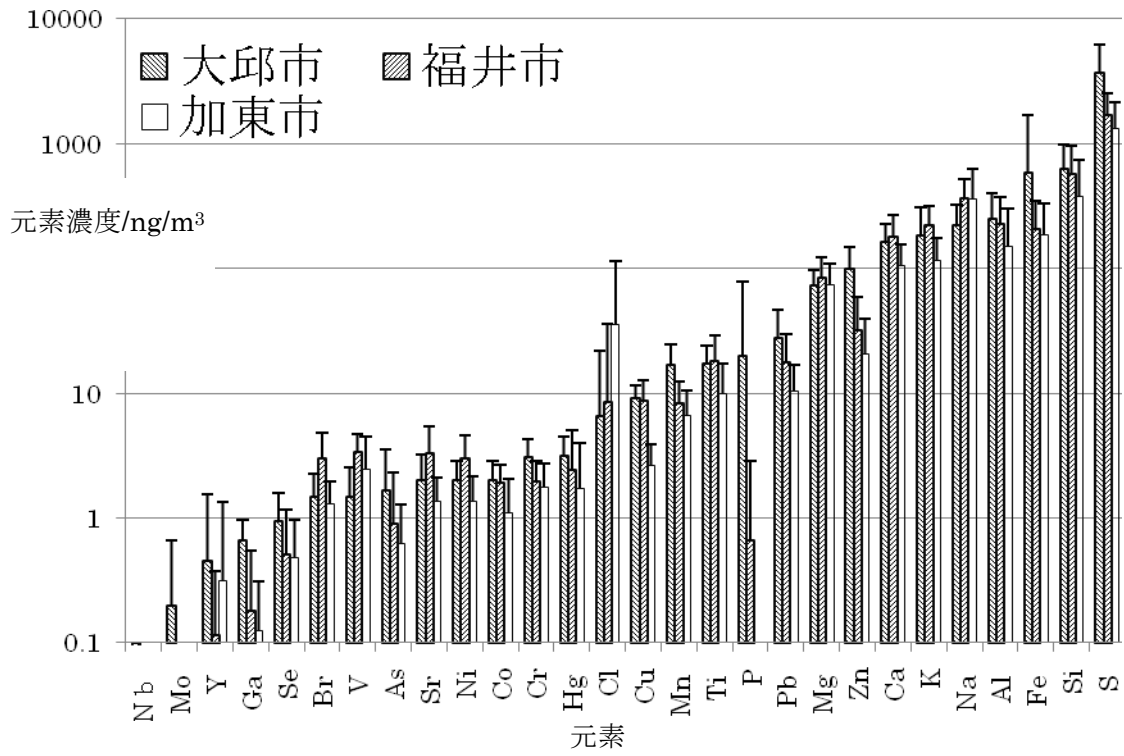


Fig.1 大邱市、福井市及び加東市における PM₁₀ 中の元素濃度

Table 1 各都市における PM₁₀ の濃度

元素	大邱市	加東市	福井市	八幡平
	PM ₁₀ /ng/m ³			
Y	0.45	0.32	0.12	—
Ga	0.66	0.13	0.18	—
Se	0.94	0.49	0.51	0.09
Br	1.47	1.30	3.03	—
V	1.49	2.47	3.38	0.2
As	1.66	0.63	0.89	0.16
Sr	1.99	1.37	—	0.08
Ni	2.02	1.38	3.02	0.82
Co	2.04	1.09	1.90	—
Cr	3.10	1.78	1.98	1.18
Hg	3.15	1.73	2.42	—
Cl	6.57	35.8	8.50	36.6
Cu	9.14	2.61	8.65	1.11
Mn	17.1	6.59	8.35	3.64
Ti	17.3	9.92	18.3	7.56
Pb	27.9	10.4	17.7	9.55
Mg	72.8	74.2	84.2	26.6
Zn	98.9	20.5	31.9	5.77
Ca	164	107	180	87.8
K	185	117	221	139
Na	224	357	365	121
Al	253	150	227	91.5
Fe	590	187	206	77.9
Si	626	377	579	324
S	3722	1336	1701	981

3.2 各都市で採集された PM の濃縮係数 (EF 値)

Fig.2 には大邱市、加東市、及び福井市で採集された、PM₁₀(= PM_{fine} + PM_{coarse})の EF 値を示す。本研究では、参照元素 R に全イベントで検出できた成分である Si を用いた。Al、Mg、Ti、Sr、Ca、Fe そして Mn は各都市において EF 値が 10 以下であり、地殻由来と考えられた。福井市において Ca は 10 を超えていたので、地殻由来以外の発生が福井の近くである可能性がある。各

都市においてNaのEF値に対してClのEF値が高いことが特徴として挙げられる。ClでEF値>10となる原因として、Clは地殻よりも海塩粒子中に多量に存在するため、地殻中の濃度を基準として評価されるEF値は高い値を示したことが考えられる(Naは地殻由来のものが多いが、Clはほとんどが海塩由来と考えられる)。EF値が10を超える元素の中で特にHg、Se、S、Br、AsそしてPbのEF値が高くなっており、これらの元素は人為起源の元素であると言える。本研究ではこれらの元素の中で人の健康への被害が大きいと考えられるHg、Se、As、Pbに注目してその発生源の特定を試みた。

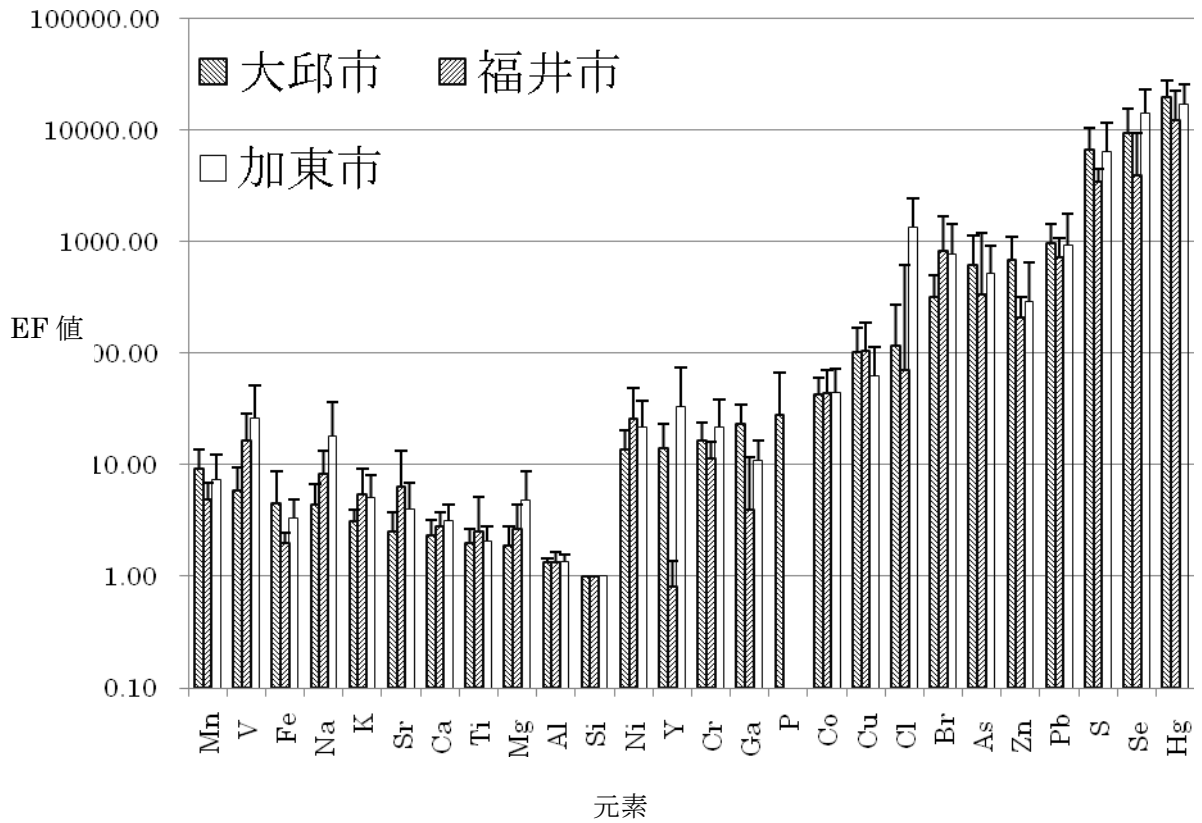


Fig.2 大邱市、福井市及び加東市におけるPM₁₀のEF値

3.3 PM サンプルング時の空気塊の輸送経路

Fig.3 に各都市における PM サンプルング時の空気塊の後方流跡線（輸送経路）をしめす。

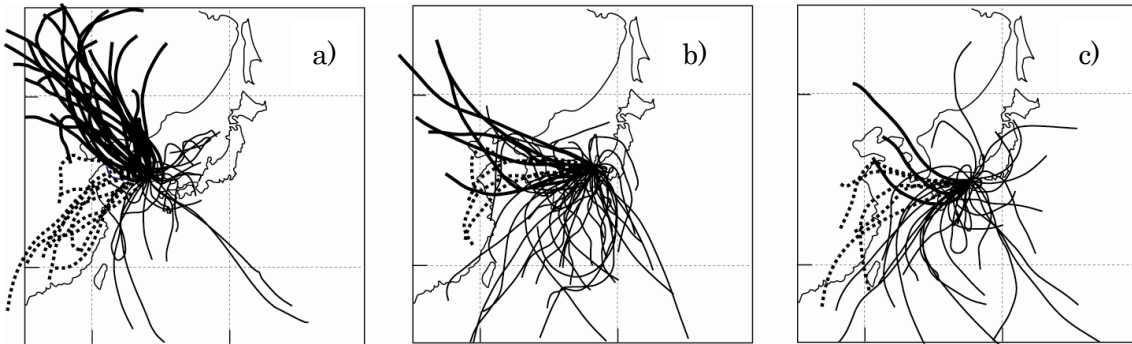


Fig.3 各都市における空気塊の輸送経路 a)大邱市、b)福井市、c)加東市

図中の太い実線は空気塊が中国北部から、太い破線は上海方面（上海付近から東シナ海を通過してサンプルング地点に来る）から、細い実線はそれ以外から輸送されていることを表している。大邱市では、60%が中国大陸北部から、20%が上海方面から空気塊が輸送されており、さらにその時にはPMの濃度がその他の輸送経路に比べて高くなることから、中国大陸の影響を強く受けていることがわかる。福井市では、中国大陸から輸送される場合が20%であり、他は主に太平洋側から輸送されていることから中国大陸の影響を受けているイベントは少ないと考えられる。加東市でも、中国大陸から輸送される場合が15%であり、他は主に太平洋側から輸送されていることから中国大陸の影響を受けているイベントは少ないと考えられる。

3.4 Pbの起源

鉛は慢性的に摂取すると、食欲不振、嘔吐、高血圧、胃痛等を引き起こすと言われている³⁶⁾。そのため、鉛の放出を止めるためにも発生源を特定することは重要である。大邱市では、中国大陸北部から輸送される場合は $17-77\text{ng/m}^3$ の範囲内にあり、上海方面から輸送される場合は $21-28\text{ng/m}^3$ の範囲内にあった。それ以外の輸送経路では $7-10\text{ng/m}^3$ と低かった。明らかに中国大陸から空気塊が輸送される場合に濃度が高くなることがわかった。

福井市で中国北部から空気塊が輸送される場合（太い赤線）は $12-22\text{ng/m}^3$ の範囲にあり上海方面から輸送される場合は $27-15\text{ng/m}^3$ の範囲にわたっていた。また、太平洋側から輸送される場合でも、 $14-19\text{ng/m}^3$ の濃度範囲にあり、大邱市よりは全体に値が低く中国大陸の影響は少ないが、太平洋側から空気塊が輸送される場合でもほとんど濃度が変わらないという特徴があった。

加東市で中国北部から空気塊が輸送される場合（太い赤線）は $13-15\text{ng/m}^3$ の範囲にあり、上海方面から輸送される場合は $3-22\text{ng/m}^3$ の範囲にあった。ただし、太平洋側から輸送されるときにも、 $3-20\text{ng/m}^3$ の濃度範囲にあること福井市同様に輸送経路による差はないと考えられる。つまり、日本の福井市と加東市には、かなり濃度の低いPbしかもたらされなく、しかもそれらは直接大陸起源かどうか不明である。

そこで、次に鉛は臭素との比率を求めることで発生源を特定化する³⁷⁾。0.8-4.7の範囲にあるときは化石燃料燃焼起源であり、それ以上は精錬であるとされている。大邱市で採集された鉛のPb/Br比はすべて4.7を超えていたことから発生源は精錬であると考えられる。加東市の場合、太平洋から東シナ海から輸送された4イベントにおいて4.7以下であり化石燃料燃焼であると考えられるが、他はすべて4.7を超えていたため起源は精錬であると考えられた。福井市の場合、中国大陸に近い日本海上を通過する3イベントにおいて4.7以下であり、化石燃料燃焼起源であると考えられたが他は精錬起源であると考えられた。

3.5 Asの起源

人間はヒ素を慢性的に摂取すると、皮膚癌、肝臓障害、貧血等の障害を引き起こすと言われている。そのため、ヒ素の放出を止めるためにも発生源を特定することは重要である。

大邱市では、中国大陸北部から輸送される場合は2-6ng/m³の範囲内にあり、上海方面から輸送される場合は0.6-1.6ng/m³の範囲内にあった。それ以外の輸送経路では0.6ng/m³以下であった。これを見ると明らかに中国大陸から空気塊が輸送される場合に濃度が高くなることがわかった。

福井市で中国北部から空気塊が輸送される場合は1.3-3.7ng/m³の範囲にあり上海方面から輸送される場合は0.3ng/m³以下であり、太平洋側から輸送される場合は0ng/m³であった。

加東市で中国北部から空気塊が輸送される場合は0.4-1.9ng/m³の範囲にあり、上海方面から輸送される場合は0.3ng/m³以下であった。福井市同様に太平洋側から輸送される場合は0ng/m³であった。

ヒ素の発生源を特定するためにはヒ素とバナジウムの比を用いることが有効である³⁷⁾。石炭、重油、ガソリン燃焼由来のヒ素とバナジウムの比はそれぞれ、4.8、0.02、1.1であることが知られている³⁷⁾。大邱市ではこの比率は0.86~1.14と3.8であった。このことから、発生源は石炭またはガソリン燃焼であると考えられる。福井市では、この比率は1.6~1.1であったことから、ガソリン燃焼に由来するものと考えられた。加東市でも、この比率は0.7~1.4であったことから、ガソリン燃焼に由来するものと考えられた。

3.6 Seの起源

セレンを一日に2500μg以上摂取すると、悪心、脱毛、爪の変性等を引き起こすことが知られている³⁸⁾。

大邱市では、中国大陸北部から輸送される場合は0.7-1.7ng/m³の範囲内にあり、上海方面から輸送される場合は0.6ng/m³以下であった。それ以外の輸送経路では0ng/m³であったことから明らかに中国大陸から空気塊が輸送される場合に濃度が高くなることがわかった。

福井市で中国北部から空気塊が輸送される場合は1-2ng/m³の範囲にあり上海方面から輸送される場合は0.5ng/m³以下であり、太平洋側から輸送される場合は0ng/m³であった。

加東市で中国北部から空気塊が輸送される場合は0.7-1.2ng/m³の範囲にあり、上海方面から輸送される場合は0.5ng/m³以下であった。福井市同様に太平洋側から輸送される場合は0ng/m³であった。

セレンの発生源を特定するためには、セレンと硫黄の比が有効である。セレン発生源はセレン

と硫黄の比が 0.0014 から 0.0088 の範囲にあるときは石炭の燃焼か自動車の排気によるとされている³⁹⁾。大邱市ではこの範囲にあるものは32イベント2イベントだけであり $Se/S=0.002, 0.0017$ であったのでこれは石炭の燃焼か自動車の排気によると考えられる。他はすべて 0.0014 以下であった。セレンの発生源に関しては石炭の燃焼か自動車の排気以外の起源を考えなければならない。

福井市では、すべてが 0.0014 以下であり、セレンの発生源に関しては石炭の燃焼か自動車の排気以外の起源を考えなければならない。

加東市では、すべてが 0.0014 から 0.0088 の範囲内にあり、起源は石炭の燃焼か自動車の排気であると考えられた。

3.7 Hg の起源

現在、世界的には一年あたり 1900t の水銀が放出され、中国大陸の石炭燃焼からの放出が、その 25%程度になると見積もられている³⁹⁾。大邱市は大陸の影響を受けやすいことからこの水銀による汚染が強いことが予測される。さらに、日本では必ずしも大邱市を空気塊が通過しなくても大陸から空気塊が輸送される場合は、拡散効果によってその濃度は減少が多少の汚染を受けることが考えられる。

大邱市では、空気塊が中国北部から輸送される場合は $3.7-4.7ng/m^3$ の範囲にあり、上海方面から輸送される場合は、 $1.2-5.5ng/m^3$ の範囲にあった。その以外の輸送経路でも、 $0.8-2.3ng/m^3$ の範囲にあった。

福井市で中国北部から空気塊が輸送される場合は、 $2.0-3.7ng/m^3$ の範囲にあり、上海方面から輸送される場合は $2.0-4.1ng/m^3$ の範囲にあった。それ以外は $0-1.8 ng/m^3$ であった。

加東市では、上海方面から輸送される場合は $1.4-8.5ng/m^3$ の範囲にあった。それ以外では、 $0-1.1 ng/m^3$ であった。

水銀の起源は、火山活動や水銀鉱床などにより大気中に排出される自然作用によるものと、燃焼や産業活動に由来する人為活動によるものとに大別することが出来る⁴⁰⁾。

また、世界的なバックグラウンド値は $2.0ng/m^3$ とされており、それを超えているイベントも多い(54イベント中19イベント)ことから大気中の水銀汚染が広がっていることが示唆される。しかし、起源が火山性や水銀鉱床なのか、産業活動なのかを明らかにする方法は現在報告されていない。現在の東アジアの産業の目覚ましい発展を考えると、起源は燃焼や産業活動に由来する人為起源であると考えられる。

4 結論

本研究により以下の知見を得ることが出来た。

1. 鉛の起源

全ての都市で精錬由来であると考えられた。

2. ヒ素の起源

大邱市では、石炭燃焼とガソリン燃焼由来であり、福井市と兵庫県加東市ではガソリ

ン燃焼由来であると考えられた

3. セレンの起源

加東市では石炭の燃焼か自動車からの排気が考えられたが、その他の都市では他の起源であると考えられた。

4. 水銀の起源

化石燃料の燃焼や産業活動に由来すると考えられた。

参考文献

- (1) N. Ogawa, T. Adzuhata and M.Kajikawa, *Seppyō*, **60(2)**, 143-156 (1998).
- (2) T. Ozeki, K. Koide, N. Ogawa, T. Adzuhata, M. Kajikawa and T. Kimoto, *Anal.Sci.*, **13**, 169-176(1997).
- (3) 小川信明,菊地良栄,後藤博,尾関徹,分析化学,**47(8)**,503-511(1998).
- (4) N. Ogawa, R. Kikuchi, T. Okamura, M. Kjikawa, T. Ozeki, *Atmos.Res*, **51**, 77-80 (1999).
- (5) N. Ogawa, R. Kikuchi, T. Okamura, J. Inotume, T. Adzuhata, Y. Iwata and T. Ozeki
Int.J.Soc.Mat.Eng.Resources, **7(2)**, 282-296 (1999).
- (6) N. Ogawa, R. Kikuchi, T. Okamura, J. Inotume, T. Adzuhata, T. Ozeki, M. kajikawa,
Atmos.Res,**54**,279-283 (2000).
- (7) 岡村朋子 2000年度 2000年度秋田大学院鉱山学研究科化学プロセス学専攻修士論文,2001年3月.
- (8) T. Adzuhata, T. Okamura, J. Inotsume, R. Kikuchi, T. Ozeki, M. Kajikawa and N.Ogawa, *Proceeding of 2nd International Conference on Fog and Fog Collection*, St.John's, Canada,25-28 (2001).
- (9) T. Adzuhata, J. Inotsume, T. Okamura, R. Kikuchi, T. Ozeki, M. Kajikawa, and N. Ogawa, *Anal. Sci.*, **17**, 71-76 (2001).
- (10) T. Adzuhata, T. Okamura, J. Inotsume, R. Kikuchi, T. Ozeki, M. Kajikawa and N. Ogawa, *Int.J.of The Soc.Mat.Eng.for Resources*, **9**, 23 (1999).
- (11) T. Adzuhata, T. Okamura, J. Inotsume, R. Kikuchi, T. Ozeki, M. Kajikawa and N. Ogawa, *Water air and soil pollution*, **130**, 337 (2001).
- (12) T. Adzuhata, T. Okamura, J. Inotsume, R. Kikuchi, T. Ozeki, M. Kajikawa and N. Ogawa,
Int.J.Soc.Mat.Eng.Resources, **24**, 23-27 (2001).
- (13) Cohen, D.D, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, **14**, pp.136-138, (1998).
- (14) Cohen, D.D., Graham, .M.B. and Kondepudi, R., *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, **109**, p.218-226 (1996).
- (15) Dockery, D.W., Pope, C.A., Xu, X., Spengler, J.D., Ware, J.H., Fay, M.E., Ferris, B.G. and Speizer, F.E., *New England Journal of Medicine*, **329**, pp.1753-1759 (1993).

- (16) IPCC, 2001. The Third Assessment Report of Working Group I of the Intergovernmental Panel on Climate Change: Technical Summary, Lead Authors, Albritton, D. L. (USA), Meira Filho, L.G., (Brazil), Shanghai, 17–20 January (2001).
- (17) Han, J.S., Ghim, Y.S., Moon, K.J., Ahn, J.Y., Kim, J.E., Ryu, S.Y., Kim, Y.J., Kong, B.J. and Lee, S.J., *Journal of Korean Society for Atmos. Environ.*, **20**, pp.143–151, (2004).
- (18) Hu, M., He, L-Y., Zhang, Y-H., Wang, M., Kim y. P., and Moon, K.C., *Atmos. Environ.*, **36**, pp.5853-5859 (2002).
- (19) Fang, G-C., Chang, Y-S., Wu, Y-S., Wang, N-P., Wang, V., Fu, P. P-C., Yang, D-G and Chen, S-C., *Chemosphere*, **41**, pp.1349-1359 (2000).
- (20) Ho, K. F., Lee, S. C., Chan, C. K., Yu, J.C., Chow, J. C and Yao, X. H., *Atmos. Environ.*, **37**, pp.31-39 (2003).
- (21) Kikuchi, R., Adzuhata, T., Okamura, T., Ozeki, T., Kajikawa, M and Ogawa, N., *Int. Soc. Mater. Eng. Resour.*, **9**, pp.28-31, (2001).
- (22) Kikuchi, R., Inotsume, J., Yoshimura, K., Ogawa, N., Sera, K. and Ozeki, T., *Int. J. PIXE*, **23**, pp.81-87, (2003).
- (23) Saitoh, K., Sera, K. and Shirai, T., *Atmospheric Research*, **89**, pp.324-329, (2008).
- (24) Yamada, E., Funoki, S., Abe, Y., Umemura, S., Yamaguchi, D. and Fuse, Y., *Anal. Sci.*, **21**, pp.89-94, (2005).
- (25) Kikuchi, R., Takada, M., Hifumi, K., Yoshimura, K., Ozeki, T., Kimoto, T., Kajikawa, M and Ogawa, N., *Atmospheric Research*, **94**, pp. 501-509, (2009).
- (26) Kim, K. H., Choi, G. H., Kang, C. H., Lee, J. H., Kim, J. Y., Youn, Y. H. and Lee, S. R., *Atmospheric Environment*, **37**, pp.753-765, (2003).
- (27) Fang, G.C., Wu, Y.S., Chen, J. C., Fu, P. P. C., Chang, C. N. and Chen, M. H., *Science of the Total Environment*, **345**, pp.61-68 (2005).
- (28) Arditoglou, A., C. Samara, *Chemosphere*, **59**, 669-678 (2005).
- (29) Thomas Götschi, Marianne E. Hazenkamp-von Arx, Joachim Heinrich, Roberto Bono, Peter Burney, Bertil Forsberg, Deborah Jarvis, Jose Maldonado, Dan Norbäck, Willem B. Stern, Jordi Sunyer, Kjell Torén, Giuseppe Verlatto, Simona Villani, Nino Künzli *Atmospheric Environment*, **39**, pp.5947-5958 (2005).
- (30) J.S. Han, K.J. Moon, S.Y. Ryu, Y.J. Kim and Kevin D. Perry *Atmospheric Environment*, **39**, pp.3113-3125 (2005).
- (31) Ki-Hyun Kim, Gyoo-Hoon Choi, Chang-Hee Kang, Jin-Hong Lee, J. Y. Kim, Y. H. Youn, S. R. Lee, *Atmospheric Environment*, **37** pp.753-765 (2003).
- (32) Ki-Hyun Kima, Jin-Hong Lee, Mi-Suk Jang, *Environmental Pollution*, **118**, pp.41-51(2001).
- (33) Guor-Cheng Fang, Yuh-Shen Wu, Jyh-Cherng Chen, Peter Pi-Cheng Fu, Cheng-Nan Chang, Ming-Hsiang Chen, *Science of the Total Environment*, **345**, pp.61-68 (2005).

- (34) Wen-hua Liu, Jing-zhu Zhao, Zhi-yun Ouyang, Leif So"derlund, Guo-hua Liu, *Environment International*, **31**, pp.805-812 (2005).
- (35) 広島大学鉱物学関連, 「元素、原子量、宇宙と地殻における存在度」
http://home.hiroshima-u.ac.jp/er/Min_G1.html
- (36) H, Hu, *Environ Health Perspective* **109**, 95-99 (2001).
- (37) Arditoglou, A., C. Samara, *Chemosphere*, 59, 669-678 (2005).
- (38) Wilber, CG, *Clinical Toxicology* **17**, 171-230 (1980).
- (39) David G. S , Jiming H, Ye W , Jingkun J, Melissa C, Hezhong T and Xinbin F, *Atmospheric Environment* **39**, 7789-7806 (2005).
- (40) 坂本隼雄、地球環境 13, 237-244 (2008).

Origin and transportation course of heavy metal elements in the particulate matter (PM) at South Korea and Japan

Ryoei Kikuchi¹, Kazuya Kikuchi¹, Koichiro Sera² and Nobuaki Ogawa¹

¹Faculty of Engineering and Resource Science, Akita University
1-1, Tegata Gakuen-cho, Akita 020-8502, Japan

²Cyclotron Research Center, Iwate Medical University
348-58 Tomegamori, Takizawa 020-0173, Japan

Abstract

Particulate matter (PM) was collected at the South Korea and two sites of Japan. In the present study, the origin and transportation course of the heavy metal elements were discussed for PM₁₀, determined by using PIXE (Particle Induced X-ray Emission) and back trajectory analyses. The origin of Pb in PM at all sampling sites has both of the metal refining origins, using the analysis of Pb/Br. The origin of As were mainly gasoline and coal combustion at the Daegu City, and were gasoline combustion at the Fukui and Kato City. When air mass was transported from Chinese continent, concentration of these elements were higher than the other transport courses.