



考えられる。一方 ${}^7\text{Be}$ は上空で宇宙線が大気中の酸素や窒素に衝突することによって生じると言われている<sup>9</sup>。長崎大学で採集したエアロゾルに含まれる ${}^{210}\text{Pb}$ と ${}^7\text{Be}$ の濃度には正の相関が見出されている<sup>1</sup>。

福島第一原発事故以降は、長崎大学に飛来するエアロゾルから事故由来の放射性核種 ${}^{134}\text{Cs}$ と ${}^{137}\text{Cs}$ 、 ${}^{110m}\text{Ag}$ が検出されるようになった<sup>2,6</sup>。これは、当該事故の影響が1000 km以上離れた地域に及んでいることをはっきりと示していた。事故発生直後の2011年4月に検出されたときには、流跡線分析により、福島第一原子力発電所上空から長崎の観測地に向かう大気の流れがあったことが示された<sup>2</sup>。しかしながら、以後の検出では、大気の流れの多くが朝鮮半島方面からのものと見られた(図1)<sup>5</sup>。これらのうち、 ${}^{134}\text{Cs}$ が検出できたものについては、 ${}^{134}\text{Cs}$ と ${}^{137}\text{Cs}$ の比率から、福島第一原子力発電所事故由来であるとみられる<sup>5</sup>。このことは、事故発生直後を除いて、一旦地上に降り注いだエアロゾルが再浮遊して飛来することが日常的であったことを示している。事故由来の放射性核種は2016年8月以降検出されなくなったが、 ${}^{137}\text{Cs}$ は地上の蘚苔類などに残存している。

PIXEで測定された各元素の濃度と ${}^{210}\text{Pb}$ 、 ${}^7\text{Be}$ の濃度は大きな季節変動を示し、互いに類似しているものがあるが、異なったものもあり、単にエアロゾル質量の増減に連動しているとか、 ${}^{210}\text{Pb}$ の濃度に連動しているとかは言えない。今までの分析ではその特徴を充分抽出できたとは言い難い<sup>1-6</sup>。

## 2 材料と方法

2013年から2017年にかけて大気中浮遊物(エアロゾル)の採取を行い、エアロゾルに含まれる安定元素、放射性核種の濃度、エアロゾルの質量を測定し、大気の流れも含めた相互関係を調べた。

### 2.1 試料採取

エアロゾルの採取には、ハイボリュームエアサンプラー柴田科学製AH600-F(吸収流量:700 L/min、1週間積算流量:約7000 m<sup>3</sup>)とアドバンテック QR-100 シリカ繊維濾紙(捕集効率:99.99%、0.3 μmDop%) 203 × 254 mmを用いた。試料採取は、長崎大学(北緯32.785701°東経129.86479°)で行った。試料はほぼ1週間にわたって採取した。採取後サンプルから4分の3を切り分け、放射能測定のための試料とした。残りの4分の1のうち、一部(3 cm × 3 cm)を、PIXEによる元素分析用に使用し、残りは予備試料として保管した。

### 2.2 測定方法

エアロゾルの質量は、エアロゾル採取後の濾紙の質量から、エアロゾル採取前の濾紙の質量を差し引いて求めた。なお、濾紙は吸湿性があるため、質量は、除湿機能付きのデシケーター(サンプラテックオートデシケーターAM-3型)で水分を取り除いたのち測定した。測定には、風防に帯電防止用の導電性ガラスを採用した分析用電子天秤(精度0.0001g)を用いた。

放射能の測定は、ガンマエックス型ゲルマニウム半導体検出器を用いて行った。濾紙をポリエチレンラップに包み、金型に入れてからプレス器で円盤状に成形したのち軟膏容器(U-9容器と同型のもの)に入れて測定した。

元素分析は、エアロゾルを捕集したシリカ繊維濾紙について、仁科記念サイクロトロンセンター(NMCC)においてPIXEで行った。

### 2.3 海水に多数含まれる元素の濃度補正

エアロゾル中のS、K、Ca、Br、Srの濃度については、海塩成分を差し引いた値を推定した。海塩の量は、Naは全量が海塩の成分であると仮定して、各元素の海塩成分を各元素の海水中平均濃度から推定した。このようにして求めた濃度をnss-Sなどと書いて示すことにする。

### 2.4 流跡線解析

参考文献<sup>2</sup>と同様の方法により、NOAAのweb site (<http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>) により、流跡線解析を行った。

## 3 結果

### 3.1 ${}^{210}\text{Pb}$ と ${}^7\text{Be}$ の関係

図2、3に示すように、 ${}^{210}\text{Pb}$ と ${}^7\text{Be}$ には強い相関があるが、全く同じにはならない。冬場は濃度が高いが図4に示すよう

に相関が弱い。

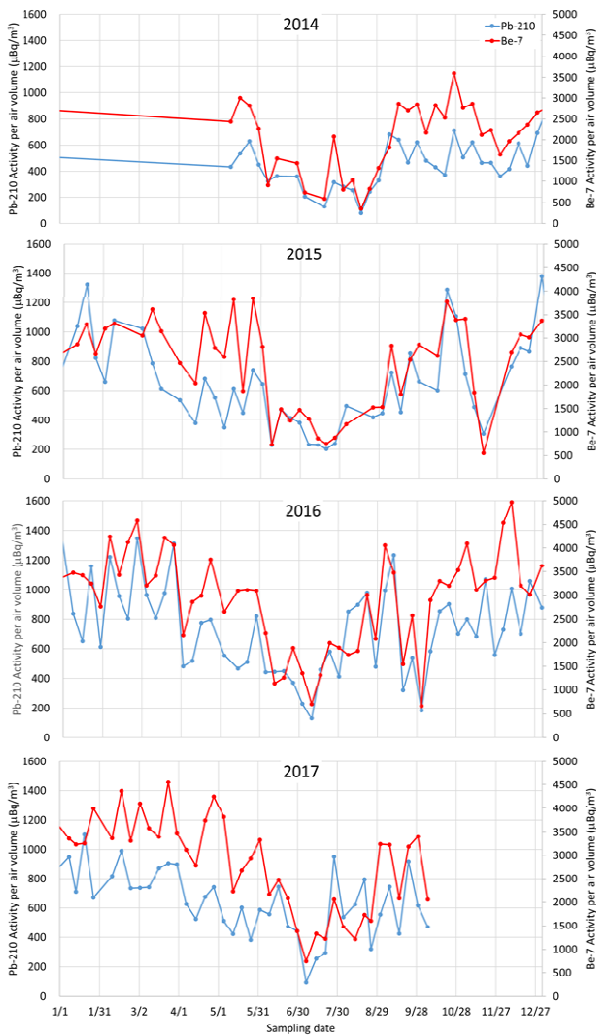


図2. エアロゾル中の<sup>210</sup>Pbと<sup>7</sup>Beの濃度の変化を比較。横軸は試料の採取日、縦軸は吸引した空気量あたりの放射能濃度。

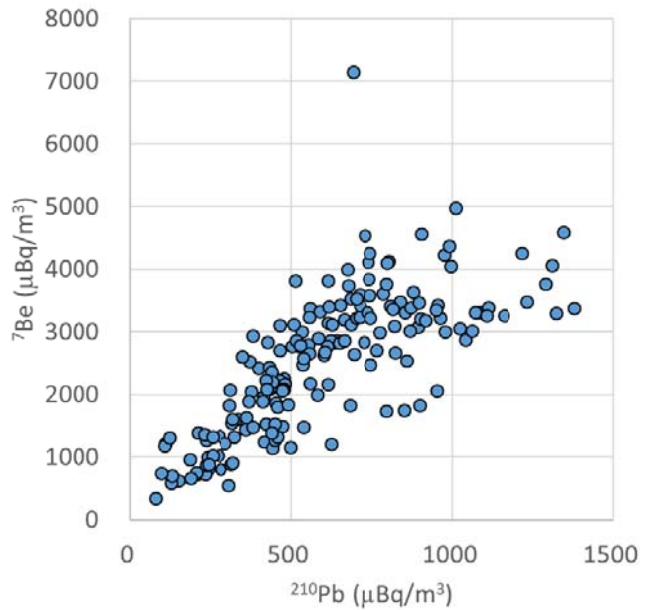


図3. <sup>210</sup>Pbと<sup>7</sup>Beの散布図。横軸は<sup>210</sup>Pb、縦軸は<sup>7</sup>Beの空気体積あたりの放射能濃度。

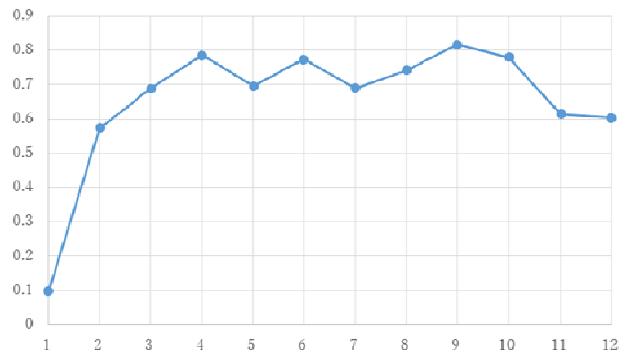


図4. 2013年から2017年の<sup>210</sup>Pbと<sup>7</sup>Be放射能濃度の月別相関係数。

### 3.2 エアロゾルに含まれる各安定元素と放射性核種、質量の間の相関

エアロゾルに含まれる各安定元素と放射性核種、質量の間の相関係数を表1に示す。遠方の陸域から多く来ると考えられる<sup>210</sup>Pbと比較的強い正の相関があるのは、nss-S、Br、Zn、Pb、負の相関があるのは、V（重油由来と言われる<sup>10</sup>）、Cu（廃棄物焼却由来と言われる<sup>10</sup>）である。V、Cu相互の相関はあまり大きくない。Zn、Pbの相関は強い。YもZn、Pbとの相関が強いが、<sup>210</sup>Pbとの相関は弱く、データが少ないため矛盾するような値となっている。nss-Ca、Ti、Mn、Co、nss-Srは、Feに対して0.8以上であり、相互に相関係数が大きい。

表1. 安定元素と放射性核種、空気量あたりのエアゾル質量相互の相関係数。セルの色は値の大小による。黒文字は無相関のp値が0.05以下のもの、白文字は0.05を超えるものである。白文字は、測定できた試料が少ない元素が多い。空欄は、検出された試料が0~2のため相関係数が求められないものである。

	Mass	Na	nss-Mg	Al	nss-S	nss-K	nss-Ca	Ti	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Pb	Br	nss-Br	nss-Sr	Rb	Zr	Mo	V	Y	As	Ga	Se	Hg	Cl	
Cs-137	0.16	-0.31	-0.02	0.24	0.11	0.10	-0.01	0.01	0.29	0.03	0.05	0.25	0.47	-0.09	0.24	-0.01	-0.17	0.00	-0.08	-	0.14	0.00	0.76	0.07	-	-	-	-	-	
Pb-210	0.14	0.25	0.28	-0.02	0.47	0.15	0.13	0.19	-0.03	0.23	0.17	-0.03	-0.11	-0.19	0.32	0.25	0.38	0.06	0.14	-0.11	0.03	0.02	-0.23	-0.18	0.29	0.42	0.17	0.14	0.01	
Be-7	0.24	0.20	0.34	0.12	0.31	0.26	0.32	0.34	0.06	0.36	0.33	0.21	-0.10	-0.18	0.35	0.33	0.34	0.08	0.22	0.22	0.16	-0.10	-0.18	0.11	0.45	0.46	0.08	0.11	-0.07	
Na	0.00		0.16	-0.04	0.20	-0.12	-0.07	-0.03	-0.17	-0.02	-0.03	-0.05	-0.27	-0.08	-0.08	-0.09	0.18	-0.68	-0.03	-0.27	0.09	0.09	-0.01	-0.37	0.03	0.57	-0.35	-0.07	0.58	
nss-Mg	0.32		0.61	0.59	0.65	0.55	0.61	0.41	0.41	0.65	0.65	0.56	0.09	0.30	0.48	0.50	0.40	0.14	0.59	0.53	0.41	0.27	0.34	0.34	0.47	-0.15	0.49	0.62	-0.11	
Al	0.57			0.25	0.80	0.75	0.79	0.54	0.54	0.76	0.80	0.76	0.33	0.24	0.43	0.44	0.21	0.17	0.65	0.82	0.40	0.17	0.43	0.63	0.55	-0.10	0.32	0.58	-0.22	
nss-S	0.17				0.32	0.24	0.35	0.31	0.46	0.40	0.40	0.25	0.05	0.25	0.58	0.44	0.25	-0.03	0.36	-0.12	0.34	0.20	0.37	0.82	0.37	-0.03	0.50	0.43	-0.47	
nss-K	0.42									0.79	0.81	0.78	0.22	0.27	0.56	0.64	0.38	0.33	0.72	0.61	0.51	0.25	0.35	0.60	0.44	0.29	0.29	0.67	-0.23	
nss-Ca	0.59							0.94	0.49	0.87	0.92	0.84	0.29	0.13	0.54	0.55	0.32	0.23	0.83	0.67	0.54	-0.06	0.31	0.55	0.66	0.31	0.25	0.47	-0.19	
Ti	0.61								0.47	0.93	0.99	0.86	0.23	0.17	0.58	0.57	0.33	0.19	0.82	0.70	0.51	0.03	0.31	0.61	0.65	0.37	0.35	0.51	-0.18	
Cr	0.32									0.58	0.52	0.59	0.47	0.35	0.60	0.57	0.25	0.29	0.56	0.20	0.41	0.22	0.56	0.49	0.50	-0.50	0.37	0.49	-0.43	
Mn	0.60										0.96	0.87	0.25	0.29	0.75	0.72	0.40	0.24	0.81	0.66	0.54	0.17	0.31	0.70	0.80	-0.02	0.46	0.73	-	
Fe	0.63											0.87	0.25	0.23	0.66	0.65	0.35	0.20	0.84	0.71	0.53	0.09	0.34	0.74	0.73	0.24	0.47	0.63	-0.22	
Co	0.60												0.31	0.29	0.59	0.57	0.32	0.21	0.72	0.55	0.60	0.09	0.57	0.60	0.86	0.27	0.27	0.35	-0.28	
Ni	0.12													0.12	0.28	0.24	-0.02	0.28	0.25	0.20	0.33	-0.02	0.43	0.50	0.39	-0.21	0.10	-0.11	-0.33	
Cu	0.13														0.38	0.39	0.13	0.15	0.22	0.03	0.22	0.22	0.37	0.10	0.43	-0.02	-0.10	0.32	-0.49	
Zn	0.43															0.90	0.41	0.33	0.67	0.15	0.53	0.22	0.34	0.91	0.79	-0.11	0.51	0.66	-0.44	
Pb	0.42																0.50	0.41	0.64	0.19	0.56	0.16	0.24	0.83	0.84	-0.30	0.64	0.49	-0.06	
Br	0.19																	0.38	0.00	0.17	0.34	0.05	0.05	-0.04	0.36	-0.01	0.79	0.16	0.40	
nss-Br	0.09																	0.23	0.49	0.17	0.19	0.19	-0.01	0.18	0.14	-0.14	0.78	0.17	-0.26	
nss-Sr	0.58																		0.56	0.49	0.00	0.09	0.09	0.23	0.52	-0.09	0.56	0.56	-0.12	
Rb	0.59																				0.43	-0.19	0.19	0.17	-	-	-	0.44	0.38	
Zr	0.40																				0.10	0.45	0.75	0.07	-0.02	-0.19	0.93	0.17	-	
Mo	-0.09																					0.22	-0.28	-0.39	-0.22	0.13	0.01	-0.31	-	
V	0.13																						0.09	0.42	0.67	-0.07	0.05	-0.51	-	
Y	0.66																								0.60	0.87	0.87	-	-	-
As	0.60																											0.91	-	-
Ga	0.32																											0.94	-	-
Se	0.20																													-

### 3.3 Fe、nss-Ca、Ti、Mn、Co、nss-Srの動き

PIXEによってエアロゾル中から検出された元素のうち、Fe、nss-Ca、Ti、Mn、Co、nss-Sr は、その濃度は異なるものの、その動きはほとんどおなじであった(図5~7)。これらの元素濃度の動きは $^{210}\text{Pb}$ の動きとは異なる(図8)。Fe、nss-Ca、Ti、Mn、Co、nss-Srは土壌起源<sup>10</sup>とされていることと符合する。

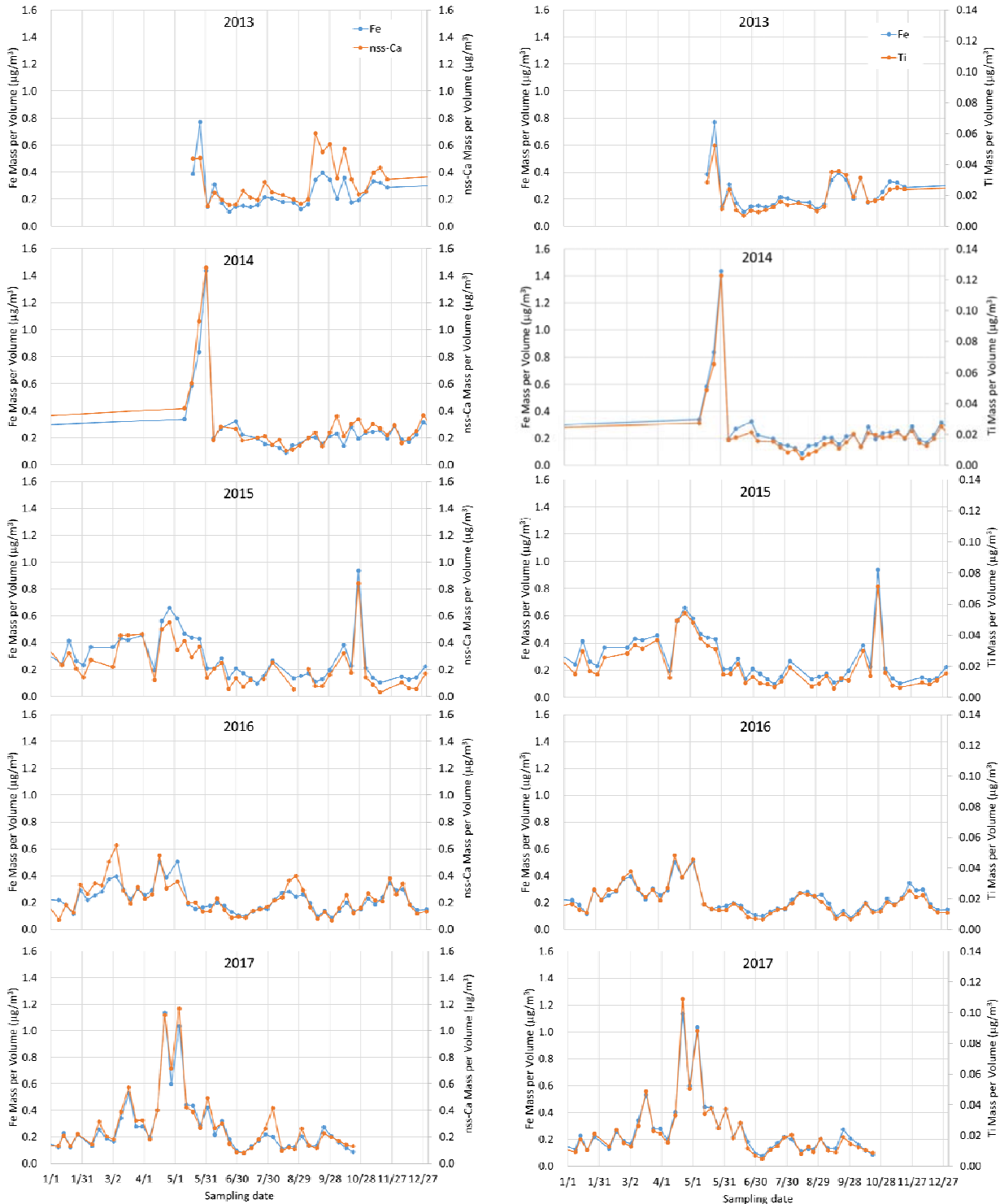


図5. エアロゾル中のnss-CaとTiの濃度の変化をFeと比較。横軸は試料の採取日、縦軸は吸引した空気量あたりの濃度。



図6. エアロゾル中のMnとCoの濃度の変化をFeと比較。横軸は試料の採取日、縦軸は吸引した空気量あたりの濃度。

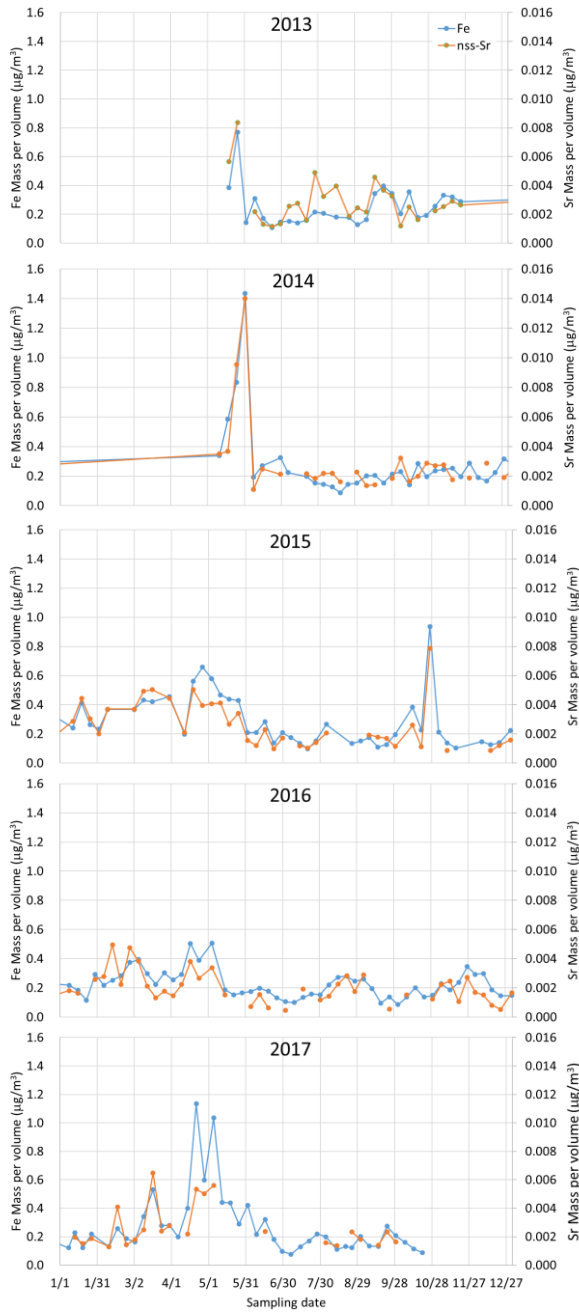


図7. エアロゾル中のnss-Srの濃度の変化をFeと比較。横軸は試料の採取日、縦軸は吸引した空気量あたりの濃度。

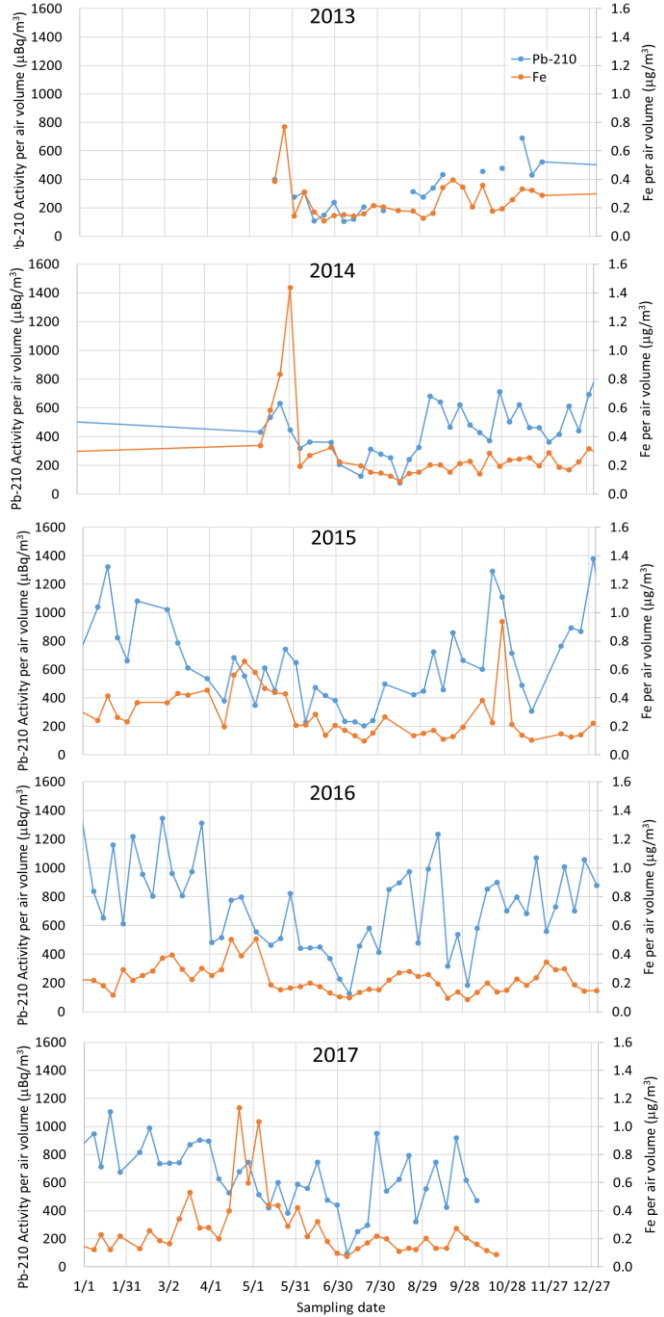


図8.エアロゾル中の<sup>210</sup>Pbの放射能濃度とFeの濃度の変化を比較。横軸は試料の採取日、縦軸は吸引した空気量あたりの濃度。両者の動きはかなり異なる。Feと強い相関のある、nss-Ca、Ti、Mn、Co、nss-Srについても、Feと同様、<sup>210</sup>Pbと異なる動きをする。

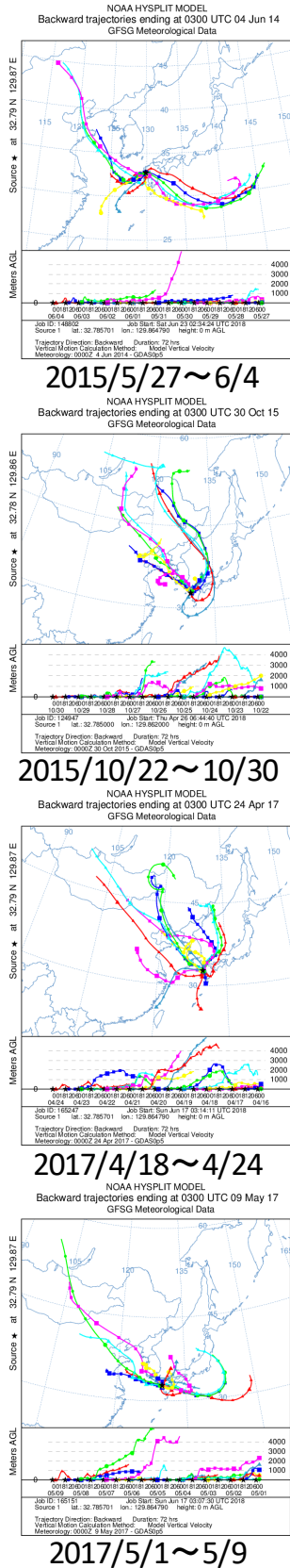


図9.Feのピーク時の流跡線。朝鮮半島経由の流跡線は、2014/5/28~6/4 以外で見られるが、本州や東九州経由の流跡線も見られる。

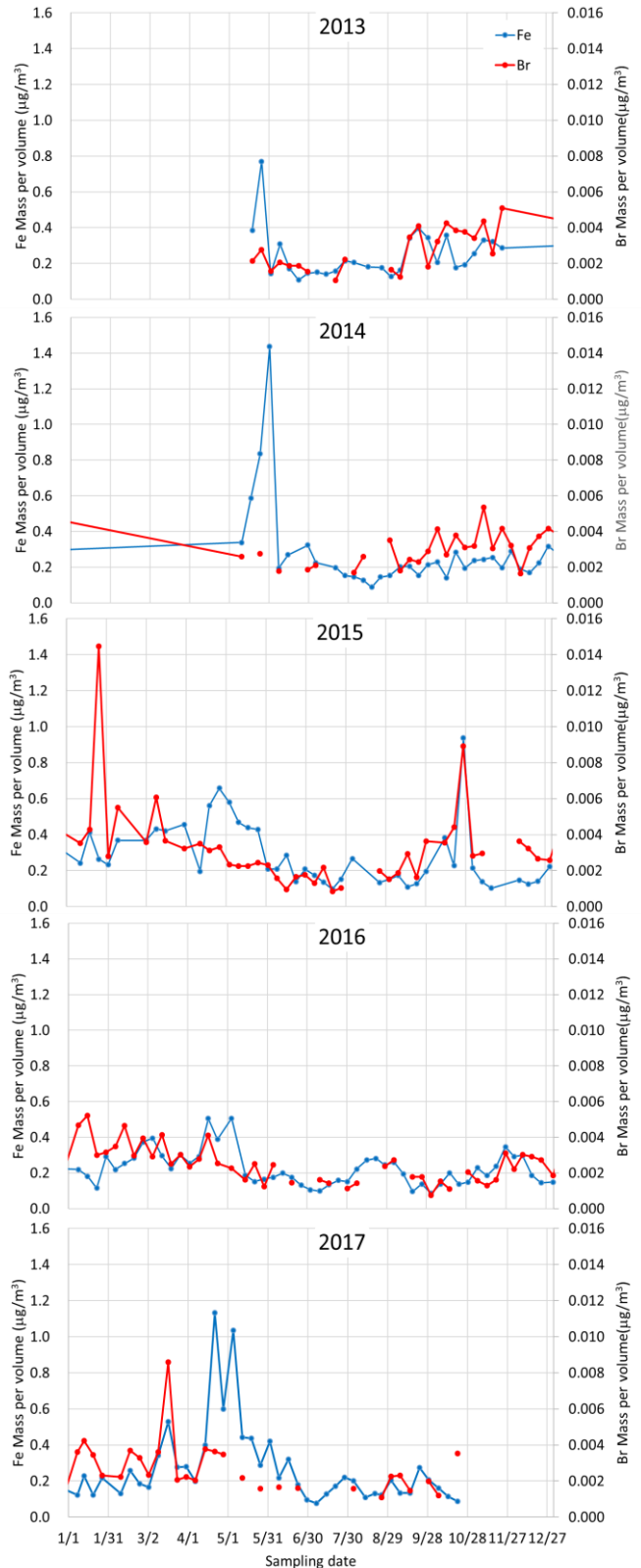


図10.エアロゾル中のFeとBrの濃度の変化を比較。横軸は試料の採取日、縦軸は吸引した空気量あたりの濃度。両者の動きは異なる。Brは、Fe、nss-Ca、Ti、Mn、Co、nss-Srなどの土壌起源と考えられる元素と異なった起源を持つと考えられる。



Feは2014/5/28~6/4、2015/10/23~10/30、2017/4/18~4/24、2017/5/1~5/9 に大きなピークがある。朝鮮半島経由の流跡線は、2014/5/28~6/4 以外で見られるが、本州や東九州経由の流跡線も見られる。従って流跡線からは由来がはっきりしない(図9)。

$^{210}\text{Pb}$ はFeなどと動きが一致しない。 $^{210}\text{Pb}$ は陸域由来であり、大陸奥地由来のエアロゾルに多く含まれると考えられるが、Feなどは違うのであろう。

### 3.4 Brのピークと流跡線

Brの大きなピークは2015/1/22~29、2015/10/23~30、2017/3/13~21に見られた。2015/10/23~30のピークはFeと重なるが他は重ならない(図10)。Brのピーク時の流跡線は、いずれも中国東北部、モンゴル方面から朝鮮半島を経由している(図11)。 $^{210}\text{Pb}$ と弱い相関はあるが、パターンは明らかに異なっているから、起源は完全に同じではない(図12)。陸域起源である $^{210}\text{Pb}$ との相関があることも、大陸奥地の起源ということと一致している。

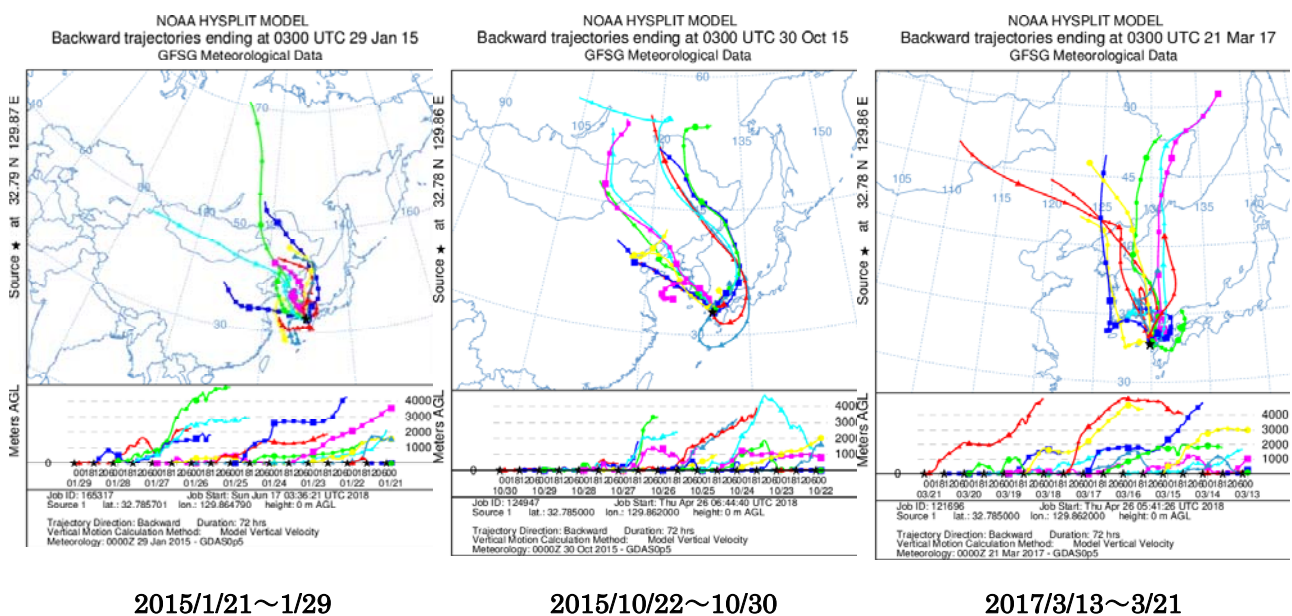


図11. Brのピーク時の流跡線。いずれも中国東北部、モンゴル方面から朝鮮半島を経由しているから、この方面からの大気にBrが多く含まれていると考えられる。

### 3.5 Pb、Znのピークと流跡線

PbとZnの時間変動はよく似ている(相関係数0.90)が、濃度が高くなるとPb/Znの比率が高くなる傾向がある(図13)。Pb/Zn比は大陸起源で大きいとする多数の文献がある。PbあるいはZnとBrとの相関は0.50、0.41と強くないが、ピーク時が一致していることがあり、ピーク時が異なってもピーク時の流跡線は似ている(図14)。

### 3.6 Ni、Vのピークと流跡線

FeとNi、V、 $^{210}\text{Pb}$ の時間変動はそれぞれ違う。Ni、V、 $^{210}\text{Pb}$ の時間変動を図15に、Ni、V、Feの時間変動を図16に示す。Ni、Vは重油起源<sup>10</sup>といわれている。Niのピーク時の流跡線を図17に示す。2015年9月と2016年8月のピーク時は、大陸からの大気ではない。Vのピーク時の流跡線を図18に示す。2015年8月始めのピーク時は、国内および台湾以外は通っておらず、5月には台湾を通過していない。海上の船舶や長崎付近からの重油由来であるかもしれない。Vは陸域起源の $^{210}\text{Pb}$ と負の相関がある。2015年7月末8月始めには、Cu、nss-Sのピークも見られる。nss-Sのピークがある2014/8/21~26の流跡線は、陸域を通過していない。Cu、nss-Sについても、海上の船舶などや長崎付近からのものである可能性がある。

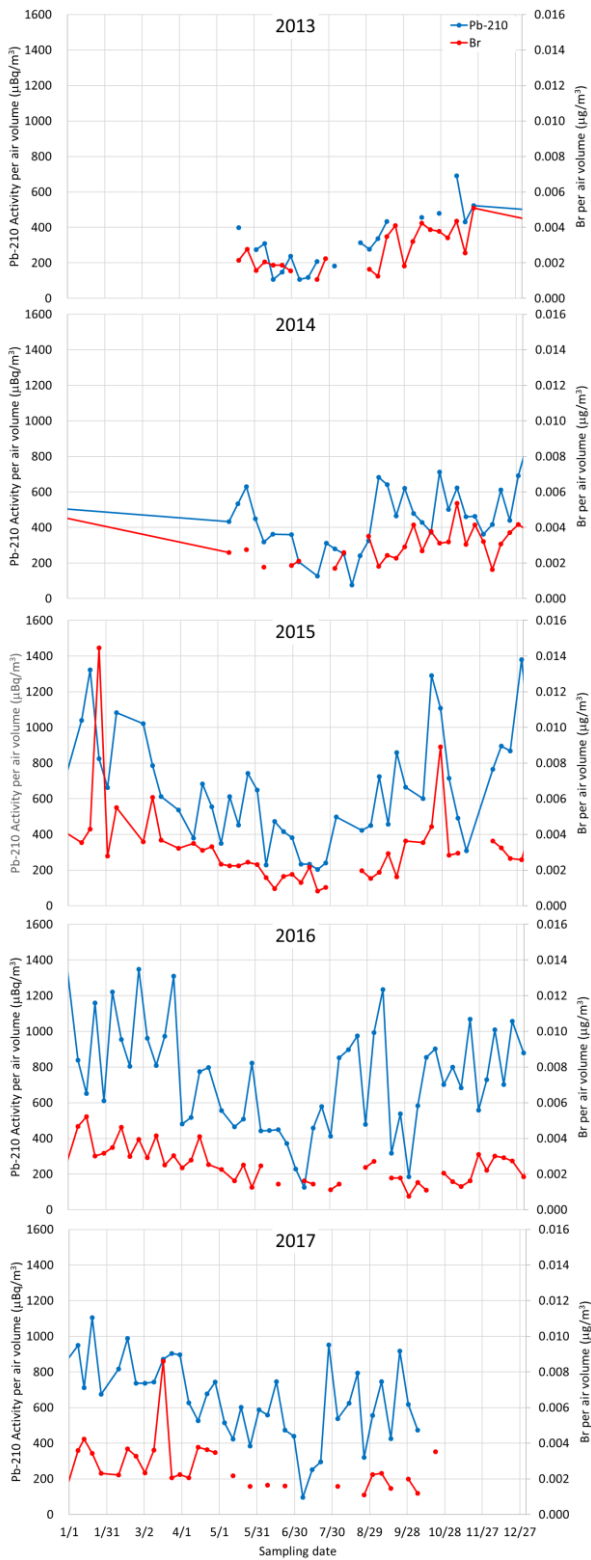


図12.エアロゾル中の<sup>210</sup>Pbの放射能濃度とBrの濃度の変化を比較。横軸は試料の採取日、縦軸は吸引した空気量あたりの濃度。両者には弱い相関があるが、動きは異なる。Brは、<sup>210</sup>Pbと異なった起源を持つと考えられる。

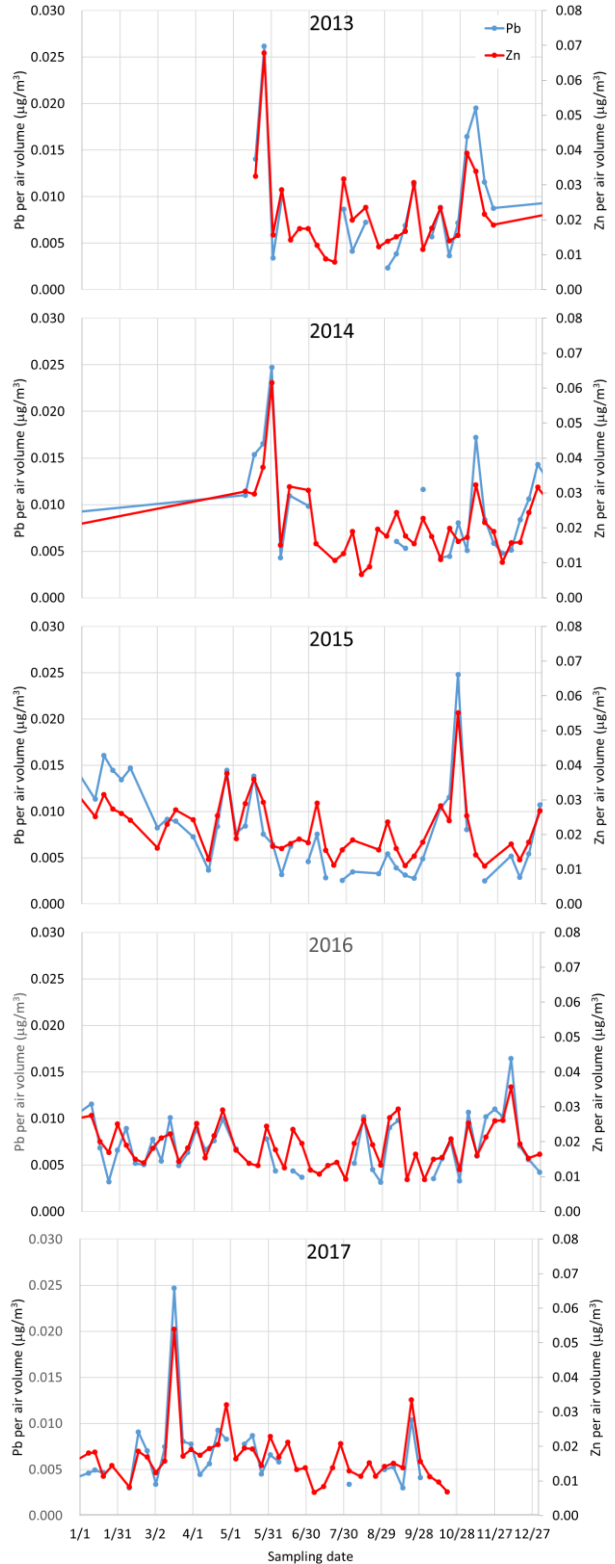


図13. エアロゾル中のPbとZnの濃度の変化を比較。横時間変動はよく似ている(相関係数0.90)が、濃度が高くなるとPb/Znの比率が高くなる傾向がある。

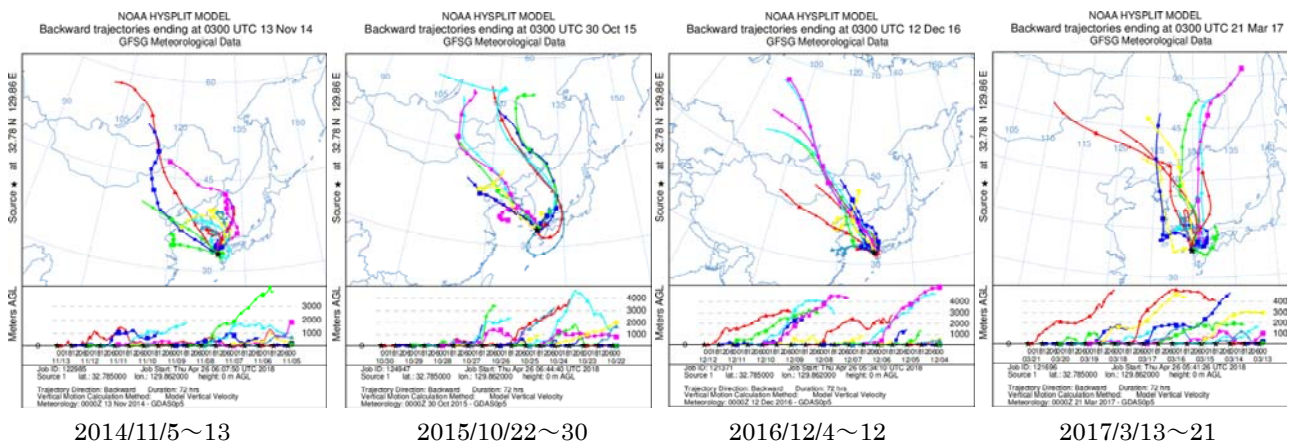


図14. PbとZnがピーク時の流跡線。2015/10/22~30、2017/3/13~21は、Brのピークとして既出。Brのピーク時同様、大陸、朝鮮半島方面を通っている。

#### 4 考察

Fe、nss-Ca、Ti、Mn、Co、nss-Srは、土壌起源と言われることと符合して、その濃度の時間的変動はほとんど同じであることが示された。このことは、PIXEによる元素分析の精度がよいことを示している。これらの6元素の濃度の時間的変動は<sup>210</sup>Pbとは異なり、<sup>7</sup>Beとの相関のほうが強い。<sup>210</sup>Pbは海洋からはほとんど発生せず、陸域においてラドンの壊変により発生すると、エアロゾル表面に吸着されて運ばれることがわかっている<sup>8</sup>。したがって、大陸などの遠方から運ばれる質量あたりの表面積が大きい微小なエアロゾルに多く含まれているものと考えられる。採集地近くの土壌から舞い上がって飛来する大きなエアロゾルは<sup>210</sup>Pbが多く含まれておらず、地面のごく表面に堆積した半減期の短い<sup>7</sup>Beとともに風で巻き上げられてくると考えれば<sup>7</sup>Beとの相関が説明できる。さらに、Br、Pb、Znを多く含んだ遠方から運ばれた非土壌起源のものを多く含むエアロゾルやそれらが地表に堆積して再浮遊した物では、<sup>210</sup>Pbを多く含むが<sup>7</sup>Beは減衰していると考えられる。<sup>210</sup>Pbと<sup>7</sup>Beの経時的变化はよく似ているが安定元素と関係して、違いがあることがわかる。

Zn、Pb、Brは、流跡線解析から判断して、北西方面の大陸奥地から飛来していると考えられ、これらの濃度と<sup>210</sup>Pbの濃度に相関があることは、大陸などの遠方から運ばれる微小なエアロゾルに多く含まれているとする推測と符合する。

PbとZnの時間変動はきわめてよく一致しているため、何らかの決まった化合物か混合物が起源である可能性が高い。確かに、濃度が高くなるとPb/Znの比率が高くなる傾向はあるが、流跡線解析も含めて考慮すれば、多くの文献にあるように、Pb/Zn比は大陸起源で大きいと判断するのは、少なくとも試料採集地点である長崎市付近においては、無理があると考えられる。Pb/Znの比率の濃度依存性は、両元素の振る舞い方の違いと発生源からの距離などによって起こりうることを考える。

BrはPbとZnとは変動パターンが同じではなく、起源が微妙に異なると考えられる。

Ni、V、Cu、nss-Srは、他の元素とはあまり関係無しに飛来してくる傾向がある。大気が海域を通り、試料採取地点付近以外の陸域を通っていないときも飛来しているので、海域あるいは試料採取地点付近の突発的なできごとによって飛来すると考える。

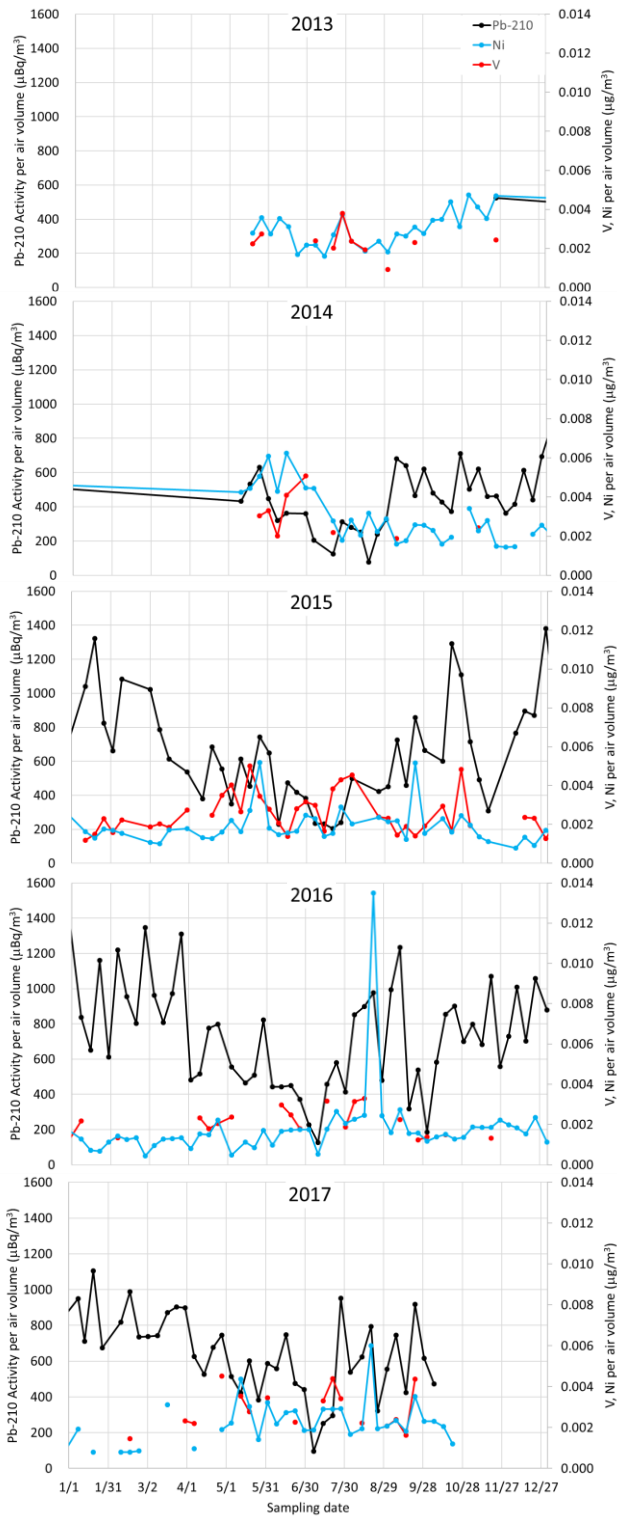


図15. エアロゾル中の<sup>210</sup>PbとNi、Vの濃度の変化の比較。変動はそれぞれ異なっている。

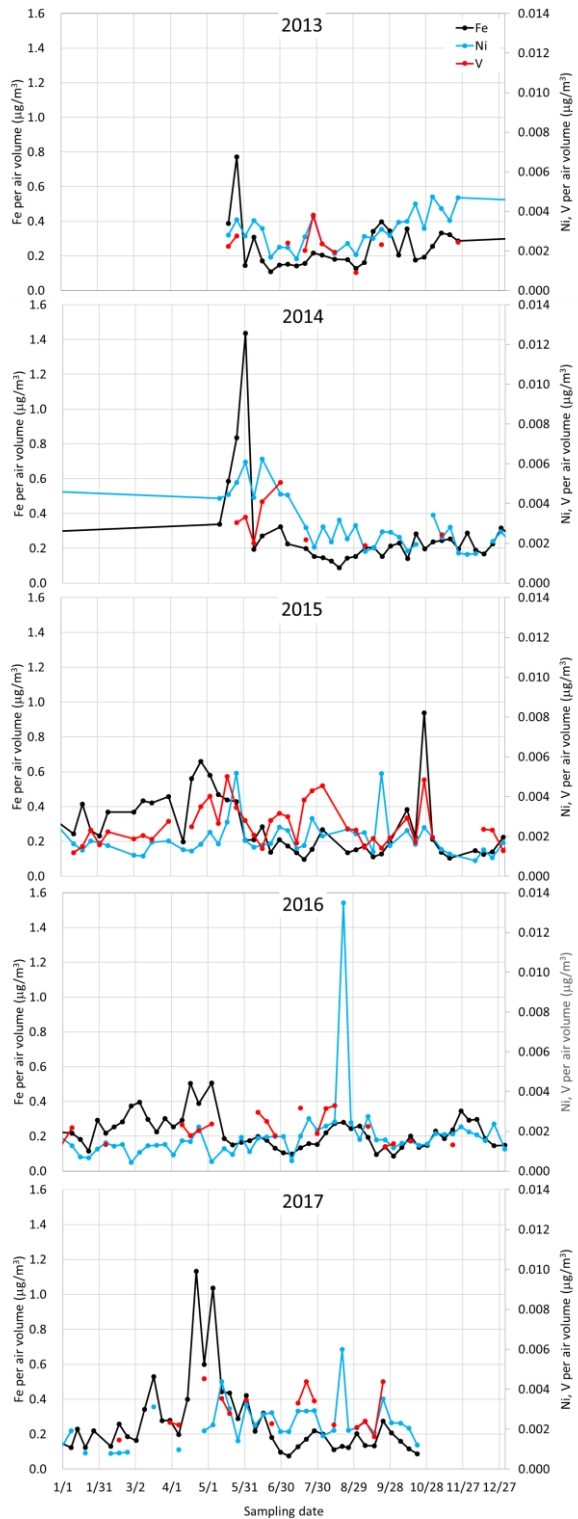


図16. エアロゾル中のFeとNi、Vの濃度の変化を比較。変動はそれぞれ異なっている。

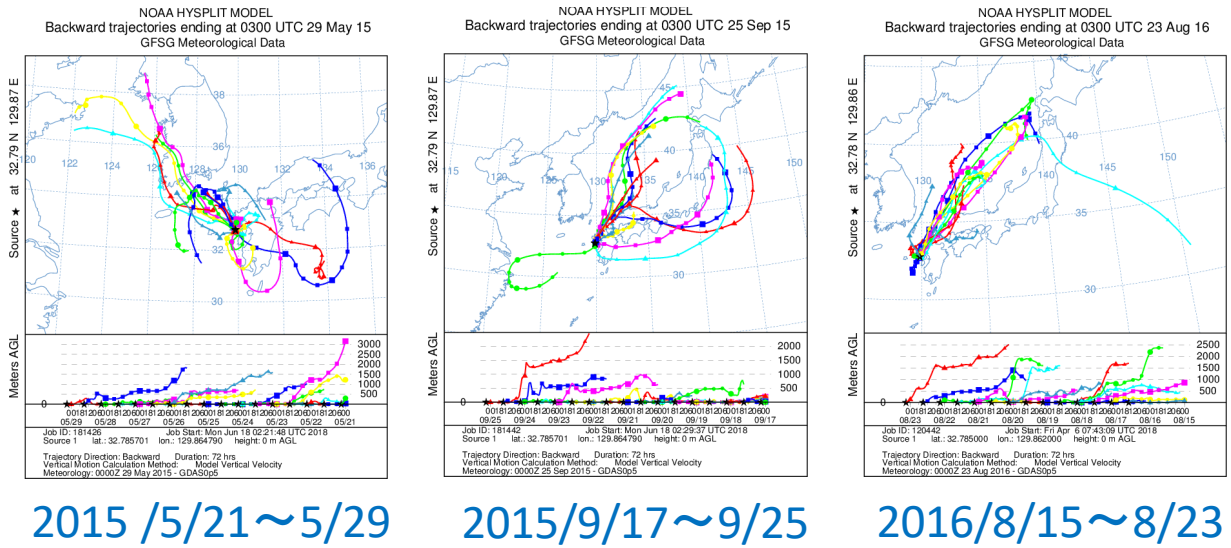


図17. Niのピーク時の流跡線。2015/9/17~25, 2016/8/15~23は、大陸からの大気ではない。

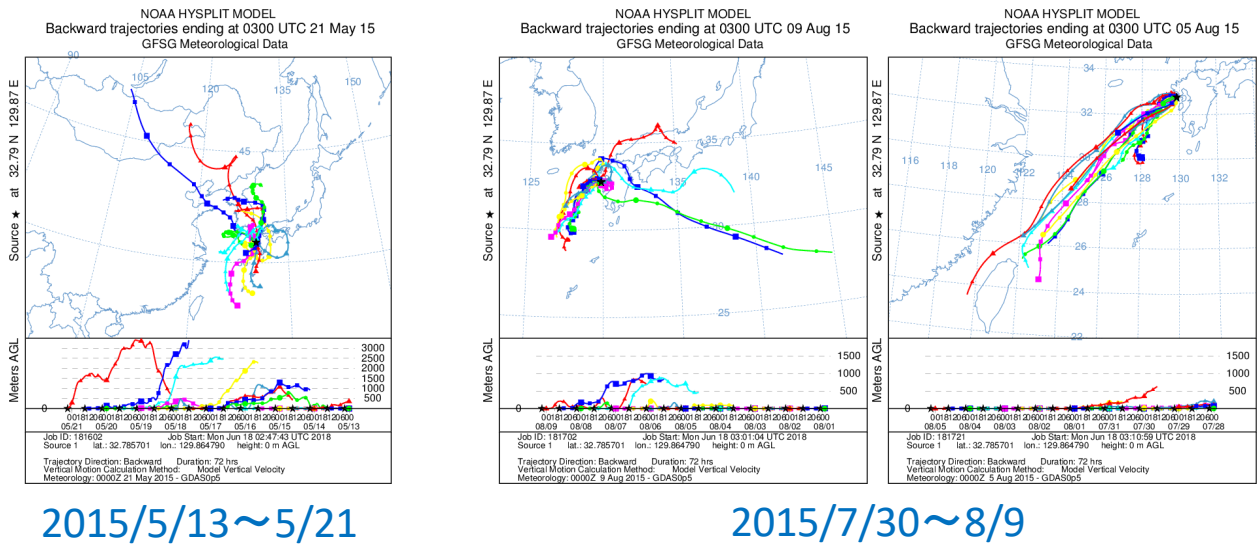


図18. Vのピーク時の流跡線。2015/7/30~8/9は、大陸を通過していない。2015/5/13~21は、台湾を通過していない。

参考文献

- 1) 松本洋平, 本間信, 田浦慎太郎, 世良耕一郎, 高辻俊宏 (2011) 大気中浮遊物質に含まれる放射性同位元素と金属元素の関係, NMCC共同利用研究成果報文集16 (2009), 138-151
- 2) Yuan J, Zeng Z, Takatsuji T (2012) Radioactivity of the aerosol collected in Nagasaki City due to the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident. Proceedings of the 17th Hiroshima International Symposium - Lessons from unhappy events in the history of nuclear power development, 78-85 (<http://home.hiroshima-u.ac.jp/heiwa/Pub/E28/e28.pdf>)
- 3) 袁 軍, 世良耕一郎, 高辻俊宏 (2013) 大気中浮遊物質に含まれる放射性同位元素と安定元素の関係, NMCC共同利用研究成果報文集18 (2011) pp. 158-168
- 4) 袁 軍, 世良耕一郎, 高辻俊宏 (2014) 大気中浮遊物質に含まれる放射性同位元素と安定元素の関係, NMCC共同利用研究成果報文集19(2012) pp. 126-159
- 5) 袁 軍, 世良耕一郎, 高辻 俊宏 (2015) 大規模原子力事故時の遠隔地における放射線被ばくへの対処—長崎に飛来した福島第一原子力発電所の放射性物質からの推測—, 日本衛生学会誌, 70, 149-160
- 6) 高辻俊宏, 袁 軍, 世良耕一郎 (2016) 長崎に飛来する大気中浮遊物質に含まれる原発事故由来放射性物質と天然放射性物質、安定元素, NMCC共同利用研究成果報文集21(2014) pp. 146-152
- 7) Wilkening M H, Clements W E (1975) Radon 222 from the ocean surface, Journal of Geophysical Research 80, 3828-3830
- 8) Porstendörfer J (1994) Properties and behaviour of radon and thoron and their decay products in the air, Journal of Aerosol Science, 25, 219-263
- 9) 金井 豊 (2014) 環境中のベリリウムとその地球化学, GSJ地質ニュース, 3, 12, 357-365
- 10) 鈴木 亮太, 吉野 彩子, 兼保 直樹, 高見 昭憲, 林 政彦, 原 圭一郎, 渡邊 泉, 畠山 史郎 (2014) 長崎県福江島・福岡県福岡市におけるエアロゾル金属成分の特徴と発生源推定, 大気環境学会誌, 49, 15-25

## Relations among stable and radioactive elements contained in aerosol and trajectories of the Nagasaki atmosphere from 2013 to 2017

T. Takatsuji<sup>1</sup>, T. Nakashima<sup>1</sup>, K. Furui<sup>1</sup> and K. Sera<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Graduate School of Fisheries and Environmental Sciences, Nagasaki University  
1-14 Bunkyo-machi, Nagasaki 852-8521, Japan

<sup>2</sup>Cyclotron Research Center, Iwate Medical University  
348-58 Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0603, Japan

### Abstract

Concentrations of stable and radioactive elements in aerosol collected in Nagasaki City were measured from 2013 to 2017. The stable elements were measured with particle induced X-ray emission (PIXE) at NMCC (Nishina Memorial Cyclotron Center, Japan). The radioactive elements were measured with a gamma-X type germanium radiation detector at Nagasaki University.

Fluctuations of Fe, Ca, Ti, Mn, Co and Sr concentrations almost synchronized with each other. It is said that these six elements are basic soil component and the contents should be synchronized. If so, the synchronization demonstrated the accuracy of PIXE measurements.

<sup>210</sup>Pb showed different fluctuation pattern from the six elements and more positively correlated with Br, Pb and Zn than the six elements. <sup>210</sup>Pb is a disintegration product of radon and the origin is land area. When the concentrations of Br, Pb and Zn were high, the air trajectories calculated at the NOAA Hysplit web site showed that the air came from north-west Eurasia, namely, Mongolia, Northeast China and Korea. Newly generated radon disintegration products are said easily adhere to fine aerosol particles. Therefore, fine aerosol particles floating for a long time and transported long distances from the depth of Eurasia should contain large amount of <sup>210</sup>Pb, and it account for the correlation of <sup>210</sup>Pb, Br, Pb and Zn.

Concentrations of Pb and Zn were strongly correlated with each other and Pb and Zn were strongly possible to be originated from some fixed compound or mixture material.

Fluctuations of Ni, V, Cu and S tend to be independent from other elements. Even when the air did not come from distant land area, the concentrations of Ni, V, Cu and S became high. Therefore, origins of the elements were possible to be somethings on the sea area or neighborhood of the sampling point.