

北海道網走地域上空のエアロゾル中の アルミニウム・マンガン濃度の 2012年から2014年の変動

朝隈康司*[†]・江島達郎**・土屋沙菜恵*・田邊かりん*

(平成29年11月28日受付/平成30年3月9日受理)

要約：北太平洋への大気からの鉄 (Fe) の影響を見積もるためには、その近隣である北海道東部に飛来するエアロゾル中の Fe 濃度を計測することに意味がある。これまでに Fe 濃度を計測してきた結果、エアロゾル中の総 Fe に対する水溶性 Fe の比が増加していることがわかってきた。この変化の原因を明らかにすることを目的として、本研究はエアロゾル中のマンガン (Mn) とアルミニウム (Al) 濃度を測定した。その結果、エアロゾル中の Mn 濃度が、2012年から2014年の3年間で増加していることがわかった。このためエアロゾル中の鉄とマンガンの比 (Fe/Mn) は低下していた。また、季節変化をみると厳冬期に Fe/Mn が低下していた。このことから、冬季の化石燃料燃焼の増加が短距離輸送、長距離輸送共にエアロゾル中の Mn の増加に関係していると考えられる。Mn と水溶性 Fe の直接相関をとると、微小粒子のみに相関 ($r=0.403$) がみられた。このことから、長距離輸送による化石燃料などの増加による Mn の増加が水溶性 Fe の増加と関係していたことがみられた。また、短距離輸送の粗大粒子中の Al と水溶性 Fe の間にも弱い相関 ($r=0.239$) がみられた。粗大粒子は土壌の巻き上がりである可能性があるため、地域的な Al の増加は総 Fe の増加につながり、その結果水溶性 Fe も増加したと考えられる。一方、網走地域は農耕地であり土壌改良のため Al が人為的に施肥されることがあるが、これと水溶性 Fe に直接の関わりは見られなかった。以上のことから、エアロゾル中の水溶性 Fe 増加は、長距離輸送の Mn の増加と起源を等しくするため、化石燃料燃焼に一因があると考えられる。

キーワード：エアロゾル, 鉄供給, HNLC 海域, オホーツク海, 北太平洋亜寒帯

1. はじめに

大気エアロゾルは地球の放射平衡に大きな影響を与えるだけでなく^{1,2)}、エアロゾル中に含まれる鉄 (Fe) が海洋生物の基礎生産にも大きく影響を与えることが知られている^{3,4)}。北太平洋亜寒帯は我が国の水産業にとって重要な海域の1つであり古くから資源管理が行われてきているが⁵⁾、その環境は Fe 不足によって生物生産が制限される HNLC (High Nutrient Low Chlorophyll) 海域である^{6,7)}。この北太平洋に Fe を供給するプロセスには、アムール河を起源とする海洋経由と^{8,9,10)}、大陸から発生する黄砂などの大気経由がある^{11,12,13)}。現状での北太平洋の Fe 供給は海洋経由が支配的ではあるが¹⁴⁾、最近、アムール川の上流域の湖沼減少や海水減少に伴う Fe 輸送量の減少が懸念されており¹⁵⁾、大気経由による Fe の長距離輸送が注目されている。とくに北海道周辺は北太平洋へ抜けるエアロゾルの通過地点であり、特に水溶性 Fe の観測が重視されている¹⁶⁾。著者らはこれまでに、北海道でも北太平洋側の道東に位置

する網走地域上空のエアロゾルの Fe 含有量を調査してきた¹⁷⁾。その結果、2008年からの7年間で網走上空を通過するダスト中の Fe 総量は減少傾向にあるが、海洋生物に影響のある水溶性 Fe は増加傾向にあり、Fe の化学形態が年々変化してきていることがわかった¹⁷⁾。この Fe 化学形態の変化の要因をつきとめるには、エアロゾルの起源を知ることが重要である。

網走上空を通過するエアロゾルの起源は、道内網走近隣土壌による短距離輸送によるものと、アジア大陸などから季節風によって長距離輸送される黄砂や人為起源粒子などが複合したものと考えられる。短距離輸送もしくは長距離輸送されたものかどうかは、エアロゾルの粒径だけではなく、エアロゾル中の Al, Fe, Mn の成分比からも知ることができる。

わが国の農耕地の土壌の平均的な成分比は、Mn を 1 とした場合、Al : Fe : Mn = 97 : 51 : 1 であり、最大は Al : Fe : Mn = 1064 : 973 : 1 である¹⁸⁾。対象地域である網走地域は農耕地であるが厳寒地でもあり、3月から5月の春季耕作

* 東京農業大学生物産学学部アクアバイオ学科

** 東京農業大学大学院生物産学学研究所アクアバイオ専攻

[†] Corresponding author (E-mail : k-asakum@bioindustry.nodai.ac.jp)

度は2012年が最も高かった。Mn-CとMn-Fも共に2014年が高かった。いずれの年にも共通して言えることは、AlもMnも微小粒子より粗大粒子で濃度が高かったことである。次に年によって全Fe濃度に差があるかどうかを、シェフェの多重比較検定法を用いて1%の有意水準で分類した結果、AL-Cは2012年が他の年より高く、AL-Fに関しては年ごとの相違が無かった。同様に、Mn-Cは年ごとの相違は無く、Mn-Fは2012年が他の年より低かった。

図1にエアロゾル中のMn濃度の2012年から2014年の変動を示す。図中の傾向直線から、Mn-Fは3年間で増加傾向($r=0.498$)、Mn-Cは緩やかな増加傾向($r=0.210$)にあった。図2に図1同様にAlの変動を示す。図中の傾向直線から、AL-Cは3年間で減少傾向($r=-0.503$)、AL-Fは緩やかな減少傾向($r=-0.237$)にあった。

4. 考 察

4.1 Mn, Fe, Alの濃度比の年変化

図3に2012年から2014年のFe/Mnを示す。Fe濃度に関しては、著者らによる前報のFe濃度を用いて比較した¹⁷⁾。図中の傾向直線から粗大粒子と微小粒子を合わせた

総Fe/Mn、粗大粒子中のFe/Mn、微小粒子中のFe/Mnのいずれも減少傾向であった。図中の傾向直線の傾きから、微小粒子による減少が顕著であった。多重比較検定を行うと、エアロゾルの粒子サイズに関わらず、1%の有意水準で2012年が2013年2014年より高かった。微小粒子中のFe濃度は2012年から2014年で変化が無いので¹⁷⁾、Fe/Mnの低下はMn濃度の増加によるものと考えられる。微小粒子は長距離輸送による影響が大きいことから、2013年以降のFe/Mnが43を下回る日が多いことから、長距離輸送によるエアロゾルが増加していることがわかる。

図4に2012年から2014年のAl/Mnを示す。図3同様に、図中の傾向直線から粒子サイズに関わらずに減少傾向にあった。2012年は粗大粒子、微小粒子共に89より大きいため、天然起源のものと考えられる。2013年4月以降粗大粒子、微小粒子共に89を下回る観測日が増えている。2014年は粗大粒子、微小粒子共に89を下回る観測日がほとんどであった。このことから、長距離輸送、短距離輸送共に人為起源によるMnの上昇が考えられる。Fe/Mnと同様に多重比較検定を行うと1%の有意水準で2012年が2013年2014年より高かったため、2013年以降Mnが上昇

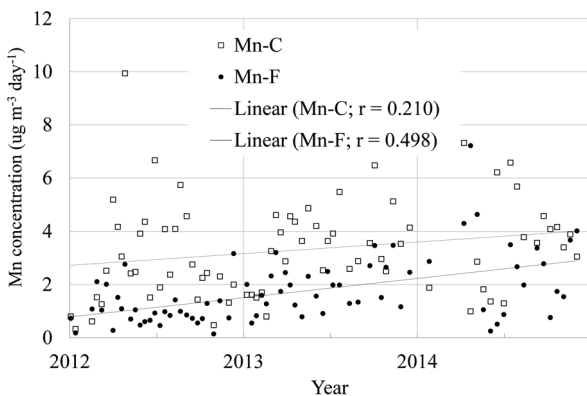


図1 2012年から2014年のエアロゾル中のMn濃度の変動。図中のMn-Cは粗大粒子中の濃度、Mn-Fは微小粒子中の濃度を示す。図中の点線および実践は観測日に対する濃度のそれぞれの傾向直線を示す。

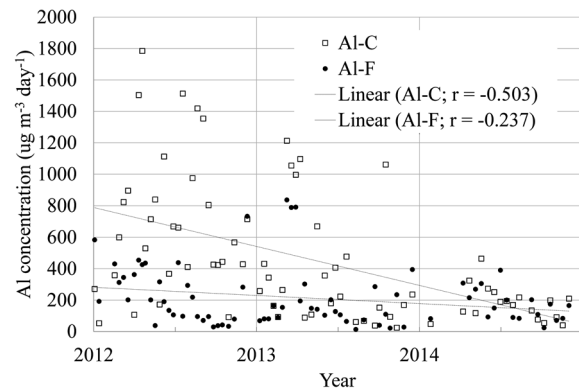


図2 2012年から2014年のエアロゾル中のAl濃度の変動。図中のAL-Cは粗大粒子中の濃度、AL-Fは微小粒子中の濃度を示す。図中の点線および実践は観測日に対する濃度のそれぞれの傾向直線を示す。

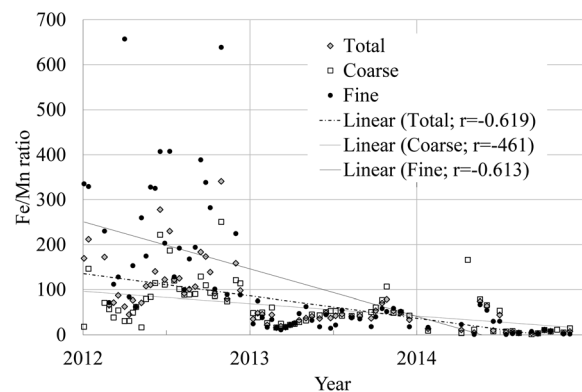


図3 2012年から2014年のFe/Mn。図中のTotalは粗大粒子と微小粒子を合わせた濃度の比を示す。Coarseは粗大粒子中の濃度の比、Fineは微小粒子中の濃度比を示す。それぞれの直線は傾向直線を示す。

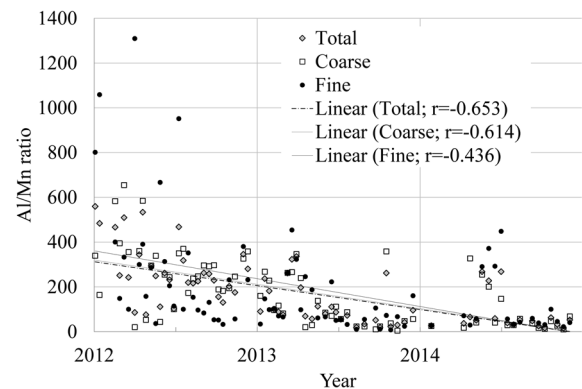


図4 2012年から2014年のAl/Mn。図中のTotalは粗大粒子と微小粒子を合わせた濃度の比を示す。Coarseは粗大粒子中の濃度の比、Fineは微小粒子中の濃度比を示す。それぞれの直線は傾向直線を示す。

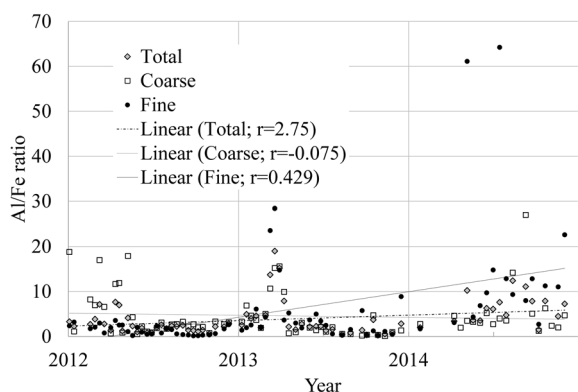


図5 2012年から2014年のAl/Fe。図中のTotalは粗大粒子と微小粒子を合わせた濃度の比を示す。Coarseは粗大粒子中の濃度の比、Fineは微小粒子中の濃度比を示す。それぞれの直線は傾向直線を示す。

していると考えられる。

図5に2012年から2014年のAl/Feを示す。3年間の傾向としては、微小粒子で緩やかな比の増加がみられる。これは、AlまたはFeいずれかの増減に関わるものではなく、2014年5月8日ならびに7月17日のとくに高いAl/Feの影響によるものである。また、図3ならびに図4とは異なり、Al/Feには周期性があるように見えるため4.2で季節変化について考察する。

4.2 Mn, Fe, Alの濃度比の季節変化

各年の季節変化を調べるため次のように季節を定義した。化石燃料による影響を検討するため1月から3月を厳冬期 (Hard season)、畑作による土壌の巻き上げなどの地域的な短距離輸送と黄砂による影響を検討するため4月から6月を耕作期 (Cultivation period)、同様に収穫による土壌の巻き上げなどの影響を検討するため7月から9月を収穫期 (Harvest period)、10月から12月を初冬期 (Chilly season) とした。

図6にFe/Mnの年別季節変化を示す。2012年は、厳冬期と耕作期の粗大粒子中に43より低い値が何日か見られたが、その他の季節には低い日はみられなかった。2013年は総Fe/Mnが初冬期以外の季節中の多くの日が43より低かった。粗大粒子も初冬期は43より高かったが、厳冬期の殆どが43より低く、耕作期と収穫期の半数が43より低かった。微小粒子は、厳冬期の43より低かった日は1日だったが、ほかの季節の殆どが43より低かった。2014年は全ての粒子サイズ、全ての季節で43より低い日が多かった。年別に多重比較検定を行った結果、総Fe/Mnに関しては、2012年と2014年には季節による有意差は見られなかったが、2013年は厳冬期が低く、初冬期が高かった。粗大粒子の場合も、2012年と2014年は季節による有意差は見られなかったが平均値は厳冬期が一番低かった。2013年は厳冬期が低く初冬期が高かった。微小粒子に関しては季節による差は無かったが、2012年と2013年の厳冬期の平均が、2014年は初冬期の平均Fe/Mnは他の季節より低かった。以上のことから、2013年以降Mnの割合は増加

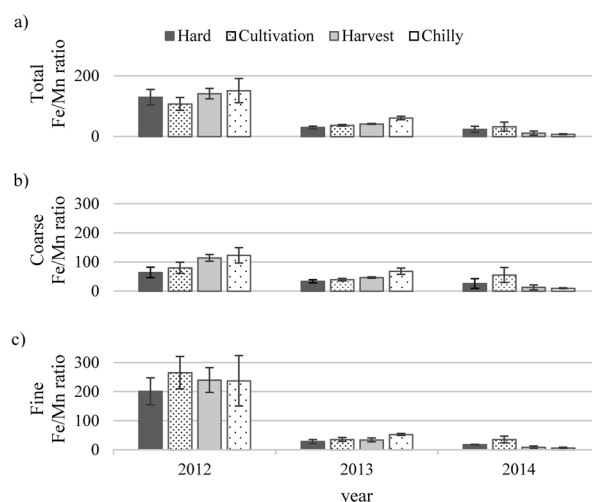


図6 Fe/Mnの年別季節変化。a) 総Fe/Mn, b) 粗大粒子中のFe/Mn, c) 微小粒子中のFe/Mn。濃灰色は厳寒期、濃点柄は耕作期、薄灰色は収穫期、薄点柄は初冬期を示す。

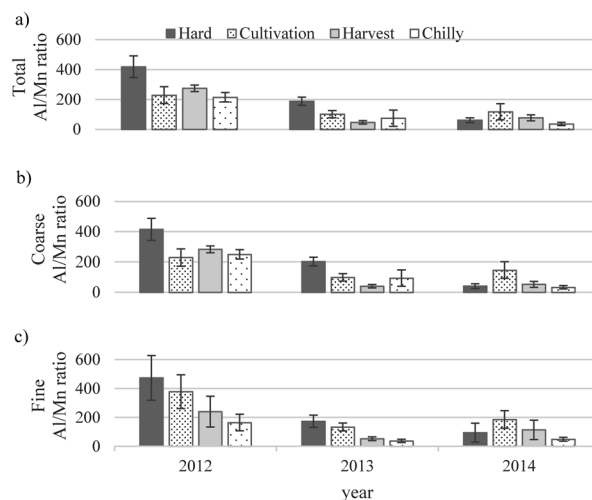


図7 Al/Mnの年別季節変化。a) 総Al/Mn, b) 粗大粒子のAl/Mn, c) 微小粒子のAl/Mn。濃灰色は厳寒期、濃点柄は耕作期、薄灰色は収穫期、薄点柄は初冬期を示す。

しており、とくに初冬期から厳冬期に増加していると考えられる。またこの期間にシベリアの大規模森林火災は春季から夏季にのみ発生していることから²⁷⁾、厳冬期のMnの増加は、化石燃料燃焼による人為起源によるものと考えられる。化石燃料の燃焼に関して日本近辺では冬季に硫酸濃度が高くなる傾向があるという報告があり^{28,29)}、本結果と矛盾しない。エアロゾル中の硫酸イオンは化石燃料燃焼による人為起源によるエアロゾルの特徴であり^{30,31)}、しかも、これら硫酸イオンを含むエアロゾルは東アジア起源であることが指摘されている³²⁾。

図7にAl/Mnの年別季節変化を示す。年別に多重比較検定を行った結果、総Al/Mnと大粒子中のAl/Mnに関しては、2013年に厳冬期が高く収穫期が低かった。微小粒子に関しては季節による差は無かった。この原因については、図8と共に考察する。図8にAl/Feの年別季節変

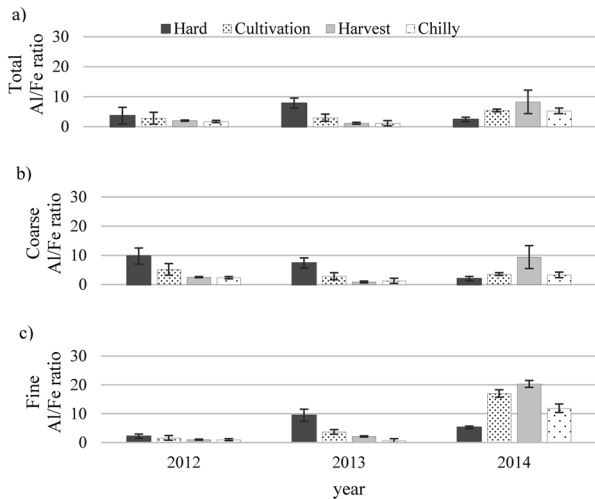


図8 Al/Feの年別季節変化。a) 総 Al/Fe, b) 粗大粒子の Al/Fe, c) 微小粒子の Al/Fe。濃灰色は厳寒期、濃点柄は耕作期、薄灰色は収穫期、薄点柄は初冬期を示す。

化を示す。年別に多重比較検定を行った結果、総 Al/Fe に関しては、2012年と2013年に厳寒期が高く収穫期に低かった。2014年は収穫期に多く、厳寒期は少なかった。大粒子に関しては2012年と2014年には季節による差は無かったが、2013年に厳寒期が高かった。微小粒子に関しても2012年と2014年には季節による差は無かったが、2013年に厳寒期が高かった。図中のc)を見ると耕作期と収穫期の平均値が高くなっているが、これは、2014年5月8日(平均値から2.38 σ 大きい)ならびに7月17日(平均値から2.54 σ 大きい)の高い Al/Fe によるものである。

ここで、Al/Feが平均値から2 σ 以上離れている月日をピックアップした。2012年は、総 Al/Fe が3月8日、4月11日、4月19日、粗大粒子が1月3日、3月8日、5月8日、微小粒子が4月11日と、いずれも3月から5月に集中していた。2013年は、総 Al/Fe が3月10日、3月20日、3月30日、粗大粒子が3月20日、3月30日、微小粒子が3月10日、3月20日と3月に集中していた。2014年は、総 Al/Fe が極端に平均値から外れた観測日は無かったが、粗大粒子は9月11日、微小粒子は5月8日と7月17日に高かった。Al/Feの値は平均1.9で最大10.0程度の幅広い値をとるが、短期間で通常状態からこれほど極端に高くなることは天然起源では考えにくく、融雪剤の散布もしくは施肥などの人為起源が考えられる。とくに3月から5月は網走周辺を含む北海道東地域は耕作準備期であり、Alが施肥された土壌の巻き上がりによる短距離輸送によるものと考えられる。逆に言えば、単発的なAlの増加は、Alそのものが散布される北海道東地域の特徴であると考えられ、Feの増減に関係があるとは考えられない。

4.3 Mn, Alの濃度と水溶性 Fe の関係

図9にエアロゾル中のMn濃度と全Feに対する水溶性Fe比の関係を示す。図中の点線で示す回帰直線で示すように、粗大粒子中のMn濃度と全Feに対する水溶性Fe比(以後簡単のため単に水溶性Fe比と呼ぶ)の相関は

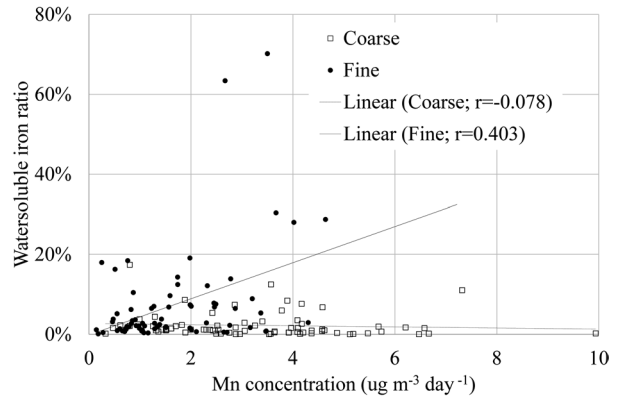


図9 Mn濃度と全Feに対する水溶性Fe比の関係。□は粗大粒子、●は微小粒子を示す。点線は粗大粒子の回帰直線、実線は微小粒子の回帰直線を示す。

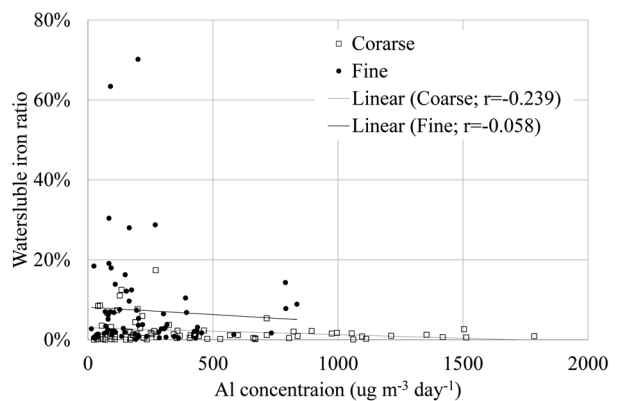


図10 Al濃度と全Feに対する水溶性Fe比の関係。□は粗大粒子、●は微小粒子を示す。点線は粗大粒子の回帰直線、実線は微小粒子の回帰直線を示す。

なかった($r = -0.078$)が、図中の実線で示す微小粒子中のMn濃度と水溶性Fe比には相関が見られた($r = 0.403$)。このことから、長距離輸送の人為起源のエアロゾルが増加すると水溶性Feが増加することがわかる。

図10にエアロゾル中のAl濃度と全Feに対する水溶性Fe比の関係を示す。図中の点線の回帰直線で示すように、粗大粒子中のAl濃度と水溶性Fe比には弱い相関がみられたが($r = -0.239$)、微小粒子中のAl濃度と水溶性Fe比に相関は見られなかった($r = -0.058$)。大粒子の場合土壌起源と考えられ、AlとFeはほぼ相関することから、水溶性Feも僅かに増加したと考えられる。ただし、4.2で述べたように、融雪剤や施肥など人為起源のAlの増加とFeの関係は殆ど無いと考えられる。

5. おわりに

これまでに、北太平洋への大気からのFeの影響を見積もるため北海道東部網走地域に飛来するエアロゾル中のFe濃度を計測してきた結果、エアロゾル中の総Feに対する水溶性Feの比が増加していることがわかってきた。この変化の原因を明らかにすることを目的として、本研究はエアロゾル中のMnとAlを測定した。その結果、エア

ロゾル中のMn濃度が、2012年から2014年の3年間で増加していることがわかった。このためエアロゾル中のFe/Mnは低下していた。また、季節変化をみると厳冬期にFe/Mnが低下していた。このことから、冬季の化石燃料の燃焼の増加が短距離輸送、長距離輸送共にエアロゾル中のMnの増加に関係していると考えられる。Mnと水溶性Feの直接相関をとると、微小粒子のみに相関($r=0.403$)がみられた。このことから、長距離輸送による化石燃料などの増加によるMnの増加が水溶性Feの増加と関係していたことがわかった。また、短距離輸送の粗大粒子中のAlと水溶性Feの間にも弱い相関($r=0.239$)があった。粗大粒子は土壌の巻き上がりである可能性があるため、地域的なAlの増加は総Feの増加につながり、その結果水溶性Feも増加したと考えられる。一方、網走地域は農耕地であり土壌改良のためAlが人為的に施肥されることがあるが、これと水溶性Feに直接の関わりは見られなかった。以上のことから、エアロゾル中の水溶性Fe増加は、長距離輸送のMnの増加と起源を等しくするため、化石燃料燃焼に一因があると考えられる。化石燃料の燃焼の増加は、良くも悪くも将来の北西太平洋のFe供給という面で、海洋環境へのインパクトが無視できないであろう。今後、継続的なモニタリングが必要である。

謝辞：本研究は、私立大学戦略的研究基盤形成支援事業により実施された成果の一部である。ここに記して感謝いたします。

参考文献

- CHARLSON R J, SCHWARTS S E, HALLES J M and CESS R D (1992) Climate forcing by anthropogenic aerosols. *Science* **255** : 423-430.
- TAYLOR K E and PENNER J E (1994) Climate system, response to aerosol and greenhouse gases : A model study. *Nature* **369** : 734-737.
- DUCE R A and TINDALE N W (1991) Atmospheric transport of iron and its deposition in the ocean. *Limnol. Oceanogr.* **36** : 1,715-1,726.
- MOREL F M and PRICE N M (2003) The Biogeochemical Cycles of Trace Metals in the Oceans. *Science* **300** : 944-947.
- 田永 軍, 赤嶺達郎, 須田真木 (2002) 北西太平洋におけるサンマ資源の長期変動特性と気候変化. *水産海洋研究* **66** (1) : 16-25.
- BOYD P W, JICKELLS T, LAW C S, BLAIN S, BOYLE E A, BUESSELER K O, COALE K H, CULLEN J J, DE BAAR H J, FOLLOWS M, HAEVEY M, LANCELOT C, LEVASSEUR M, OWENS N P, POLLAE R, RIVKIN R B, SARMIENTO J, SCHOEMANN V, SMETACEK V, TAKEDA S, TSUDA A, TURNER S, WATSON A J (2007) Mesoscale iron enrichment experiments 1993-2005 : Synthesis and future directions. *Science* **315** : 612-617.
- MOORE J K, SCOTT C D, DAVID M G, INEZ Y F (2002) Iron cycling and nutrient-limitation patterns in surface waters of the World Ocean. *Deep-Sea Res. II* **49** : 463-507.
- NAKATSUKA T, YOSHIKAWA C, TODA M, KAWAMURA K and WAKATSUCHI M (2002) An extremely turbid intermediate water in the Sea of Okhotsk : implication for the transport of particulate organic matter in a seasonally ice-bound sea. *Geophys. Res. Lett.* **29** (16) : 4/1-4/4.
- NAGAO S, TERASHIMA M, KODAMA H, KIM V I, SHESTERKIN P V and MAKHINOV A N (2007) Migration behavior of Fe in the Amur River basin. *Report on Amur-Okhotsk Project 4* : 37-48.
- NISHIOKA J, ONO T, SAITO H, NAKATSUKA T, TAKEDA S, YOSHIMURA T, SUZUKI K, KUMA K, NAKABAYASHI S, TSUMUNE D, MITSUDERA H, JOHNSON W K and TSUDA A (2007) Iron supply to the western subarctic Pacific : Importance of iron export from the Sea of Okhotsk. *J. Geophys. Res.* **112** : C10012/1-15.
- KAWAMURA H, MATSUOKA N, TAWAKI S and MOMOSHIMA N (2001) Sulfur Isotope Variations in Atmospheric Sulfur Oxides, Particulate Matter and Deposits Collected at Kyushu Island, Japan. *Water, Air, and Soil Pollution* **130** : 1775-1780.
- UNO I, EGUCHI K, YUMIMOTO K, TAKEMURA T, SHIMIZU A, UEMATSU M, LIU Z, WANG Z, HARA Y and SUGIMOTO N (2009) Asian Dust Transported One Full Circuit Around the Globe. *Nature Geoscience* **2** : 557-560.
- SHAO Y, WYRWOLL K H, CHAPPELL A, HUANG J, LIN Z, MCTAINSH G H, MIKAMI M, TANAKA T Y, WANG X and YOON S (2011) Dust Cycle : An Emerging Core Theme in Earth System Science. *Aeolian Res.* **2** : 181-204.
- 的場澄人, 中村一樹, 佐藤和秀 (2010) 黄砂から降水中に溶出する鉄濃度—積雪を用いた黄砂の溶解度試験. 雪氷学会雪氷研究大会講演論要旨集 : 10.
- NAKANOWATARI T, OHSHIMA K I, WAKATSUCHI M (2007) Warming and oxygen decrease of intermediate water in the northwestern North Pacific, originating from the Sea of Okhotsk, 1955-2004. *Geophysical Res. Lett.* **34** : L04602/1-4.
- 三木祐介, 上田紗也子, 三浦和彦, 古谷浩志, 植松光夫 (2014) 北太平洋における海洋大気中の鉄含有粒子 : 水溶性物質との混合状態. *エアロゾル研究* **29** (2) : 104-111.
- 朝隈康司, 江島達郎, 土屋沙菜恵, 田邊かりん (2018) 北海道網走地域上空のエアロゾル中鉄濃度の2008年から2015年の年変動. *東京農業大学農学集報* **63** (1) : 35-41.
- 矢内純太, 岡田達朗, 山田秀和 (2012) 日本の農耕地土壌の元素組成と土壌型・土地利用・地域との関係. *日本土壌肥科学雑誌* **83** No. 6 : 673-680.
- 吉田穂積, 山田武志, 水野直治 (1994). ジャガイモそうか病の発生における土壌の交換性アルミニウムと可溶性ケイ酸の影響. *日植病報* **60** : 630-635.
- 吉田穂積, 水野直治, 松浦秀和 (1997). 施肥法の改良によるジャガイモそうか病の発生抑制効果. *日植病報* **63** : 57-63.
- 環境省地球環境局 (2007). 黄砂実態解明調査中間報告書 (平成19年3月版).
- IPCS, Concise International Chemical Assessment Document 63, MANGANESE AND ITS COMPOUNDS : ENVIRONMENTAL ASPECTS. <<http://www.inchem.org/documents/cicads/cicads/cicad63.htm>> (最終アクセス2017年11月20日).
- 環境庁大気保全局大気規制課 (1997). 有害大気汚染物質測定方法マニュアル (平成9年2月初版).
- 環境省水・大気環境局大気環境課 (2011). 有害大気汚染物質測定方法マニュアル (平成23年3月改訂版).
- WHITBY K T (1978) The physical characteristic of sulfur aerosol. *Atmos. Environ.* **12** : 135-159.
- WHITBY K T and SVERDRUP G M (1980) The character and origins of smog aerosols. A digest of results from the California aerosol characterization experiment. John Wiley & Sons Inc., pp.477-517.

- 27) IKEDA K and TANIMOTO H (2015) Exceedances of air quality standard level of PM_{2.5} in Japan caused by Siberian wildfires. *Environ Res. Lett.* **10** : 105001/1-9.
- 28) YAMAGUCHI K, TATANO T, TANAKA F, NAKAO M and GOMYODA M (1991) An analysis of precipitation chemistry measurements in Shimane, Japan. *Atmos. Envi.* **2** : 285-29.
- 29) SATAKE H and YAMANE T (1992) Deposition of non-sea salt sulfate observed at Toyama facing the Sea of Japan for the period of 1981-1991. *Geochem. J.* **26** : 299-305.
- 30) OHIZUMI T, FUKUZAKI N and KUSAKABE M (1997) Sulfur isotopic view on the sources of sulfur in atmospheric fallout along the coast of the Sea of Japan. *Atmos. Environ.* **31** : 1339-1349
- 31) KAWAMURA H, MATSUOKA N, TAWAKI S and MOMOSHIMA N (2001) Sulfur Isotope Variations in Atmospheric Sulfur Oxides, Particulate Matter and Deposits Collected at Kyushu Island, Japan. *Water, Air, and Soil Pollution* **130** : 1775-1780.
- 32) HONG Y, ZHANG H and ZHU Y (1993). Sulfur isotopic characteristics of coal in China and sulfur isotopic fractionation during coal-burning process. *C. J. Geochem.* **12** No. 1 : 51-59.

Changes in Aluminum and Manganese Concentrations in Aerosol over the Abashiri Area in East Hokkaido from 2012 to 2014

By

Koji ASAKUMA^{*†}, Taturo EJIMA^{**}, Sanae TSUTIYA^{*} and Karin TANABE^{*}

(Received November 28, 2017/Accepted March 9, 2018)

Summary : In order to estimate the influence of iron flux from the atmospheric aerosol to the North Pacific, it is useful to measure the iron concentration in the aerosol transported over the east of Hokkaido close to the North Pacific. As a result of measuring the iron concentration in aerosol, to date, it has been found that the ratio of the water soluble iron to the total iron in the aerosol is increasing. For the purpose of elucidating the cause of this increase of water soluble iron concentration, this study measured the concentrations of manganese and aluminum in the aerosol. The result showed that the manganese concentration in the aerosol increased during the three years from 2012 to 2014, and the Fe/Mn ratio decreased. This increase in manganese seems to be related to the increase in manganese in aerosol which was transported over both long distance and short distance. Calculating the direct correlation between manganese concentration and water soluble iron, correlation ($r=0.403$) was found only in the fine particles. From this manganese measurement, it was found that the increase of manganese due to the increase of fossil fuels etc. by long distance transport was related to the increase of the water soluble iron. On the other hand, there was a weak correlation ($r=0.239$) between aluminum concentration in aerosol and water-soluble iron in coarse particles of short range transport. Since coarse particles are probably the winding up of the soil, increasing of aluminum concentration in local aerosol leads to be an increase in total iron concentration, resulting in an increase in water soluble iron concentration in it. Because the Abashiri area is farming land, aluminum may be artificially applied for soil improvement, but it will be not directly related to this and the water soluble iron in aerosol. To summarize the above, it is considered that the increase of water soluble iron in the aerosol is contributing to the combustion of fossil fuel in order to equalize the origin with the increase of the manganese of long distance transport.

Key words : Atmospheric aerosol, Iron supply, HNLC area, Sea of Okhotsk, Subarctic North Pacific

* Department of Aquatic Bioscience, Faculty of Bioindustry, Tokyo University of Agriculture

** Department of Aquatic Bioscience, Graduate school of Bioindustry, Tokyo University of Agriculture

† Corresponding author (E-mail : k-asakum@bioindustry.nodai.ac.jp)