

福岡市における PM_{2.5} 中全炭素の ¹⁴C 濃度・δ¹³C の季節変動
Seasonal variations in ¹⁴C and δ¹³C of total carbon of PM_{2.5} in Fukuoka, Japan

早田 葵^{1*}・池盛文数^{1,2}・肥後隼人³・木下 誠⁴・中島大介⁵・兼保直樹⁶・
南 雅代⁷・中村俊夫⁷
Aoi Soda^{1*}, Fumikazu Ikemori^{1,2}, Hayato Higo³, Makoto Kinoshita⁴, Daisuke Nakajima⁵,
Naoki Kaneyasu⁶, Masayo Minami⁷, Toshio Nakamura⁷

¹名古屋大学大学院環境学研究科・²名古屋市環境科学調査センター・
³福岡市博多区保健福祉センター・⁴福岡市保健環境研究所・⁵国立環境研究所・
⁶産業技術総合研究所・⁷名古屋大学年代測定総合研究センター

¹ Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University, Nagoya 464-8602, Japan

² Nagoya City Institute for Environmental Science, Nagoya 457-0841, Japan

³ Fukuoka City Hakata Health and Welfare Center, Fukuoka 812-8514, Japan

⁴ Fukuoka City Institute for Hygiene and the Environment, Fukuoka 810-0065, Japan

⁵ National Institute for Environmental Studies, Ibaraki 305-8506, Japan

⁶ Geological Survey of Japan, AIST, Tsukuba, Ibaraki 305-8568, Japan

⁷ Center for Chronological Research, Nagoya University, Nagoya 464-8602, Japan

*Correspondence author. E-mail: sou@nendai.nagoya-u.ac.jp

Abstract

Seasonal patterns in fossil fuel-derived carbon (FC) and biomass-derived carbon (BC) components of aerosols in Fukuoka were investigated by ¹⁴C and δ¹³C measurements of total carbon (TC) in PM_{2.5} collected at an urban location in Fukuoka during a period from April 2012 to March 2013. The annual mean ¹⁴C of TC was 57.1±6.4 pMC (n=52). In spring, summer, and fall, BC concentration was higher than FC concentration, while in winter, FC became increased, and δ¹³C was more enriched than in the other seasons. The high FC and enriched δ¹³C in winter could be due to long-range transport of coal combustion emissions by residential heating from northwest China.

Keywords: ¹⁴C concentration; δ¹³C; PM_{2.5}; biomass-derived carbon; fossil fuel-derived carbon

1. はじめに

炭素成分は微小粒子状物質(PM_{2.5})の主要成分の一つである。その炭素成分の発生源を解析・把握することは、大気エアロゾルが地球の気候に与える影響及び人体への健康影響をはじめとした大気汚染問題への解明につながると期待される。

中国やインドをはじめとした東アジア地域では、近年急激な経済成長が進んだことにより、自動車排ガスや、発電所・工場排煙からの排出量が増え、粒子濃度が高くなっている (Ohara *et al.*, 2007)。東アジア地域で発生した大気汚染物質の影響は海を渡って日本にも及んでいる。近年我が国では、ディーゼル車規制などの効果により PM_{2.5}濃度は減少傾向にある。しかし、特に九州地方や都市部を中心に、多くの自治体では未だ国内の PM_{2.5}環境基準達成率は不十分

な状況にあり（環境省, 2013）、東アジア大陸より飛来した粒子は、現在の国内の $PM_{2.5}$ 濃度に大きく関与していると考えられる。

九州北部に位置する福岡県では、アジア大陸から吹く季節風の風下に位置するため、国内でも特に東アジア地域から長距離輸送された汚染物質の影響を受けやすい地点であると考えられる。Kaneyasu *et al.* (2014)は、福岡で観測された $PM_{2.5}$ 中の硫酸塩、また11月から3月に観測された $PM_{2.5}$ 中の有機物が、強く大陸輸送の影響を受けていることを報告している。また、秋や冬といった北西からの季節風が吹く時期に福岡で観測される大気粉塵中の有機物は、植物燃焼、あるいは石炭燃焼により発生したものである可能性が多環芳香族炭化水素(PAHs)により示唆されている（小川ほか, 2012）。これらの報告から、福岡 $PM_{2.5}$ 中の炭素成分は、東アジア地域からの長距離輸送の影響を強く受けていることが考えられる。

放射性炭素(^{14}C)は、大気エアロゾル中の炭素について、植物由来炭素(Biomass-derived Carbon: BC)と化石燃料由来炭素(Fossil-derived Carbon: FC)に区別できる有用なトレーサーとして近年注目されている。植物は光合成の過程で大気中 $^{14}CO_2$ を取り込むため、植物から放出される揮発性有機物や、森林火災、野焼きなどの植物燃焼から生じる粒子中炭素の ^{14}C 濃度は、現在の大气中 CO_2 の ^{14}C 濃度を反映する(約 100 pMC)。一方、化石燃料中では原料の動植物が生命活動を停止した際に ^{14}C の供給が止まり、地中に存在する間 ^{14}C が十分に減衰するまでの時間が経過しているため、化石燃料由来炭素中の ^{14}C 濃度は 0 pMC である。両者のもつ ^{14}C 濃度の違いを利用し、エアロゾル粒子中炭素成分に含まれる ^{14}C 濃度を測定することで、化石燃料由来炭素と植物由来炭素の寄与率を推定することが出来る。

日本の $PM_{2.5}$ 中 TC に対し ^{14}C 濃度を測定した例として、Minoura *et al.* (2012)により関東地方において 50.9 pMC という値が報告されており、関東のような都市部においても約半分は植物由来炭素であることが明らかになっている。また我々の研究グループは、福岡の大気粉塵における TC 中の ^{14}C 濃度が 56.7 ± 7.7 pMC ($n=26$)であったことを報告している（池盛ほか, 2013）。

また環境試料中の炭素安定同位体比($^{13}C/^{12}C$)は各試料によって大きく異なる値を示すことから $\delta^{13}C$ 値もエアロゾル粒子中炭素成分の発生源推定に有効だと考えられている。近年、Kawashima *et al.* (2012)は、秋田県の $PM_{2.5}$ 中に含まれるスス状炭素の $\delta^{13}C$ を測定し、国外で発生した石炭由来粒子が冬季の日本国内にも飛来してきている可能性を示唆している。

本研究では、福岡市における $PM_{2.5}$ 中炭素成分の季節ごとの主要発生源の変化を炭素同位体比から検証し、大陸からの長距離輸送の影響について評価することを目的とする。

2. 試料の採取および分析

試料は、福岡市保健環境研究所(北緯33度59分、東経130度36分、図1)屋上にて、 $PM_{2.5}$ 分粒装置(柴田科学社製)を装着したHVエアーサンプラー(柴田科学社製: HV-700F, 吸引流速 700 L/min)を用いて、石英繊維フィルター(PALL社製: PALLFLEX 2500QAT-UP)上に、2012/4/3～2013/4/2の期間、基本一週間毎捕集した。フィルターは、あらかじめ電気炉中で $450^\circ C$ 、2時間加熱したものを使用した。捕集後のフィルターは、アルミホイルに包んで遮光した後、チャック付袋に入れ冷凍庫内で保管した。

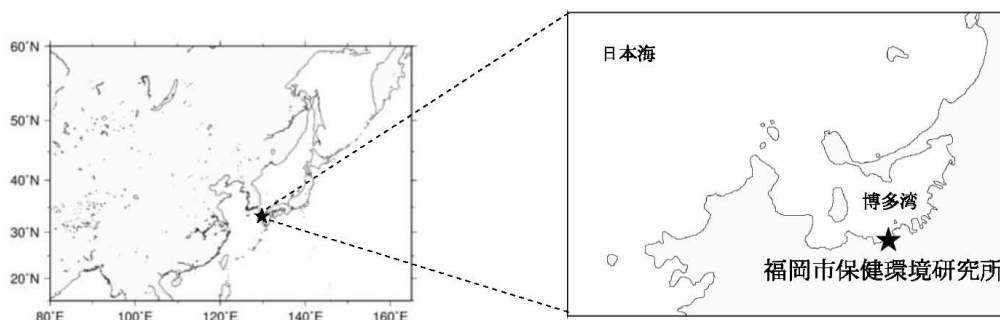


図1. 試料採取地点：福岡市保健環境研究所(左図：日本 右図：福岡市沿岸)

Figure 1. Sampling site: Fukuoka City Institute for Hygiene and the Environment.

TC、OC、EC濃度はInteragency Monitoring Protected Visual Environments (IMPROVE)プロトコル (Chow *et al.*, 1993; Chow *et al.*, 2001) に基づき、炭素分析計(Sunset社製)により測定した。炭化量は反射光により補正している。無機イオン成分濃度は超純水中に超音波抽出し、イオンクロマトグラフ(Dionex製)により定量した。

炭素同位体比測定については、1検体につき炭素量が約 0.7 mg になるよう TC 濃度を参考に各試料を短冊状に切り出した。切り出した試料は約 250 mg の還元銅および約 250 mg 酸化銅、銀線(直径 0.1 mm×長さ 5 mm)約 7 本とともに石英管に入れ真空封管した後、電気炉中にて 600°C で 2 時間、900°C で 3 時間、段階的に加熱し、フィルター上の炭素成分を燃焼させ CO₂ に変換した。その後、真空ラインを用いて精製した CO₂ は δ¹³C 用(炭素量約 0.3 mgC)と ¹⁴C 濃度用(炭素量約 0.4 mgC)に分けた。¹⁴C 濃度用 CO₂ は、微量用グラファイト調製ライン (Minami *et al.*, 2013) を用いて鉄粉触媒上に水素還元させ、C-Fe 混合物を得た後、アルミニウム製の 1.5 mm 径ターゲットホルダーに充填圧縮し、名古屋大学年代測定総合研究センターのタンデム加速器質量分析計(HVEE)で ¹⁴C 濃度を測定した。得られた ¹⁴C 濃度から、以下の計算式によって BC、FC 濃度を求めた (Takahashi *et al.*, 2007; 本庄ほか, 2011)。

$$\text{BC 濃度}(\mu\text{g}/\text{m}^3) = \text{TC 濃度} \times ({}^{14}\text{C 濃度}/101.5 \text{ pMC})$$

$$\text{FC 濃度}(\mu\text{g}/\text{m}^3) = \text{TC 濃度} - \text{BC 濃度}$$

ただし、101.5 pMC は、現生の植物片の ¹⁴C 濃度 (本庄ほか, 2011)

また δ¹³C 測定用 CO₂ からトリプルコレクター型ガス用質量分析計 IR-MS (Finnigan MAT-252)を用いて、PM_{2.5} 中 TC の δ¹³C 値を測定した。本手法では、炭素成分の発生源を植物から発生した炭素と化石燃料由来炭素の 2 種であると仮定する。

3. 結果と考察

2012 年度における福岡 PM_{2.5} 中 TC の ¹⁴C 濃度ならびに TC 濃度の変動を図 2 に示す。期間中、¹⁴C 濃度は 47.6–79.1 pMC とおよそ 30 pMC の範囲で変動しており、2012 年度における ¹⁴C 濃度の年平均値は、57.1±6.4 pMC (n=52)と関東地方の値 (Minoura *et al.*, 2012) よりも大きいことから、福岡は、国内都市部でも化石燃料由来炭素に比べ植物由来炭素の寄与がやや高い地点であることが分かった。

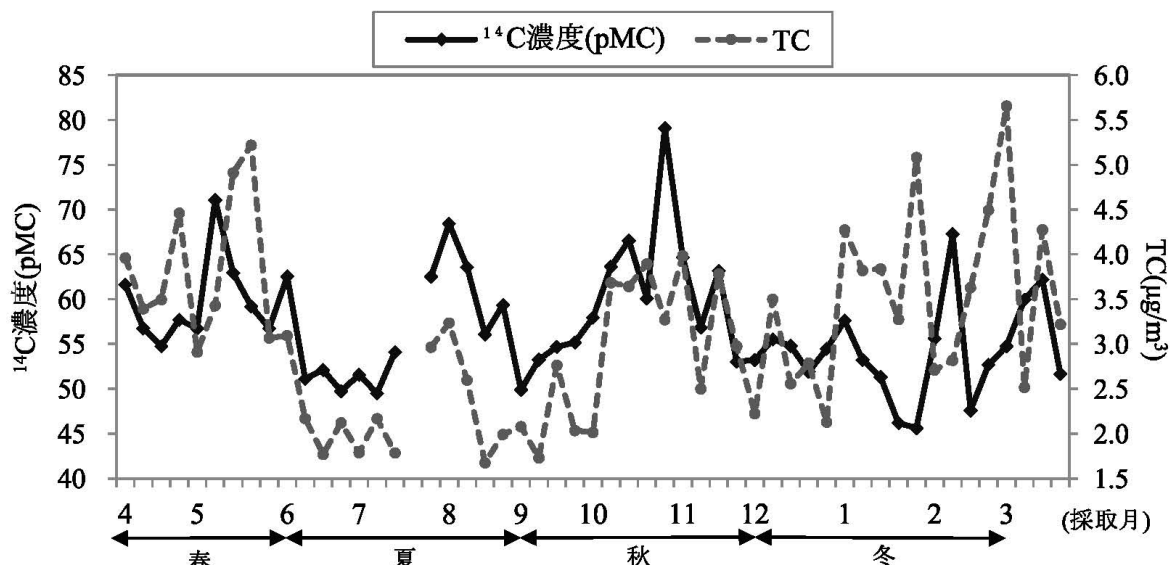


図 2. 2012 年度における ^{14}C 、TC 濃度の変動
 Figure 2. Time series of ^{14}C and TC concentrations from April 2012 to March 2013.

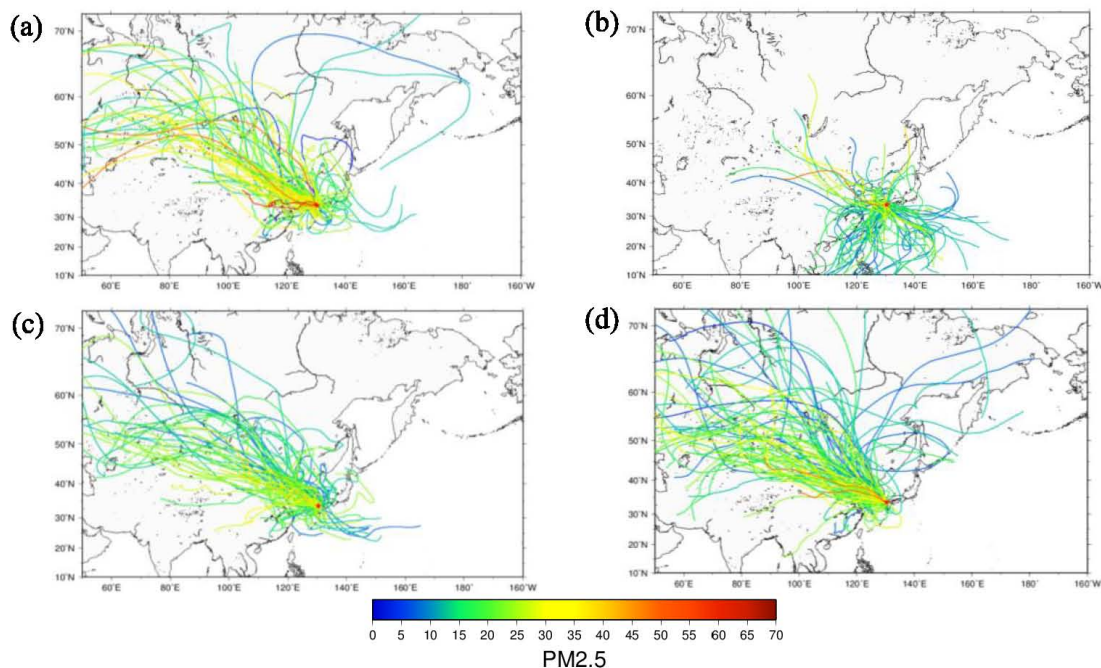


図 3. 2012 年度に福岡市保健環境研究所(高度 1500 m)に到達した気塊の後方流跡線
 ならびに福岡市で観測された $\text{PM}_{2.5}$ 濃度日平均値(カラスケールにより表示)
 (a). 春季(2012/4/3~6/5、2013/3/5~4/2) (b). 夏季(2012/6/5~9/4)
 (c). 秋季(2012/9/4~12/4) (d). 冬季(2012/12/4~2013/3/5)

※ 流跡線の計算には NOAA が提供する HYSPLIT(Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory)Model を使用した。気象データは The Global Data Assimilation System (GDAS)を用い 24 時間おき 120 時間遡っている。
 ※ $\text{PM}_{2.5}$ 濃度は福岡市内の一般環境大気常時監視測定局のうち、市役所局(北緯 33 度 59 分、東経 130 度 40 分)で観測されたものを用いた。

Figure 3. Plots of 120 hour backward air mass trajectories arriving in Fukuoka at 1500 m above the ground level for every 24 hour during each season. Color scale shows daily averaged $\text{PM}_{2.5}$ concentrations in Fukuoka.

季節毎の変動を見ると、春季から秋季にかけては植物由来炭素が多く、TC濃度が上昇した際、 ^{14}C 濃度も高くなる傾向が見られた。一方冬季では、TC濃度は高いものの ^{14}C 濃度は低下しており、前述した3季節とは異なる様子が見られた。この傾向は、同じ国内でも夏季よりも冬季に ^{14}C 濃度が高くなっていた先行研究 (Minoura *et al.*, 2012; Takahashi *et al.*, 2007) とは異なるものである。

図3に季節毎の後方流跡線解析の結果を示す。夏季は東南アジアおよび太平洋からの気塊の到達が多く見られるのに対し、春、秋、冬季の $\text{PM}_{2.5}$ 高濃度観測時に福岡に到達した気塊の多くがアジア大陸より来ていることから、春、秋、冬の ^{14}C 濃度変動には都市排出分に加え大陸由来の炭素成分が影響している可能性が考えられる。

^{14}C 濃度より算出したBC濃度、FC濃度の変動を図4に示す。年平均値をみるとBC($1.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$)の方がFC($1.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$)よりも高く、BCはFCに比べ季節ごとの変動が大きい傾向が見られた。四季毎に見ると、春、夏、秋季には化石燃料由来炭素に比べ、植物由来炭素が高かった。特に夏、秋はBCの著しい増加が見られた。

大気粉塵の場合、BC濃度上昇の大きな要因の一つとして花粉が挙げられる (池盛ほか, 2013)。しかし花粉の平均直径は約 $20\text{--}60 \mu\text{m}$ と $\text{PM}_{2.5}$ に比べ大きいことから、本研究のBCにおいて花粉による影響は無視できると考えられる。従って、福岡近辺もしくは大陸由来の植生、あるいは野焼きや森林火災などの植物燃焼から発生した粒子がBCの発生源として考えられる。

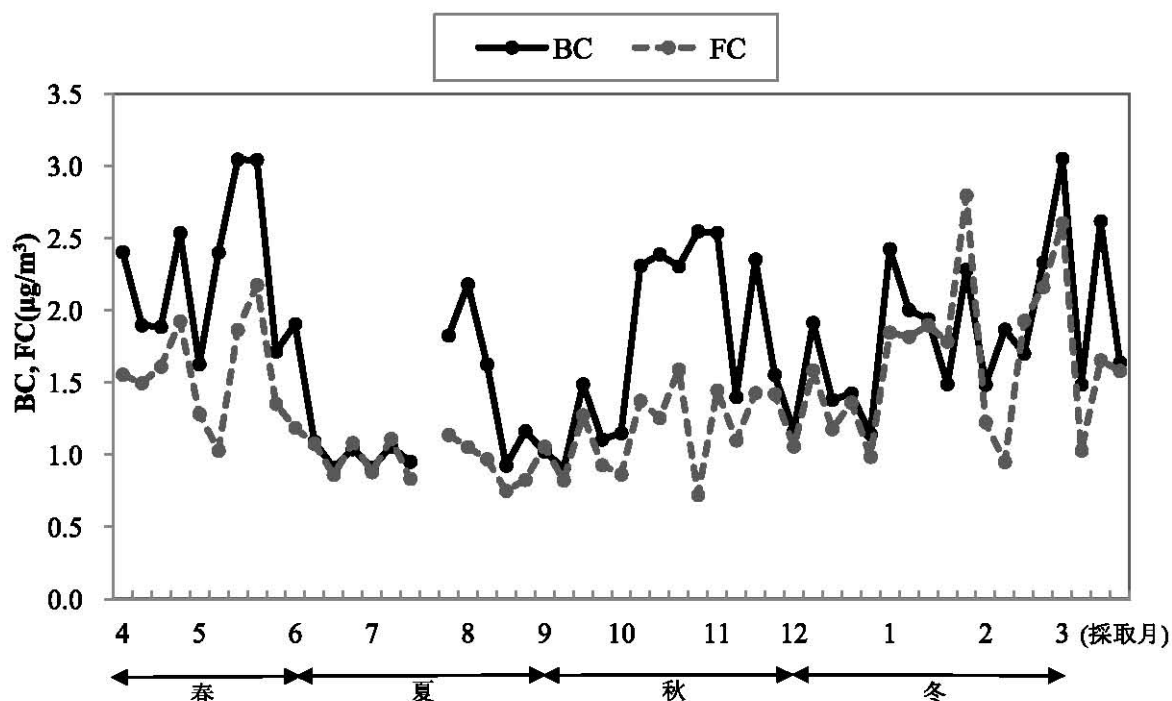


図4. 2012年度におけるBC、FC濃度の変動

Figure 4. Time series of BC and FC concentrations from April 2012 to March 2013.

一方、冬季は ^{14}C 濃度が低下していたためFC濃度が大きく増加しており、1月後半にはBCより高濃度になる期間も見られた。よって冬季の福岡にはFC量を増加させる要因があると予想される。気温の低い日が続く冬季では、接地逆転層（小倉, 1999）の形成によって粒子は滞留しやすくなり、結果粒子濃度の増加を引き起こすことが知られている。PM_{2.5}主要成分のうちNO₃⁻は、都市由来、および中距離輸送を反映しやすい成分の代表である（Takami *et al.*, 2005; Takami *et al.*, 2007）。表1にFCとNO₃⁻との相関係数を記す。冬季においてFCとNO₃⁻との間に四季の中で最も良い相関が見られることから、冬季にFC濃度が上昇した要因の一つとして、福岡近辺、もしくは中距離輸送の影響が示唆される。

表1. FCとNO₃⁻の相関係数 (*: $p < 0.05$; **: $p < 0.01$; ***: $p < 0.001$)
Table 1. Correlation coefficients between FC and NO₃⁻.

春季(n=13)	夏季(n=12)	秋季(n=13)	冬季(n=14)
0.45	0.49	0.43	0.70**

ここで福岡PM_{2.5}中TCの $\delta^{13}\text{C}$ 値の変動を図5に示す。 $\delta^{13}\text{C}$ 値の2012年度平均値は、-24.8‰ (n=52)であった。 $\delta^{13}\text{C}$ 値は春から夏にかけて徐々に小さくなっていくが、夏から冬にかけては年平均値よりも大きくなる傾向が見られた。また季節毎平均値は春季: -25.0‰、夏季: -25.7‰、秋季: -24.6‰、冬季: -24.4‰であり、Kawashima *et al.* (2012)の報告と同様に、四季の中で冬が最も高い値を示す傾向が見られた。この $\delta^{13}\text{C}$ 値はWidory *et al.* (2006)が報告しているディーゼル車由来粒子の $\delta^{13}\text{C}$ 値(-28‰~-26‰)よりも大きいことから、自動車排出以外の発生源が冬季のFCには存在すると考えられる。

以上より、 ^{14}C 濃度、 $\delta^{13}\text{C}$ 測定の結果、特徴的な傾向が見られた冬季について、更に考察を深める。

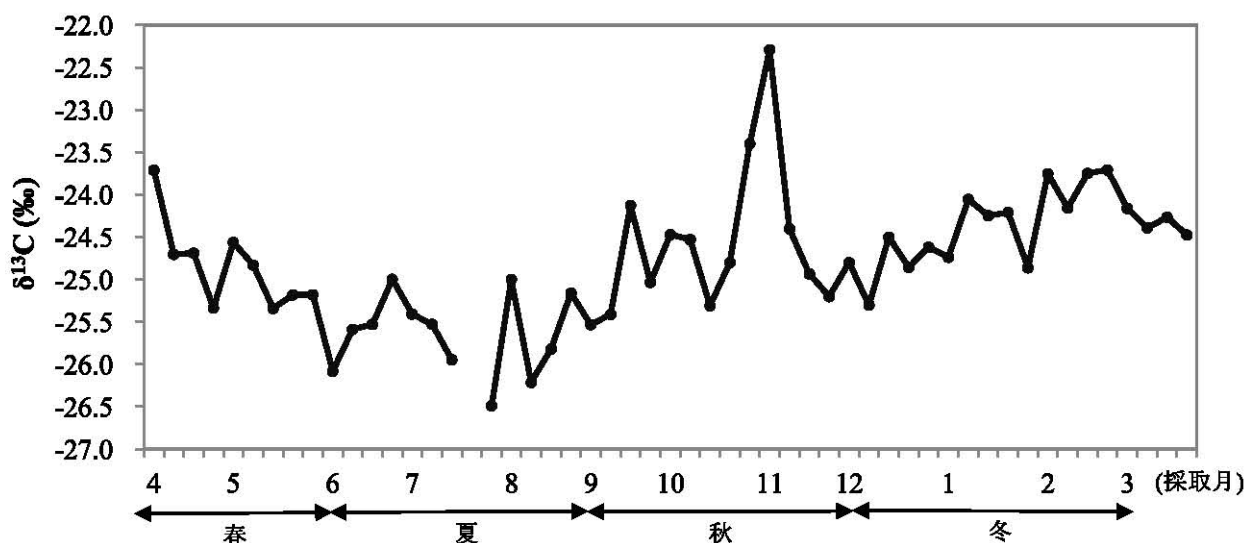


図5. 2012年度における $\delta^{13}\text{C}$ の変動
Figure 5. Time series of $\delta^{13}\text{C}$ concentrations from April 2012 to March 2013.

冬季には、2013年1月に北京を中心に中国北部で発生したPM_{2.5}高濃度現象と、その後の日本への輸送が確認されており、この影響で、西日本の広い地域で環境基準（日平均値）を超えるPM_{2.5}濃度が観測された（大原ら, 2013）。また後方流跡線の結果でも、冬季において高濃度のPM_{2.5}（日平均 35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上）が観測された際に、福岡市に到達した気塊は中国北西部よりもたらされていることがわかる(図 3)。

福岡市PM_{2.5}中の冬季SO₄²⁻は長距離輸送された粒子からの影響を強く受けることがこれまでに明らかとなっていることから（Kaneyasu *et al.*, 2014）、無機イオン成分の中でもSO₄²⁻は大陸からの影響の有無を知る手がかりになると考えられる。表2にFCとSO₄²⁻の相関係数を示す。冬季において、FCとSO₄²⁻との間に明確な相関関係が得られたことから、冬季FCは大陸からの寄与が高いと推測される。

表2 FCとSO₄²⁻との相関係数 (*: $p < 0.05$; **: $p < 0.01$; ***: $p < 0.001$)
Table 2. Correlation coefficients between FC and SO₄²⁻.

春季(n=13)	夏季(n=12)	秋季(n=13)	冬季(n=14)
0.12	0.48	0.61*	0.79***

冬季について、東アジア大陸のFC発生源として特に注目されるのが、石炭の燃焼により発生する粒子である。日本国内では現在暖房に石炭は使用されていないが（資源エネルギー庁, 2013）、中国、特に長江よりも北の地域では、11月～3月の集中暖房期にかけて、住宅暖房用としての石炭が多く使用されており、化石燃料の中でも中国北部で産出される石炭は特に高い $\delta^{13}\text{C}$ 値を持つことが知られている（Court *et al.*, 1981）。家庭暖房から発生した石炭燃焼由来粒子の寄与が大気中で高くなる冬季において、 $\delta^{13}\text{C}$ 値は夏季に比べ高くなることが報告されている（Cao *et al.*, 2011）。本研究でも、冬季、特にFCの増加が見られた1月から2月にかけて(図 4)、福岡PM_{2.5}中TCの $\delta^{13}\text{C}$ 値は石炭由来粒子中のスス状炭素が持つ $\delta^{13}\text{C}$: -23.3‰（Kawashima *et al.*, 2012）付近まで上昇した(図 5)。

以上より、福岡PM_{2.5}中TCの冬季FCは、東アジア大陸より飛来してきた石炭燃料由来粒子の影響を受けていると考えられる。

4. 結論

福岡市においてPM_{2.5}を1年間採取し、PM_{2.5}中全炭素に対し¹⁴C濃度および $\delta^{13}\text{C}$ 値を測定した結果、福岡PM_{2.5}炭素成分は年間を通じ植物由来炭素の寄与が、化石燃料由来炭素に比べ高いことがわかった。季節別にみると、春は化石燃料由来炭素と植物由来炭素が両方増加していた。また夏、秋季は植物由来粒子濃度の著しい増加が見られており、福岡近辺もしくは大陸由来の、植物あるいは野焼きなどの植物燃焼から発生した粒子が、発生源として考えられる。

一方、冬季は化石燃料由来炭素の著しい増加がみられ、上記3季節とは異なる傾向を示した。この冬季における化石燃料由来炭素の増加は、東アジア大陸からの輸送による影響を大きく受けたものであり、この時観測されたPM_{2.5}中全炭素の $\delta^{13}\text{C}$ 値は中国産の石炭由来粒子

がもつ $\delta^{13}\text{C}$ 値付近まで上昇したことから、中国北部の暖房期に伴う石炭燃焼由来粒子が日本にも飛来し、福岡 $\text{PM}_{2.5}$ 中炭素成分に影響をもたらしたと考えられる。

謝辞

研究を行う上で、適切なアドバイスを頂きました名古屋大学年代測定センターの皆様方から感謝を申し上げます。この場を持ちまして深くお礼申し上げます。

引用文献

- 秋元 肇, 中沢高, 河村公隆, 鷺田伸明 (2002) 対流圏大気の化学と地球環境. 学会出版センター, 183-197.
- Cao, J., Chow, J., Tao, J. (2011) Stable carbon isotopes in aerosols from Chinese cities: Influence of fossil fuels. *Atmospheric Environment*, **45**, 1359-1363.
- Chow, J. C., Watson, J. G., Pritchett, L. C., Pierson, W. R., Frazier, C. A., Purcell, R. G. (1993) The DRI thermal/optical reflectance carbon analysis system: description, evaluation and applications in U.S. air quality studies. *Atmospheric Environment*, **27A**, 1185-1201.
- Chow, J. C., Watson, J. G., Crow, D., Lowenthal, D. H., Merrield, T. (2001) Comparison of IMPROVE and NIOSH Carbon Measurements. *Aerosol Science and Technology*, **34**, 23-34.
- Court, J. D., Goldsack, R. J., Ferrari, L. M., Polach, H. A. (1981) The use of carbon isotopes in identifying urban air particulate sources. *Clean Air*, 6-11.
- 本庄浩司, 中村俊夫 (2011) 名古屋市におけるエアロゾル粒子中の ^{14}C 濃度－炭素成分の発生源推定. 名古屋大学加速器質量分析計業績報告書, XXII, 152-161.
- 池盛文数, 肥後隼人, 宮原裕一, 中島大介, 中村俊夫 (2013) 名古屋、福岡、諏訪、上高地におけるTSP中の炭素同位体 ^{14}C . 名古屋大学加速器質量分析計業績報告書, XXIV, 183-186.
- Kaneyasu, N., Yamamoto, S., Sato, K., Takami, A., Hayashi, M., Hara, K., Kawamoto, K., Okuda, T., Hatakeyama, S. (2014) Impact of long-range transport of aerosols on the $\text{PM}_{2.5}$ composition at a major metropolitan area in the northern Kyushu area of Japan. *Atmospheric Environment* (in press).
- Kawashima, H., Haneishi, Y. (2012) Effects of combustion emissions from the Eurasian continent in winter on seasonal $\delta^{13}\text{C}$ of elemental carbon in aerosols in Japan. *Atmospheric Environment*, **46**, 568-579.
- 環境省 (2013) 最近の微小粒子状物質 ($\text{PM}_{2.5}$) による大気汚染への対応
<http://www.env.go.jp/air/osen/pm/info.html> (アクセス 2014年3月6日)
- 資源エネルギー庁 (2013) 平成24年度エネルギーに関する年次報告 (エネルギー白書2013)
<http://www.enecho.meti.go.jp/topics/hakusho/2013/> (アクセス 2014年3月6日)
- Lemire, K. R., Allen, D. T., Klouda, G. A., Lewis, C. W. (2002) Fine particulate matter source attribution for Southeast Texas using $^{14}\text{C}/^{13}\text{C}$ ratios. *Journal of Geophysical Research*, **107**(D22), 4613.
- Minami, M., Kato, T., Miyata, Y., Nakamura, T., Hua, Q. (2013) A first step toward small-mass AMS

- radiocarbon analysis at Nagoya University. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **294**, 91-96.
- Minoura, H., Morikawa, T., Mizohata, A., Sakamoto, K. (2012) Carbonaceous aerosol and its characteristics observed in Tokyo and south Kanto region. *Atmospheric Environment*, **61**, 605-613.
- Ohara, T., Akimoto H., Kurokawa J., Horii N., Yamaji, K., Yan, X., Hayasaka, T. (2007) An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980–2020. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **7**, 4419–4444.
- 大原利眞, 菅田誠治, 清水 厚, 森野 悠 (2013) 日本国内での最近の PM_{2.5} 高濃度現象について(お知らせ), 国立環境研究所 地域環境研究センター
<http://www.nies.go.jp/whatsnew/2013/20130221/20130221.html> (アクセス 2014年3月6日)
- 小倉義光 (1999) 一般気象学(第2版), 東京大学出版会, 75-77.
- 小川佳美, 兼保直樹, 佐藤圭, 高見明憲, 林政彦, 原圭一郎, 畠山史郎 (2012) 長距離輸送された多環芳香族炭化水素とn-アルカン-2009年春季および秋季の沖繩辺戸岬, 福江島, 福岡での測定から-. *大気環境学会誌*, **47**(1), 18-25.
- Takahashi, K., Hirabayashi, M., Tanabe, K., Shibata, Y., Nishikawa, M., Sakamoto, K. (2007) Radiocarbon content in urban atmospheric aerosols. *Water Air and Soil Pollution*, **185**, 305-310.
- Takami, A., Miyoshi, T., Shimono, A., Hatakeyama, S. (2005) Chemical composition of fine aerosol measured by AMS at Fukue Island, Japan during APEX period. *Atmospheric Environment*, **39**, 4913-4924.
- Takami, A., Miyoshi, T., Shimono, A., Kaneyasu, N., Kato, S., Kajii, Y., Hatakeyama, S. (2007) Transport of anthropogenic aerosols from Asia and subsequent chemical transformation. *Journal of Geophysical Research*, **112**, D22S31.
- Widory, D. (2006) Combustibles, fuels and their combustion products: A view through carbon isotopes. *Combustion Theory and Modelling*, **10**, 831-841.

日本語要旨

福岡の PM_{2.5} の化石燃料由来炭素 (FC)、および植物由来炭素 (BC) の季節変化に対し研究を行った。PM_{2.5} 中全炭素に対し ¹⁴C 濃度ならびに $\delta^{13}\text{C}$ を測定した。2012年4月から2013年3月にかけての福岡における ¹⁴C 濃度の年平均は 57.1 ± 6.4 pMC (n=52) であった。春、夏、秋は FC に比べ BC の濃度が高かったが、冬には FC の増加が見られた。また冬の $\delta^{13}\text{C}$ は他季節に比べ高かった。これらの結果から、冬の FC の高濃度ならびに高い $\delta^{13}\text{C}$ は、中国北西部から長距離輸送されてきた、家庭暖房用の石炭の燃焼によって発生したものが原因である可能性が示唆された。