

2. 大気浮遊粉じんの粒度分布に関する調査研究

Studies on the Size Distribution of Suspended Particulate in
Kawasaki City

石田哲夫・林久緒・島田ひろ子・永田正信・市橋正之

Tetsuo ISHIDA, Hisao HAYASHI, Hiroko SHIMADA, Masanobu NAGATA
and Masayuki ICHIHASHI

1. はじめに

大気中に浮遊する粉じんのうち、とくに10ミクロン以下の粉じんである浮遊粒子状物質は呼吸器内に侵入する率が高いと言われ、環境基準が設けられている。そして、それら浮遊粉じんの粒度分布を測定することは粉じんによる大気汚染の把握に重要な情報もたらされ、最近はとくに注目されている。そこで当公害研究所でも、昭和50年から2年間にわたり浮遊粉じんの粒度分布について測定を行ない、その結果について検討したので報告する。

なお、調査期間内において特異的現象として黄砂がみられたので、その時の粒度分布測定も行ったので、併せてその結果について報告する。

2. 測定方法

2.1 測定期間及び試料採取回数

調査期間は次のように1期と2期に分けた。

第1期：昭和50年 夏(7月), 秋(10月)

昭和51年 冬(1月), 春(4月)

第2期：昭和51年 夏(7月), 秋(10月)

昭和52年 冬(1月), 冬(4月)

それぞれの季節における試料採取回数は3~4回として、2年間で28試料を採取した。

2.2 試料採取場所

川崎市公害研究所屋上(川崎区田島町)

2.3 試料採取方法

アンダーセンサンプラー(図1, 図2.)の各捕集ステージに、それぞれガラス繊維ろ紙を固定し、規定流量の28.3ℓ/minで大気を吸引して試料を採取した。1試料についてのサンプリング日数は3~5日間とした。

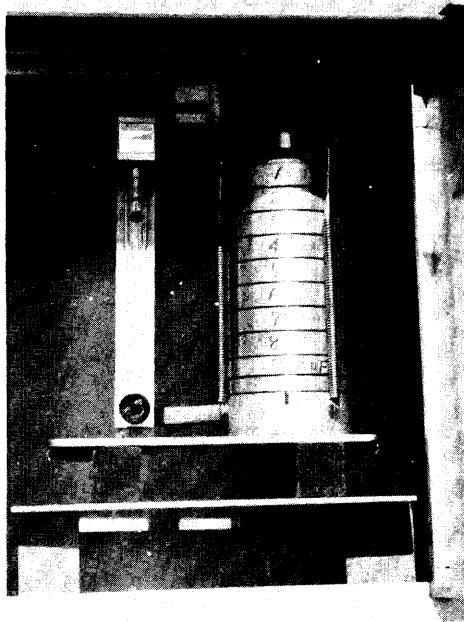


図1 アンダーサンプラー

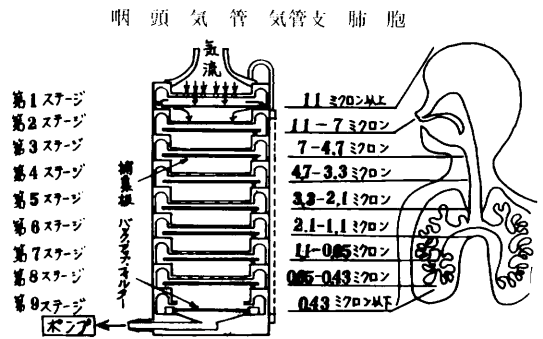


図2 アンダーサンプラーの構造と粒度分布

3. 測定結果及び考察

3.1 季節別の平均粒度分布について

第1期及び第2期におけるそれぞれの季節別平均粒度分布と、2年間平均の季節別粒度分布を表1に示した。また2年間平均の季節別粒度分布における累積百分率を対数正規確率紙に図示した(図3の(a)~(d))。

3.1.1 浮遊粉じんの対数正規分布について

従来浮遊粉じんの粒度分布は、対数正規分布として取扱われることが多かった。最近の研究では対数正規分布に近似していることが報告されている^{1), 2)}。

今回の粒度分布調査結果においても、図3のように、いずれの季節とも対数正規確率紙上に直線とは認めにくい結果が得られた。

表1 季節別平均粒度分布 (昭和50年7月~昭和52年4月)

($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

ステージ	捕集粒径範囲	第1期(昭和50年7月~51年4月)				第2期(昭和51年7月~52年4月)				2年間平均の粒度分布				
		夏(7月)	秋(10月)	冬(1月)	春(4月)	夏(7月)	秋(10月)	冬(1月)	春(4月)	夏(7月)	秋(10月)	冬(1月)	春(4月)	
2.1 μm 以上の粉じん	1	~11(μm)	20	9	27	14	10	12	19	11	15	11	23	12
	2	11~7.0	7	5	11	7	4	9	12	6	6	7	11	6
	3	7.0~4.7	9	8	13	11	6	12	13	9	7	10	13	10
	4	4.7~3.3	9	8	10	13	6	12	11	9	7	11	11	11
	5	3.3~2.1	8	7	6	11	5	10	8	5	6	9	7	8
2.1 μm 以下の粉じん	6	2.1~1.1	6	6	6	7	4	11	8	4	5	9	7	5
	7	1.1~0.65	7	11	11	10	5	18	12	6	5	15	12	8
	8	0.65~0.43	10	12	12	11	4	17	12	7	7	15	12	9
	9	0.43~	22	15	17	11	6	16	15	8	13	16	15	10
2.1 μm 以上の粉じん		53(54)	37(46)	67(59)	56(59)	31(62)	55(47)	63(57)	40(62)	41(58)	48(47)	65(59)	47(59)	
2.1 μm 以下の粉じん		45(46)	44(54)	46(41)	39(41)	19(38)	62(52)	47(43)	25(38)	30(42)	55(53)	46(41)	32(41)	
浮遊粉じん総量		98(100)	81(100)	113(100)	95(100)	50(100)	117(100)	110(100)	65(100)	71(100)	103(100)	111(100)	79(100)	
MMD(μm)		2.9	1.4	3.4	3.0	3.3	1.6	3.0	3.5	3.2	1.6	3.5	3.2	

注1. 浮遊粉じん総量とは、各ステージにおける粉じん濃度の総量

注2. ()内の数字は、浮遊粉じん総量に対する割合(%)

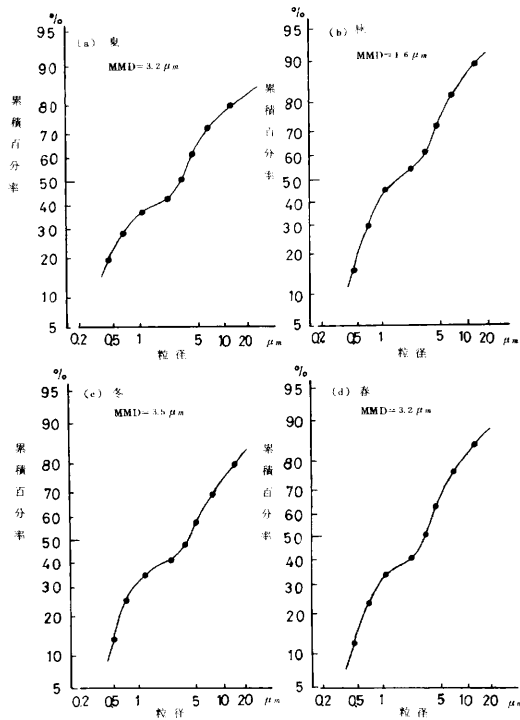


図3. 2年間における季節別平均的粒度分布の累積百分率
(対数正規率紙)

3.1.2 平均粒径 (mass median diameter)

対数正規率紙よりあえて平均粒径 (MMD) を求めた結果を、表1の下欄に示した。2年間平均の季節別において、夏、冬、春が $3.2 \sim 3.5 \mu\text{m}$ なのに対して、秋は $1.6 \mu\text{m}$ と小さく、他の季節にくらべ微細な粉じんが多い傾向がわかった。

また、表1には示していないが、夏と秋における個々の測定値の中には、平均粒径が $1 \mu\text{m}$ 以下という場合もあった。 $1 \mu\text{m}$ 以下の粉じんは、図2のように肺胞まで達する可能性があり、今後さらにこのような微細な粒径域の研究も必要と思われる。

3.1.3 粒度分布のヒストグラム化

2年間平均の季節別粒度分布を、ステージ別にヒストグラム化したものが図4の(a)~(d)である。この時の濃度表示は各ステージに採取された濃度 Δm となる。このようなステージ別のヒストグラムでもおおよその粒度分布の様子を知ることができる。

しかし、アンダーセンサンプラーは各ステージの分級粒径範囲が異なっている。また第1ステージ及び第9ステージ (バック・アップ・フィルター) ではそれぞれの粒度の上限、下限が定まらない。そのため分級特性の異なるサンプラーによって得られた粒度分布との比較はできない。

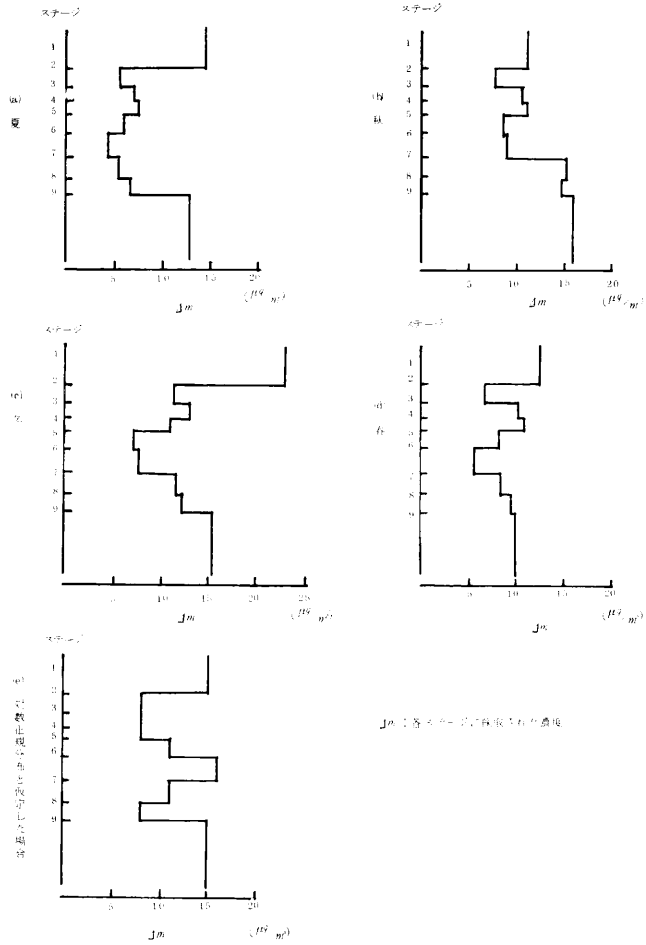


図4 2年間平均における季節別のステージ別沈積率分布

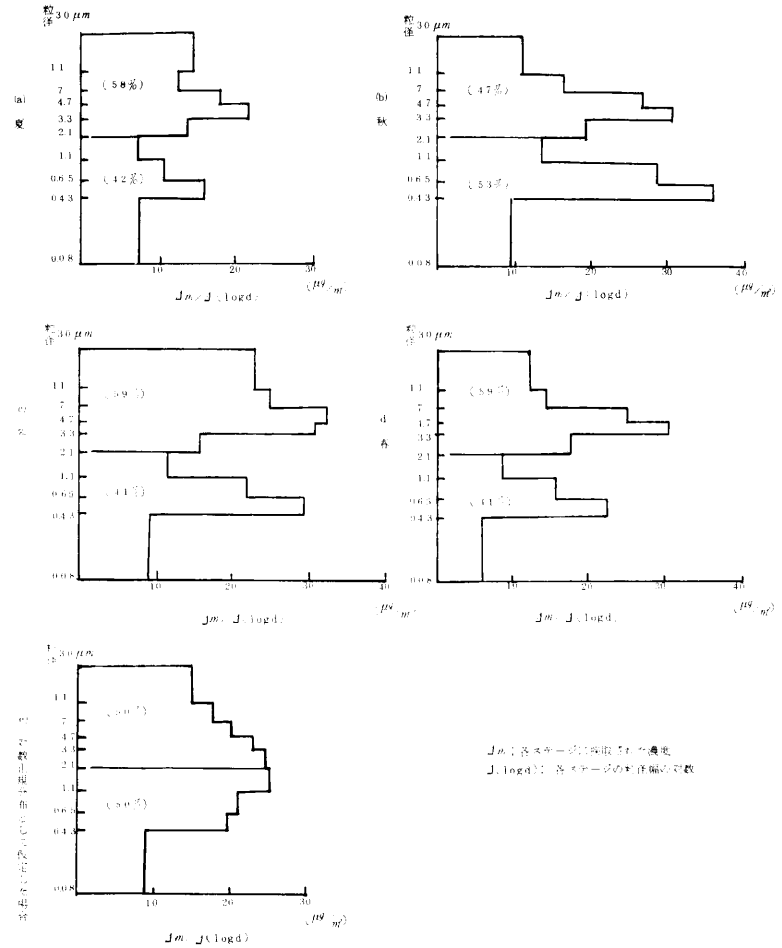


図5 2年間平均における季節別の沈積率分布(観測偏を補正した観測による)

注：図中のカッコ内の数字は浮遊物じん総量に対する割合

そこで参考文献^{1),3)}に報告されている手法により、 Δm を各ステージの粒径幅の対数 $\Delta(\log d)$ で除した $\Delta m/\Delta(\log d)$ で濃度を表わすと、そのヒストグラムは図5の(a)~(d)に示したようになる。すなわち、単位粒径当りの粉じん濃度から得られた図5のヒストグラムから、市内の浮遊粉じんの粒度分布は各季節とも2山型をなしていることがわかった。

また、浮遊粉じん濃度 $100\mu m/m^3$ の粉じんが対数正規分布しているものと仮定してヒストグラム化したものを対照として図4(e)と図5(e)に示した。

3.1.4 2山型の粒度分布について

3.1.3で単位粒径当りの濃度を求めたヒストグラムの頂点を結んで折線度数グラムを作ると、表1の2年間平均の季節別粒度分布が図6のとおりになった。

この図から各季節とも、 $2.1\sim 1.1\mu m$ を谷として、モード径 $4.7\sim 3.3\mu m$ 及び $0.65\sim 0.43\mu m$ の2山型の粒度分布がさらに明確に示された。

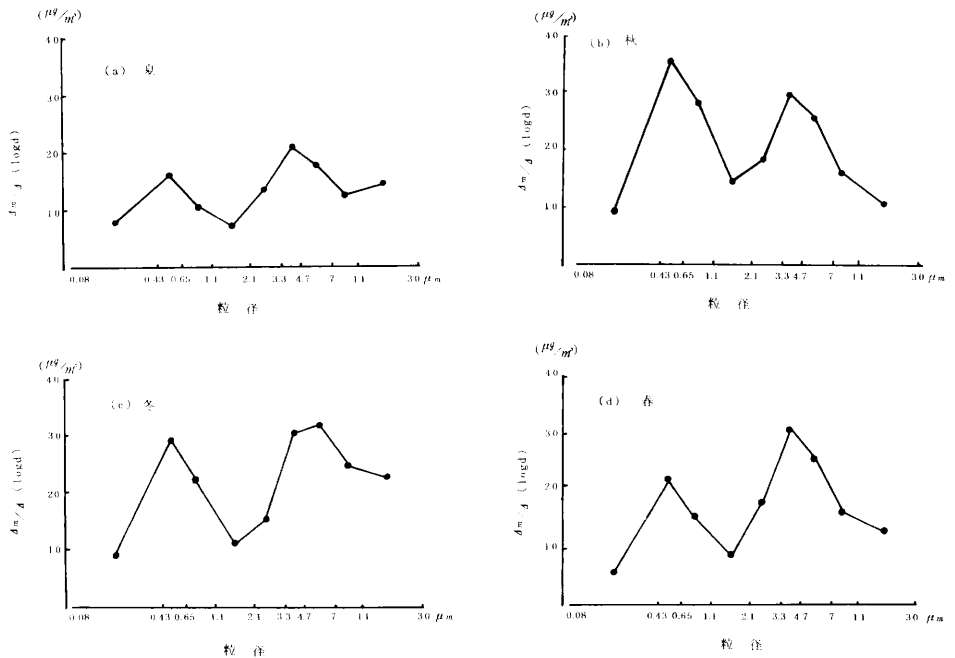


図6. 2年間平均の季節別粒度分布

このように $2\mu m$ 付近を谷とした2山型の分布がみられたので、 $2.1\mu m$ を境として、それ以上の粒径の粉じんとそれ以下の粒径の粉じんに分けて、表1の下欄にした⁴⁾。

()内は浮遊粉じん総量に対する割合を示してある。

2.1 μm 以下の粉じんは、夏、冬、春が約40%なのに対して、秋には50%を越えており、微細な粉じんが多い傾向であった。

3.1.5 浮遊粉じん総量

この調査における浮遊粉じん総量とは、アンダーセンサンプラーで採取した各ステージにおける粉じん濃度の総量であり、表1に示してある。この浮遊粉じん総量を季節別に比較してみると、冬>秋>春>夏の順で高い濃度であった。これは、市内の浮遊粒子状物質濃度と同じ傾向であった⁵⁾。

第1期と第2期の浮遊粉じん総量を比較してみると、第1期の夏は第2期の約2倍の濃度であり、第1期の秋は第2期の約7割、第2期の春は第1期の約7割の濃度であったのに対して、気象的に比較的安定している冬はほぼ同じ濃度であった。このように、夏においては年によって、濃度に差がとくにみられる。これは気象的要因が強く影響しているものと考えられる。

3.2 浮遊粉じん総量の高濃度及び低濃度時における粒度分布について

表2に浮遊粉じん総量が最高、最低値を示した時の粒度分布を季節別に示した。この表をヒストグラム化したものが図7である。

表2 浮遊粉じん総量が最高、最低値の粒度分布及び平均粒径 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

	ステージ	捕集粒径 範 囲	夏(7月)		秋(10月)		冬(1月)		春(4月)	
			Max.	Min.	Max.	Min.	Max.	Min.	Max.	Min.
2.1 μm 以上の 粉じん	1	~11(μm)	20	11	12	5	20	11	16	10
	2	11~7.0	8	4	8	4	13	7	8	6
	3	7.0~4.7	10	6	13	5	17	8	13	8
	4	4.7~3.3	10	6	13	6	16	7	13	7
	5	3.3~2.1	8	5	11	5	11	6	10	4
2.1 μm 以下の 粉じん	6	2.1~1.1	8	3	15	5	12	6	7	4
	7	1.1~0.65	11	3	32	8	18	7	11	6
	8	0.65~0.43	16	3	28	8	17	7	13	5
	9	0.43~	28	5	22	13	19	10	12	7
2.1 μm 以上の粉じん			56(47)	32(70)	57(37)	25(42)	77(54)	39(57)	60(58)	35(61)
2.1 μm 以下の粉じん			63(53)	14(30)	97(63)	34(58)	66(46)	30(43)	43(42)	22(39)
浮遊粉じん総量			119(100)	46(100)	154(100)	59(100)	143(100)	69(100)	103(100)	57(100)
M M D (μm)			1.4	4.0	1.0	1.1	2.4	3.0	3.0	3.6

注1. 浮遊粉じん総量とは、各ステージにおける粉じん濃度の総量

注2. ()内の数字は、浮遊粉じん総量に対する割合(%)

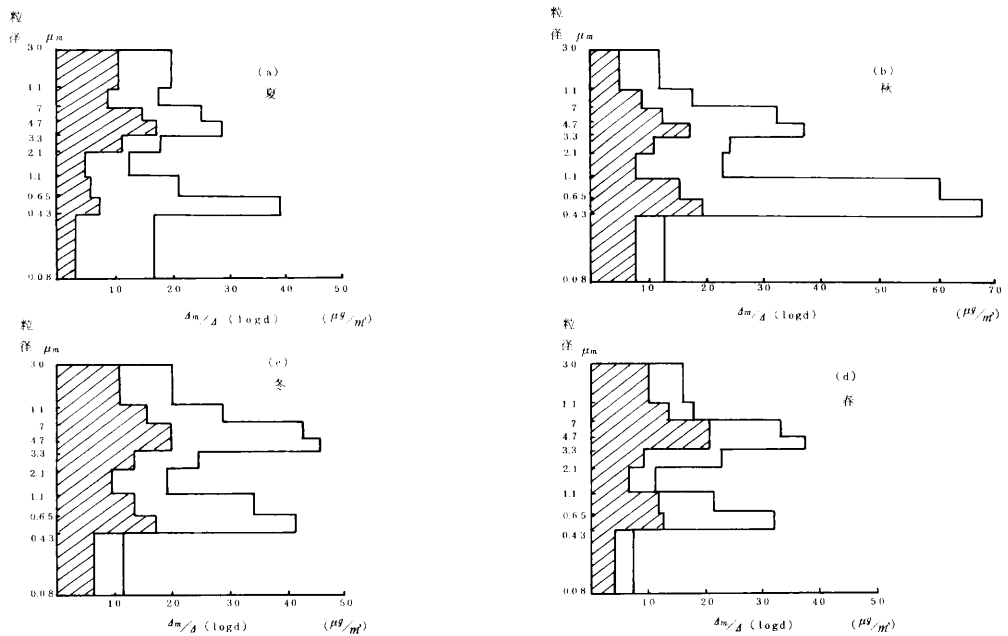


図7. 浮遊粉じん総量が最高値、最低値を示した時の粒度分布

注: 斜線わくの部分が最低値を示した時の粒度分布

白わく部分と斜線わくの部分の和が最高値を示した時の粒度分布

図7. 浮遊粉じん総量が最高値、最低値を示した時の粒度分布

注. 斜線わくの部分が最低値を示した時の粒度分布

白わく部分と斜線わくの部分の和が、最高値を示した時の粒度分布

この図及び表から浮遊粉じん総量が最高、最低値を示した時の $2.1 \mu m$ 以下の粉じんの総量に対する割合を比較してみると、夏においては、最高値を示した時が 5.3% 、最低値を示した時が 3.0% というように、高濃度時には微細な粉じんが増加しているような傾向にあった。その他の季節でも同様な傾向がみられた。

また、平均粒径を比較してみると、浮遊粉じん濃度が最高値を示した時の方が、最低値を示した時にくらべ、各季節ともに、平均粒径は小さくなる傾向であった。すなわち、浮遊粉じんが高濃度の時には浮遊粉じん中に微細な粉じんが増加するものと考えられる。

4. 黄砂現象時における浮遊粉じんの粒度分布

昭和52年3月15日から17日にかけて、全国的に黄砂現象が観測された。当研究所においても当日、ハイボリューム・エア・サンプラー及びアンダーセンサンプラーで黄砂の測定を行ったところ、浮遊粉じん濃度(Hi-Vol)は800~1,600 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ という結果であった。次に黄砂時の粒度分布についてまとめてみた。

4.1 サンプリング

4.1.1 測定年月日

昭和52年3月15日~3月19日

4.1.2 測定場所

川崎市公害研究所屋上

4.2 測定結果及び考察

粒度分布の測定結果を表3に示した。その粒度分布の累積百分率を対数正規確率紙に図示した(図8)。また図9には粒度分布のヒストグラフを示した。

表3 黄砂時の粒度分布 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

	ステージ	捕集粒径 範 囲	昭和52年3月 15~19日
2.1 μm 以上の 粉じん	1	~1 (μm)	32(7)
	2	11~7.0	32(7)
	3	7.0~4.7	90(19)
	4	4.7~3.3	126(27)
	5	3.3~2.1	107(23)
2.1 μm 以下の 粉じん	6	2.1~1.1	36(8)
	7	1.1~0.65	16(3)
	8	0.65~0.43	11(2)
	9	0.43~	18(4)
2.1 μm 以上の粉じん			387(83)
2.1 μm 以下の粉じん			81(17)
浮遊粉じん総量			468(100)
M M D (μm)			3.5

注1. 浮遊粉じん総量とは、各ステージにおける粉じん濃度の総量

注2. ()内の数字は、浮遊粉じん総量に対する割合(%)

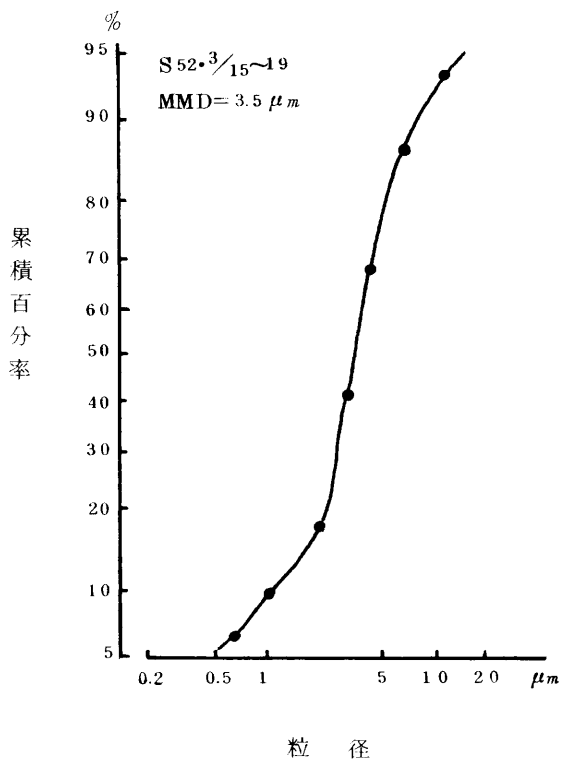


図8. 黄砂時における粒度分布の累積百分率(対数正規確率紙)

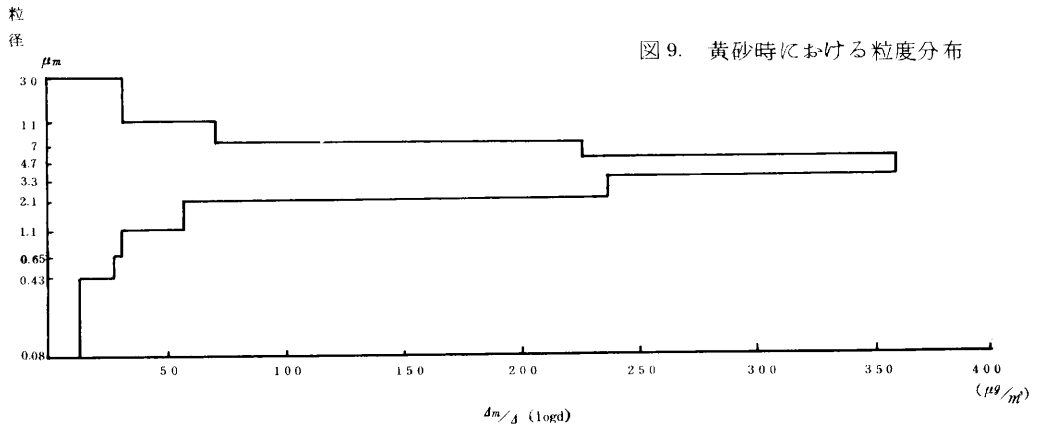


図9. 黄砂時における粒度分布

黄砂は、 $4\ \mu\text{m}$ 付近をピークとした1山型の対数正規分布した比較的粒径範囲の狭い粉じんと思われる。第3～5ステージに捕集された粉じん ($7\sim 2.1\ \mu\text{m}$) は、全量の約70%を占めていた。なお、中国大陸より飛来してきた黄砂は、土壌成分に由来していることが分析されている⁶⁾。

5. まとめ

昭和50年から2年間にわたり季節別に行なってきた浮遊粉じんの粒度分布測定結果は次のようである。

1) 各季節における浮遊粉じんの粒度分布は、 $2\ \mu\text{m}$ 付近を谷として、モード径が $2.1\sim 1.1\ \mu\text{m}$ 及び $0.65\sim 0.43\ \mu\text{m}$ の2山型の分布がみとめられ、一概に対数正規分布しているとは言い難い結果であった。

そしてその分布は夏、冬、春は $2\ \mu\text{m}$ 以上の粉じんが約60%、 $2\ \mu\text{m}$ 以下の粉じんが約40%であった。秋はやや異なり、 $2\ \mu\text{m}$ 以上が47%、 $2\ \mu\text{m}$ 以下が53%であり、 $2\ \mu\text{m}$ 以下の粉じんが比較的多い傾向であった。

2) 浮遊粉じんの平均粒径(MMD)は、夏、冬、春は $3.2\sim 3.5\ \mu\text{m}$ なのに対して、秋は $1.6\ \mu\text{m}$ と他の季節にくらべて小さく、微細な粉じんが多くなっている傾向であった。

また夏と秋には、浮遊粉じんの約半分が $1\ \mu\text{m}$ 以下という時もあった。

3) 各季節とも浮遊粉じんが高濃度の時は、 $2\ \mu\text{m}$ 以下の微細な粉じんが増加する傾向であった。

参 考 文 献

- 1) 角脇 怜; 分析化学, **23**, 490 (1974)
- 2) 藤村 満, 橋本芳一; 分析化学, **24**, 36 (1975)
- 3) J.F.Roesler ほか; J.Air Pollut.Control Ass., **15**, 576 (1965)
- 4) 藤村 満, 橋本芳一; 日本化学会誌, **6**, 902 (1977)
- 5) 永田正信ほか; 当研究所年報; **4**, 18 (1976)
- 6) 漆山佳雄, 新潟県公害研究所研究報告; **2**, 13 (1977)