

3 種々の浮遊粒子状物質自動計測器の比較検討

Comparative Studies on some Types of Suspended Particulate Matter Automatic Monitor

井上康明	Yasuaki INOUE
林久緒	Hisao HAYASHI
早坂孝夫	Takao HAYASAKA
黒沢芳則	Yoshinori KUROSAWA
石田哲夫*	Tetuo ISHIDA
岩瀬義男**	Yoshio IWASE

1. はじめに

浮遊粒子状物質の環境基準は昭和47年に公布され、それに伴い、光散乱法による自動計測器（以下Digital Dust計）での浮遊粒子状物質の測定及び環境基準評価が、公布と同時に全国で行なわれるようになった。しかしDigital Dust計はその測定原理から相対濃度測定法と呼ばれており、浮遊粒子状物質はDigital Dust計で直接計測できない。従って浮遊粒子状物質の環境基準に伴う測定指針が昭和47年5月に環境庁により示された。この測定指針の中にはDigital Dust計のF値による校正が示されている。しかし、このF値校正は湿度影響や地域差、季節変動等種々の問題点があり、それらの問題点は数多く報告^{1), 2), 3), 4)}されている。したがって光散乱法による相対濃度測定法でなく、浮遊粒子状物質濃度を直接重量濃度で測定できる自動計測器か、或いは重量濃度測定法と等価の濃度を示す自動計測器の開発が望まれるようになった。その後、重量濃度測定法と等価の濃度を示す自動計測器として、圧電天びん法とベータ線吸収法といった新しい測定方法による自動計測器（以下等価濃度測定法）が開発された。これら等価濃度測定法の自動計測器の精度に関する研究は国などを中心に数多く報告^{5), 6), 7)}されている。それらの結果に基づき、昭和56年6月の環境庁告示により、ピエゾバランス式ダスト計（Piezo計）とベータ線吸収式ダスト計（ β 線計）2機種が浮遊粒子状物質の測定法に新たに追加採用された。この採用に伴い、等価濃度測定法の自動計測器の保守マニュアルが、環境庁より各自治体に対し昭和57年2月に通達された。この通達の中で、各自治体が等価濃度測定法の自動計測器の採用又は使用するにあたり、事前に十分な性能調査を行うといった留意事項が示されている。従って本市においてもこのマニュアルに添った形で各自動計測器の検討を行ったので報告する。

* 川崎市公害監視センター

** 川崎市公害局騒音振動第二課

2. 調査方法

調査内容は①野外における標準測定方法（重量濃度測定法）との同時測定結果に基づいた比較（フィールド調査）②ゼロドリフト試験等である。

2・1 調査期間及び調査場所

フィールド調査期間は昭和57年6月16日～12月8日であった。ゼロドリフト試験期間は昭和57年12月9日～58年1月31日であった。

調査場所は川崎市田島保健所屋上（国設川崎：川崎市川崎区）で各計測器等を稼働させた。

2・2 使用機器

2・2・1 等価濃度測定法の自動計測器

使用した等価濃度測定法の自動計測器は、Piezo計1社1機種2台、 β 線計4社4機種5台の合計7台であった。又、常時監視に使用しているDigital Dust計（AP-632型；柴田化学機械工業（株））の測定結果は等価濃度測定法の比較検討に際し、同時に検討された。なお、等価濃度測定法の自動計測器の仕様は表1に示してある。

表1 等価濃度測定法の自動計測器の仕様

機種記号	A社	B社	C社	D社	E社	備 考
	A ₁ , A ₂	B	C	D ₁ , D ₂	E	
1. 測定原理	圧電大ひん法	β 線吸収法	β 線吸収法	β 線吸収法	β 線吸収法	
2. 捕集方法	静電捕集	ろ過捕集	ろ過捕集	ろ過捕集	ろ過捕集	G.P. ガラス繊維フィルター
3. 捕集ろ紙	—	GS-25R(G.P.)	AF07P(T.F.)	AP-20(G.P.)	AP-20(G.P.)	
4. ろ紙使用期間	—	3か月	2か月	3か月	1か月	T.F. テフロンフィルター
5. 分粒方式	慣性衝突	サイクロン	多段式	サイクロン	サイクロン	
6. 採気時間(A)	5.6分	5.3分	5.6分	5.5分	5.5分	
7. 採気量(B)	22ℓ/min	20ℓ/min	20ℓ/min	15ℓ/min	18ℓ/min	
8. 捕集径(C) (捕集面積)(D)	— —	1.1mmφ (0.95cm ²)	1.5mmφ (1.77cm ²)	9mmφ (0.64cm ²)	1.2mmφ (1.13cm ²)	
9. B/D	—	21ℓ/min・cm ²	11ℓ/min・cm ²	23ℓ/min・cm ²	15ℓ/min・cm ²	
10. A×B/D	—	1116ℓ/cm ²	633ℓ/cm ²	1297ℓ/cm ²	876ℓ/cm ²	
11. 測定範囲	0~5mg/m ³	0~10mg/m ³	0~5mg/m ³	0~10mg/m ³	0~5mg/m ³	
12. β 線源	—	¹⁴ C	¹⁴⁷ Pm	¹⁴ C	¹⁴⁷ Pm	
13. 検出器	水晶発振子	プラスチック シンチレーション	電離箱	プラスチック シンチレーション	半導体検出器	
14. 消費電力	150VA以下	500VA以下	500VA以下	600VA以下	150VA	

2・2・2 重量濃度測定法の機器

等価濃度測定法の自動計測器との比較に用いた機器は多段型ローボリュウム・エア・サンプラー（L-20型、柴田化学機械工業（株）製；以下SLV）1台であった。また参考として用いた重量濃度測定法の機種はアンダーセン・ローボリュウムサンプラー（AN-200、ダイレック製；以下ALV）1台、サイクロン・ローボリュウム・エア・サンプラー（S-2型、新宅機械製；以下CLV）であった。

2・3 重量濃度測定法の機器のサンプリング期間及び使用ろ紙

SLVは2～3日単位で稼働させた。又、使用したろ紙は石英繊維ろ紙（Pallflex 2500 QAST）であった。

ALVは1週間単位で稼働させた。又、使用したろ紙はテフロン含浸ろ紙（Pallflex T60 A20）であった。

CLVはALVと同様に1週間単位で稼働させた。又、使用したろ紙は石英繊維ろ紙（Pallflex 2500 QAST）であった。

2・4 ゼロドリフト試験方法

ゼロドリフト試験方法は、ステンレスろ紙ホルダーに110mmφ（有効径100mmφ）の石英繊維ろ紙を装着し、各自動計測器の大気吸入口にステンレスホルダーを取り付け、それぞれの自動計測器を設定流量で稼働させ、1時間値を計測した。

3. 調査結果

3・1 自動計測器と重量濃度測定法の比較結果

表2 SLV濃度と各自動計測器の値の比較

自動計測器	N	回帰式 (Y:LV値)	相関係数	SLV値との比較 SLV値に対し $10\mu\text{g}/\text{m}^3$ 又は10%の範囲に入る 回数と割合	
A社 Piezo計	50	$Y=0.99\times-1.6$	0.985	40回	80.0%
Piezo計(Na.2)	57	$Y=0.89\times+6.3$	0.962	12回	73.7%
B社 β 線計	50	$Y=0.96\times-1.3$	0.989	47回	94.0%
C社 β 線計	50	$Y=1.15\times-3.6$	0.935	36回	72.0%
D社 β 線計	50	$Y=1.31\times-2.1$	0.936	24回	48.0%
β 線計(Na.2)	8	$Y=1.23\times-3.6$	0.997	5回	62.5%
E社 β 線計	18	$Y=1.12\times-5.6$	0.949	13回	72.2%
Digital Dust	68	$Y=0.89\times+2.9$	0.957	55回	80.9%

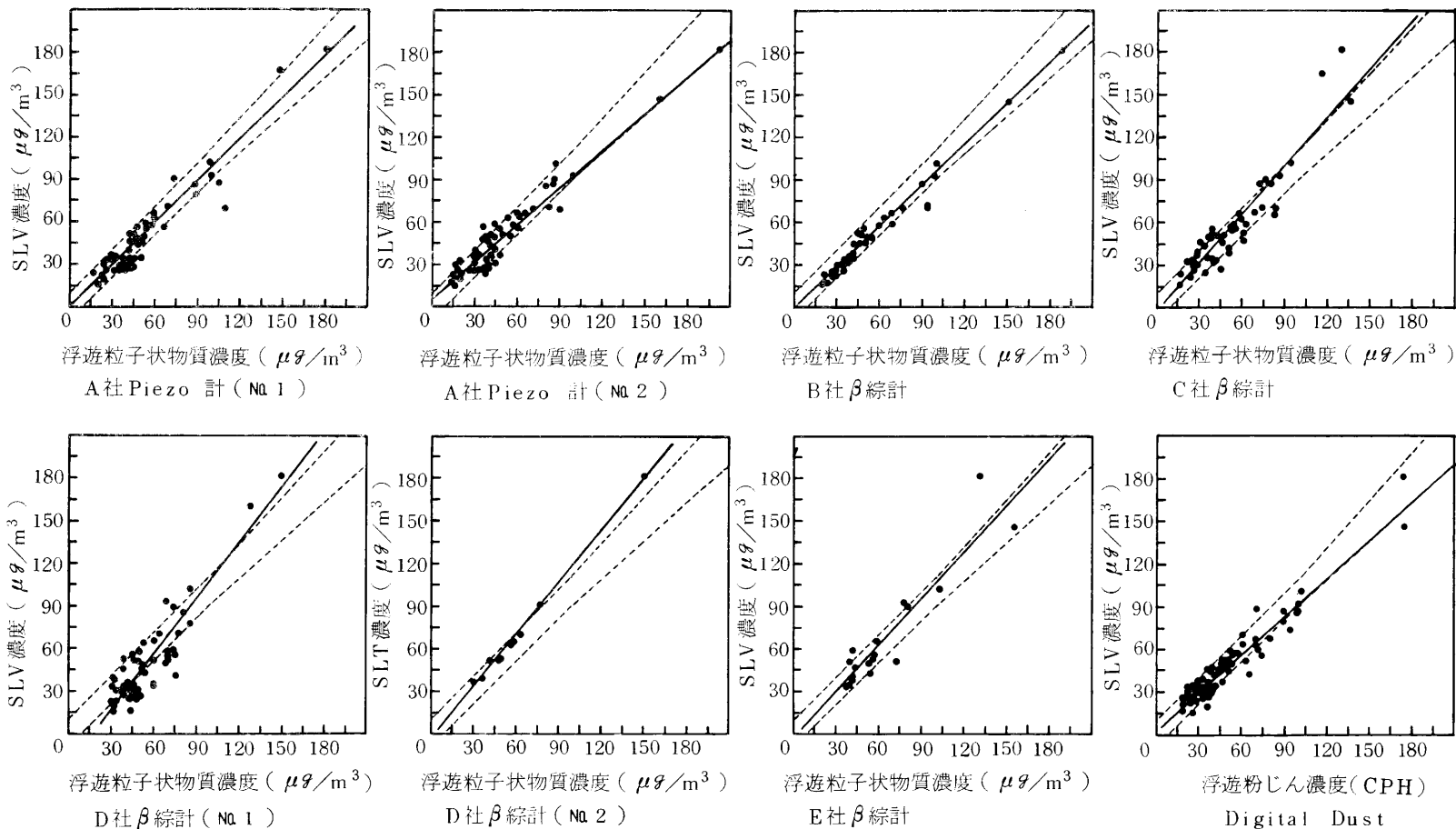


図1 SLV濃度と各自動計測器濃度との関係

(図中の破線はY = Xに対し±10μg/m³又は±10%の範囲を示す。)

SLVと各自動計測器との浮遊粒子状物質濃度の比較結果は表2に相関係数、回帰式等で示した。又、図1にはSLVと各自動計測器との浮遊粒子状物質濃度の関係が、散布図で示されている。D社β線計(№2)とE社β線計の結果は、サンプル数が他の自動計測器に比べ少なかったが、参考として表2に示した。その他の自動計測器のサンプル数は50以上得られていた。

SLV濃度と各自動計測器の濃度の相関係数は0.935~0.997であり、高い相関性が確認された。回帰式の切片は、D社β線計(№1)の切片が $-21 \mu\text{g}/\text{m}^3$ となり、原点から大きくずれていたが、他の自動計測器の回帰式の切片は $-5.6 \sim +6.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、原点からのずれは $\pm 10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以内とあまり大きくなかった。回帰係数は、D社β線計(№1)の1.31と最も大きく、次いでD社β線計(№2)の1.21が大きかった。その他の自動計測器の回帰係数は1.15~0.89の範囲であった。

昭和57年2月の環境庁通達の保守マニュアルの中に、各自動計測器の測定結果はSLV濃度が $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える場合にはSLV濃度の $\pm 10\%$ 以内、又SLV濃度が $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下の場合にはSLV濃度の $\pm 10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以内の範囲内におさまるようにと、規定がされている。表2の“SLV濃度との比較”の項は、各自動計測器の測定値が前述した範囲内にどの程度含まれるかを判断するため、範囲内のサンプル数、及びそのサンプル数の全体のサンプル数に対する割合を示した。又、図1に描かれている破線はこの範囲を表わしている。その結果によると、D社β線計の割合が50%以下であった。すなわち、この計測器は重量濃度測定法で得られた値に対し、最もずれの大きいものであった。又、このD社β線計(№1)濃度とSLV濃度との関

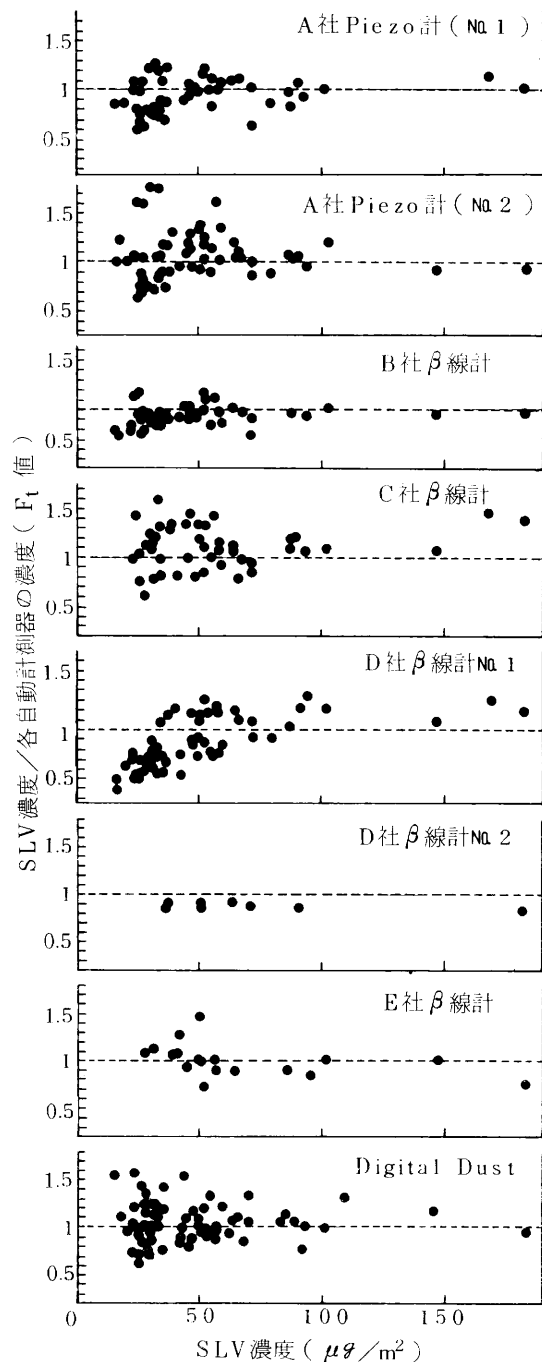


図2 SLV濃度とSLV濃度/各自動計測器の濃度との関係

係を図1で見ると、SLV濃度に対して、低濃度域では自動計測器側が高く、高濃度域では低めに計測されている。D社β線計(№2)はサンプル数が少ないので除き、その他の自動計測器の割合は70%以上を示していた。最も高い割合を示した自動計測器はB社β線計であった。

Digital Dust計の濃度を等価濃度測定法と同様にSLV濃度と比較した場合、その結果は80%近い割合を示し、最も良い結果を示したB社β線計に次いで高い割合であった。

図2は、SLV濃度を横軸に、(SLV濃度/自動計測器濃度)を縦軸に取り、プロットしたものである。縦軸の(SLV濃度/自動計測器濃度)はDigital Dust計のF値算出の際のFt値に相当する。これら等価濃度測定法の自動計測器のFt値は、SLV濃度が低濃度の場合、バラツキが大きくなっていた。又、Digital Dust計のFt値も低濃度域でバラツキが大きかった。D社のβ線計(№2)のFt値はバラツキが少ないが、サンプル数が少なく、他の自動計測器との比較はできない。B社のβ線計のFt値は0.7~1.2と最もバラツキが少なかった。A社のPiezo計2台ではpiezo計(№1)がPiezo計(№2)より、Ft値のバラツキは少なかった。D社β線計(№1)はSLV濃度が50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下と低濃度の時、Ftが1以下に偏る傾向があった。

3.2 ゼロドリフト試験

図3にA社Piezo計(№1)とB、E社のβ線計及びDigital Dust計の経時変化を示した。

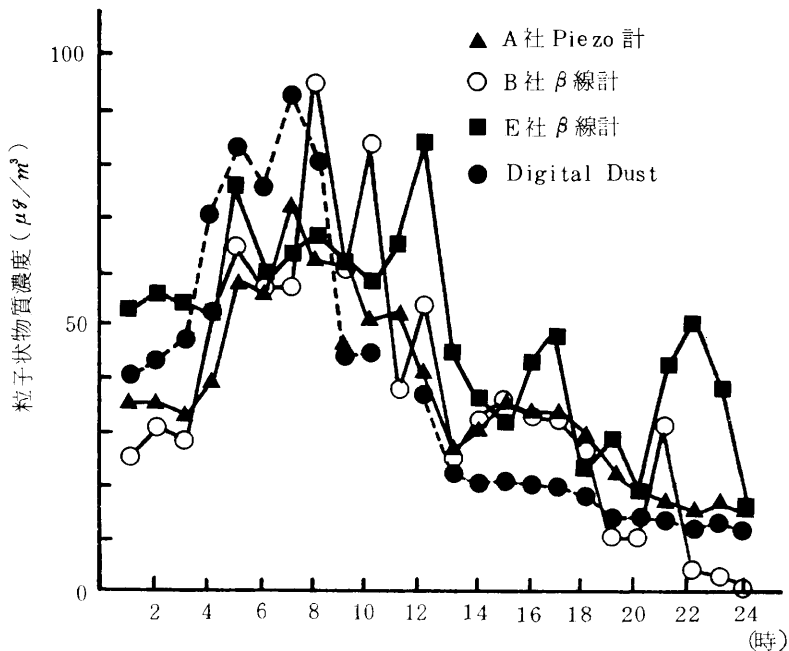


図3 各自動計測器別の粒子状物質濃度の経時変化

測定場所及び年月日

川崎市田島保健所, 昭和57年8月23日

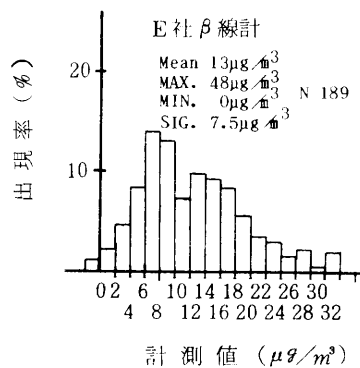
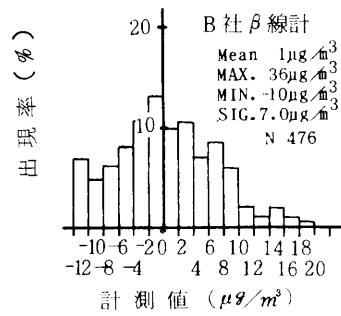
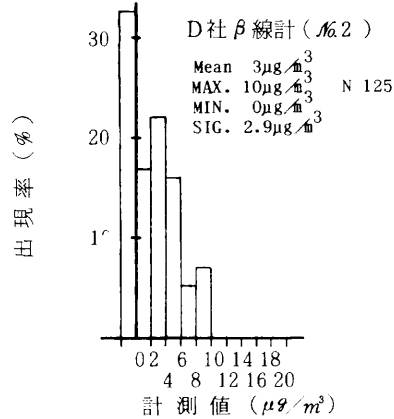
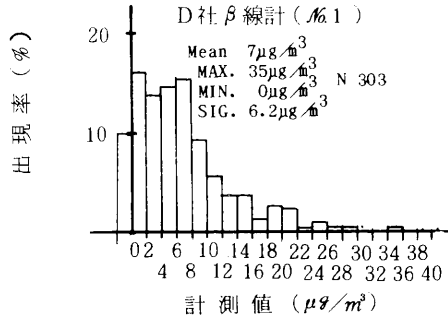
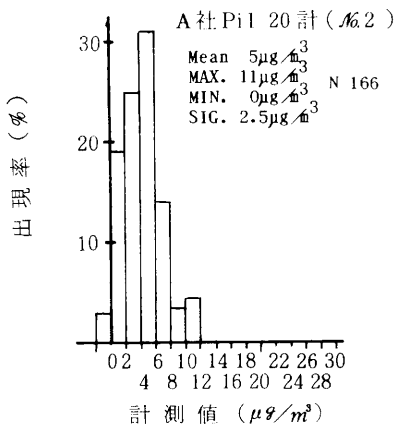
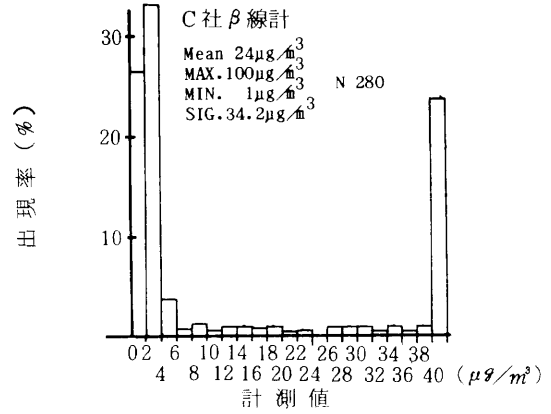
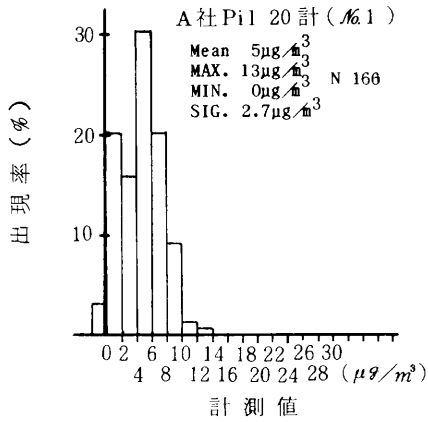


図4 等価濃度測定法の自動計測器別のヒストグラム

経時変化を見ても明らかなように、各自動計測器間の1時間値の差は数 $10\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ にも達した。又、前述の環境庁の通達でゼロドリフトについて、「15～20時間の1時間値の算術平均値が $5\sim 10\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下、かつ最高値が $20\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下であること。」と示されている。そこでこれら1時間値の差の要因の一つとして、ゼロ点変動が考えられるため、ゼロドリフト試験を行った。

今回のゼロドリフト試験では各自動計測器に対して7～10日間程度の長期間ゼロドリフト試験を実施した。

図4に各自動計測器のゼロドリフトのヒストグラムを示した。

A社Piezo計の2台(No.1 及び No.2)各々のゼロドリフト平均はいずれも $5\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、最大値は No.1 が $13\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 No.2 が $11\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、両者のヒストグラムは類似していた。又、ヒストグラムのパターンは正規分布型をなしているが、最頻値が共に $4\sim 6\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲にあり、若干ゼロ点が偏っていた。

B社の β 線計の場合、記録計にマイナスデータも出力する(最小で $-10\ \mu\text{g}/\text{m}^3$)ため、ゼロドリフト試験の時もマイナスデータが数多く出現していた。図4のヒストグラムにはこのマイナスデータも示してある。図4で明らかなように最頻値がゼロ近くにある正規分布型をしていた。ゼロドリフトの平均はプラスとマイナスデータがあるため $1\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ となり、他の自動計測器に比べ最も小さな値を示していた。しかし、最大値が $36\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、最小値が $-10\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ (この最小値は実際にはもっと小さな値であると思われるが)であり、最大と最小の範囲は $46\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上となった。SLV濃度との比較結果がB社 β 線計において他の自動計測器より良い結果であったのはこのゼロドリフトの平均値が小さい事とも関係していると思われる。

C社の β 線計の結果では最高値として $100\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ と高い値が出現しており、 $40\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上の値が20%以上出現していた。この自動計測器についてはフィールド調査期間中においても高濃度の異常値が数多く出現していた。

D社の β 線計2台では β 線計(No.1)の方がゼロ点のバラツキが大きく、最高値 $35\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ を示していたが、 β 線計(No.2)は最高値 $10\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。又、ゼロドリフトの平均値は β 線計(No.1)が $7\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 β 線計(No.2)が $3\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。A社のPiezo計2台のゼロドリフトのヒストグラムのパターンが類似していたのと比べ、D社の同一機種⁸⁾の2台のゼロドリフトのヒストグラムのパターンは類似してなく、同一機種間でも差が出る可能性を示している。

E社の β 線計のゼロドリフトの平均値は $13\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、最高値は $48\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。最頻値は $6\sim 8\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。この機種は他の自動計測器のゼロドリフトのヒストグラムのパターンとは異なり、プラス側に偏っていた。

β 線計のゼロドリフトの原因としては高湿度時における水分の影響、初期値の読取り時における紙位置の問題、吸気等の圧損によるろ紙の変形や、 β 線源の安定性等が考えられる。

又、JIS B 7954のゼロドリフト試験のように吸気せずに行うゼロ点の再現性についても検討する必要がある。

3・3 流量計チェックと等価膜チェック

図5に各自動計測器の流量計を湿式ガスメーターで校正した基準フローメーターによりチェックした結果を示した。各自動計測器の設定流量については、最大で6%近い誤差を有する機器があった

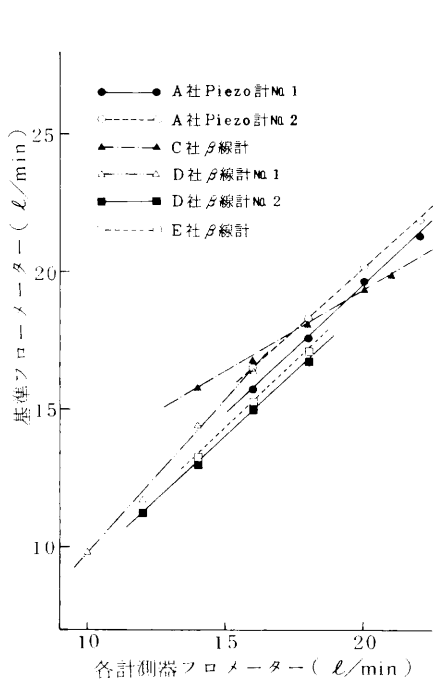


図5 等価濃度測定法の自動計測器別のフロロメーターのチェック結果

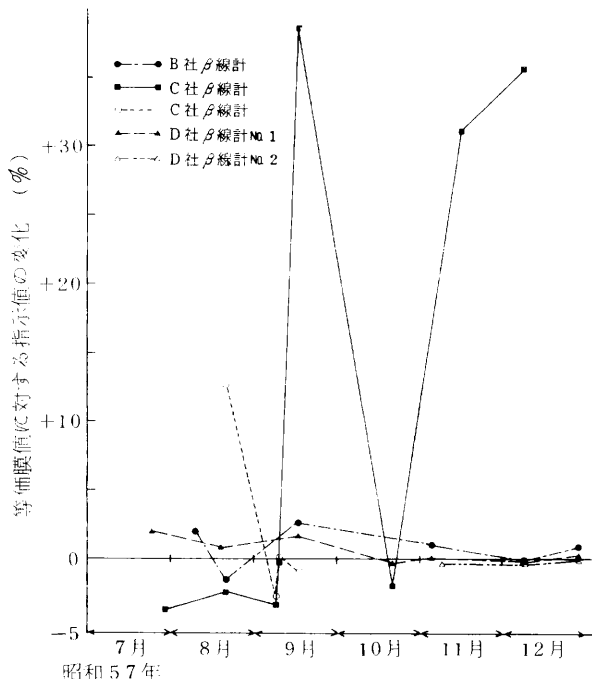


図6 β線計の等価膜チェックによる指示値の変動

が、他は2%以下とかなり良好な結果を示していた。

図6にフィールド調査期間中におけるβ線計の等価膜チェックを行った際の指示値の変化を示した。C社のβ線計を除き変動は概ね±5%程度であった。C社のβ線計の指示値は20~30%も変動することがあり信頼性に欠けると思われる。

3.4 ALVの累積濃度と各自動計測器の濃度との比較

フィールド調査期間中、SLVとは別に各計測器の分級特性などを検討するためにALVを1週間単位で稼働させた。又、参考までにCLVも1週間単位で稼働させた。それらの結果から、ALVから得た累積濃度(4.1 μm以下及び7.0 μm以下の粒子濃度)と各計測器から得られた浮遊粒子状物質濃度との関係を図7に示した。なお図中の破線はY=Xの直線を示している。SLV及びPiezo計に内蔵されているTR-Samplerの結果については2日~3日間のサンプリング結果を1週間単位に平均し、ALVの累積濃度と比較した。

図7ではSLV, Piezo TR-Sampler, 及びCLVのいずれの濃度もALVの7.0 μm以下或いは4.1 μm以下累積濃度とは一致している。

SLV, Piezo TR-Sampler, CLVは共に限界粒子径10 μmとして設計されているが、ALVは50% cut off径で示されている。したがってSLV, CLV等における10 μm以下の粒子の透過特性でみると、その透過率が50%である粒径は8 μmの粒子径といわれている⁹⁾。

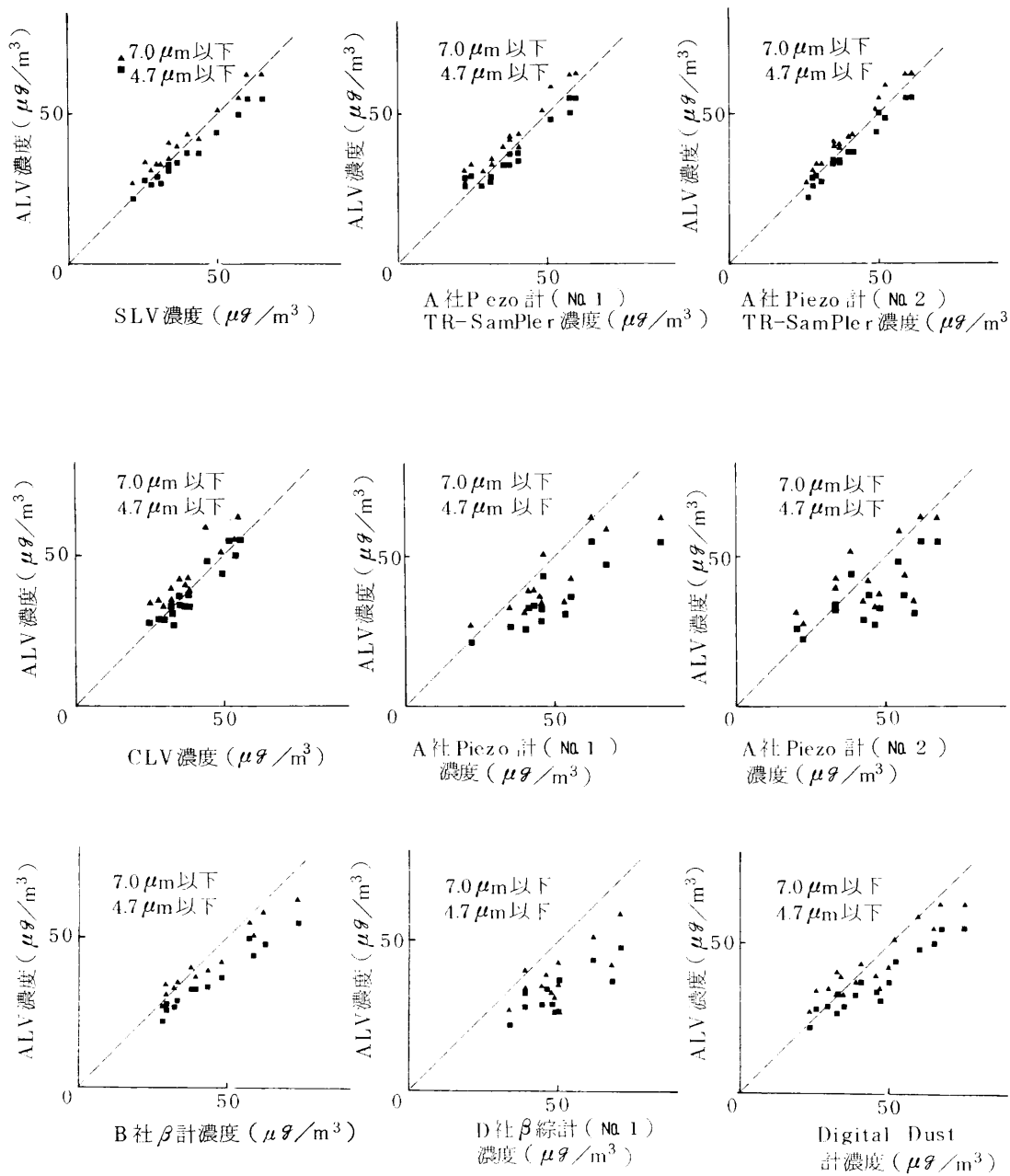


図7 ALV累積濃度(4.7 μm 以下, 7.0 μm 以下)と各種LV及び各自動計測器の濃度の比較

しかし、この結果ではALVの7 μ m以下又は4.7 μ m以下の粒子濃度と対応しており、8 μ mより小さな粒子との対応を示していた。これはALVと他の計測器との分級等性曲線の相違等が考えられる。

SLV, Piezo TR-Sampler, CLVの10 μ m以上の粒子の除去原理はそれぞれ異っているが、それらの計測器より得られた濃度は比較的よく一致しており、分級特性による濃度差は少ないと思われる。

又、自動計測器の浮遊粒子状物質濃度と、ALVの7.0 μ m以下の累積濃度と比較すると、自動計測器の浮遊粒子状物質濃度の方が大きかった。又、バラツキは自動計測器間の方が、ALVとLV類の濃度間よりも大きい。自動計測器の中で比較的バラツキが少なかったものはB社 β 線計とDigital Dust計であった。

3.5 各自動計測器の稼働状況

表3に各自動計測器の稼働状況を示した。又、等価膜チェックのために生じた欠測を除き、ハ

表3 浮遊粒子状物質の自動計測器の稼働状況

自動計測器	日 平 均 値			1 時 間 値				
	測定日数	有 効	稼 働 率	測定時間	有 効	稼 働 率	補 正	
		測定日数			測定時間		稼 働 率	稼 働 率
(日)	(日)	(%)	(時間)	(時間)	(%)	(%)		
A社	A ₁ Piezo	174	128	73.6	4202	3247	77.3	80.7
	A ₂ Piezo	174	153	87.9	4202	3757	89.4	90.3
B社	β 線計	174	128	73.6	4202	3310	78.8	83.4
C社	β 線計	161	132	82.0	3884	3218	82.9	85.7
D社	β 線計No.1	174	124	71.3	4202	3043	72.4	72.8
	β 線計No.2	19	19	100	181	479	99.6	100
E社	β 線計	62	48	77.4	1513	1205	79.6	79.6
Digital Dust		174	172	98.9	4202	4168	99.2	100

ード面等でのトラブルに限定した稼働率を補正稼働率として示した。

補正稼働率はD社 β 線計(No.1)が最も低く72.8%であり、他の自動計測器は80%以上を示した。

欠測等の原因としては、 β 線計ではポンプ故障、ろ紙おくりの不良等が目立った。Piezo計の故障は、クリスタル部の不良、ニードルの劣化等であった。

4. まとめ

- ① SLVの浮遊粒子状物質濃度と各自動計測器の浮遊粒子状物質濃度の差が、 $\pm 10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 又は $\pm 10\%$ 以内であった回数のサンプル数全体に対する割合は、 $48.0\sim 94.0\%$ の範囲であった。
- ② Piezo計や β 線計から得られるFt値(SLV値/自動計測器濃度)もDigital Dust計と同様に大きな変動が認められた。Ft値のバラツキが比較的小さな計測器はB社 β 線計であった。
- ③ ゼロドリフト試験の結果ではA社のPiezo計2台、D社の β 線計($\mathcal{M}2$)の3台が平均値 $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下かつ最高値 $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下の基準内であった。B社の β 線計のゼロドリフト試験結果ではマイナスデータ($-10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ まで)も記録として出力されるため、平均値を算出すると $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ となり他の計測器に比べ最も小さい値であった。SLV値とこの機種との対応が良かった要因としては、このゼロドリフトの平均が他に比べ小さかったことが原因としてあげられる。
- ④ A社Piezo計2台のゼロドリフトのヒストグラムは比較的類似しているの、ドリフトの原因も同じであると思われる。一方D社 β 線計の $\mathcal{M}1$ 、 $\mathcal{M}2$ は同一機種でありながらそれらのヒストグラムには違いが見られる。これから推察すると、両者のドリフトの原因は異なっていると思われる。
- ⑤ 自動計測器の設定流量をチェックしたところ、 $-5\sim -6\%$ のずれを生じたものが2台見られた。その他のものは $\pm 2\%$ 以下であり、良好な結果が得られた。
- ⑥ β 線計の等価膜チェックではC社の β 線計で大きくずれることがあったが、B、D社では約 $\pm 3\%$ でありはほぼ良好と思われる。
- ⑦ SLV、Pizo TR-Sampler、CLVの濃度とALVの累積濃度との関係では、 $7.0 \mu\text{m}$ 以下或いは $4.1 \mu\text{m}$ 以下の累積濃度との対応が良かった。
- ⑧ 各自動計測器の稼働率は比較的高く、 $72.4\sim 99.2\%$ であった。

文 献

- 1) 環境庁、日本環境衛生センター：浮遊粒子状物質等に係る測定法基準設定調査研究報告書：昭和48年3月
- 2) 岩瀬義男、寺部本次、村瀬暁、松本文秀：浮遊粒子状物質の環境基準にともなう測定法の検討：第14回大気汚染学会講演要旨集、(114)248、1973
- 3) 古川康明、村瀬暁、松本文秀：浮遊粒子状物質の環境基準に伴なう測定法の検討(第3報)：第16回大気汚染学会講演要旨集、(363)221、1975
- 4) 野上祐作、俣野顕憲、石井邦彦、藤沢甲子雄：水島地域におけるデジタル粉じん計のF値に関する検討(その2)：第17回大気汚染学会講演要旨集、263、1976
- 5) 日本環境衛生センター：昭和53年度環境庁委託業務結果報告書 エーロゾル(浮遊粒子状物質)の測定法に関する調査報告書：昭和54年3月
- 6) 岡山県：昭和54年度環境庁委託業務結果報告書 自動測定機器等の精度に関する研究(ダスト計)：昭和55年3月
- 7) 兵庫県：昭和55年度環境庁委託業務結果報告書 自動測定機器等の精度に関する研究(ダスト

計)：昭和56年3月

- 8) 朝来野国彦, 石黒辰吉： β 線吸収型ダスト の誤差要因：第21回大気汚染学会 講演要旨集, 328, 1980年
- 9) 日本環境衛生センター：昭和47年度環境庁委託 浮遊粒子状物質等に係る測定法基準設定調査 研究報告書：昭和48年3月