

3. 大気浮遊粉じんに関する調査研究（第2報）

Size Distribution of Suspended Particles in Kawasaki (II)

石田哲夫, 林 久緒, 島田ひろ子, 石塚謙一,
永田正信

Tetsuo ISHIDA, Hisao HAYASHI, Hiroko SHIMADA,
Ken-ichi ISHIZUKA and Masanobu NAGATA

1. はじめに

大気中の浮遊粉じんによる人体に対する影響は有害成分を含んだ粒子や有害ガスを吸着した粒子が呼吸器へ運ばれ、器官内に沈着することにより生ずるといわれている。

このように呼吸器官へ侵入する粒子は一般的に Respirable Dust とよばれ、7 μm 以下の粉じんをさしてあり、粒子の粒径によって呼吸器官内の沈着部位が異なる。

そこで近年、大気浮遊粉じんに関する調査は、粉じんの総量、成分濃度ばかりでなく、その粒度分布の測定も各地でさかんに行われてきている。

当所でも昭和50年から52年にかけて四季別の粒度分布調査を既に実施しているが¹⁾、今回は第2回の調査として、昭和53年、54年にかけて毎月定期的に測定した結果について述べるとともに、同時に行なった10 μm 以下の浮遊粒子状物質濃度の測定結果との比較も行ったので、その結果について報告する。

2. 調査方法および期間

2-1 測定期間及び回数

測定期間は昭和53年1月～昭和54年12月までの2年間について定期的に行った。

測定回数は原則として毎月2回行った。ただし昭和53年は7月に4回行い、1年間で計26回測定した。昭和54年は1月と4月に5回、7月・8月及び9月にそれぞれ4回、10月と12月に3回行い、1年間で計38回測定した。

2-2 試料採取場所

川崎市公害研究所（3階建屋上）

2-3 サンプラー及び試料採取方法

(1) 浮遊粉じんの粒度分布測定；アンダーセンノンバーブルサンプラー（高立機器製K A 200，昭和50年購入，以下アンダーセンサンプラーという）

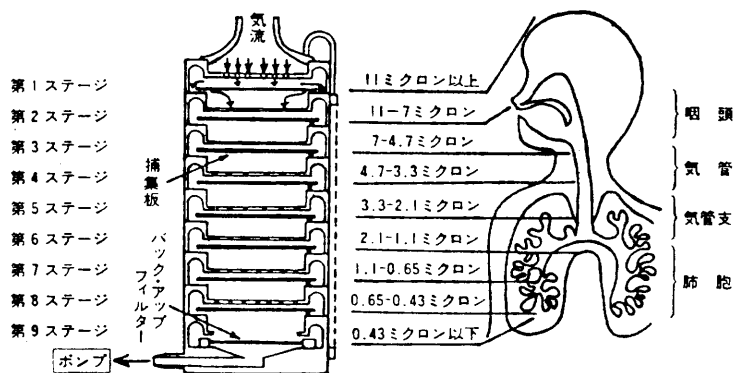


図1 アンダーセンサンプラーの構造と粒度分布

前報と同様にアンダーセンサンプラーの各分級ステージにガラス繊維ろ紙(80mmφ, ゲルマンA E)を取付けた後, サンプラーをシェルター内にセットし, 毎分28.3ℓの規定流量で大気を吸引して試料を採取した。

(2) 浮遊粒子状物質の測定; サイクロン分級装置付ローポリウムサンプラー(新宅機械S 2型, 以下サイクロン式ローボルという)

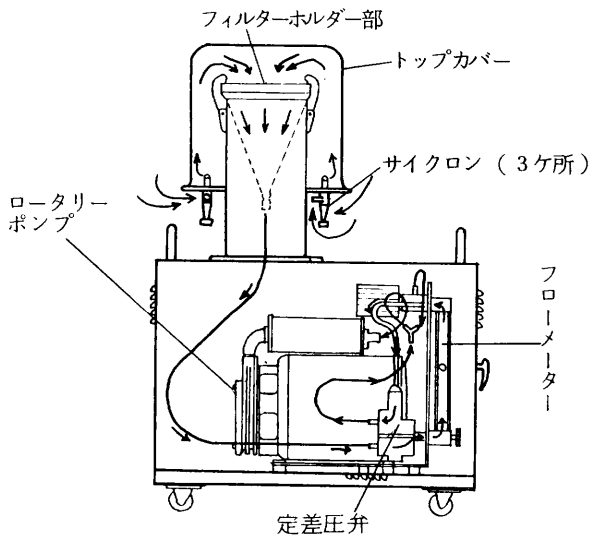


図2 サイクロン分級装置付ローポリウムサンプラーの構造と吸引系統

サイクロン式ローボルの捕集部にガラス繊維ろ紙(110mmφのゲルマンA E)をセットし, 毎分20ℓで大気を吸引して試料を採取した。

2-4 試料採取日数

1回の測定はアンダーセンサンプラー及びサイクロン式ローボルを同時にスタートさせ, 規定の流量で1週間続けて大気を吸引し試料を採取した。

3. 調査結果及び考察

3-1 粒度分布測定結果と浮遊粒子状物質濃度測定結果

昭和53年、54年の2年間におけるアンダーセンサンプラーによる大気浮遊粉じんの粒度分布と平均粒径(Mass Median Aerodynamic Diameter)及びサイクロン式ローボルによる浮遊粒子状物質濃度の測定結果を季節別(春: 3,4,5月, 夏: 6,7,8月, 秋: 9,10,11月, 冬: 12,1,2月)にまとめて表1~表3に示した。

表1 季節別平均粒度分布(昭和53年)

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

ステージ		捕集粒径範囲	昭和53年				
			春 n = 6	夏 n = 8	秋 n = 6	冬 n = 6	平均 n = 26
2.1 μm 以上の粉じん	1	~11 (μm)	15.1	19.3	15.9	20.6	17.9
	2	11 ~ 7.0	9.7	12.4	11.1	13.1	11.7
	3	7.0 ~ 4.7	12.3	13.8	14.2	14.4	13.7
	4	4.7 ~ 3.3	12.3	12.4	13.0	12.0	12.4
	5	3.3 ~ 2.1	9.4	9.2	10.4	9.0	9.5
2.1 μm 以下の粉じん	6	2.1 ~ 1.1	8.8	7.2	10.3	11.0	9.1
	7	1.1 ~ 0.65	8.7	8.0	16.2	16.2	11.9
	8	0.65 ~ 0.43	8.5	6.5	14.5	13.5	10.4
	9	0.43 ~	9.2	6.6	14.6	18.5	11.8
2.1 μm 以上の粉じん			58.8	67.1	64.6	69.1	65.2
2.1 μm 以下の粉じん			35.2	28.3	55.6	59.2	43.2
浮遊粉じん総量			94.0	95.4	120.2	128.3	108.4
MMD (μm)			3.5	4.4	2.5	2.7	3.4

浮遊粒子状物質濃度	65.5	57.3	90.8	83.8	73.0
-----------	------	------	------	------	------

(注) 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和

表2 季節別平均粒度分布(昭和54年)

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

ステージ	捕集粒径範囲	昭和54年					
		春 n=9	夏 n=10	秋 n=9	冬 n=10	平均 n=38	
2.1 μm 以上の粉じん	1	~11 (μm)	22.2	15.7	13.1	16.0	16.7
	2	11 ~ 7.0	14.3	10.6	9.4	10.8	11.3
	3	7.0 ~ 4.7	15.6	12.6	11.8	13.1	13.3
	4	4.7 ~ 3.3	14.4	11.7	10.9	11.7	12.2
	5	3.3 ~ 2.1	10.6	8.8	8.6	9.5	9.4
2.1 μm 以下の粉じん	6	2.1 ~ 1.1	7.4	7.6	9.2	10.2	8.6
	7	1.1 ~ 0.65	9.0	9.2	12.5	14.8	11.4
	8	0.65 ~ 0.43	7.6	7.8	10.7	13.1	9.9
	9	0.43 ~	8.7	8.1	10.8	16.4	11.1
2.1 μm 以上の粉じん		77.1	59.4	53.8	61.1	62.9	
2.1 μm 以下の粉じん		32.7	32.7	43.2	54.5	41.0	
浮遊粉じん総量		109.8	92.1	97.0	115.6	103.9	
MMD (μm)		4.4	3.8	2.8	2.5	3.4	

浮遊粒子状物質濃度	64.5	53.0	74.0	81.8	68.2
-----------	------	------	------	------	------

(注) 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和

表3 季節別平均粒度分布(2年間の平均)

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

ステージ	捕集粒径範囲	昭和53年・昭和54年 2年間の平均粒度分布					
		春 n=15	夏 n=18	秋 n=15	冬 n=16	平均 n=64	
2.1 μm 以上の粉じん	1	~11 (μm)	19.3	17.3	14.2	17.7	17.2
	2	11 ~ 7.0	12.5	11.5	10.1	11.6	11.4
	3	7.0 ~ 4.7	14.3	13.1	12.8	13.6	13.4
	4	4.7 ~ 3.3	13.6	12.0	11.8	11.8	12.3
	5	3.3 ~ 2.1	10.1	9.0	9.3	9.3	9.4
2.1 μm 以下の粉じん	6	2.1 ~ 1.1	8.0	7.4	9.7	10.5	8.8
	7	1.1 ~ 0.65	8.9	8.7	14.0	15.3	11.6
	8	0.65 ~ 0.43	8.0	7.2	12.2	13.3	10.1
	9	0.43 ~	8.9	7.4	12.3	17.2	11.4
2.1 μm 以上の粉じん		69.8	62.9	58.2	64.0	63.7	
2.1 μm 以下の粉じん		33.8	30.7	48.2	56.3	41.9	
浮遊粉じん総量		103.6	93.6	106.4	120.3	105.6	
MMD (μm)		4.0	4.0	2.7	2.6	3.4	

浮遊粒子状物質濃度	64.9	54.9	81.3	82.6	70.2
-----------	------	------	------	------	------

(注) 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和

3-1-1 浮遊粉じんの対数正規分布について

一般に浮遊粉じんの粒度分布測定の対象となる粒径範囲は0.01~10 μm 程度であり、従来の実測例²⁾³⁾では対数正規分布として取扱われていた。

しかし、近年アンダーセンサンプラーを用いた粒度分布の測定では、2山型 (bi-modal) に分布していることが報告されており、⁴⁾⁵⁾ このことについては前報¹⁾にも述べた。今回の調査結果でも粒度分布は対数正規確率紙上でやや直線からずれる傾向にあり、1~3 μm 付近で屈曲していた (図3)。つまり、浮遊粉じんの粒度分布は2 μm 付近を谷とする2山型の分布として存在していることが再度確認できた (図4)。

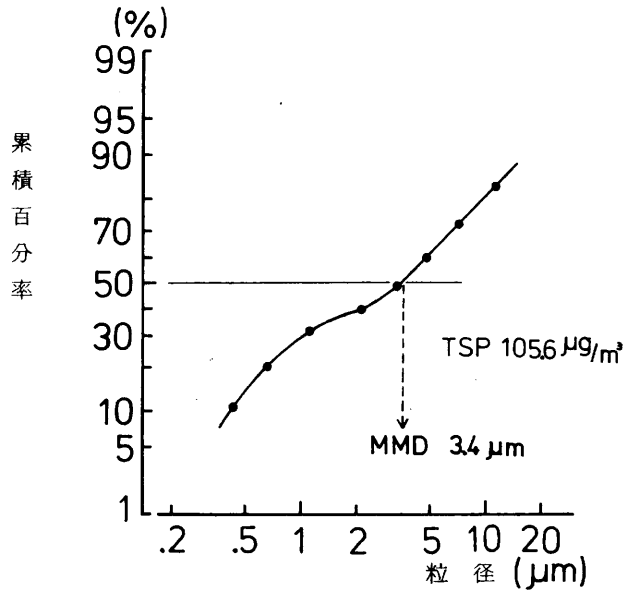


図3 2年間の総平均粒度分布の累積百分率(対数正規確率紙)

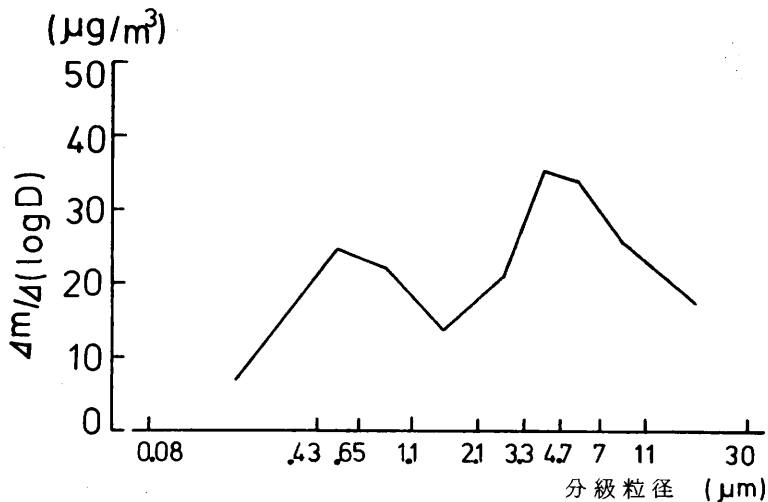


図4 2年間の総平均粒度分布

3-1-2 平均粒径 (M.M.D.)

表1～表3に示したM.M.D.について季節別に比較してみると、春と夏は3.5～4.4 μm なのに対して秋と冬は2.5～2.7 μm であり粉じんの粒子は秋と冬の方がやや小さくなる傾向であった。これらの傾向は前回の季節別に行なった調査結果とはほぼ同様であった。

3-1-3 粗大粒子と微小粒子 (2.1 μm 以上の粉じんと2.1 μm 以下の粉じん)について

浮遊粉じんの粒度分布が前報と同様に2 μm 付近を谷とするbi-modalな分布をしていると考えられるので、粉じんを粗大粒子群と微小粒子群とに分け、その濃度について検討してみたところ次のようなことがわかった。なお浮遊粉じん総量(アンダーセンサンプラーの各ステージに分級捕集された粉じん濃度の総和、T.S.P.)に占める粗大粒子と微小粒子の割合を表4に示した。

微小粒子群がT.S.P.に占める割合を季節別に比較してみると、春と夏は30～37% (2年間の平均は33%)であったが、秋と冬では46%前後を占めており秋と冬の方が春、夏に比べ微細な粉じんの占める割合が高くなる傾向を示した。

表4 浮遊粉じん総量に対する粗大粒子と微小粒子の割合

(%)

	昭和53年				
	春 n=6	夏 n=8	秋 n=6	冬 n=6	平均 n=26
浮遊粉じん総量 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	94.0	95.4	120.2	128.3	108.4
2.1 μm 以上の粉じん	62.6	70.3	53.7	53.9	60.1
2.1 μm 以下の粉じん	37.4	29.7	46.3	46.1	39.9

(%)

	昭和54年				
	春 n=9	夏 n=10	秋 n=9	冬 n=10	平均 n=38
浮遊粉じん総量 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	109.8	92.1	97.0	115.6	103.9
2.1 μm 以上の粉じん	70.2	64.5	55.5	52.9	60.5
2.1 μm 以下の粉じん	29.8	35.5	44.5	47.1	39.5

(%)

	昭和53年及び昭和54年				
	春 n=15	夏 n=18	秋 n=15	冬 n=16	平均 n=64
浮遊粉じん総量 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	103.6	93.6	106.4	120.3	105.6
2.1 μm 以上の粉じん	67.4	67.2	54.7	53.2	60.3
2.1 μm 以下の粉じん	32.6	32.8	45.3	46.8	39.7

3-1-4 浮遊粉じん総量と高濃度時の粒度分布について

T.S.P.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。これは前報と同様な結果であり、同時に測定したサイクロン式ローボールによる浮遊粒子状物質濃度の季節的傾向とも一致していた。

今回の調査期間中の各季節の中で、T.S.P.が最高濃度及び最低濃度を示した時の粒度分布、M.M.D.及び浮遊粒子状物質濃度を表5に示した。

前回の調査では各季節ともに、T.S.P.が高濃度の時には、微小粒子の増加がうかがえた。しかし今回の結果においては、秋及び冬については微小粒子の増加の傾向はみとめられるが、春と夏については逆に粗大粒子が増える傾向であった。この違いについては、今後気象条件等の検討を加えながら解明を行う必要があると思われる。

表5 浮遊粉じん総量が最高、最低濃度時の粒度分布、平均粒径及び浮遊粒子状物質濃度

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

ステージ	捕集粒径範囲	春		夏		秋		冬		
		Max.	Min.	Max.	Min.	Max.	Min.	Max.	Min.	
2.1 μm 以上の粉じん	1	~11 (μm)	34.5	9.0	32.2	13.8	15.9	5.0	19.9	10.9
	2	11 ~ 7.0	27.3	5.6	17.5	8.6	12.2	4.4	14.0	7.3
	3	7.0 ~ 4.7	21.6	7.0	17.9	9.1	17.0	5.4	18.6	9.4
	4	4.7 ~ 3.3	17.2	6.6	15.2	8.2	16.3	5.8	17.1	8.2
	5	3.3 ~ 2.1	11.9	5.0	9.8	6.1	15.3	5.1	14.9	6.0
2.1 μm 以下の粉じん	6	2.1 ~ 1.1	11.1	3.4	6.5	4.8	20.6	6.3	19.0	5.6
	7	1.1 ~ 0.65	14.8	5.8	8.3	5.6	29.8	8.6	28.2	8.5
	8	0.65 ~ 0.43	12.1	4.8	7.7	5.3	25.8	7.3	24.6	8.3
	9	0.43 ~	13.7	5.4	7.4	4.6	20.9	8.1	28.1	10.9
2.1 μm 以上の粉じん			112.5	33.2	92.6	45.8	76.7	25.7	84.5	41.8
2.1 μm 以下の粉じん			51.7	19.4	29.9	20.3	97.1	30.3	99.9	33.3
浮遊粉じん総量			164.2	52.6	122.6	66.1	173.8	56.0	184.4	75.1
MMD (μm)			4.8	3.6	5.4	4.4	1.5	1.6	1.6	2.9

浮遊粒子状物質濃度	82.2	55.6	59.7	56.2	152.9	—	135.2	60.7
-----------	------	------	------	------	-------	---	-------	------

(注) 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

3-2 サイクロンローボルによる浮遊粒子状物質濃度と粒度分布について

今回の調査では、アンダーセンサンプラーと同時にサイクロン式ローボルも稼動して、10 μ m以下の粉じんである浮遊粒子状物質の測定を行ったので、その濃度と浮遊粉じんの粒度分布との関係を検討した。

3-2-1 アンダーセンサンプラーによる10 μ m以下の浮遊粉じんと比較

サンプラーによる粉じん濃度の差について検討してみるため、アンダーセンサンプラーで得られた粒度分布から10 μ m以下の粉じん濃度（粒度分布曲線が10 μ mを示したところの値-1例を図7に示す）を求め、その値と同時に測定したサイクロン式ローボルによる値とを比較してみた（表6）。

表6 浮遊粉じんのステージ別累積濃度及び10 μ m以下の粉じん濃度と浮遊粒子状物質濃度

(μ g/m³)

		ステージ	捕集粒径範囲	昭和53年・昭和54年				
				春 n=15	夏 n=18	秋 n=14	冬 n=16	平均 n=63
累積濃度	1		浮遊粉じん総量	103.6	93.6	106.4	120.3	105.6
	2		11 μ m以下	84.3	76.3	92.2	102.6	88.4
	3		7.0 "	71.8	64.8	82.1	91.0	77.0
	4		4.7 "	57.5	51.7	69.3	77.4	63.6
	5		3.3 "	43.9	39.7	57.5	65.6	51.3
	6		2.1 "	33.8	30.7	48.2	56.3	41.9
	7		1.1 "	25.8	23.3	38.5	45.8	33.1
	8		0.65 "	16.9	14.6	24.5	30.5	21.5
	9		0.43 "	8.9	7.4	12.3	17.2	11.4
			10 μ m以下の粉じんの割合(%)	79.0	79.0	84.8	83.3	81.6
A			10 μ m以下の粉じん濃度	81.8	73.9	90.2	100.2	86.2

B	浮遊粒子状物質濃度	64.9	54.9	81.3	82.6	70.2
B/A	浮遊粒子状物質濃度 10 μ m以下の粉じん濃度	0.79	0.74	0.90	0.82	0.81

これによると、アンダーセンサンプラー(A)の方がサイクロン式ローボル(B)より高い値を示しAとBとの比は2年間の総平均で1:0.81という結果が得られた。さらに季節別にみるとB/Aは秋に0.90と高く、夏には0.74と低い結果が得られた。

このように10 μ m以下の粉じんである浮遊粒子状物質についての濃度評価の違いが、サンプラー間の分級方法からくる違いなのか、あるいは他の要因があるのかはさらに検討する必要があると思われる。

3-2-2 アンダーセンサンプラーによるステージ別累積濃度との関係について

アンダーセンサンプラーにより得られた各ステージ別の濃度を、分級粒径の小さなステージから累積して累積濃度として表6にあらわした。

それぞれのステージ別累積濃度(Y_n : nステージ以下に採取された粉じん濃度)と浮遊粒子状物質濃度(X)との回帰式及び相関係数を求めその結果を図4に示した。なお、図5には浮遊粒子状物質濃度と最も相関の高かった第4ステージ(4.7 μ m)以下の粉じんの累積濃度と浮遊粒子状物質濃度との関係を散布図として示した。

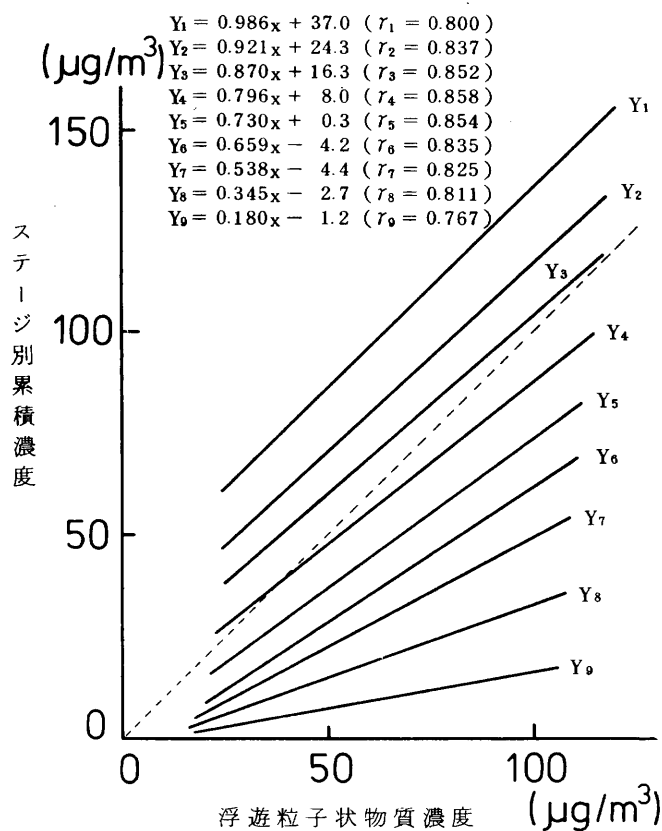


図5 浮遊粒子状物質濃度とステージ別累積濃度との回帰直線

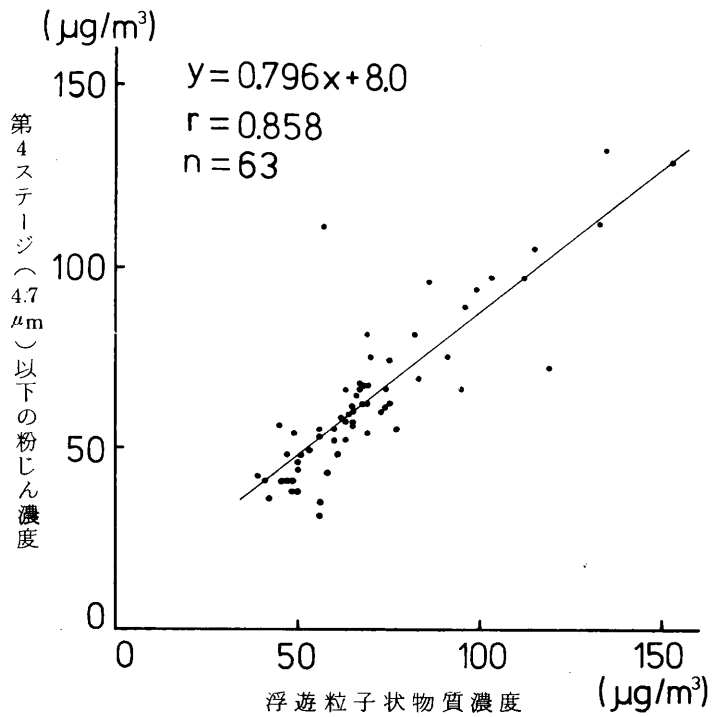


図6 浮遊粒子状物質濃度と第4ステージ(4.7 μm)以下の粉じん濃度の分布図

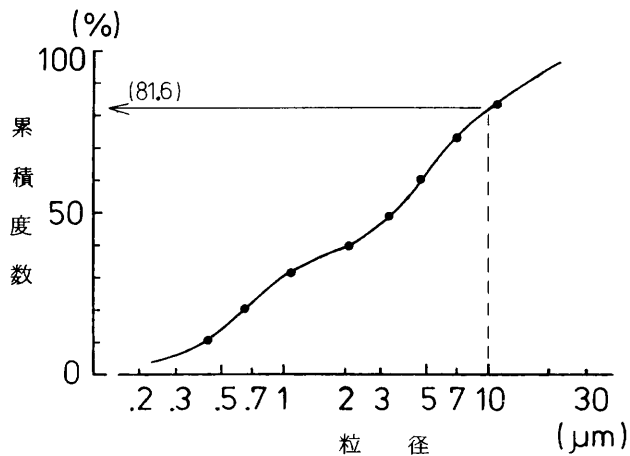


図7 浮遊粉じんの累積度数曲線及び10 μm以下の粉じんの割合(昭和53・54年の総平均)

浮遊粒子状物質濃度と各ステージ別累積濃度の相関係数は0.76～0.86と比較的よい相関が得られたが、その中でもY₃あるいはY₄と浮遊粒子状物質濃度は比較的良好一致していた。

つまり、浮遊粒子状物質濃度は4.7～7.0 μm以下の粉じん濃度と最も関係しているものと考えられる。

4. まとめ

昭和53年から2年間にわたり、毎月定期的に行なった浮遊粉じんの粒度分布測定及び浮遊粒子状物質濃度測定結果をまとめると次のことがわかった。

- (1) 浮遊粉じんの粒度分布は対数正規分布とはやや異なり、 $2\ \mu\text{m}$ 付近を谷とする二山型 (bi-modal) の分布をしていた。
- (2) 浮遊粉じんの平均粒径 (M.M.D.) は、春及び夏は $3.5\sim 4.4\ \mu\text{m}$ であったのに対して、秋及び冬は $2.5\sim 2.7\ \mu\text{m}$ と小さくなる傾向であった。
- (3) 大気汚染の原因のひとつとして燃焼過程から発生すると考えられる微小粒子の浮遊粉じん総量に占める割合は、春及び夏では $30\sim 37\%$ であったのに対して、秋及び冬では 46% 前後と増加している傾向であった。
- (4) サイクロン式ローボルによる測定値とアンダーセンサンプラーの $10\ \mu\text{m}$ 以下の粉じん濃度との比は2年間平均値で $0.8:1$ という値が得られた。
- (5) サイクロン式ローボルから得られた浮遊粒子状物質濃度は、アンダーセンサンプラーによる $4.7\sim 7.0\ \mu\text{m}$ 以下の粉じん濃度との相関が最も高かった。

参考文献

- 1) 石田哲夫ほか, 全国公害研究会誌, 27, 3, №2 (1978)
- 2) Friedlander, S.K. ほか, Surface Contamination, p107, Pergamon Press (1967)
- 3) Horvath, M., Environ. Sci. Techn., 1, 651 (1967)
- 4) 角脇 怜, 分析化学, 23, 490 (1974)
- 5) 藤村 満ほか, 分析化学, 24, 36 (1975)