

大気浮遊塵の放射化分析（Ⅱ）

富山 毅，山本 勲，青木 敦*，石井 孝*

（昭和52年9月16日受理）

要 旨

倉敷市及び蒜山高原で、1976年8月上旬にアンダーセン・エア・サンプラーを用いて捕集した大気浮遊塵の機器的中性子放射化分析を行ない、23種類の元素につき大気中濃度及びその粒径分布を求めた。更にこれらの量の解析から大気汚染の態様を考察した。その結果から Al, Sc, Th, Fe は大粒径粒子に属し、土壌粒子と考えられる。これに反し、Sb, Zn, Br, V, Se は微粒子に多く含まれ、化石燃料の燃焼等に起因するものと考えられる。また Mn, Cl, Na, K, As, La, Ce, Co, Hg 等は特定の傾向を示さず、複数の発生源によるものと考えられる。地点間では倉敷市に於ける元素濃度は蒜山高原の数倍に達し、特に Fe, Mn, Zn, Cl に顕著な相違がみとめられた。

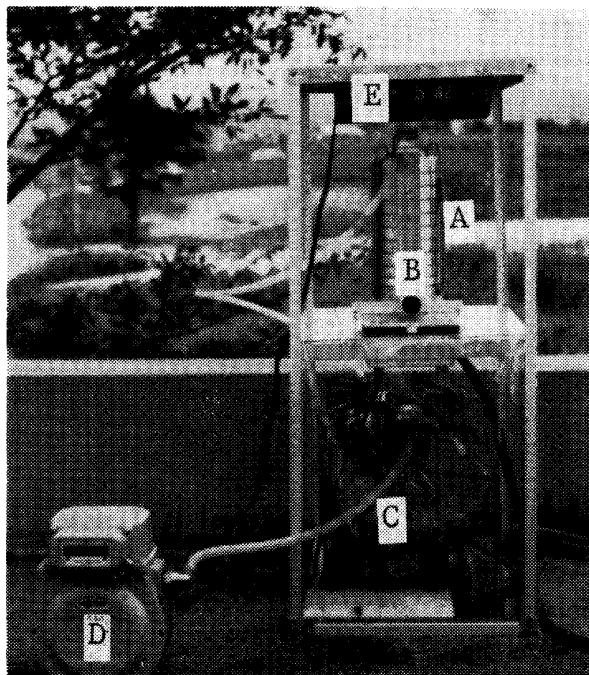
I 緒 論

前回の報告では、我々は積分型ロー・ボリウム・エア・サンプラーを用いて倉敷市及び岡山市で採取した大気浮遊塵の放射化分析から、その成分元素の大気中濃度等の地点別変化を考察し、K, Na は Dust 濃度と同様の傾向を示すが、Mn, Fe, V は異なる傾向を示すことを述べた。¹⁾ Dust の質量の大部分は、土壌粒子によるものと考えてさしつかえないから、Mn, Fe, V の一部は、土壌成分以外にもとづくものと推察される。また、呼吸器管を通して体内に摂取される大気中の浮遊粒子は粒径が $1\mu\text{m}\sim 0.1\mu\text{m}$ のものが多いことが衛生学的に知られており、汚染元素の人体に対する実質的な影響を自然発生源によるものと区別して評価するためには、大気浮遊塵の粒径分布を考察することが重要な意味を持って来る。我々は今回さらにアンダーセン・エア・サンプラーを用いて産業活動の盛んな倉敷市と、その対照地点として大気汚染源の少ない蒜山高原とで大気浮遊塵を採取し、中性子放射化分析法によりその成分元素の大気中濃度とその粒径分布を求め、これらの解析から成分元素の起源、汚染の状況について考察を行った。

II 測 定

サンプリングは1976年8月9日から14日にかけて倉敷市福田町古新田（倉敷市公害監視

* 京都府立大学



第1図 集塵装置

センター屋上, 地上約20m), 同年8月19日から24日まで岡山県真庭郡川上村(岡山理科大学 蒜山学舎ベランダ, 地上5m)の2ヶ所で行った. 第1図はサンプリングに用いた装置の写真で, Aはアンダーセン・エア・サンプラー(高立KA-200), Bはフロート式流量計, Cはエア・ポンプ(日立200W, ロータリー・コンプレサー), Dは総流量を測定するガスマーター, Eは通電時間をはかる時計である. 一定流量(28.3 l/min)でAの内部にスタック状に設けられた8ステージのインパクトにより空気動力学的に分級される. 試料粒子はステージ毎にステンレス製捕集板の表面に水張りされた直径8cmのポリエチレン・フィルム上に捕集される. 慣性的に捕集されない微粒子は最終段に装着されたメンブレン・フィルター MF Millipore RA(直径8cm)バックアップ・フィルターにより捕捉される. 試料採取は6日間連続で行い, 総通気量はいずれも約270m³であり, 質量は倉敷で8.63mg, 蒜山では7.22mgであった. 試料はステージ毎に2分し, 京都大学研究用原子炉の圧気輸送管 Pn-1 で各10分間及び1時間照射して放射化した. 10分間照射した試料の測定には有効体積60 cm³Ge(Li)半導体検出器を用いた他は, 測定方法, 回路条件及び測定結果の解析方法等は既に述べた通りである.¹⁾⁴⁾

III 結果及び考察

倉敷, 蒜山で採取された試料の大気中濃度を第1表, 第2表に示す. これらから Al, Sc, Th の元素濃度は両地点で同じ程度であるが Zn, Mn, Fe, Cl は倉敷で相当高い値になっている. また, V, Cr, La にも同じ様な傾向が認められる. 次に主な元素について, 濃度と粒径の関係を第2図, 第3図に示す. 図に見られる様に, 粒径分布は, 粒径

第1表 倉敷浮遊塵成分元素の粒径別大気中濃度 ($\times 10^{-3} \mu\text{g}/\text{m}^3$)

ステージ 粒径 元素	F	7	6	5	4	3	2	1	0
	<0.43	0.43 }	0.65 }	1.1 }	2.1 }	3.3 }	4.7 }	7.0 }	>11
元素		0.65	1.1	2.1	3.3	4.7	7.0	11	
Na	48	100	13	330	515	443	238	107	174
Al	15.1	10.1	24.1	64.6	147	269	283	182	478
Cl	398	23.4	16.9	304	457	487	335	158	255
K	174	164	33	108	55	36	76	—	112
Sc	—	—	—	0.003	0.010	0.021	0.022	0.013	0.048
Ti	—	—	—	19.0	20.7	24.0	40.0	—	60.0
V	11.1	3.6	0.84	1.01	0.94	1.7	1.4	1.43	2.9
Cr	8.27	1.89	1.1	2.70	4.70	2.70	3.36	2.30	5.96
Mn	12.4	11.0	8.8	11.4	17.8	32.5	33.3	25.6	76.9
Fe	127	103	90.5	63.3	349	496	439	334	1347
Co	0.22	0.101	0.104	0.089	0.146	0.112	0.098	0.073	0.210
Zn	85	99	113	152	62	51	54	7.8	37
As	58	19	13	11	2	18	5	14	23
Se	—	0.85	0.30	0.091	0.13	—	—	—	0.055
Br	23.9	12.5	6.9	6.3	4.2	3.5	3.9	1.6	3.0
Sb	1.95	1.02	0.57	0.49	0.31	0.26	0.20	0.10	0.19
La	—	0.45	0.065	0.39	0.26	—	0.31	0.15	0.66
Ce	—	0.12	—	—	0.085	0.15	0.18	0.39	0.34
Hg	0.34	0.037	0.028	0.0064	0.056	0.010	0.014	0.012	0.014
Th	—	—	—	—	0.0097	0.00	0.018	0.015	0.042
Ag	0.0051	0.0077	—	—	0.0027	—	—	—	0.0027
Cs	1.26	0.49	0.53	—	—	0.19	—	—	0.28
Hf	—	—	—	—	0.023	0.0091	0.011	—	0.028

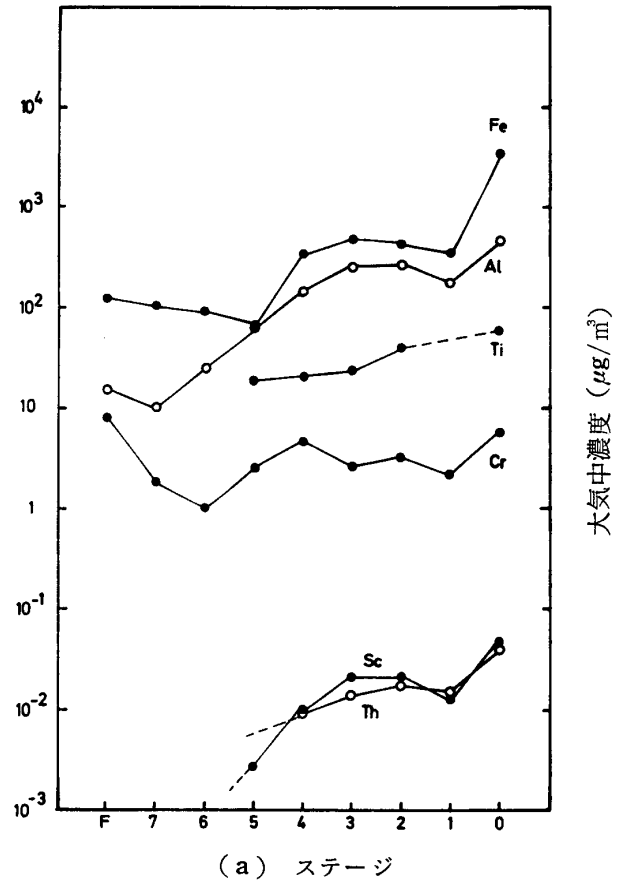
粒径単位： μm 単位： $\times 10^{-3} \mu\text{g}/\text{m}^3$

第2表 蒜山浮遊塵成分元素の粒径別大気中濃度 ($\times 10^{-3} \mu\text{g}/\text{m}^3$)

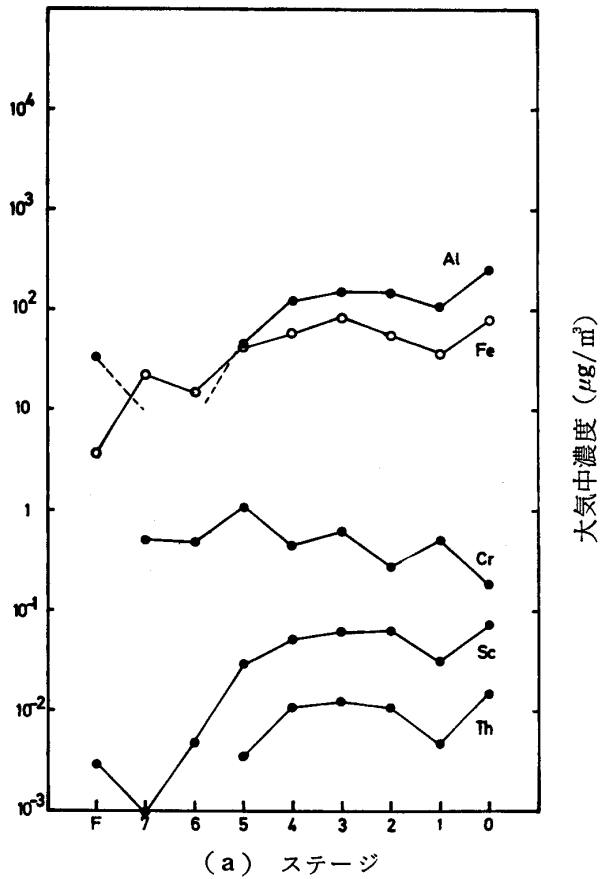
ステージ 粒径 元素	F	7	6	5	4	3	2	1	0
	<0.43	0.43 }	0.65 }	1.1 }	2.1 }	3.3 }	4.7 }	7.0 }	>11
元素		0.65	1.1	2.1	3.3	4.7	7.0	11	
Na	13	50	48	86	136	144	86	34	71
Al	34.5	—	—	46.7	128	152	154	110	255
Cl	306	14.1	8.0	6.8	14.5	26.8	19	11.6	19.4
K	85	49	35	15	—	—	30	8.3	28
Sc	0.003	0.001	0.005	0.030	0.054	0.067	0.065	0.033	0.079
Ti	6.8	—	—	—	—	—	5.0	—	6.3
V	2.3	1.8	0.64	0.35	0.28	0.25	0.27	—	0.37
Cr	—	0.52	0.48	1.1	0.45	0.64	0.29	0.53	0.19
Mn	2.24	2.00	1.70	1.60	2.20	2.10	2.30	1.25	2.91
Fe	3.80	22.9	15.4	42.6	59.1	85.1	57.6	36.4	80.1
Co	0.034	0.033	0.009	0.023	0.028	0.051	0.028	0.013	0.022
Zn	6.8	6.7	7.2	5.7	4.2	0.9	0.21	0.44	0.41
As	13.0	19.0	4.5	10.0	8.4	7.2	11.0	1.4	7.6
Se	—	0.39	0.25	0.08	—	—	—	—	—
Br	5.5	3.7	1.9	1.1	0.7	1.1	0.36	0.48	0.68
Sb	0.03	0.61	0.27	0.21	0.13	0.10	0.016	0.015	0.042
La	0.060	0.034	0.070	0.100	0.190	0.170	0.220	0.040	0.090
Ce	—	—	0.0078	—	0.037	0.069	0.062	—	0.048
Hg	—	0.035	0.014	0.037	0.020	0.053	0.021	0.012	0.003
Th	0.0026	—	—	0.0037	0.011	0.013	0.011	0.005	0.016
Ag	0.001	0.001	—	—	—	0.001	0.001	0.001	—
Cs	—	0.17	—	0.13	0.15	0.19	0.13	—	—
Hf	0.006	—	—	—	—	—	—	—	—

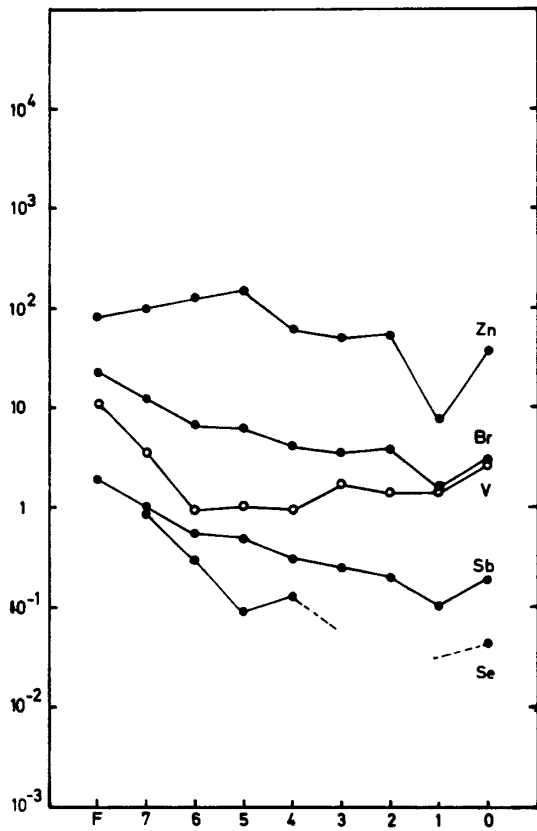
粒径単位： μm 単位： $\times 10^{-3} \mu\text{g}/\text{m}^3$

第2図 大気浮遊塵成分元素の粒径分布 (倉敷) (a), (b), (c)

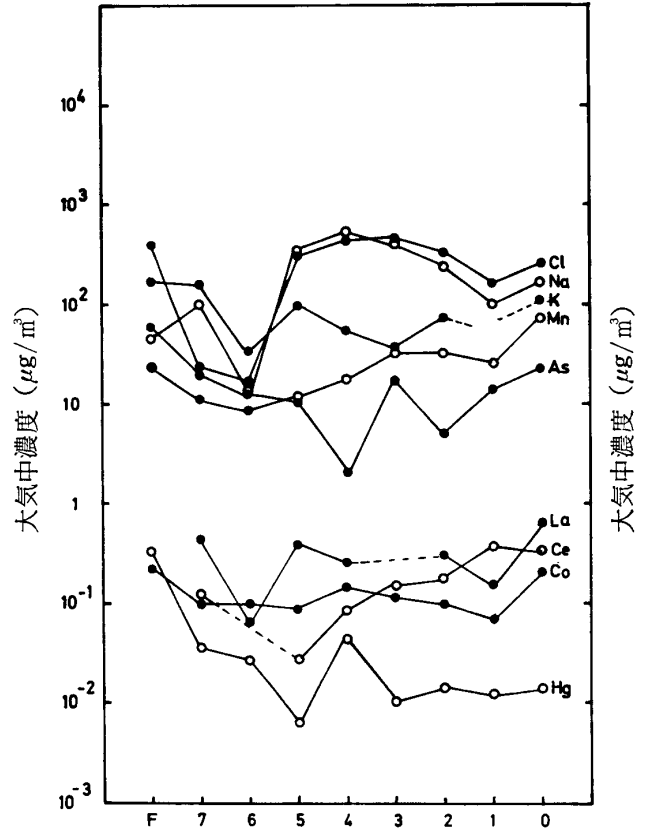


第3図 大気浮遊塵成分元素の粒径分布 (蒜山) (a), (b), (c)

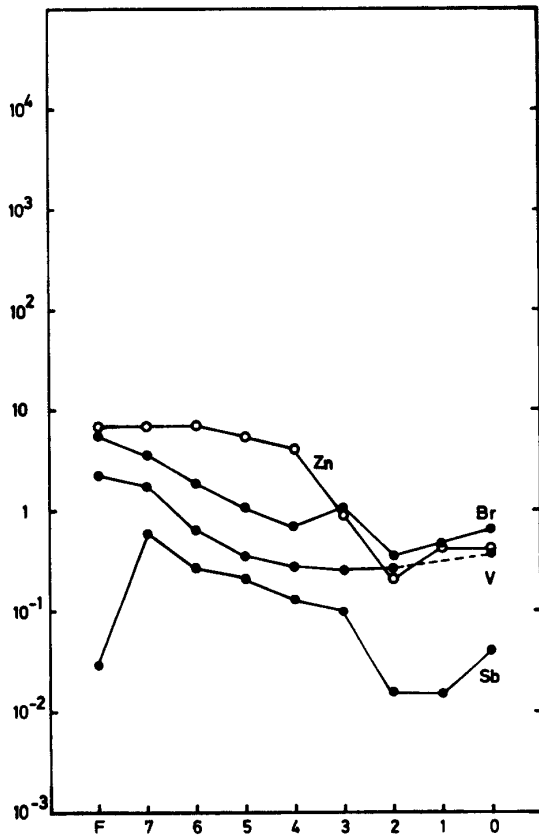




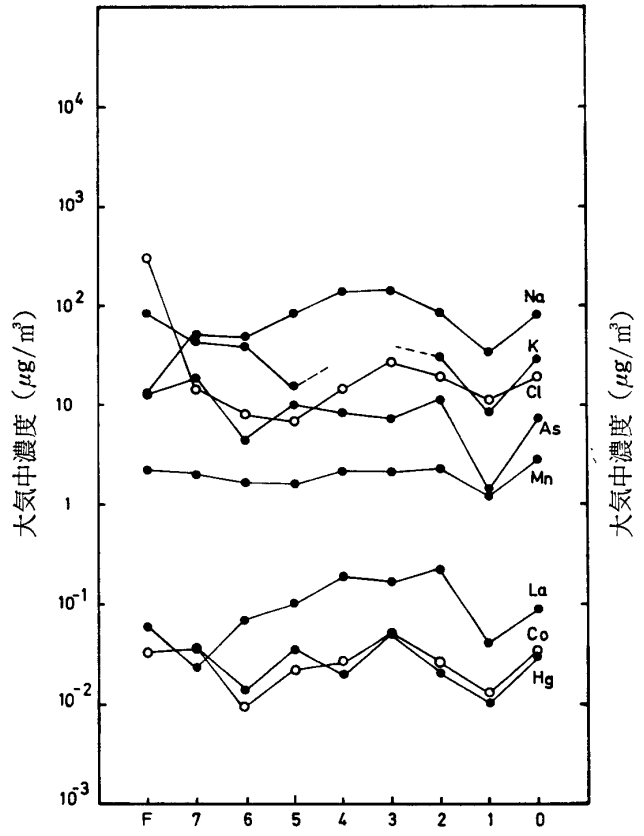
(b) ステージ



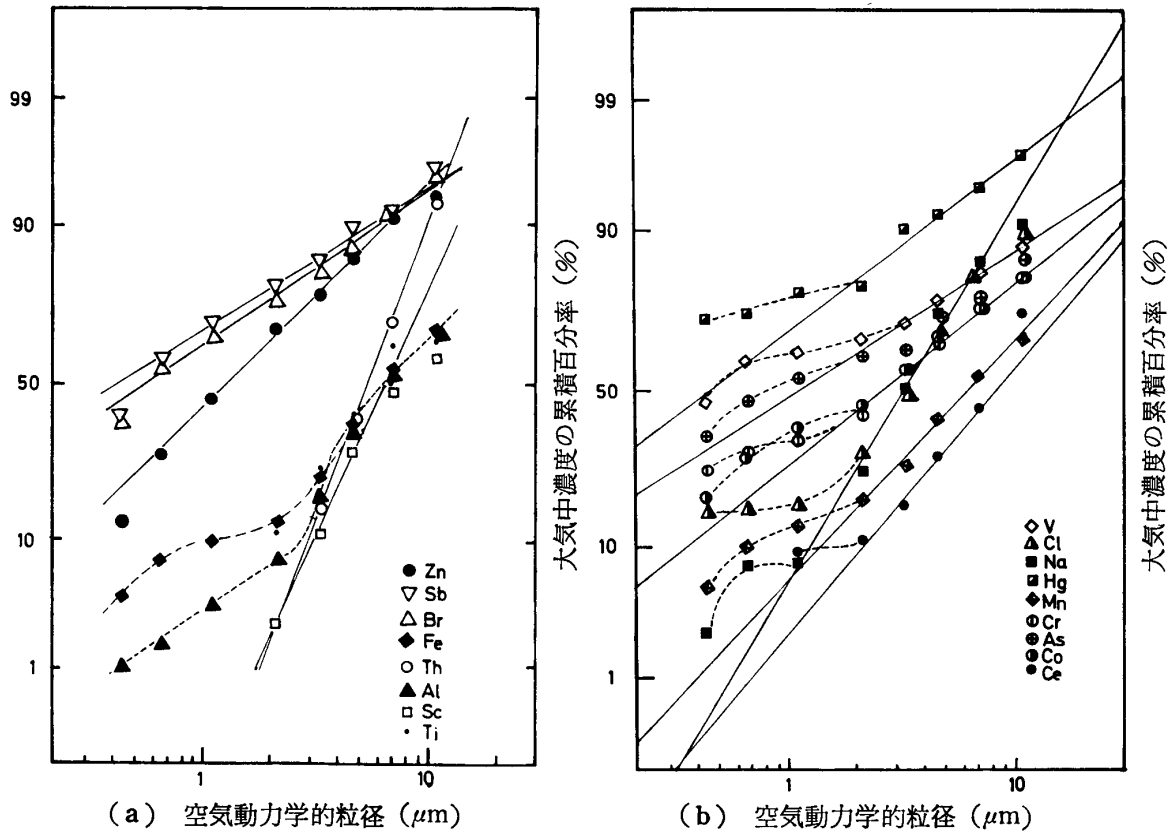
(c) ステージ



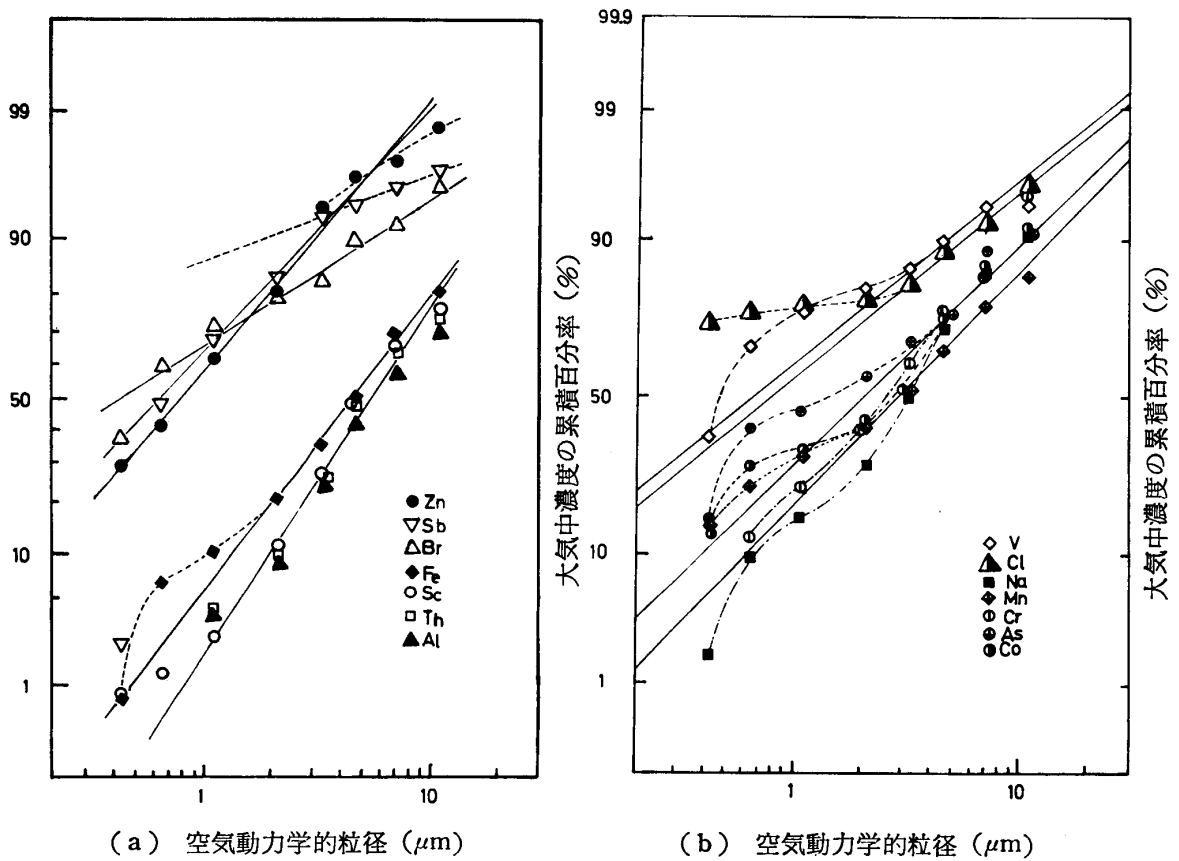
(b) ステージ



(c) ステージ



第4図 累積大気中濃度 (倉敷) (a), (b)



第5図 累積大気中濃度 (蒜山) (a), (b)

の増加とともに濃度が増加する傾向を示すもの(a), その逆の傾向のもの(b), さらに傾向の判然としないもの(c), に分けられる. 一般に大気中の粒子状浮遊物は対数正規分布を示すものが多い.^{3) 4)} この場合, これを対数確率紙にプロットすると直線で表わされ, 平均粒径は累積百分率が50%に達する粒径で, また, その標準偏差は平均粒径と累積百分率が84.13%に達する粒径との差で求められる. 主な元素につき, このプロットを行ったものを第4図, 第5図に示す. 第4図(a), 第5図(a)に属する元素はほぼ直線上にのり, 主として単一発生源より生じたものと解釈される. とくに蒜山のAl, Sc, Th, Feは同一直線上に落ちる. 上記の各元素につき平均粒径及びその標準偏差を求めたものを, 先に京都で得た値とともに第3表に示す. 表より, Al, Sc, Th, Feは大きな粒径をもち, その値も

第3表 平均粒径及び粒径標準偏差

元素 地点	Al	Sc	Th	Fe	Sb	Br	Zn	備考
Kurasiki	6.4 (-)	7.5 (9.5)	7.5 (9.5)	7.0 (-)	0.56 (2.4)	0.42 (3.1)	1.3 (4.1)	present data
Hirusen	5.5 (6.5)	5.5 (6.5)	5.5 (6.5)	4.5 (7.5)	0.65 (1.5)	0.42 (2.4)	0.80 (1.6)	
M 11	7.2 (8.5)	7.2 (8.5)	7.2 (8.5)	7.2 (8.5)	0.4 (1.6)	0.7 (1.9)	1.8 (6.2)	文献 4)

単位: μm ()内は粒径標準偏差

殆ど一致しており土壌粒子によるものと見なされるが, Sb, Br, Znは土壌粒子にくらべて非常に小さな粒径をもち, これは化石燃料の燃焼, 自動車排ガス等の高温変化をともなう産業活動から発生したものと考えられる. 第4図に示されている Na, Cr, Co, As, V, Hgは粒径の小さい側で直線からのずれを示し, 土壌成分の他に人工的な発生源よりの寄与を含むものと推論される.

実験を行うに当り大変お世話下さった京都大学原子炉実験所の林竹男教授及び武内孝之氏に心から謝意を表す. また, 試料採取地点の設定に便宜をはかっていたいただいた倉敷市公害監視センターの御好意に感謝する. 本研究は京都大学原子炉実験所共同利用研究として行われたものである.

References

- 1) T. Tomiyama, I. Yamamoto, A. Aoki and T. Ishii, 岡山理科大学紀要 10 (1976) 145.
- 2) R. E. Jarvis, J. J. Paciga and A. Chattopadhyay, Mesurment Detection and Control of Environmental Pollutants (1976) 125
- 3) A. Aoki, T. Ishii, T. Tomiyama and I. Yamamoto, 京都府立大学学術報告 No. 26 (1975) 53.
- 4) A. Aoki, T. Ishii, T. Tomiyama and I. Yamamoto, 京都府立大学学術報告 No. 27 (1976) 39.
- 5) Richard D. Cadle, The mesurment of air borne particle (John Wiley and Sons, Inc. 1975)

Activation Analysis of Airbone Dust (II)

Tsuyoshi Tomiyama, Isao Yamamoto, Atsushi Aoki* and Taka Ishii*

Abstract

Multielement components of airborne dust and their particle-size distributions were investigated using instrumental neutron activation analysis. Air sampling was done with a eight stage Andersen sampler in Kurashiki-City, an industrialized urban area, and in Hirusen heights, a rural area about 100km north of the city, in August, 1976.

Some elements associated with larger size dust particles (viz. Al, Sc, Th, and Fe) appeared to be mainly soil-derived, whereas other elements associated with the smaller size fractions (e. g. Sb, Zn, Br, V and Se) appeared to be originated from significant anthropic sources such as combustion of fossil fuels. The remaining elements showed no characteristic particle-size distributions and saggested to have composed sources. Observed concentrations for Zn, Mn, Fe and Cl as well as V, Cr and La were considerably higher in Kurashiki-City than in Hirusen heights.

* Kyoto Prefectural University