

放射化分析による大気浮遊塵成分元素 の粒径分布の測定 (I)

青木 敦・石井 孝・富山 毅*・山本 勲*

Neutron Activation Analysis of Size-separated Airborne Dust Particles (I)

ATUSHI AOKI, TAKA ISHII, TSUYOSHI TOMIYAMA* and ISAO YAMAMOTO*

アンダーセン・エヤ・サンプラーを用いて粒径を分けて採取した大気浮遊塵の中性子放射化分析を行ない、その成分元素の粒径分布を測定した。試料は京都市内で1974年12月下旬から1975年1月中旬にわたって採取した。Al, Sc, Fe, Ti, Th の大気中濃度は浮遊塵の粒径が大きい場合に高く、粒径が小さくなるにつれて急激に減少した。一方、Zn, Sb, Br, Cl, V はこれとは全く逆の傾向を示し、粒径が小さくなるにつれて急激に増大した。又、K, Na, Mn, Eu, Ce, W, Co では粒径による大気中濃度の大きな変化は認められなかった。これらの元素は、それぞれ、主として土壌粒子に由来するもの、人工的な発生源に起因するもの、及び、両者の混合したものに対応するものと推論した。

I 結 論

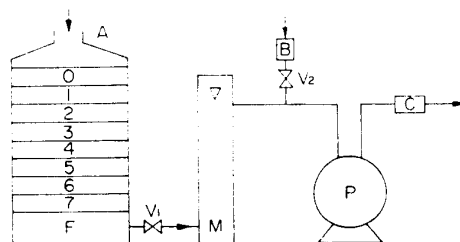
大気中に含まれている粒子状浮遊物には、発生の相違から種々の粒径のものが認められ、土壌粒子は一般に粒径が大きく、化石燃料の燃焼等によって大気中に放出された大気汚染元素は微粒子中に多く検出される¹⁾。粒径が数ミクロン以下の粒子状物質は、呼吸によって人体内に取り入れられる確率が高く、大気汚染物質の影響を考える場合に重要な意味をもつ。

我々は、これまでに、大気浮遊塵の中性子放射化分析を行ない、大気汚染状態の異なる数地点での大気中及び浮遊塵中の元素濃度を測定し、更に、これらの濃度の季節変化のパターンの考察から、土壌粒子のように天然に存在する粒子に含まれる自然発生的な元素と、自動車の排気ガスや産業活動等人工的なものに起因する元素とを或程度判別できることを報告した^{2), 3)}。しかし、V等の元素については、自然発生的なものとの人工起源のものとの混合が予想され、季節変化パターンからだけでは十分な結論を得るに至らず、更にこれらの元素濃度の粒径分布を測定することが必要であることが判明した。そこで我々は最近開発されたアンダーセン・エヤ・サンプラー^{4), 5)}を用いて、大気浮遊塵を粒径別に採取して中性子放射化分析でその成分元素の

粒径分布を求め、これより元素の起源の決定及び大気汚染の態様を考察することを意図し、今回は京都市内の1地点で予備的な測定を試みた。

II 測定装置及び方法

大気浮遊塵の成分元素の粒径分布測定用試料の採取に用いたエヤ・サンプラーの構成を第1図に示す。Aは日立機器製KA-200アンダーセン・エヤ・サンプラーで、試料空気は上部の取入口から日立製200WコンプレッサーPにより一定流量28.3 l/minで吸入され、Aの内部にスタック状に設けられた多段、多孔式ジェットノズルの作用により8段階の空気力学的粒径に分級される⁶⁾。分級された粒子は、直接中性子放射化分析が行なえるように、捕集用プレートの表面に固着した直径8cmのポリエチレンシート上に捕集した。又、捕集されずに通過した粒子を捕捉するために最後のス



第1図 エヤ・サンプラー

* 岡山理科大学, Okayama College of Science.

第1表 アンダーセン・サンプラーの仕様

分級 ステージ	ノズル径 (mm)	ノズル流速 (m/s)	分級粒径範囲 (μm)
0	1.20	0.55	>11
1	1.20	1.10	7.0~11
2	0.90	1.75	4.7~7.0
3	0.70	2.95	3.3~4.7
4	0.50	5.55	2.1~3.3
5	0.35	12.40	1.1~2.1
6	0.25	24.00	0.65~1.1
7	0.25	48.00	0.43~0.65
F	—	—	<0.43

ステージに MF-Millipore RA (8 cm ϕ) を用いたバックアップフィルター (F) を設けた。アンダーセン・サンプラーの仕様の一部を第1表にあげる⁶⁾。なお、第1図のMは流量計、Bはコンプレッサー用のフィルター、Cはサイレンサーで、又、 V_1 , V_2 は流量調整用のバルブである。

捕集された試料は、各ステージ毎に2分してポリエチレン袋に封入し、京都大学原子炉実験所の研究用原子炉の圧気輸送管を用いて、熱出力 5 MW でそれぞれ5分及び60分間照射して放射化した。放射化された試料のガンマ線スペクトルの測定及びその解析については既に報告したものと全く同様である³⁾。

III 結果及び考察

測定試料は、1974年12月下旬から1975年1月中旬の約25日間にわたって京都府立大学1号館屋上(京都市左京区下鴨)で採取したもので、サンプリング大気量は約1000 m³であった。放射化分析で求めた浮遊塵成分元素の粒径別大気中濃度を第2表に示す。ここに、大気中濃度に付記した誤差は放射線計測に伴う統計誤差のみを示し、核種分析に使用した中性子放射化断面積や半減期の定数値の誤差及びその他の実験誤差は含んでいない。この結果をグラフに書くと第2図(a), (b), (c)のように大別して3つのタイプに分類される。(a)は土壌粒子に多く含まれる元素に見られる傾向で、粒径の大きな粒子に多く含まれ、粒径が小さくなるにつれて急激に減少する。Al, Sc, Feはこのタイプに属し、Ti, Thも同様な傾向を示すものと思われる。これに反し、(b)に示す元素は(a)とは全く逆の傾向を示し、粒径が小さくなるにつれて急激に元素濃度が増大する。Zn, Sb, Brはこの傾向が特に顕著で、(a)に属する元素とは発生源が明らかに異なることを示唆している。Zn及びSbは京都市南部地域の地場産

業に、又、Brは市街地における自動車の排気ガスに起因するものと思われる。これは季節変化のパターンの変化の考察からの推論³⁾と一致する。更にClとVは良く似た傾向を示し、共に人工的な起源が主であると推察される。Clは自動車の排気ガス、Vは重油の燃焼からの寄与が大きいことが考えられる³⁾。その他、Se, Iにも同様な傾向が認められる。これらの元素は何れも大部分が人為的な原因で発生したもので、大気汚染と強く関連するものと考えられる。第1図(c)に示す元素は粒径により濃度が余り変化せず、天然及び人工の両要因が混在する場合にあると考えられる。大気浮遊塵の元素組成のこのような粒径分布は、Mamuro達の測定結果とも良く一致した傾向を示している⁷⁾。

大気浮遊塵の成分元素の粒径分布は、第2図に見られる様に発生源によって特徴的な変化を示す。更に、Sb, Br等有害と考えられる元素が、呼吸器官の深部まで到達することのできる数ミクロン以下の粒子に多く含まれることは注目に値する。大気浮遊塵の粒径別元素組成の測定は、大気汚染の実質的な態様について有用な知見を与えると共に、発生源についても有力な情報を提供する。

本研究を行なうに当っては、京都大学原子炉実験所林竹男教授に、又、実験データの電子計算機処理では同実験所の武内孝之氏に大変お世話になった。ここに心より謝意を表す。また、この実験は、京都大学原子炉実験所の共同利用研究として行なったもので、御世話いただいた実験所の方々に謝意を表す。

(1975年7月31日受理)

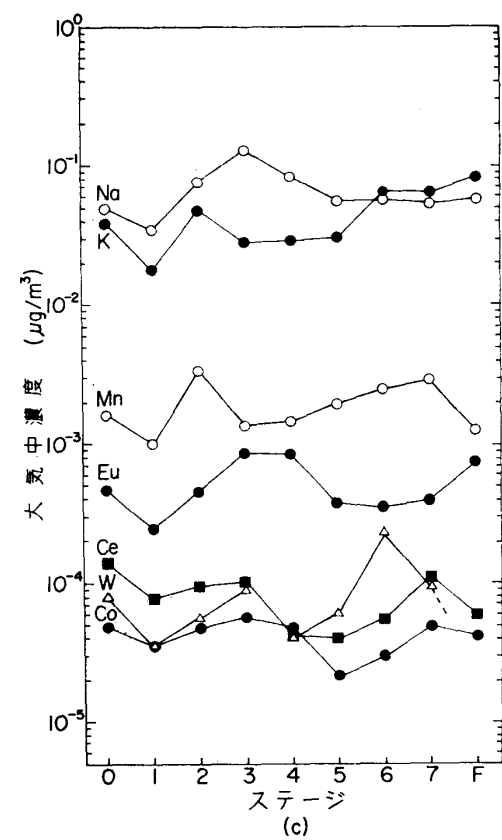
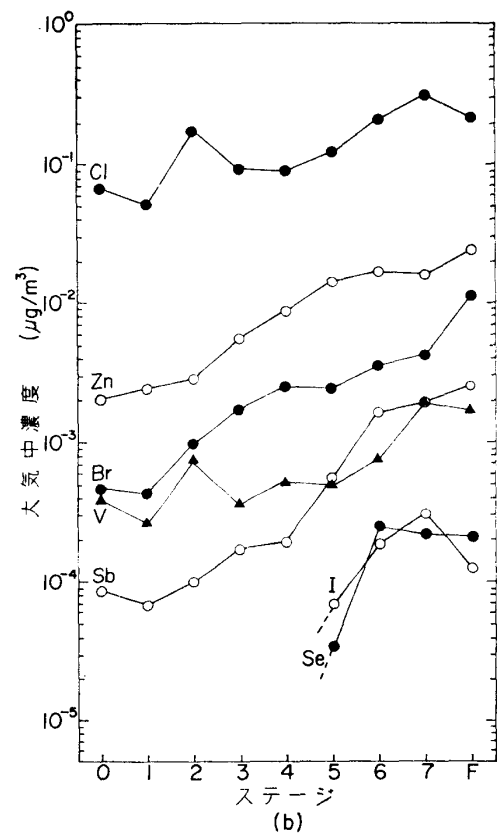
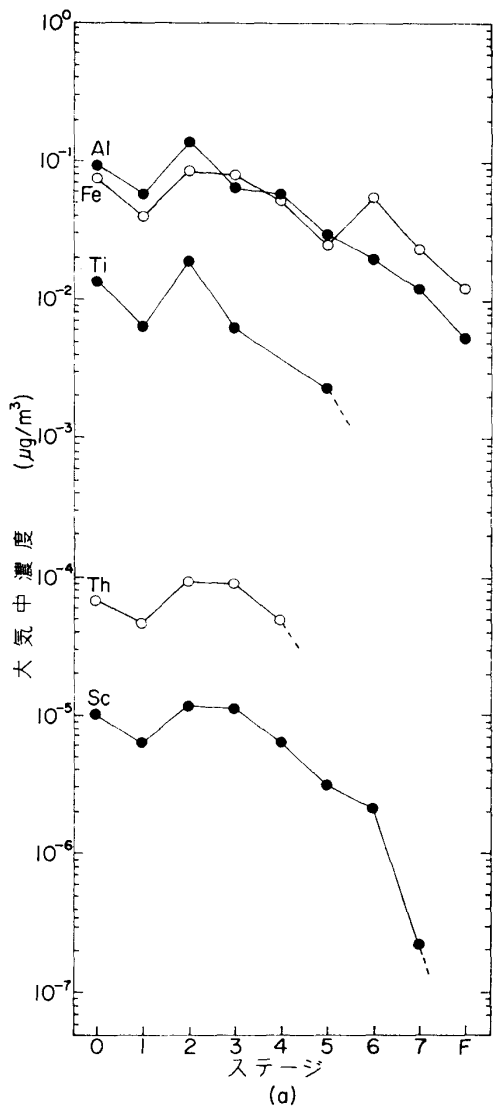
文 献

- 1) D. F. S. Natusch, J. R. Wallace and C. A. Evans, Jr., Science, **183** (1974) 202.
- 2) 青木 敦：京都府立大学学術報告(理学・生活科学), No. 24 (1973) 17.
- 3) 青木 敦・石井 孝・富山 毅・山本 勲：京都府立大学学術報告(理学・生活科学), No. 25 (1974) 31.
- 4) A. A. Andersen, J. Bacteriology, **76** (1958) 471.
- 5) A. A. Andersen, American Industrial Hygiene Association Journal, **27** (1966) 160.
- 6) 本間克典：公害と対策, **9**, (1973) 833.
- 7) T. Mamuro, T. Matsunami, Y. Matsuda and A. Mizohata, Annual Report of the Radiation Center of Osaka Prefecture, **14** (1973) 5.

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

元素	分 級								F
	0	1	2	3	4	5	6	7	
Na	49±1*	35±1	78±1	103±2	80±1	55±1	57±1	54±1	58±2
Al	94±3	58±2	140±4	65±2	59±5	30±1	20±1	12±1	5.4±0.6
Cl	68±2	51±2	174±5	94±3	91±3	121±3	224±6	310±6	214±11
K	39±3	18±2	47±3	28±4	28±3	31±5	64±4	65±7	82±10
Sc	0.010±0.0003	0.0062±0.0003	0.0125±0.0003	0.0107±0.0003	0.0063±0.0003	0.0031±0.0003	0.0021±0.0005	0.0002±0.0003	<0.003
Ti	13±1	6.3±0.1	19±3	6.4±1.4	<1.4	2.3±0.7	—	—	—
V	0.41±0.02	0.26±0.01	0.75±0.04	0.36±0.01	0.52±0.07	0.49±0.02	0.75±0.03	1.9±0.1	1.7±0.1
Mn	1.63±0.02	1.00±0.02	3.35±0.09	1.37±0.03	1.44±0.03	1.92±0.04	2.49±0.05	2.84±0.05	1.25±0.03
Fe	77±3	40±3	85±3	81±3	52±3	26±4	55±7	23±3	12±4
Co	0.049±0.006	0.037±0.006	0.048±0.006	0.057±0.006	0.048±0.006	0.022±0.006	0.030±0.014	0.049±0.007	0.042±0.010
Zn	2.0±1.0	2.4±0.8	2.8±1.1	5.6±1.3	8.8±0.1	14±3	17±3	16±2	24±6
As	—	—	—	—	0.8±0.2	1.3±0.2	0.9±0.1	0.8±0.1	0.7±0.3
Se	—	—	—	—	—	0.034±0.014	0.25±0.03	0.22±0.02	0.21±0.02
Br	0.46±0.03	0.43±0.03	0.95±0.03	1.7±0.1	2.5±0.1	2.4±0.1	3.5±0.1	4.2±0.1	11.2±0.2
Sb	0.085±0.005	0.066±0.005	0.10±0.01	0.17±0.01	0.18±0.01	0.55±0.01	1.63±0.02	1.86±0.01	0.25±0.02
I	—	—	—	—	—	0.067±0.012	0.19±0.03	0.30±0.02	0.12±0.04
La	0.042±0.011	0.039±0.014	0.042±0.006	0.044±0.009	0.040±0.001	<0.002	0.028±0.002	0.070±0.012	0.042±0.007
Ce	0.14±0.01	0.072±0.014	0.094±0.014	0.10±0.01	0.044±0.014	0.040±0.014	0.054±0.030	0.11±0.02	<0.03
Eu	0.47±0.08	0.25±0.06	0.45±0.04	0.85±0.07	0.83±0.08	0.37±0.07	0.35±0.11	0.39±0.05	0.74±0.10
W	0.080±0.024	0.036±0.020	0.057±0.012	0.093±0.024	0.043±0.016	0.060±0.016	0.24±0.02	0.097±0.022	<0.03
Th	0.066±0.016	0.046±0.014	0.092±0.016	0.090±0.016	0.048±0.014	<0.02	0.050±0.028	<0.02	0.044±0.024

*統計誤差



第2図 大気浮遊塵成分元素の粒径分布