

ミニステップサンプラーを用いた大気浮遊塵の多地点モニタリング

松山成男、石井慶造、山崎浩道、加藤浩介、Ts. Amartaivan、小森祐嗣、伊豆川大士、堀田和茂、水摩恵子、織原彦之丞^{*1}、ニッ川章二^{*2}、世良耕一郎^{*3}、中村栄一^{*4}

東北大学大学院工学研究科量子エネルギー工学専攻
980-8579 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉 01

^{*1}東北大学サイクロترونラジオアイソトープセンター
980-8578 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉 01

^{*2}日本アイソトープ協会仁科サイクロترونセンター
020-0173 岩手県岩手郡滝沢村字留ヶ森 348-58

^{*3}岩手医大サイクロترونセンター
020-0173 岩手県岩手郡滝沢村字留ヶ森 348-58

宮城県保健環境センター
983-0836 宮城県宮城野区幸町 4-7-2

1. 緒言

エアロゾル中の元素濃度はその発生源に関する情報を多く含むため、その元素濃度を分析することにより汚染発生源を特定できる可能性がある。CMB法を用いた発生源の特定が行われているが¹⁾、CMB法は統計的な解析から得られる寄与率のみで汚染源の特定する方法なので、それだけでは信用性に欠けてしまう。我々は、これまでにステップサンプラー(グリーンブルー社製)を用いて1地点での時間分解能の高いサンプリングを行い、分析した元素濃度と、そのサンプリング地点での風向等のデータと合わせて解析した。その結果、エアロゾル中の各元素の濃度は人間活動や風向に強く依存しており、汚染源の特定の可能性があることが分かった²⁾。しかしながら、1地点のみでのサンプリングデータは、種々の発生源や、大気中での輸送の影響を受けており、それだけで、発生原因地点の特定は不可能である。そこで、大気エアロゾルの多地点同時収集・時系列収集・気象データとの同時収集を行い、それをPIXE法で分析し、それらのデータ解析することにより発生原因・地点・時刻の特定を行うことが可能になると考えられる。そこで、小型・軽量・省電力で長期にわたる連続収集が可能なミニステップサンプラーの開発を行い、それを用いて多地点同時サンプリングを行い、汚染源を特定することを試みた。

2. ミニステップサンプラーの開発

多地点で高い時間分解能を保ちつつ長期にわたるサンプリングを行うには、サンプリング装置の吸入口径を小型化することが有効である。これは、エアロゾルを捕集するフィルターの有効活用や真空ポンプの小型化による省電力化につながり、サンプリング装置全体の小型化にもつながり、いかなる場所でのサンプリングも可能になる。そこで、吸入口径を小型化したときのサンプリングへの影響について調べた。まず、吸入口径が4mmと2mmのサンプリング装置で同時サンプリングを行い、そのときの吸入口径の違いによる収集される元素の絶対量や試料の一様性に与える影響について調べた。その結果、径を小さくすることで収集される元素の絶対量への影響は見られなかった。また、サブミリ径のビームをスキャンしてエアロゾルの平面上の分布を調べた結果、試料上の一様性に大きな差異はみられなかった。これらの結果から、吸入口径を2mmにしても十分サンプリングが可能であるということが確認できたので、吸入口径2mmのミニステップサンプラーを開発し、ステップサンプラー(グリーンブルー社製)とあわせて同地点での連続的な同時サンプリングを行った。その結果、得られた元素濃度の収量とその時間変化パターンは、一致しており、ステップサンプラーと同等の性能を示していることがわかった。

しかしながら、このミニステップサンプラーは、試料を直線上に採集していたため、採集できる期間は、サンプリング時間を3時間とした場合でも1週間であった。そこで、より時間分解能の高い長期間のサンプリングに適した、吸入口が2軸上を移動し、平面上に試料を捕集できる新型ミニステップサンプラーを開発した(図1)。

これまでのミニステップサンプラーでは、1回の設置における捕集可能試料数がおよそ60個であったが、この二次元型ミニステップサンプラーではおよそ900個の試料の捕集ができ、これを用いれば、サンプリング時間を1時間とした場合でも1ヶ月の連続サンプリングが可能となった。

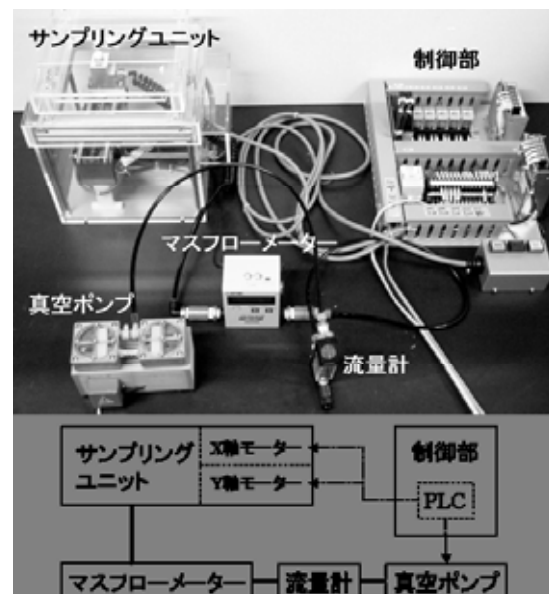


図1 ミニステップサンプラー

3. サンプリング

大気汚染監視システムを構築するにあたって、仙台市近郊の国道4号線沿いの工業地域において、ステップサンプラーと製作したミニステップサンプラーを用いて、7月下旬から8月上旬にかけての2週間と12月の中旬の2週間の、夏と冬の2度にわたってエアロゾルの多地点同時サンプリングを行った。サンプリングには、孔径1 μ m、厚さ10 μ m、孔密度 2×10^7 pores/cm²のニュークリポアフィルターを使用した。サンプリング流量はステップサンプラーとミニステップサンプラーで線速度が等しくなるように設定した。サンプリング時間は3時間とした。

サンプリングでは、特にタイヤ工場と製紙工場から大量に排出されている排煙がこの地域に与

える影響に注目し、夏は A・B・C の 3 地点に、冬は A・B・C・D の 4 地点にサンプリング装置を配置してサンプリングを行った。

4. 結果

捕集したエアロゾル試料の PIXE 分析には、東北大学工学部ダイナミトン実験室の大気中 PIXE 分析装置を用いた。PIXE 分析は、3MeV でビーム径が 1.5mm の陽子ビームを 5 分間照射して行った。PIXE 分析によって得られたデータを解析し、いくつかの元素についてそれぞれの元素濃度の時系列データを得た。

夏のサンプリングでは、Ca、Ti、Fe の 3 つの元素濃度の変動パターンが非常に良く類似して、1 日毎の変動が、昼に濃度が高くなり、夜には低くなるという周期的な動きを見せており、また、1 週間毎の動きにおいても、週末にはそれぞれの元素濃度が低く、平日には濃度が高くなるといった周期的な変動が確認された(図 3)。これは、以前の研究でも確認されている人間活動の影響を反映した結果であるといえる。

Cu については、元素濃度の変動に関しては上の元素のような周期性はまったく見られず、7 月下旬に時折突発的にその濃度が高くなるといった挙動を示しており、B 地点において最大濃度を記録した時間帯ではその濃度が日本の平均濃度のおよそ 90 倍といった非常に高い濃度を示した。8 月に入るとほぼ日本の平均濃度程度かそれ以下に落ち着いている。また、他元素間との相関を見ると、Cu はどの元素とも相関がほとんど無く、固有の発生源を有していることがわかった。

次に Zn については、Cu と同様に周期的な変化はなく、各地点で時折突発的に濃度が上昇するという特徴的な変化をしていた。A 地点ではそれほど大きなピークは無く、サンプリング期間全体を通してほぼ日本の平均濃度並みの濃度を示していた。B 地点では、他のサンプリング地点と比較してピークをとる回数が多く、最高濃度を記録した時間帯には、日本の平均濃度のおよそ 45 倍という高い値を示した。この元素は各地点でそれぞれ異なる時間帯にピークを取ることが多く見られた。



図 2 サンプリング地点周辺

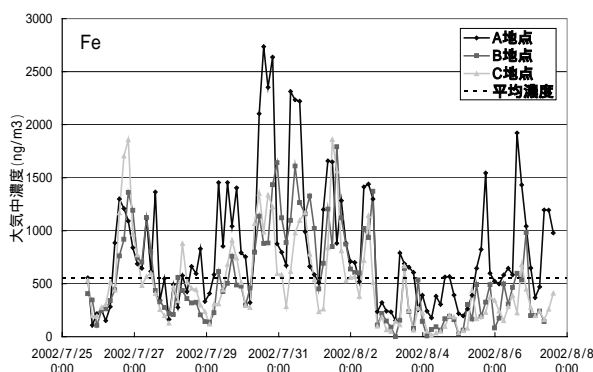


図 3 Fe の元素濃度変化 (夏)

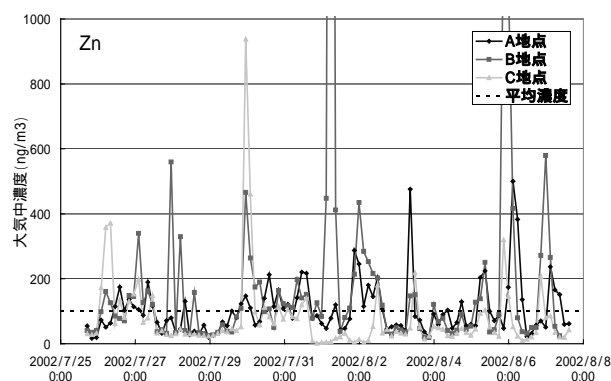


図 4 Zn の元素濃度変化 (夏)

CuとZnに見られる場所ごとの時系列データの大幅な差異は風向による影響と考えられ、次に、これらのデータと風向データを組み合わせて解析した。その結果、土壌起源の元素間の相関が高く、それらの元素は風向依存性がほとんど見られなかった。しかし、CuとZnは他の元素とは異なり特徴的な風向依存性を示していた。

CuとZnは時系列データにおいても特徴的な挙動を示していて、その最高濃度も非常に高い値を示していた。さらに、この二つの元素は人為起源と考えられ、その人体への影響も心配される。そこで、この二つの元素の発生源の特定を試みた。

Cuの元素濃度と風向の関係を時間を追って地図上で見ていくと、全体的に濃度が高くなる時は3地点で北東方面の風が吹いており、特にB地点において濃度が高い値を示す。また、A地点のみで濃度が高くなる時はA地点には南東方面から風が吹いていた。これらのことから、Cuの発生源はB地点から見ると北東方向で、また、A地点からみると南東方向にあると考えられる。そこには、図2で示した工業地帯があり、その中の工場から、発生している可能性があるといえる。しかし、北東方向からの風が吹いたときは広い範囲でCuがえられているので、工業地帯よりも遠い場所に大きな発生源があり、拡散したものをとらえているとも考えられる。

Znについて見ていくと、A地点では風向依存性は見られないが、B地点では南西方向に、C地点では北東方向にそれぞれ風向依存性を示しており、その依存方向が逆転している様子があった。このことから、発生源がB地点とC地点の間にあるという可能性が考えられる。また、B地点で最高濃度を示した時間帯にはB地点には南西の方角から風が吹いていて、非常に多くの量のZnが得られているのに対し、B地点の南西の位置にあるC地点ではZnがまったく得られていなかった。このような状態は、他の時間帯にも確認され、また、図5におけるB地点とC地点の風向別濃度分布の関係を考えると、Znの発生源はタイヤ工場か、製紙工場のどちらかであるといえる。



図5 Znの風向依存性(夏)

次に12月に行ったサンプリング試料の分析結果について述べる。冬はA・B・C・Dの4地点でのサンプリングを行ったがA地点に設置した二次元型ミニステップサンプラーの動作のプログラムにミスがあり、1日半のデータしか得ることができなかったため、ここではB・C・D地点の結果についてみていく。冬に得られた試料も夏と同様の条件でPIXE分析を行った。その結果、まず、全体的に夏よりも低い濃度を示すといった季節的な変動が確認された。元素ごとの濃度変化を見ていくと、土壌起源の元素には夏と同様に、昼に濃度が高くなり夜に低くなるといった一日毎の周期的な変化が確認される(図6)。

しかし、一週間毎の変動パターンとしては、平日に濃度が高く、週末に濃度が低くなるといったような規則性はなく、逆に、水曜日・木曜日にあたる12月18・19日は土壌元素の濃度が低くなるといった結果が得られた。これらの日においても一日毎の変動をしているので、この結果も人間活動の影響であると考えられる。サンプリング期間は年末にあたり、人間の活動が普段とは違った動きをしていたと考えられる。

Cuについては、すべてのサンプリング地点で期間を通して低い濃度に落ち着いていて、夏に見られたような濃度の上昇は見られなかった。24日にB地点で濃度が高くなっている時間帯があるが、夏のピークと比べるとその量は少なく、環境には影響がないといえる。

Zn(図7)は、夏と同様に濃度の変動に周期性は無く、濃度が突発的に高くなっている。ピークをとる時間帯は各地点で異なっている。ふたつの工場からの位置はB地点とC地点でほぼ等しいにもかかわらず、濃度はB地点が他の2地点に比べて高く、発生源からの影響を一番受けている。他の元素は夏に比べて濃度が減少していたが、Znは夏と同程度の濃度であった。工場が夏と同様に稼働していることがわかる。

次に風向別濃度分布を見ると、全体的に東と南に比較的強い依存性があることがわかる。風向別濃度分布の相関を見ても、自然起源と思われる元素に関しては、それぞれ互いに相関が高く、同様の発生源から得られている様子が見られる。C地点においてはCuにおいてもそれらの元素との相関が高い。元素濃度間の相関を見ても比較的高い相関を示している。B地点においても同様の傾向が見られ、この期間に得られたCuは、夏の人為起源から発生したものと異なり、自然起源由来のものであると言える。

Znは、C地点において他の元素と比較的強い相関関係を示している。他の元素に比べて北東方向に強く依存しているが、人為起源のZnの量が少なかったために、自然起源の元素との相関が高くなったと考えられる。B地点においては、南西方向に強く依存していて、D地点においては

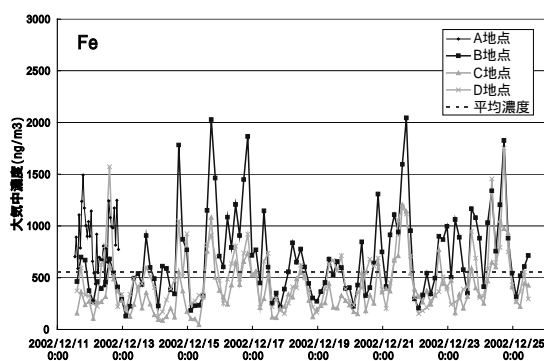


図6 Feの元素濃度変化(冬)

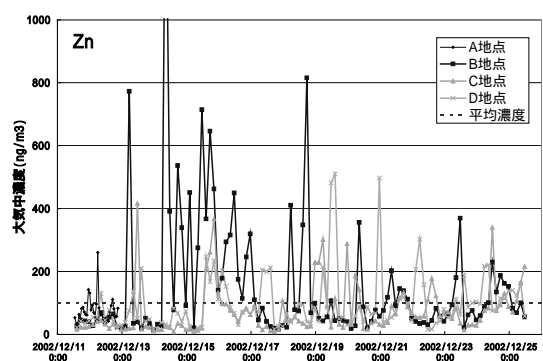


図7 Znの元素濃度変化(冬)

その量は少ないが、北東方向に依存性を示している。3地点で異なる方向に依存性があるため、その位置関係を合わせてさらに解析を行った。

各地点における風向依存性を位置関係と共に見ると、すべてのサンプリング地点において工場のある方向に依存性を示していることがわかる(図8)。B地点においては工場方向への風向依存性が他の地点より高くなっている。夏にも同じことが確認されている。これは、Cが河岸付近で

あたり、D地点が工場との間に川はさんでいたりするために、川の周辺で吹く強い風により工場の排煙が拡散されたためと考えられる。また、各地点の濃度の時間変化とそのときの風向とを見ていくと、B地点で濃度がピークを取ったときは南西方向からの風が多く、C地点では北や北東からの風、D地点では北から北西にかけての風が多いことがわかった。これらの結果から、このサンプリング期間に得られたZnも夏期同様に二つの工場のどちらかの工場を発生源とするものであることを確認することができた。



図8 Znの風向依存性(冬)

5. 今後の展開

これにより多地点同時サンプリングは、汚染発生源の特定に非常に有効であることが示された。今後、二次元型ミニステップサンプラーを増設し、より多地点での同時収集と解析を行う。これに併せてあわせて、元素分布の動態を解析するソフトの整備も進めていく。

参考文献

- 1)花石竜治、早狩進、青森県環境保健センター報告 10,45,1999
- 2) S.Matsuyama et.al., International Journal of PIXE, Vol.9, Nos. 1 & 2 (1999) 51