普通室内環境における空中浮遊粒子の測定法に関する研究 (I)

Cascade Impactor による浮遊粒子の測定法について

国立公衆衛生院 末永 泉二

Studies on the Determination of Air-Borne Particles
in Room Air (I)The Modified Glass Cascade Impactor for Sampling
Air-borne Particles

S. Suenaga (From The Institute of Public Health, Tokyo)

A new type glass cascade impactor having round jets was designed. The frequency distributions of particle size in each 3 or 5 stages were determined, and studied on the microscopic counting technique, the efficiency of adhesive agents as slide glass treatment for sampling, and the effect of the volume and velocity of air sampling.

This impactor can divide particles ($0.45 \sim 19 \mu$) into 3 or 5 sizes, and the impactor having 3 stages is suitable for field test.

まえがき

著者らは、さきに一般室内環境における浮遊粒子について、その数、重量および紙汚染度の測定法に関する基礎的な実験結果と、これらによる一般環境の調査成績とを報告し、さらに測定法相互の相関関係および塵埃濃度に対する判定基準について考察を加えた^{1)~4)}。

本実験では著者は、塵埃の物理的組成すなわち粒子の大きさと塵埃数、重量および細菌数との関係、ならびに一般環境における現場調査を実施し、その結果によって、それぞれの測定法について検討を行い、環境における浮遊粒子についての衛生上の総合的な判定資料を得ようとするものである。

従来浮遊粒子の濃度は、粒子数と重量とで表わされているが、相互の関係は、粒子の径と比重とによって大きく変化する⁵⁾。

浮遊粒子の粒径分布は、その発生原因と環境条件によって異なり、また浮遊粒子の発生防止と排除の方法は、粒径分布によって違って来るはずである。

また浮遊粒子の有害性の原因となる呼吸器系への沈着率は粒子径によって異なり、上部気道においては、粒子径が 2.5μ 以上になると沈着率が大きくなり、肺胞においては $0.5 \sim 2 \mu$ が最高になる⁶⁾。したがって浮遊粒子濃度の測定結果を解析するために、同時に粒径分布を知ることが、空気衛生検査の目的からも不可欠なことであり、

ところが従来塵埃の測定には、一般に労研式塵埃計が使用されていたので、主として $1 \sim 2 \mu$ 以下の微粒子についての成績だけが報告され、粒径分布などについての記載はほとんど見当たらない。

粒径分布を測定する方法は種々あるが、そのうちで最も簡便で実用的なものは Cascade impactor による方法である。本器は 1945 年 May が紹介したもので⁷⁾、その後多くの報告があるが^{8)~11)}、わが国では現在試作の段階であって、まだ一般に使用されていない。したがって、本器に関する研究報告も見当たらない。

著者は製作が容易な円形の噴出孔を有するガラス製 Cascade impactor を試作し、これを用いて基礎的検討と現場調査を行い、本器の使用の意義を考察したが、本報では基礎実験の結果を報告する。

1. ガラス製 Cascade Impactor の構造と操作法

Fig. 1 に示すようなガラス製 Cascade impactor を試作した。

I 型は A, B, C, D および E の 5 段階からなり、II 型は I 型の A, C および E だけを用い、おもに現場測定に供した。これは三方コックによって、各段階ごとに試料吸引量が調節できるようになっている。F 部はコックの切り換えの際、流速が変化しないように絞ってある。

噴出孔は円形で、試料吸引速度は毎分 12L とした。噴出孔の直径と噴出孔における空気の流速は Table 1 に示す。

Fig. 1. Glass cascade impactor

Table 1. The Diameter of Round Jets and Air Velocity at Orifices

Cascade impactor Stages	Diameter of Jet(mm)	Velocity at Orifice cm/sec
A	9.5	2.82×10^3
B	5.0	1.02×10^3
C	3.1~3.2	2.57×10^3
D	2.1~2.2	5.51×10^3
E	1.2~1.25	1.70×10^4

(1) 試料の採取：はじめにガーゼを 10% のグリセリン（またはポリエチレングリコール 400）を含むアルコールで潤おし、軽く絞って乾燥する。これを用いて清浄なカバーガラスをふき、このカバーガラスを各段階の噴出孔の対称面に少量のグリセリンではりつける。つい

で各段階を連結し、毎分 12 L の速度で試料空気を必要量だけ吸引する。試料採取後は、カバーガラスをとりはずし、労研式塵埃計の場合と同じ方式で標本を作製する。Fig. 2 に採取塵の顕微鏡写真を示す。

Fig. 2. Dust particles collected by cascade impactor

(2) 計測法：採塵面は円形であるから、Fig. 2 のように四方向に等間隔の各 4 視野 (C_1, C_2, C_3 および C_4) ずつにおける塵埃数を計測し、それぞれの 4 視野の和 $\Sigma C_1 \dots C_4$ を求め、次式によって採塵数を算出し、試料採取量から空気 1 L 中の塵埃数を求める。

鏡検の際の倍率は、各段階によって変え、Table 3 のようにする。

採塵数 =

$$\frac{\pi \times (I)^2 \times (\Sigma C_1 + 3\Sigma C_2 + 5\Sigma C_3 + 7\Sigma C_4)}{1 \text{ 視野中の計測区画数} \times 4}$$

ただし, l : 計数点(1~4)間の距離を区画目盛で表わしたもの。

Fig. 3. Field situation on counting

Table 2. Magnification on Counting

Stage	Magnification	Field
A	$\times 80$	Bright field
B	$\times 80$	"
C	$\times 100$	"
D	$\times 320$	"
E	$\times 320$	Dark field

2. 標本面における粒子の分布

標本面における粒子の吸着状態は, A段階では, 吸着粒子の密度が空気の吸引の方向に向って次第に小さくなっており, B以下の段階では, 噴出孔に対する中心点から周囲に向って, 密度が次第に小さくなっている. Fig. 4にその状態を示す。

Fig. 4. The distributions of particles on cover glasses

3. Cascade impactor (I型) の各段階における採取塵の粒径分布

本器(I型)を用いて, 大気塵, 炭末カオリン混合粉塵および多数集集場所の塵埃を採塵し, これについて各段階ごとに250個ずつの粒子の直径を, 接眼 Filar マイクロメーターを用いて1000倍油浸で測定し, それぞれの直径について度数分布を求めた. 分布曲線は生の数値では, 小さい方へのかたよりが大きいので, 平方根値をとって分布曲線を作図し (Fig. 5), また平均値と標準偏差とを求めた (Table 3).

4. 計数倍率による計測値の差と粒径分布に対する影響

同一標本について, 計数倍率および照明方法を換えて

計数した場合, 測定値の差異の比を Table 4 に示す。

計数値が変化するおもな理由は, 鏡検倍率が小さくなるほど, 小さい粒子が見えなくなる場合と, 接近したものを1個と数える場合とがあるが, 後者は実用上無視できる割合である¹²⁾¹³⁾. したがって, 前者だけによるものと考えれば, Fig. 5の各度数分布曲線に囲まれた面積に, Table 4の数値を乗じた面積が, 鏡検倍率の低い場合の粒径分布曲線に相当する. この方法によれば, 倍率80倍と100倍とによって, 計数されない粒子径は, 平均約 3.5μ 以下となる. 以上の方法によって, 1.に示した実際の計測の条件における吸着粒子の粒径分布曲線は Fig. 6のようになり, 各段階における吸着粒子の平均粒径は Table 5に示すようになる。

Table 3. Mean and Range in Each Stage of the Impactor ($\times 100$, oil immersion)

Stage	A	B	C	D	E	R*
M	9.7	4.4	2.9	1.6	0.93	0.55
$\pm\sigma$	3.4~19.	1.5~8.8	1.3~5.3	0.75~2.8	0.45~1.6	0.33~0.84
**	16	5.0	2.1	1.5	0.65	

* The Diameter of smog particles caught by Rōken dust counter

** Calculated from the figure in the report by J. D. Wilcox¹⁰⁾**Table 4.** Deviation of Particle Counts in Different Magnification and Illumination

Exp. No. = 4	Bright field $\times 80$	Bright field $\times 100$	Bright field $\times 320$	Dark field $\times 320$	Bright field $\times 1000$ (oil imm.)
average.	0.21	0.26	0.55	1.0	1.0

Table 5. Mean and Range of Particles in Each Stage in the Magnifications of Table 2

Stage	A Bright field $\times 80$	B Bright field $\times 80$	C Bright field $\times 100$	D Bright field $\times 320$
M	11.8	7.6	5.8	2.4
$\pm\sigma$	5~22	3.5~13	3.5~9	1.4~3.9

Fig. 5. Particle size distributions by cascade impactor ($\times 1000$, oil immersion)

5. Cascade impactor II型による吸着粒子の平均粒径

II型における粒径分布は Fig. 6 においてA段階はそのまま、C段階はB+Cにより、E段階はD+Eによって表わされる。しかし浮遊粒子は微細なもののほど、単位

Fig. 6. Distributions of particle size in the magnifications of table 2

体積の空気中に含まれる粒子数が大きいから、測定値は一般にA→Eの方向に大きくなる (Table 6).

Table 5の各段階の平均粒径および Table 6の各段階の粒子数の比から、II型におけるA、CおよびE段階の平均粒径を算出すると、Table 7のようになる。

6. 採塵面における粘着剤の効果

同じ径の噴出孔を有する Impactor 2個を連結して、試料空気を吸引した場合、第一の Impactor における吸着粒子数と第一および第二の Impactor における吸

Table 6. Particle Counts (P/L) in Each Seage, and Ratio of A, B, D and E stage to C stage

Places \ Stage	A	B	C	D	E	Röken Dust Counter P/cc
Atmosphere	24 (0.06)	203 (0.52)	390 (1.0)	1900 (4.9)	141000 (360)	1720 (4410)
Dining room	64 (0.06)	530 (0.50)	1060 (1.0)	3760 (3.5)	170800 (160)	1020 (960)
Laboratory	23 (0.12)	118 (0.61)	194 (1.0)	2270 (11.7)	126000 (650)	—
On Cleaning	970 (0.10)	5410 (0.57)	9450 (1.0)	88950 (9.4)	515500 (550)	—
Average of ratio	(0.08)	(0.55)	(1.0)	(7.4)	(430)	(2700)

The numbers in the round brackets are the ratio of Particle Counts.

Table 7. Mean of Diameter of particles on Each Stages of II Type Impactor

A ($\times 80$)	C ($\times 100$)	E ($\times 320$. Dark)
11.8 μ	6.5 μ	0.95 μ

着粒子数の和との比によって、捕集効果を比較することができる。また一定濃度の試料空気について、2個のImpactorで同時に測定を行って捕集効果を比較することもできる。

以上二つの方法で採塵面に清浄なカバーガラスを用いた場合と、グリセリンその他の粘着剤を塗布したカバーガラスを用いた場合との捕集効果を比較した (Table 8)。すなわち、グリセリンとポリエチレングリコールは、捕集効果を上げるのに役立つ。しかし労研式塵埃計では、大気煤塵のような微粒子に対しては、かえってグリセリンのために捕集率が低下する。これは微粒子がグリセリンに一部親和性または可溶性を有するためと考える。この現象は、E段階においても吸引速度をより大きくした場合に認められる (Fig. 8)。

なお粘着剤としてワセリン、流動パラフィン、シリコン油などは、ガラス面に均一な層を作りにくいので不適当である。

7. 試料空気採取量と計測値

Cascade impactor における空気採取量と粒子の計測値との関係を Fig. 7 に示す。空気採取量が大きくなると、計測値が下がる傾向があるが、その空気採取量の変化は実用上に支障のない程度である。

Fig. 7. Particle counts and sampling air volume

8. 空気吸引速度と粒子捕集効果

試料空気の採取において、吸引速度を変えて測定を行った場合、各段階における計測値を、C段階の毎分12Lの吸引速度の場合の計測値に対する割合で示すと、Fig. 8 のようである。

すなわち、AおよびC段階においては、吸引速度が大きいほど、計測値が大きくなる。

Table 8. Effect of Adhesive Agents for Sampling by Two Connected Stage

Impactor stage	Coverglass treatment	Efficiency $\left(\frac{1 \text{ st. Stage counts}}{1 \text{ st. and 2 nd. stage counts}}\right)$
A	Clean	0.89
B		0.57
C		0.51
A	Glycerol coating	0.96
B	"	0.76
B	Polyethylene glycol 400 coating	0.80
C	Glycerol Polyethylene glycol 400 mix. coating	0.68

Ratio of Counts on Clean cover glass to glycerol coating cover glass

C	0.76
E	0.75
Röken Dust Counter	2.6

Fig. 8. Effect of sampling velocity to particle counts

E段階 (I型) においても、採塵面にグリセリンを用いない場合は、同様の傾向が認められるが、グリセリンを用いた場合には、計測値の増加が少い。D段階においても吸引速度の増加は、必ずしも捕集効果を増加しない。すなわちD段階の Impactor 1 個のみを用い、毎分

Fig. 9. The relation between the calculated weight of particles caught by cascade impactor and Röken dust counter, and the total weight of particles caught by electrostatic dust sampler

1.2Lの吸引速度で測定した場合を、II型の毎分12Lの吸引速度の測定値と比較すると、Table 9に示すようであり、このD段階における粒子数比は、Table 6における毎分12Lの吸引速度での実測例と、ほとんど一致している。

9. Cascade impactor の粒子捕集率

Cascade impactor A, C および E, 労研式塵埃計および電気集塵器によって、塵埃数と重量を同時に測定し、Cascade impactor と労研式塵埃計とによる計測数に、粒子の各平均体積と粒子の比重とを乗じて求めた

Table 9. Ratio of Particle Counts A, D and E Stage to C Stage

N: Exp. times		A 12L/min	C 12L/min	D 1.2L/min	E 12L/min
Dusting exp.	N=3	0.08	1.0	9.1	164
School and Office	N=6	0.34	1.0	7.2	1400

重量値の和と、電気集塵器による重量値とを比較すると、Cascade impactor による塵埃捕集率は不完全であり、特に塵埃濃度が高い場合に著しく不完全になる。この二つの重量値の間には、次式のような関係がある。

$$\log C = 0.765 \log E$$

ただし、C: Cascade impactor および労研式塵埃計による測定数から求めた重量値

E: 電気集塵器により測定した重量値

Fig. 9 は $\log C$ と $\log E$ との関係図である。

10. Cascade impactor による誤差

計数値の標準偏差は16視野を計数して、1視野についての平均粒子数を求めた場合、Table 10 および 11 のとおりである。すなわち誤差の大きさの割合は粒子数が多いほど小さくなる。

Table 10. Standard Deviations of Dust Counts

Average of dust counts of 16 fields	Standard deviation of $\sqrt{\text{dust counts}}$
< 10	0.23
< 100	0.64
< 1000	1.23

Table 11. Confidence Interval of Dust Counts ($\pm 2\sigma$)

Average of dust counts of 16 Fields	Confidence interval of dust counts
5	2.7~7.6
50	33~69
500	400~620

考 察

試作したガラス製 Cascade impactor は円形の噴出孔を有し、浮遊塵埃を $0.45 \sim 19 \mu$ の範囲において、3~5群に分割して捕集できる。

この分割を5群にすると詳細な Data が得られるが、実用上は3群の分割(II型)で充分であろう。

採取した標本の計測において、拡大率は粗粒子では小さく、微粒子では大きくすることにより、各群で計測で

きる粒子の粒径分布曲線は、重なり合いが少くなる。従って各群の測定値の中心粒径の信頼性が高くなる。もっともこの方法では、かなり多くの小さい粒子を見落とすことになるから、絶対値を得る方法としては適当でないかも知れないが、本器の使用目的が、平均の粒径分布についての相対的な数値を知ること、粗粒子の濃度を知ることが主であるから差しつかえないと思う。

採塵面において、粒子は全面に分散し、付着しているから、労研式塵埃計の場合に比して、計数操作はやや複雑である。

採塵面に親水性粘着剤を塗布することによって、捕集効果を8~60%位上げることができる。しかし微粒子の場合、特に 1μ 以下のときには、効果が逆に小さくなることがあるが、これは粒子が粘着剤に溶けるか、または粘着剤が粒子の観察を妨げるためであろう。

空気の採取量が大きくなると、一度沈着した粒子が剥落する可能性があることは、すでに指摘され⁶⁾、労研式塵埃計でも証明されている¹³⁾。

本器においても同様の傾向が見られるが、約0.5~2.0倍以内の試料採取量の変化は、実用上測定値にそれほど大きい影響を与えない。

Cascade impactor の粒子捕集効果は、ノズルの口径が小さいほど、ノズルにおける流速が大きいほど大きくなる⁷⁾。すなわち、

$$I = \rho V D^2 / \eta l$$

ただし、 ρ : 粒子の密度

V : 噴出孔における流速 cm/sec

D : 粒子の直径

η : 空気の粘度 1.8×10^{-4}

l : 噴出孔の口径

I は捕集率(採塵面に衝突した粒子数)/(噴出孔を通過した粒子数)の函数である。

著者の実験でも A, C および E の各段階において、噴出孔における流速(V)の増加が実際上の計数値を大きくしている。しかし A および C 段階で、 V の増加に対し計数値が著しく増加するのは、粗粒子に比べて濃度があるかに大きい微粒子に対する捕集効果が増すためである。従って E 段階では、この増加の割合が小さい。

D および E 段階では、粘着剤を用いて低速度で実験を行った場合、計数値がそれほど低下しないのは、衝突効

果よりも吸着現象が強く表われるためではないかと思う。その他、粒子の剥落や⁶⁾、前方に連結されたAおよびC段階の捕集率の変化などの影響も含まれると思う。

粘着剤を用いた場合、Vの増加によって捕集率が増加しないのは、粘着剤の微粒子に対する溶解性が原因していると考えられる。

本器Ⅱ型による採取塵埃数から、各段階の平均粒径をもとにして算出した塵埃重量は、電気集塵器による測定値に対し一定の関係があり、発塵量が大きいほど捕集効果が小さくなっている。このことは事実上の捕集効果の低下というより、塵埃濃度の高い場合と低い場合とでは、各段階A、CおよびEのそれぞれの粒径分布にかなりの違いがあることが原因していると考えられる。

採塵面における計測誤差の大きさは、労研式塵埃計のそれと同程度である¹⁾。

本研究に当り、種々御助言を戴いた菰田部長および東京大学薬学部浮田教授に深謝する。

文献 1) 菰田・末永：衛生化学 **6**, 1 (1958)； 2) 菰田：衛生化学 **6**, 89 (1958)； 3) 菰田・末永・長田：衛生化学 **6**, 94 (1958)； 4) 菰田・末永・長田：衛生化学 **6**, 97 (1958)； 5) 松藤：労科 **26**, 121 (昭25)； 6) P. Drinker："Industrial Dust" (1957)； 7) K. R. May； J. Sci. Instr. **22**, 187 (1945)； 8) R. D. Cadle； Anal. Chem. **23**, 196 (1951)； 9) W. E. Ranz, J. B. Wong：Arch. Ind. Hyg. **5**, 464 (1952)； 10) J. D. Wilcox：Arch. Ind. Hyg. **7**, 376 (1953)； 11) K. R. May：Arch. Ind. Hyg. **14**, 481 (1956)； 12) 興：労科 **28**, 447 (昭27)； 13) 興：労科 **30**, 778 (昭28)。

普通室内環境における空中浮遊粒子の測定法に関する研究 (Ⅱ)

空中細菌数の測定法について

国立公衆衛生院 末永 泉二

Studies on the Determination of Air-Borne particles in Room Air (Ⅱ)

The Determination of Airborne Bacteria in Room Air

S. Suenaga (from the Institute of Public Health Tokyo)

まえがき

空中細菌数の測定法には、多くの種類があり、そのうちで落下法は薬学会協定衛生試験法¹⁾としても採用されており、最も簡便な方法である。したがって環境衛生検査の目的に繁用されている。本法は細菌濃度に相関するとはいえ、濃度の表示法ではない。濃度の表示法としての測定法は、いずれも一定量の試験空気を、細菌ろ過装置に通過させるか、細菌捕集培地に吹きつけるような方法がとられる。現在 Table 1 に示すような方法が多く報告されている。

これらの方法のうち、1および2のろ過法は吸引速度を大きくできないことおよび、混釈によって培養するので計測数を大きくするために、長時間の試料採取が必要であり、また現場における操作も繁雑である。ただ平板培地を用いる測定法は、2個以上の集団となった細菌粒子をも、1個として計数される欠点があるが、実際には

両者による測定値の差は認め難いとされている。¹⁰⁾¹¹⁾

Table 1. The Methods for the Determination of Air-borne Bacteria

Principle	Method	Worker
1. Liquid trapping	Modified Oker-Blom method	Akiba ²⁾
	Bubbler	Lemon ³⁾
2. Filtration	Glutamic acid filter	Samori ⁴⁾
	Membrane filter	Melvin ⁵⁾
3. Plate culture	Funnel device, sieve device, slit device, Electrostatic method	Crumb & Well ⁶⁾⁷⁾ Berry, Luckiesh ⁸⁾⁹⁾
	Centrifuge method	Crumb & Well ⁶⁾⁷⁾