

<報文>

標準測定法を用いたPM<sub>2.5</sub>自動測定機の測定値の検証\*

長谷川就一\*\*・山神真紀子\*\*\*・鈴木義浩\*\*\*\*・熊谷貴美代\*\*\*\*\*・西村理恵\*\*\*\*\*

キーワード ①大気汚染常時監視 ②微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) ③1時間値 ④標準測定法

要 旨

大気汚染常時監視測定局における5機種(7台)のPM<sub>2.5</sub>自動測定機に対して、夏季と冬季に標準測定法と同様の方法でフィルターへの12時間捕集(一部は6時間捕集)を行い、自動測定機による測定値を検証した。その結果、機種、季節、昼・夜、濃度範囲によって標準測定法との差があるケースが存在した。中でも顕著だったのは夏季におけるFH62C14であり、標準測定法に比べて昼に高く夜に低い傾向が明確にみられた。こうしたケースでは、1時間値についても同じ方向への偏りがあることが推測されるため、1時間値のデータを利用する際には留意する必要があると考えられる。

1. はじめに

微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) の常時監視は、大気汚染防止法の規定に基づく事務処理基準にしたがって、標準測定法による日平均値との等価性が環境省により認められた自動測定機を用いて行っている。これによって、環境基準の評価(年平均値による長期的評価及び日平均値の年間98%値による短期的評価)を行っている。自動測定機については環境大気常時監視マニュアル(常監マニュアル)に規定されており、1時間値の出力が可能であることが望ましいが、値は参考値として取り扱うこととされている<sup>1)</sup>。しかし、中国における深刻な大気汚染及びその日本への影響の懸念が高まったことにより、2013年3月以降、環境省が提示した判断方法を基にPM<sub>2.5</sub>の注意喚起が地方自治体により行われるようになり、その判断方法に1時間値が用いられている。また、環境省大気汚染物質広域監視システム(そらまめ君)や各自治体のホームページ等で1時間値がリアルタイムに近い形で公開されている。さらに、1時間値の時系列データを用いることにより、PM<sub>2.5</sub>の日内変動や移流の時空間分布を把握することができ、発生源や気象の影響を解析することが可能となる。

常時監視の本来の目的は環境基準の評価であるため、日平均値が妥当に測定されていれば、その目的を果たし

ているが、PM<sub>2.5</sub>の社会への影響、PM<sub>2.5</sub>への社会の関心とそれに応える情報の迅速な公開・発信、PM<sub>2.5</sub>の低減対策の立案などを考えると、上述のように1時間値の利用の必要性は非常に高い。日平均値は、1時間値の積み重ねであるため、日平均値が妥当に測定されていれば、1時間値も妥当に測定されていると考えるのが自然だが、現実には、1時間値ではマイナス値が連続したり、マイナス値が非常に大きい値であったりすることが見られている。

現在、等価性が認められている自動測定機は9機種あるが、常時監視の大部分で用いられているのは、PM-712、FPM-377、APDA-3750A、FH62C14、SHARP 5030の5機種である。測定原理は、SHARP 5030がベータ線吸収法と光散乱法のハイブリッド法で、それ以外はベータ線吸収法である。常監マニュアルに記載されているように、ベータ線吸収法では原理的に核種崩壊の確率誤差を伴うため、1時間値がマイナスになることもある。そのため、マイナス値はそのまま取り扱うこととなっているが、それが原因とは考えづらいような大きさのマイナス値もしばしば出現しており、それは空試験データを解析した結果からも推察され、機種によって傾向が異なっている<sup>2)</sup>。また、実際の常時監視データでも、マイナス値の出現率やその季節傾向が機種によって異なっている<sup>3)</sup>。こうしたマイナ

\*Verification of measured values by PM<sub>2.5</sub> automatic measuring instruments using the standard method

\*\*Shuichi HASEGAWA (埼玉県環境科学国際センター) Center for Environmental Science in Saitama

\*\*\*Makiko YAMAGAMI (名古屋市環境科学調査センター) Nagoya City Institute for Environmental Sciences

\*\*\*\*Yoshihiro SUZUKI (川崎市環境総合研究所) Kawasaki Environment Research Institute

\*\*\*\*\*Kimiyo KUMAGAI (群馬県衛生環境研究所) Gunma Prefectural Institute of Public Health and Environmental Sciences

\*\*\*\*\*Rie NISHIMURA (地方独立行政法人大阪府立環境農林水産総合研究所) Research Institute of Environment, Agriculture and Fisheries, Osaka Prefecture

ス値がある場合、日平均値との等価性があることを考慮すると、マイナス値を埋め合わせるような、本来よりも高い値が存在するはずだが、この高値が発生源等の解析や注意喚起の判断にも大きな影響を及ぼす。したがって、1時間値の妥当性を確認する必要性が大きくなっている。

常監マニュアルには、自動測定機の一致性の確認として、現場における標準測定法との並行試験の必要性が記載されている。この一致性の確認は日平均値として行うもので、標準測定法は24時間捕集であるが、測定精度に影響しない程度で捕集時間を短くして同様に測定することによって、より短時間での自動測定機による測定値との比較を行うことができる。そこで、本報では、大気汚染常時監視測定局における5機種の自動測定機に対して、標準測定法と同様の方法で12時間捕集（一部は6時間捕集）を行うことによって、自動測定機による測定値を検証した。

## 2. 方法

検証は、夏季（2015年8～9月または2016年8～9月）と冬季（2016年2～3月）に、6か所の大気汚染常時監視測定局で実施した。検証に用いた自動測定機は5機種7台である。この7台をA～Gとし、そのA～Gの各測定機についての測定局区分、測定機種、測定期間を表1に示す。なお、DとEについては、同一地点である。

フィルター捕集と秤量については、標準測定法に沿って行った。フィルター捕集については、ローボリュームエアサンプラー（Thermo FRM-2025またはFRM-2025i, 流量16.7 L/min）を用いてサポートリング付き四フック化エチレン樹脂（PTFE）フィルター（Pa11 TefloまたはWhatman, 直径47 mm）にPM<sub>2.5</sub>を捕集した。捕集時間は、7～19時（昼）、19～7時（夜）とした。ただし、Cについては、7～13時、13～19時、19～1時、1～7時の6時間ごとに捕集した。秤量については、捕集前後に、PTFEフィルターを21.5℃、相対湿度35%の環境下で24時間以上静置し、1μg感量の精密天秤により秤量した。捕集前後の誤

差はブランクフィルターにより補正した。以下では、この方法により得られた質量濃度を、便宜上、標準測定法による測定値とする。

一方、自動測定機による測定値は、PM-712, FPM-377, APDA-3750A, FH62C14, SHARP 5030の5機種で得られたものである。この自動測定機による1時間値を、フィルター捕集の捕集時間に合わせて平均化し、自動測定機による測定値とした。

## 3. 結果と考察

標準測定法及び自動測定機による測定値の時系列変化を図1（夏季）及び図2（冬季）に示す。また、標準測定法及び自動測定機による12時間平均値の比較を図3（夏季）及び図4（冬季）に示す。なお、図1及び図2のプロットは捕集時間の始め（12時間の場合は7時と19時）に打っている。また、図3及び図4のCについては、他に合わせるため昼と夜それぞれ12時間平均として比較した。

まず、夏季の結果（図1及び図3）をみると、AとBについては、いずれも自動測定機は標準測定法に比べて昼は高く、夜は低くなっていた。AとBは全くの別地域の測定局であるが、同様の傾向を示した。自動測定機による12時間平均値がマイナスとなったプロットも両方にみられた。また、Gにおいても、AとBほどではないが、標準測定法に比べて昼に高い傾向がみられた。Cについては、昼夜を問わず、標準測定法に比べて高かった。この原因は明らかではないが、Dにはそのような傾向はみられないこと、また、Cの近隣測定局の同一機種のデータなどの状況から、この測定機に特異的な傾向である可能性が考えられた。D、E、Fについては特に傾向はみられず、標準測定法と概ね合っていた。

一方、冬季の結果（図2及び図4）をみると、AとBについては、Aでは昼に比べて夜の方が標準測定法との差が若干大きいものの、全般には夏季のような明確な昼夜差はなかった。しかし、AとBともに、昼夜に関係なく、25μg/m<sup>3</sup>程度以上で標準測定法との差が大きくなる（標準測定法

表1 検証した自動測定機の測定局区分、測定機種、測定期間

測定機	測定局区分	測定機種	測定期間(夏季)	測定期間(冬季)
A	一般	FH62C14	2015年8月5日19時～8月16日19時	2016年2月3日19時～2月14日19時
B	自排	FH62C14	2015年8月6日19時～8月15日19時	2016年2月5日19時～2月13日19時
C	自排	FPM-377	2015年9月4日13時～9月9日1時	2016年2月5日13時～2月11日1時（一部欠測）
D	一般	FPM-377	2016年8月25日7時～9月4日7時	2016年2月15日19時～3月1日19時（途中中断）
E	一般	PM-712	2016年8月25日7時～9月4日7時	2016年2月15日19時～2月29日7時（途中中断）
F	自排	APDA-3750A	2016年8月26日19時～9月5日19時	2016年2月11日19時～2月22日19時
G	一般	SHARP5030	2016年8月16日7時～8月26日7時	2016年2月13日7時～2月25日7時（一部欠測）

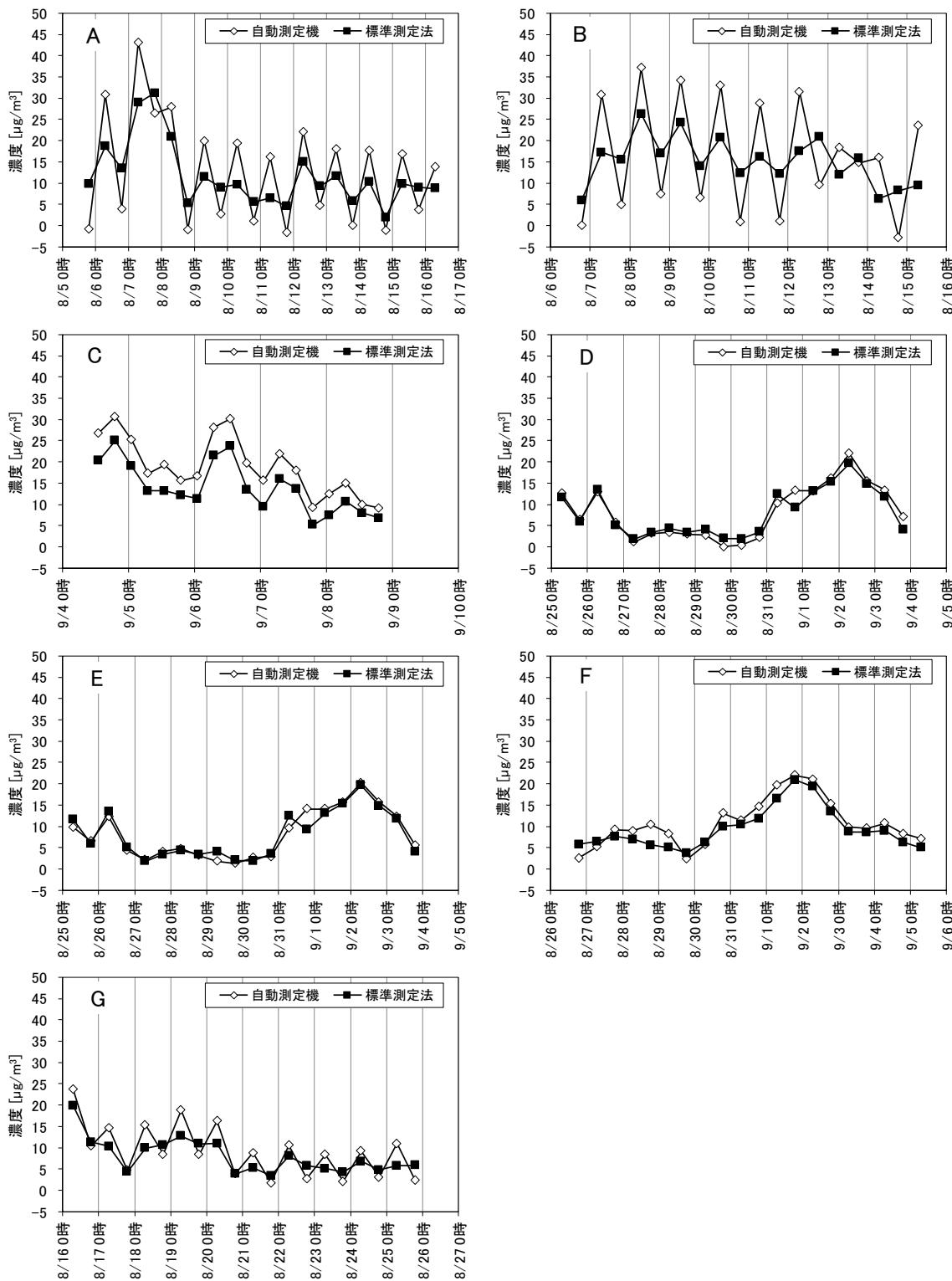


図1 標準測定法及び自動測定機による測定値の時系列変化（夏季）

に比べて低い）傾向がみられた。この点も、夏季と同様に、AとBが全くの別地域の測定局であっても同様の傾向を示した。逆に、Gでは、15  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度以上で標準測定法に比べて夜にやや高めの傾向であった。Fでは、夏季のAとBほど顕著ではないものの、標準測定法に比べて昼に高く夜に低い傾向が見られた。Eについては、標準測定法に

比べて昼にやや高めになる傾向が見られた。CとDについては特に傾向はみられず、標準測定法と自動測定機は概ね同じであった。

このように、夏季・冬季や昼・夜によって自動測定機の各機種への傾向はさまざまであった。ここで、自動測定機の等価性評価と同様に、標準測定法及び自動測定機に

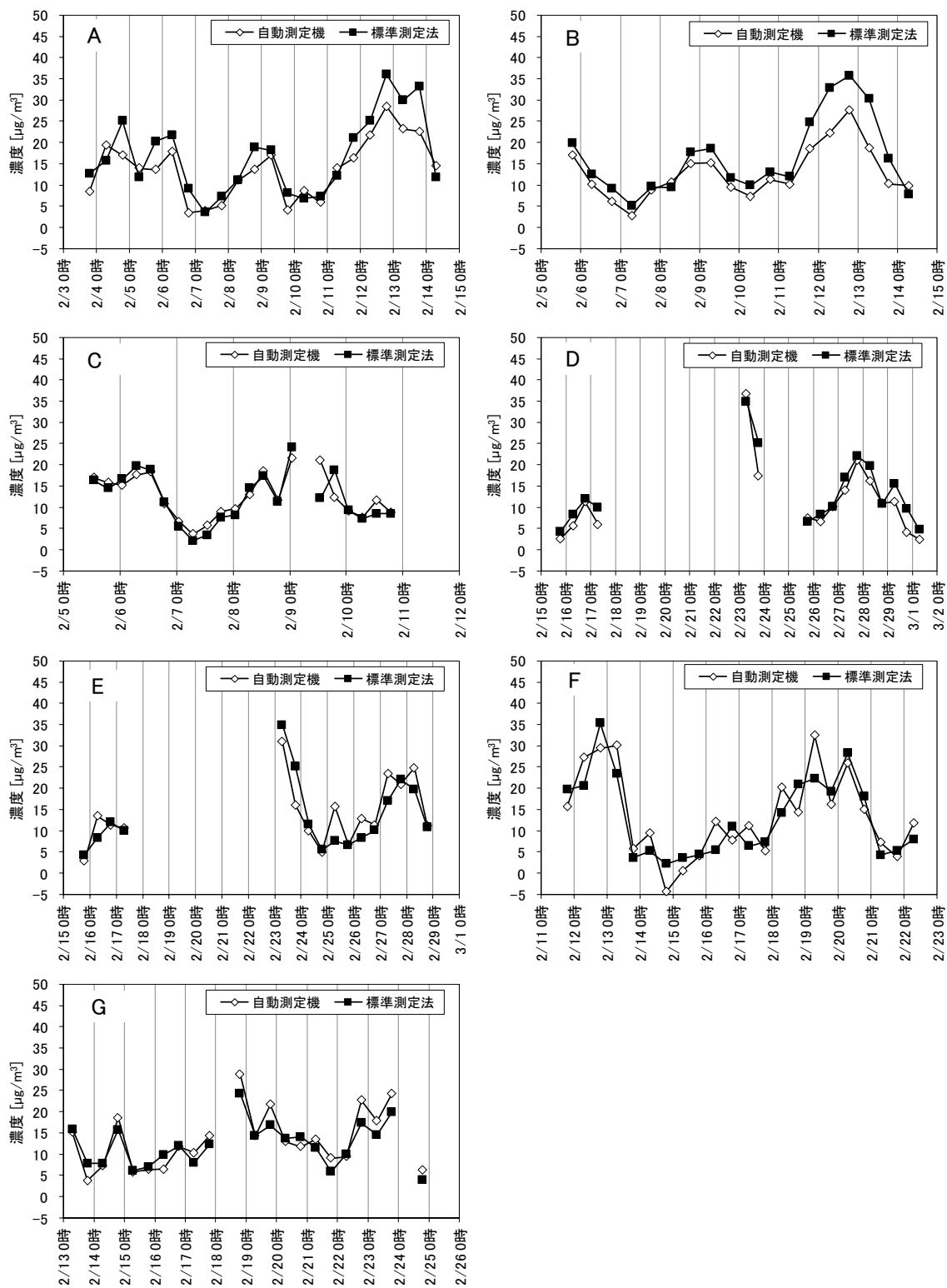


図2 標準測定法及び自動測定機による測定値の時系列変化（冬季）

よる24時間平均値の比較を図5（夏季）及び図6（冬季）に示す。なお、プロットに「昼+夜」と「夜+昼」の2種類あるのは、24時間平均の区切りをいずれか一方にすることによるバイアスを避けるためである。24時間平均値で比較すると、夏季のC、及び冬季のAとB（25  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  程度以上）を除き、標準測定法と概ね一致した。したが

って、これらの自動測定機による測定値は、環境基準の評価には影響しない。しかし、12時間平均値において標準測定法による測定値との差が認められるケースでは、1時間値についても同じ方向への偏りがあることが推測される。本報では、高くても12時間平均値で35  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  程度までしか比較できていないため、より高濃度での比較が

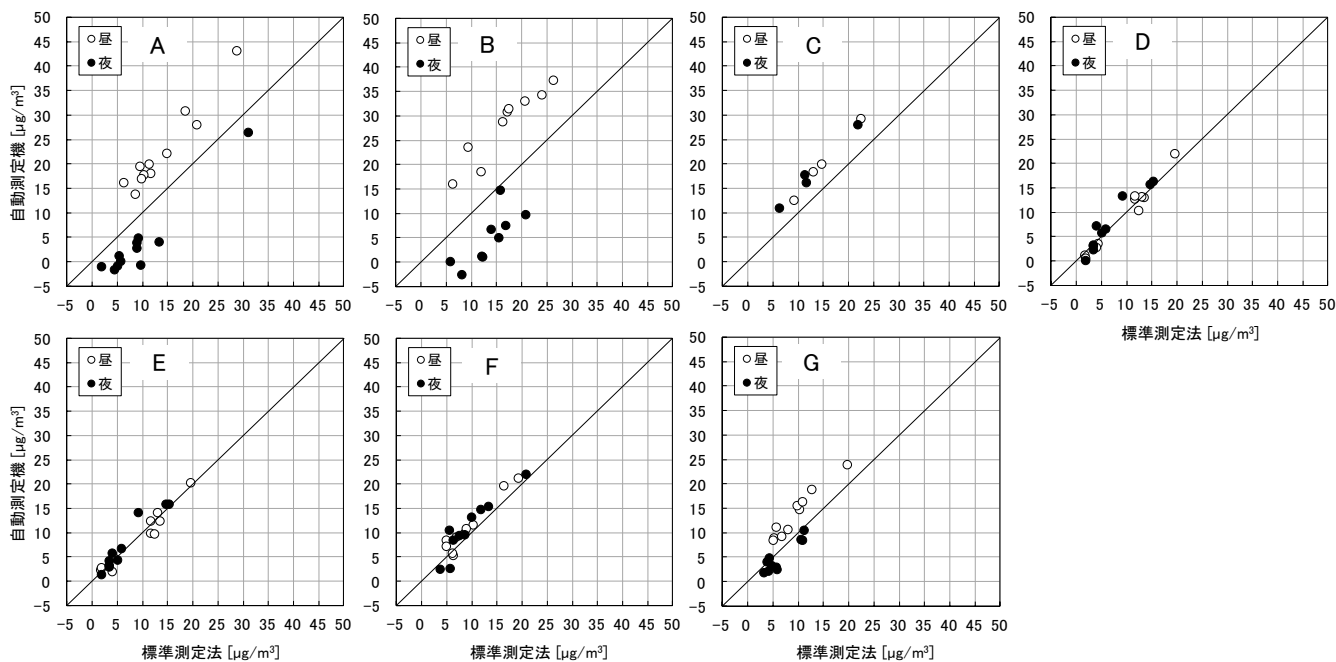


図3 標準測定法及び自動測定機による12時間平均値の比較（夏季）

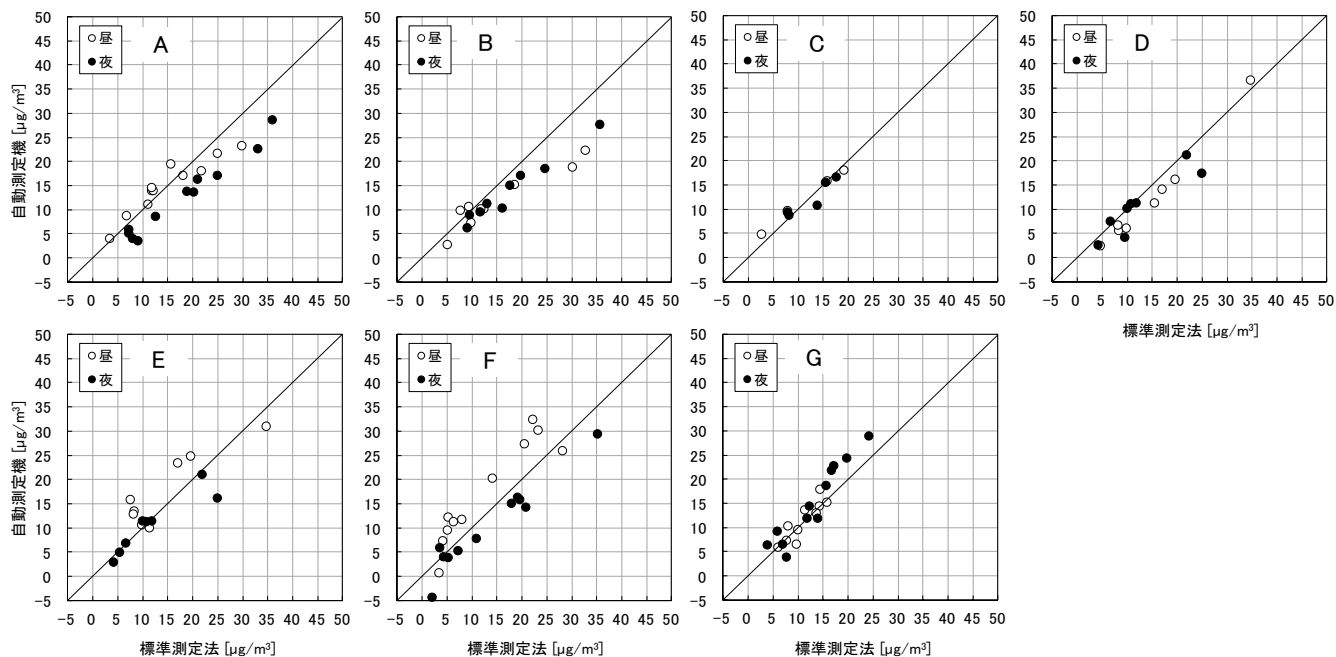


図4 標準測定法及び自動測定機による12時間平均値の比較（冬季）

必要ではあるが、同様の傾向を示すとすれば、1時間値の数～十数時間平均によって判断している注意喚起の実施に対して、影響を及ぼす可能性があると考えられる。このように、注意喚起の実施の判断をはじめ、1時間値を利用する際には、夏季・冬季や昼・夜による各機種種の傾向を踏まえることも必要と考えられる。特に、昼に標準測定法に比べて高くなる夏季のA, B, G及び冬季のFに留意する必要がある。また、濃度が相対的に高いときに標準測定法との差が生じる冬季のA, B, Gにも留意する必要がある。

ただし、本報で示された各機種種の傾向が、機種種特有のものであるか、その機種種の個体差（機差）に起因するのかは直ちに断定できない（夏季のCは機差と考えられる）。同一機種種であるAとBについては、異なる地点であっても同様の傾向を示したことから、機種種特有の傾向である可能性が高いが、特に他の4機種種については比較事例を増やす必要がある。機種種特有の傾向が存在するとすれば、その原因は、自動測定機のハードウェアばかりでなく、テープろ紙送りの時間設定や除湿機能稼働条件といった制御方法であることも考えられる。また、測定機を設置

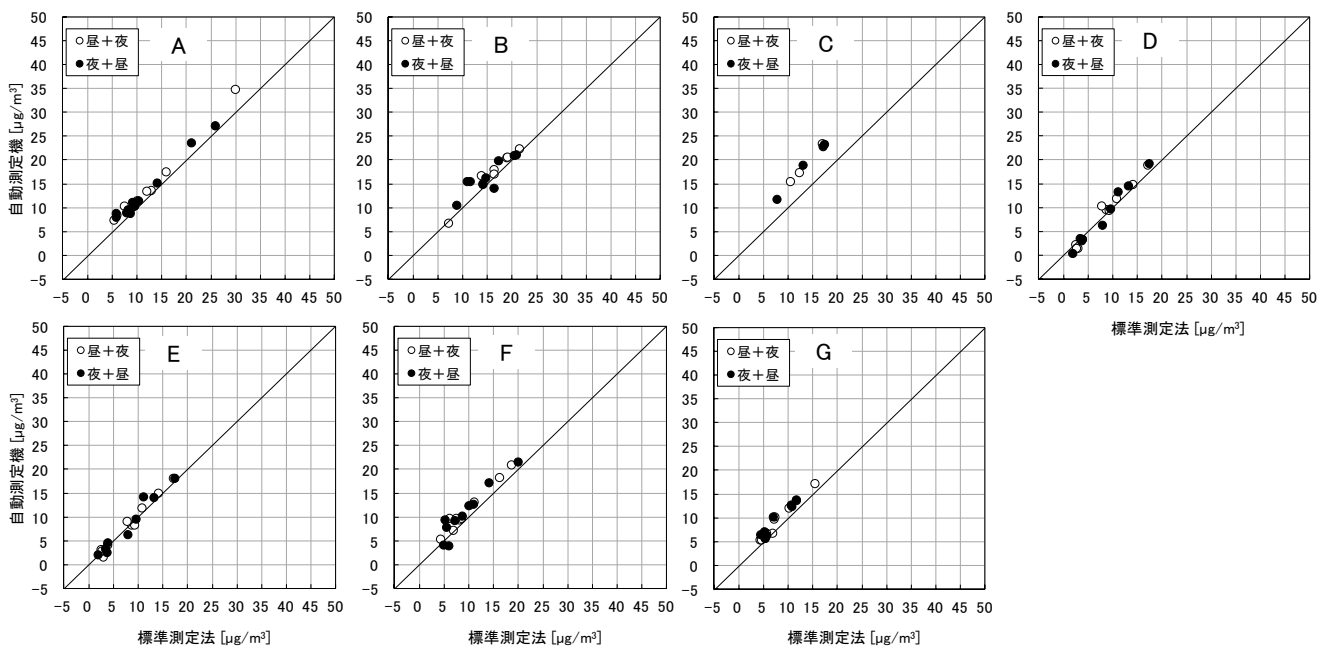


図5 標準測定法及び自動測定機による24時間平均値の比較（夏季）

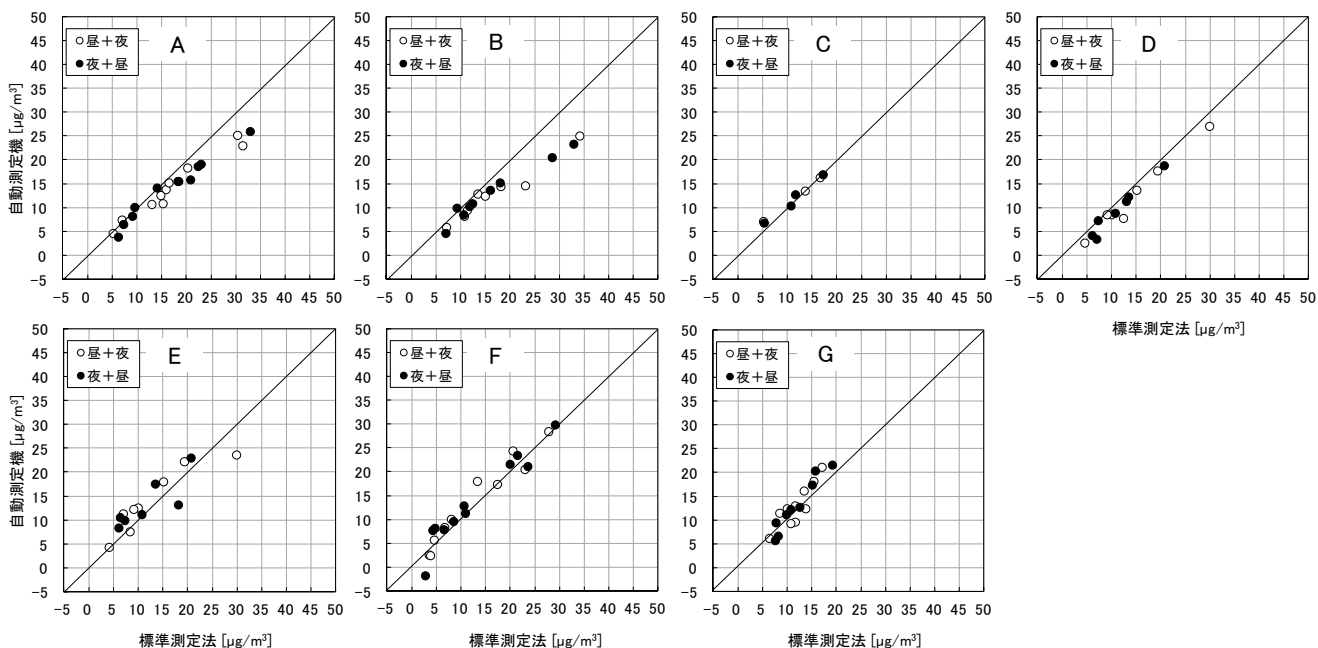


図6 標準測定法及び自動測定機による24時間平均値の比較（冬季）

している環境条件(気温や日当たり, 筐体内の換気など)の影響の受けやすさの違いであることも考えられる。特に, 夏季と冬季の傾向に違いがあったケースや, 昼と夜とで傾向が異なったケースについては, その可能性が示唆される。なお, A, B, Gについては, 1時間値の変動への電源環境の影響対策として, 交流安定化電源装置が設置されており, また, ベータ線検出器の増幅器(アンプ)の電圧調整についても, Bの夏季を除き, 測定期間以前に実施されていた。

#### 4. まとめと課題

大気汚染常時監視測定局における5機種(7台)のPM<sub>2.5</sub>自動測定機に対して, 夏季と冬季に標準測定法と同様の方法で12時間捕集(一部は6時間捕集)を行い, 自動測定機による測定値を検証した。その結果, 標準測定法との差があるケースが存在した。特に, 夏季のFH62C14では, 標準測定法に比べて昼に高く夜に低い傾向が明確にみられた。同様の傾向は, 冬季のAPDA-3750Aでも若干みられた。また, 夏季のSHARP 5030と冬季のPM-712では, 標準測定法に比べて昼にやや高い傾向がみられた。さらに,

冬季のFH62C14とSHARP 5030では、濃度範囲によって標準測定法と差がみられ、FH62C14では25 µg/m<sup>3</sup>程度以上で低く、SHARP 5030では15 µg/m<sup>3</sup>程度以上で高い傾向がみられた。このように、機種、季節、昼・夜、濃度範囲によって標準測定法と差があるケースがあることがわかった。このため、これらのケースでは、1時間値についても同じ方向への偏りがあることが推測される。したがって、1時間値のデータを利用する際には、こうした傾向を踏まえることも必要と考えられる。

本報では、標準測定法を用いて自動測定機の12時間平均値を検証したが、本来、個々の1時間値の妥当性を検証する必要がある。これについて、人工粒子を用いて行う方法が開発・提案されている<sup>4)</sup>。また、1時間値の測定誤差の原因となりうる揮発の抑制と十分な除湿の両立を目指して、自動測定機の除湿方法を改良した方法も検討されている<sup>5,6)</sup>。こうした方法と比較するには、その設備・装置がある場所に検証対象とする自動測定機を持ち込まなければならない、大気汚染常時監視測定局の現場で検証することは難しい。ただ、これらの方法は、今後、自動測定機の精度管理体制を構築する上で非常に有用であり、たとえば特異的な挙動を示していることが疑われる測定機の確認に役立つ。また、こうした方法は自動測定機のハードウェアや制御条件の改良に活用されることも期待される。一方、サンプラーと秤量設備があれば、数時間から十数時間の平均値にはなるが、本報のように現場で検証することができるため、双方の利点を生かして精度管理を行っていくことが必要である。

## 5. 謝辞

本報は、国立環境研究所と地方環境研究所によるⅡ型共同研究「PM<sub>2.5</sub>の短期的/長期的環境基準超過をもたらす汚染機構の解明」（2013～2015年度）により実施した。大気汚染常時監視測定局における測定の実施や1時間値の利用について、地方自治体の担当者にご協力いただいた。ここに謝意を表す。

## 6. 引用文献

- 1) 環境省水・大気環境局：環境大気常時監視マニュアル 第6版, 2010
- 2) 板野泰之, 山神真紀子, 長谷川就一, 田子博, 長田健太郎, 鈴木義浩, 秋山雅行, 山川和彦, 菅田誠治：PM<sub>2.5</sub>自動測定機の維持管理のための空試験データの活用. 大気環境学会誌, **51**, 190-195, 2016
- 3) 高橋克行, 吉村有史, 船越吾朗, 井形瑛梨：環境省のPM<sub>2.5</sub>の1時間値測定精度検証に関する取組みについて. 第58回大気環境学会年会講演要旨集, 184-185, 2017
- 4) 村島淑子, 桜井博：PM<sub>2.5</sub>自動測定機の1時間平均値に対する人工粒子を用いた精度試験法の提案とその有効性の検証. 第58回大気環境学会年会講演要旨集, 188-189, 2017
- 5) 伏見暁洋, 田邊潔, 高橋克行, 高見昭憲：PM<sub>2.5</sub>の正確な1時間値モニタリング法開発(1)乾燥方法の検討. 第57回大気環境学会年会講演要旨集, 335, 2016
- 6) 伏見暁洋, 田邊潔, 高橋克行, 高見昭憲：PM<sub>2.5</sub>の正確な1時間値モニタリング法開発(2)3種類の乾燥方式による検討状況. 第58回大気環境学会年会講演要旨集, 190-191, 2017