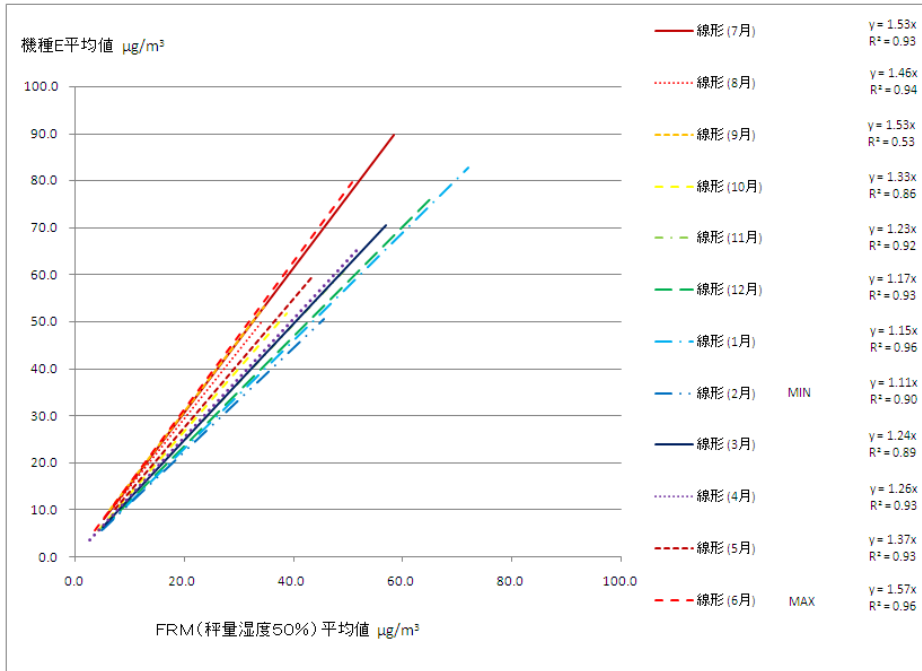
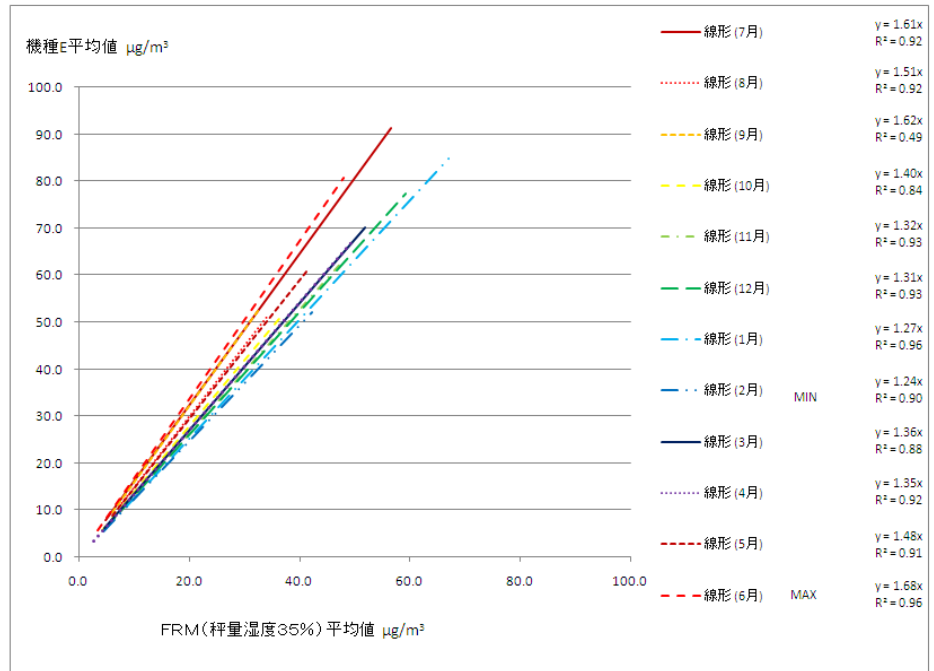


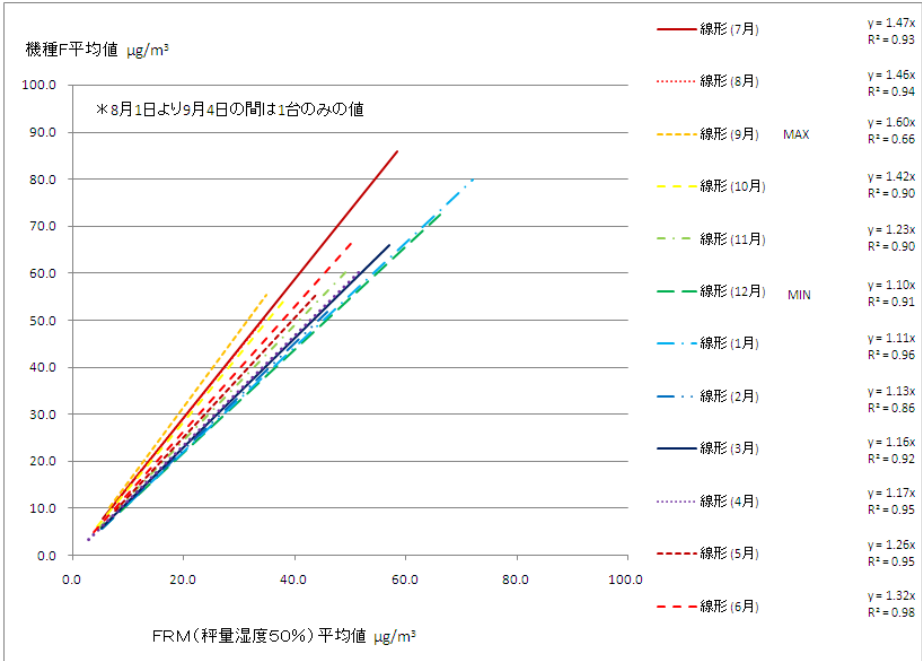
FRM(秤量湿度50%)平均値 - 機種E平均値



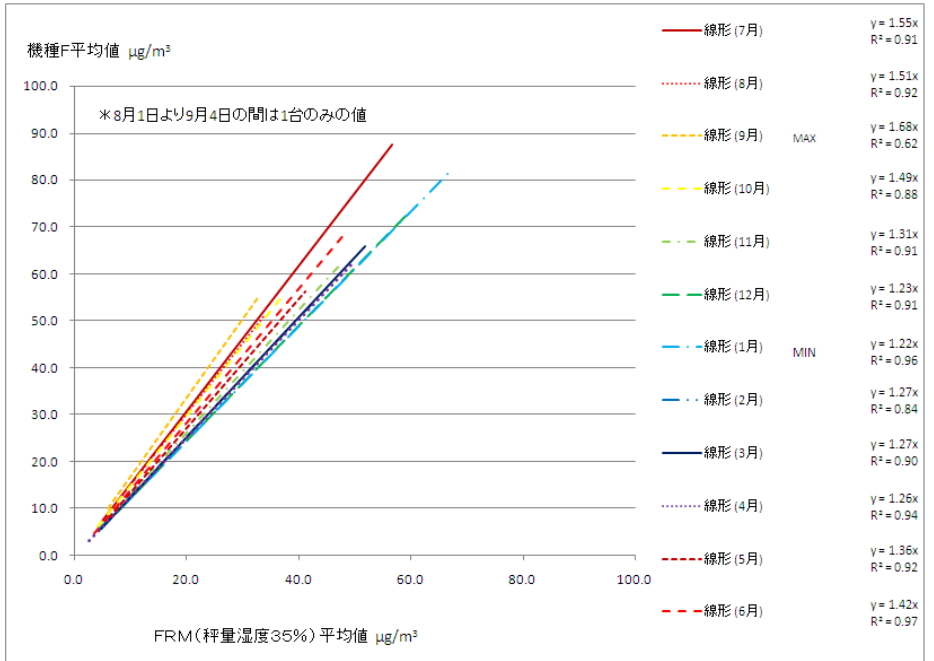
FRM(秤量湿度35%)平均値 - 機種E平均値



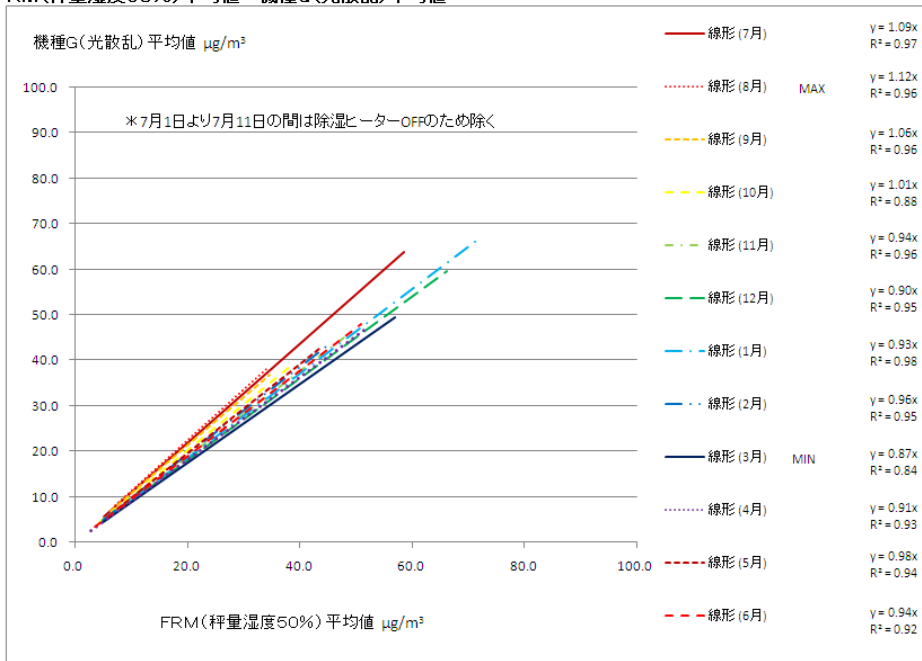
FRM(秤量湿度50%)平均値 - 機種F平均値



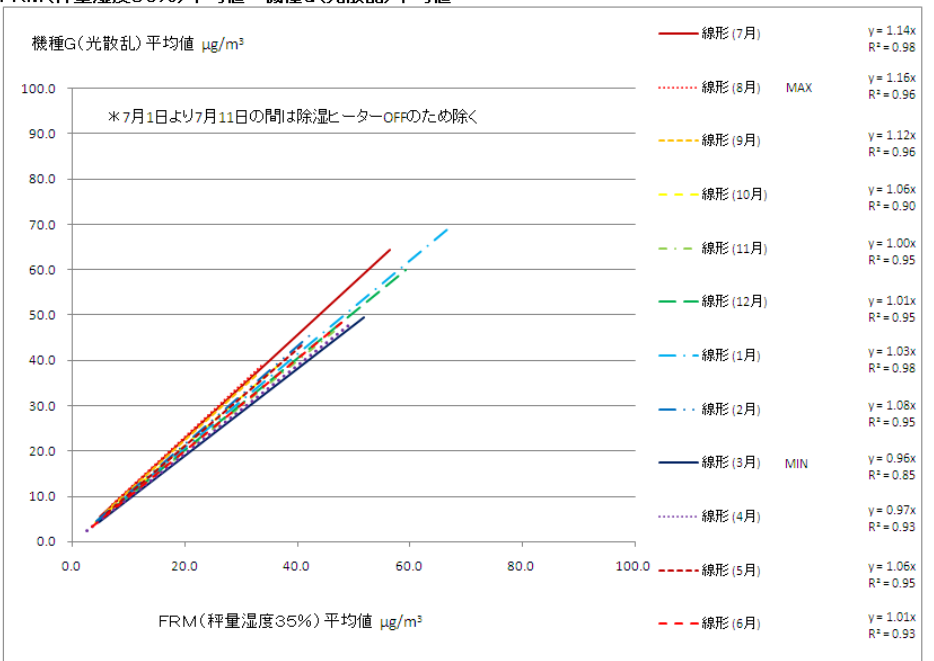
FRM(秤量湿度35%)平均値 - 機種F平均値



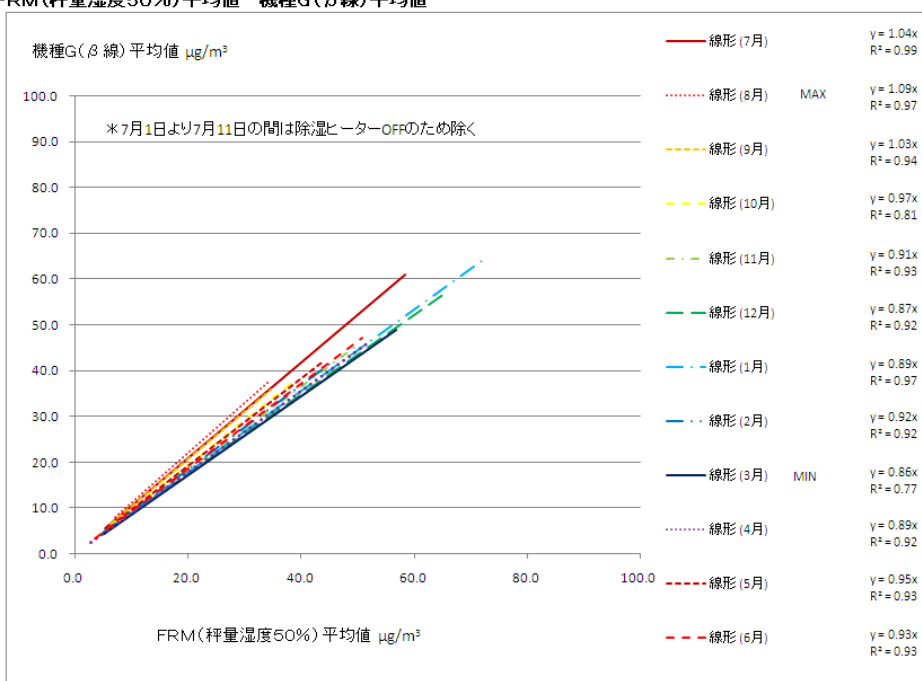
FRM(秤量湿度50%)平均値 - 機種G(光散乱)平均値



FRM(秤量湿度35%)平均値 - 機種G(光散乱)平均値



FRM(秤量湿度50%)平均値 - 機種G(β線)平均値



FRM(秤量湿度35%)平均値 - 機種G(β線)平均値

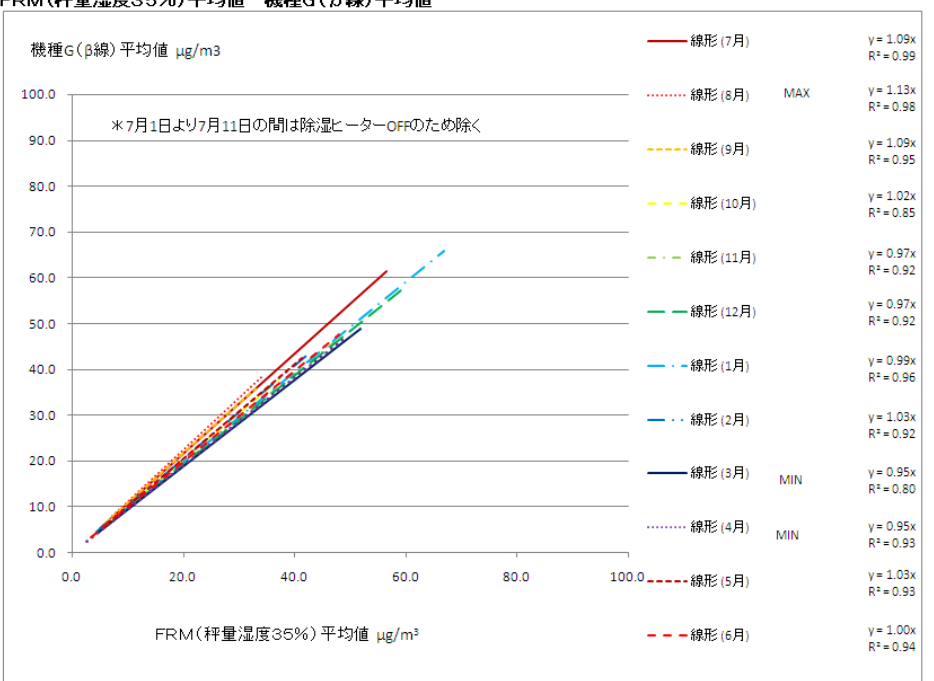
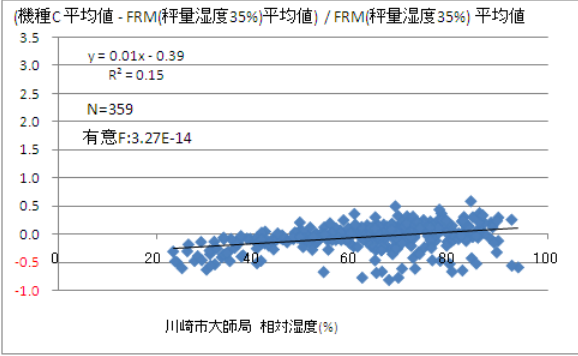
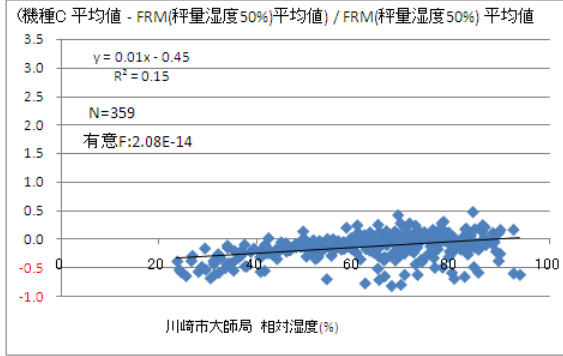


図 3-21 月別結果②

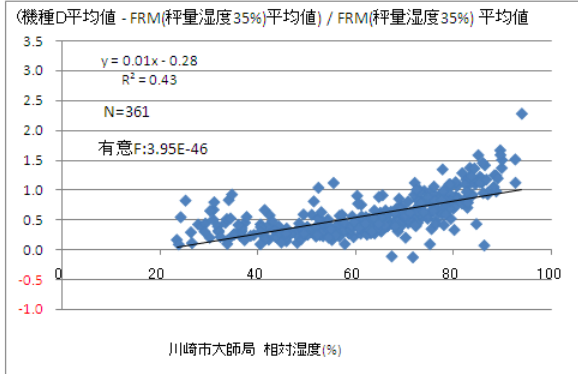
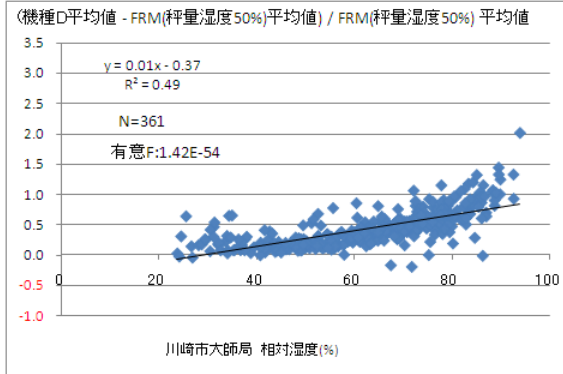
機種C

*7月1日より11月6日の間は機器不調のため1台の値

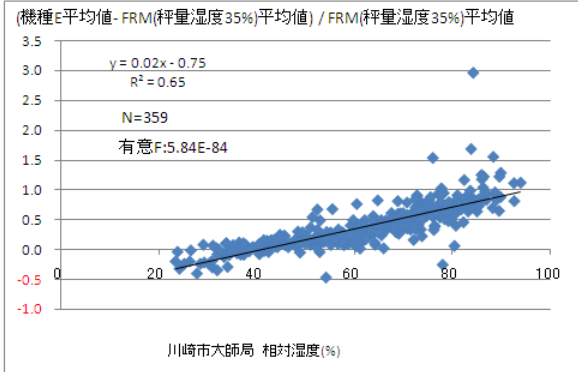
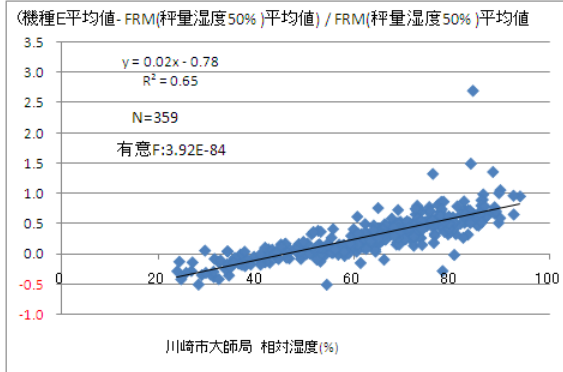


機種D

*9月1日より9月24日の間は機器不調のため1台の値



機種E



機種F

*8月1日より9月4日の間は機器不調のため1台の値

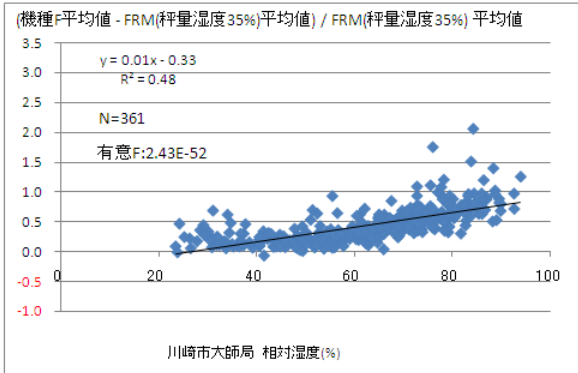
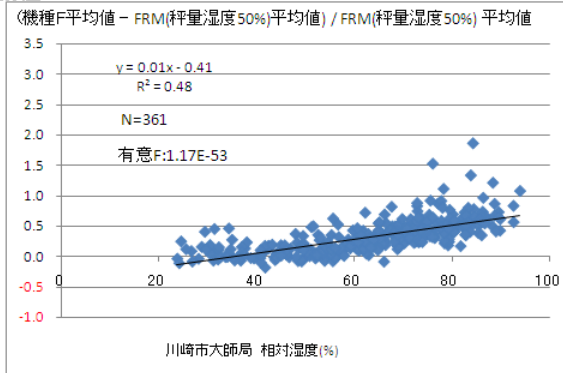


図 3-22 標準測定法との質量濃度差の割合と相対湿度との関係

(5) 評価方法試案による評価結果

(3) で示した試案 1 (回帰式による評価) 及び試案 2 (一致性評価プログラムを基にした評価) によって、自動測定機の等価性の評価を行った。これらの結果をそれぞれ表 3-6 (1)、表 3-6 (2) 及び表 3-7 に示す。

試案 1 においては、FRM との相関において、傾き、切片及び相関係数がいずれも基準内に入ることが条件である。本並行測定試験の結果この条件を満たしたものは、光散乱法と β 線吸収法を複合したハイブリッド式の測定機 (機種 G) のみであった。 β 線吸収法の自動測定機については、FRM のフィルタの秤量湿度の条件が 50 % と 35 % のどちらの場合においても、評価基準の相関係数、傾き及び切片のいずれも基準内とはならない機種が多かった。これは、夏季の自動測定機による測定値が FRM に比べて高い傾向を示したことが影響している (P.51 図 3-20 および P.52 図 3-21)。この理由として、標準測定法と自動測定機では半揮発性物質の揮散量の差異により自動測定機が高めの値を示す傾向にあることがあげられる。また、本調査の結果では標準測定法と自動測定機の測定値の差が外気の相対湿度と正の相関を示したことから、相対湿度の影響が考えられる (P.53 図 3-22)。

なお、機種 C は条件を満たしているが、2 台の測定値が得られたのが 11 月以降であったため参考値としている。また、TEOM 法による自動測定機のうち、機種 A はいずれの条件にも適合しなかった。これは、センサ部を 50°C に加温することに伴う PM_{2.5} 中の半揮発性物質の損失が原因であると考えられる。一方、機種 B は、切片が基準から外れたものの、相関係数と傾きは基準内であった。

試案 2 においては、一致性評価プログラムに基づく評価結果がレベル 4 以上であることが条件である。レベル 4 に達した測定機は、試案 1 においても条件を満たしたハイブリッド式の機種 G のみであり、最も高い評価であるレベル 5 に達した機種はなかった。 β 線吸収法の自動測定機については、良好な評価結果が得られないものが多かった。なお、参考値ではあるが、機種 C は比較的良好であった。TEOM 法による自動測定機については、機種 A は、試案 1 と同様に良好な評価結果は得られず、機種 B は、試案 1 では比較的良好的な評価結果であったが、レベル 4 まで達しなかった。

以上より、試案 1 及び試案 2 において条件を満たしたのは、ハイブリッド式の機種 G のみであり、機種 B は試案 1 において切片を除く他の条件を満たしていた。この 2 機種は測定原理が異なるものの、ともに試料大気導入管に除湿装置を装着することで試料採取系の相対湿度をコントロールしている測定機である。一方、除湿装置を備えていない自動測定機の測定値は夏季に FRM より高い傾向を示した。これらのことから、相対湿度の影響を低減させ、標準測定法と等価な測定値を得るためには、試料大気導入管への除湿装置の取り付け等、相対湿度の変化による質量濃度の変化を抑制する機能を備えることが有効であると考えられる。

なお、本調査結果を踏まえ、追加調査として除湿装置を取り付けた自動測定機と標準測定法との並行測定を行っており、標準測定法との等価性の向上が見られている。今後、標準測定法との等価性の向上にむけて、除湿装置の有効性を踏まえた自動測定機の更なる改良及び開発が進むことが望まれる。

表 3-6 (1) 試案 1 (回帰式による評価案) 計算結果 (FRM50 %データ)

	機種 A	機種 B	機種 D	機種 E	機種 F	機種 G (光)	機種 G (β)	機種 C (参考)
相関 係数	0.873 ×	0.958 ○	0.943 ×	0.935 ×	0.941 ×	0.963 ○	0.959 ○	0.981 ○
傾き	0.631 ×	0.975 ○	1.341 ×	1.265 ×	1.125 ×	0.913 ○	0.846 ×	1.034 ○
切片	4.147 ×	2.751 ×	1.372 ×	1.042 ×	2.983 ×	1.276 ○	2.275 ×	-2.173 ×

注) ○ : 適、× : 不適

■ : 機種 C は 2 台の測定値が得られたのが 11 月以降であったため参考値とした。

表 3-6 (2) 試案 1 (回帰式による評価案) 計算結果 (FRM35 %データ)

	機種 A	機種 B	機種 D	機種 E	機種 F	機種 G (光)	機種 G (β)	機種 C (参考)
相関 係数	0.897 ×	0.967 ○	0.943 ×	0.940 ×	0.946 ×	0.969 ○	0.967 ○	0.983 ○
傾き	0.697 ×	1.063 ○	1.436 ×	1.369 ×	1.216 ×	0.982 ○	0.912 ○	1.110 ×
切片	3.893 ×	2.614 ×	1.825 ×	1.054 ×	3.154 ×	1.436 ○	2.389 ×	-1.594 ×

注) ○ : 適、× : 不適

■ : 機種 C は 2 台の測定値が得られたのが 11 月以降であったため参考値とした。

表 3-7 試案 2 (一貫性評価プログラムをもとにした案) による適合レベル

	機種 A	機種 B	機種 D	機種 E	機種 F	機種 G (光)	機種 G (β)	機種 C (参考)
FRM 50 % データ	3 ×	3 ×	2 ×	2 ×	2 ×	4 ○	3 ×	3 ×
FRM 35 % データ	3 ×	3 ×	2 ×	2 ×	2 ×	4 ○	4 ○	4 ○

注) ○ : 適、× : 不適

■ : 機種 C は 2 台の測定値が得られたのが 11 月以降であったため参考値とした。

3-6 まとめ

(1) 標準測定法としてのフィルタ法の満たすべき基本的条件

標準測定法としてのフィルタ法の満たすべき基本的条件として以下の6つの条件が考えられた。

- (ア) 分粒装置の特性は50%カットオフ径が2.5 μm であること
- (イ) フィルタ保持部と外気との許容温度差は $\pm 5^{\circ}\text{C}$ とすること
- (ウ) フィルタの材質は十分な強度を持つPTFEと同等であること
- (エ) 吸引流量は分粒装置の設定流量とすること
- (オ) フィルタのコンディショニング条件については温度 $21.5 \pm 1.5^{\circ}\text{C}$ 、秤量湿度は $35 \pm 5\%$ とし、秤量に用いる天秤の感度は1 μg 感量のものを用いること
- (カ) 測定濃度範囲は2~200 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ が測定可能であること

ただし、流量の制御及び表示を実流量又は標準流量のどちらで行うかについては、今後も検討する必要がある。

(2) FRM 及びその他のサンプラの並行測定試験の実施

神奈川県川崎市で2007年7月から1年間にわたり、FRM規格サンプラであるFRM 2000を2台並行稼働させて機差試験を行った結果、2台の測定値の一致性は良好であり、自動測定機の等価性評価の標準測定法として本サンプラを用いても問題ないことが示された。

また、ダイコトマスサンプラ (FRM 2000D) 及び成分分析用サンプラ (S/SASS) の評価を実施を行った。分粒装置については、両サンプラともにJIS Z 8851の規定する条件を満たしていた。また、JIS Z 8851によるFRM 2000とのサンプリング性能試験を適用した結果、本来各2台ずつを用いて評価すべきところ、1台のみの評価ではあるが、良好な結果が得られた。これらのことから、FRM 2000D 及び S/SASS は、それぞれ使用目的が異なるサンプラではあるが、質量濃度測定に用いる場合は標準測定法とほぼ同等のサンプリング性能が得られることが分かった。

(3) 等価法としての自動測定機の満たすべき基本的条件

等価法としての自動測定機が満たすべき基本的条件として、以下の9つの条件が考えられた。

- (ア) 測定される物理量が質量と一定の関係にあること、又は測定される物理量と質量との補正関係 (光散乱法などの場合) が明確であること
- (イ) 分粒装置の特性は50%カットオフ径が2.5 μm であること
- (ウ) 自動測定機の平均化時間は24時間とすること
- (エ) 測定濃度範囲は日平均値として5~200 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ が測定可能であること
- (オ) 定期的な点検により測定値の恒常性が維持され、点検及び校正方法が確立されていること
- (カ) 自動測定機の機差は、複数同種測定機の同時測定による日平均値の差が一定の範囲にあること
- (キ) サンプリング時の吸引流量は採用する分粒装置の設定値とすること
- (ク) 相対湿度の変化による質量濃度の変化を抑制するため除湿装置などを有することが望ましい
- (ケ) 標準測定法であるフィルタ法との並行測定試験で良好な直線的関係を有すること

このうち、平均化時間については、標準測定法であるフィルタ法で得られる測定値は日平均値であることから、自動測定機においても日平均値が測定できればよいが、発生源対策のためには1時間値が測定可能であることが望ましい。しかし、現段階では1時間値のフィルタ法との等価性の確認が困難であるため、1時間値は参考値扱いとする。また、流量の制御及び表示を実流量と標準流量のどちらで行うことが適当であるかについては、フィルタ法と同様に今後も検討する必要がある。

(4) 各種自動測定機の並行測定試験及びその評価

国内で市販されているPM_{2.5}自動測定機とFRM規定サンプラ(FRM 2000)との並行測定試験を行った。その結果、機種特性によってFRMの測定値との間に季節変動がみられた。本測定試験では、自動測定機の等価性の評価方法として2つの試案を提案し、評価を行った。

試案1は、JIS Z 8851及び米国FEMクラスⅢの等価性評価の方法に準拠した回帰式による方法である。この評価方法においては、標準測定法との並行測定試験結果の回帰式の傾き、切片及び相関係数のいずれも一定の条件を満たすことが要求される。

試案2は一致性評価プログラムに基づく方法である。本プログラムは、我が国の自動測定機がいわゆる湿式法から乾式法へ移行する際にその測定値の連続性を検証するために作成されたものであり、差の平均値と差の標準偏差を用いて、一致性の評価を行うものである。

これら2つの試案を用いて各種自動測定機の等価性を評価した結果、今回評価対象とした8機種(うち1機種は参考扱い)のうち、試案1に適合した機種は1機種であり、試案2については、一致性があるとされるレベル4に適合した機種は試案1に適合した機種と同一のものであった。

今回、等価性が比較的良好であった測定機は、試料導入管に除湿装置を装着することで試料採取系の相対湿度をコントロールしていたものであった。一方、試料採取系に除湿装置を備えていない機種は、等価性が低くなる傾向を示した。これらのことから、標準測定法との等価性を向上させるためには除湿装置の装着が効果的であることが示唆された。

参考資料

- 1) Environmental Protection Agency, 2006. Federal Register 40 CFR Part 50 National Ambient Air Quality Standards for Particulate Matter.
- 2) Environmental Protection Agency, 2008. Integrated Review Plan for the National Ambient Air Quality Standards for Particulate Matter.
- 3) Environmental Protection Agency, 2006. Federal Register 40 CFR Parts 53 and 58 Revisions to Ambient Air Monitoring Regulations
- 4) 環境庁,1998.環境大気常時監視自動測定機による測定値の評価
- 5) 長谷川就一, 高橋克行, 西川雅高, 若松伸司, 2006. 冬季および夏季のPM_{2.5}モニタリング装置の並行測定試験, 第47回大気環境学会年会講演要旨集, ID1024.

4. PM_{2.5}成分分析の実施

自動測定機の並行測定試験においては、標準測定法としてフィルタ法を採用しているが、その質量濃度の妥当性を検証する必要がある。妥当性検証の手法の一つに、成分分析結果を用いる質量濃度推定手法モデル（ケミカルマスキュレーションモデル（Chemical mass closure model））がある。このモデルは、粒子状物質の質量濃度といくつかの主要成分（特定のイオン成分、有機炭素（OC）、元素炭素（EC）、特定の金属成分）との関係を統計的に求め、成分分析結果から質量濃度を推定し、測定質量濃度の妥当性を評価するものである。

また、PM_{2.5}の測定においては、夏季の高温時における硝酸アンモニウムや有機エアロゾルなどの半揮発性物質の揮散や、高湿度条件下における硫酸アンモニウムや有機エアロゾルなどの吸湿性を有する物質による湿度影響が質量濃度の測定に誤差を与える可能性が考えられる。このことから、測定に与える誤差要因を検討するためにも成分組成を把握する必要がある。

以上のことから、成分分析用のサンプラ（S/SASS）による調査を四季において実施し、PM_{2.5}質量濃度との関係を考察した。実施内容は以下のとおりである。

4-1 調査概要

（1）実施地点

フィルタ法及び自動測定機による並行試験と同様、神奈川県川崎市で実施した。調査地点は前掲図（P.26 図 3-1）に示すとおりである。

（2）実施期間

以下に示す日程で実施した。1回の調査期間は2週間であり、それぞれ14試料を得た。

夏季：平成19年8月17日より8月31日

秋季：平成19年10月6日より10月20日

冬季：平成20年2月16日より2月29日

春季：平成20年4月19日より5月2日

（3）設置機器および採取時間、時刻

成分分析用の試料の採取にはS/SASSサンプラ（P.27）を用いた。1試料の採取時間は23時間とし、標準測定法であるFRM 2000の採取に合わせて採取開始を12時とした。

4-2 S/SASS サンプラの各チャンネルの分析項目及び使用フィルタ

成分分析調査に使用したフィルタ材質と分析項目は表 4-1 のとおりである。ナイロンフィルタはNO₃⁻、SO₄²⁻、Cl⁻の分析に使い、そのチャンネルには酸性ガスを吸着するMgOデニューダを装着してアーティファクト（ガス状物質による正の誤差）の影響を取り除いた。そのほかのイオン成分、金属成分及び炭素成分の分析には石英フィルタを用いた。

表 4-1 フィルタ材質と分析項目

チャンネル	フィルタ材質	デニューダ	分析項目
1,5 ch	PTFE (リングサポート)	なし	質量濃度
2,6 ch	ナイロン	MgO	イオン成分
3,7 ch	石英	なし	イオン成分、金属成分
4,8 ch	石英	なし	炭素成分

4-3 分析方法

表 4-2 に分析方法を示す。

表 4-2 分析方法

分析項目	フィルタ材質	成分	分析方法	
質量濃度	PTFE (リングサポート)	—	重量法	PM _{2.5} 測定方法 暫定マニュアル に準ずる。
イオン成分	石英	SO ₄ ²⁻ 、Cl ⁻ 、Na ⁺ 、K ⁺ 、Ca ²⁺ 、 Mg ²⁺ 、NH ₄ ⁺	イオンクロマトグラ フ法	
	ナイロン	NO ₃ ⁻ 、SO ₄ ²⁻ 、Cl ⁻		
炭素成分	石英繊維	有機炭素 (OC)、元素状炭 素 (EC)	サーマルオプティカル ・リフレクタンス法	
無機元素	石英繊維	Li、Be、Na、Mg、Al、K、 Ca、Sc、Ti、V、Cr、Mn、 Fe、Co、Ni、Cu、Zn、Ga、 As、Se、Rb、Sr、Y、Mo、 Ag、Cd、Sn、Sb、Te、Cs、 Ba、Sm、Eu、W、Tl、Pb、 Bi、U	浮遊粉じん中の重金 属類測定方法(マイク ロウエーブによる圧 力容器分解・誘導結合 プラズマ質量分析法)	有害大気汚染物 質測定方法マニ ュアルに準ず る。

4-4 評価方法

(1) イオンバランスの確認

ケミカルマスクロージャモデルの適応に先立って、試料の採取から分析までの操作が適正に行われたことを判定するためイオンバランスの確認を行った。イオンバランスは陰イオンと陽イオンの等量濃度の比を示したもので、測定された陰イオン (Cl⁻、NO₃⁻、SO₄²⁻) 及び陽イオン (Na⁺、NH₄⁺、K⁺、Ca²⁺、Mg²⁺) について、それぞれの等量濃度の合計の比が 0.8~1.2 の範囲にある場合を適合とし、この範囲から外れた試料についてはケミカルマスクロージャモデルの適用から除外する。

(2) ケミカルマスクロージャモデルによる検証

ケミカルマスクロージャモデルはおよその地域代表性の検証及び異常値の判断に関して有効な手法である。代表的な手法として、Harrison *et al.*¹⁾による係数、及び米国 EPA²⁾による係数の 2 つのモデルが知られている。しかし、いずれも国外のモデルであるため必ずしも我が国の気候風土

と合致しているとはいえない。そこで本調査では、曝露影響調査において検討された全国 19 カ所の測定値により設定した我が国における係数（曝露影響調査検討モデル³⁾（表 4-3）を用いた。なお、本モデルでは粒子中の水分について考慮していないが、欧米では水分補正を考慮したモデルも提案されている。

検証では、秤量により求めた質量濃度と上記において推定した質量濃度（M）の比が 0.8～1.2 の範囲の場合に適合とした。

表 4-3 本調査でケミカルマスキュレーションモデルの適用に用いた係数

粒径	項目	成分	係数
PM _{2.5}	イオン成分	SO ₄ ²⁻	1.375
		NO ₃ ⁻	1.29
	海塩粒子	Na ⁺	2.5
	炭素成分	OC	1.4*
		EC	1.0
	土壌成分 (SOIL)	Al	1.89 (9.19)
		Ca	1.40
		Fe	1.38
		Si	2.14
		Ti	1.67
煙 (SMOKE)	K	1.4([K]-0.6[Fe])	

*OC の係数は最低限の値である。現在、米国 EPA では係数 1.5 が検討されており、表 4-3 に示す 1.4 では、過小評価となっている可能性がある。

質量濃度推定式 (M)

$$M = 1.375[\text{SO}_4^{2-}] + 1.29[\text{NO}_3^-] + 2.5[\text{Na}^+] + 1.4[\text{OC}] + [\text{EC}] + [\text{SOIL}]$$

[SOIL]については、以下の式により算出した。

$$[\text{SOIL}] = 9.19[\text{Al}] + 1.40[\text{Ca}] + 1.38[\text{Fe}] + 1.67[\text{Ti}]$$

なお、採取時にバイオマス燃焼（野焼きなど）の影響を受けていると判断される場合は、推定式 (M) に以下の項を加える。

$$[\text{SMOKE}] = 1.4([\text{K}] - 0.6[\text{Fe}])$$

4-5 分析結果及び評価

四季における成分分析結果の概要について図 4-1 から図 4-4 に示す。

本調査地点の PM_{2.5} の主要な成分は EC、OC、SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺であり、これら 5 成分の合計で 80 %前後を占めていた。

PM_{2.5} 構成成分の割合は夏季に SO₄²⁻が増加し、NO₃が低下していた。これは、(P.43 図 3-10) に

示されている曝露影響調査の都市部一般局の値と同様の傾向であった。

また、イオンバランス判定ではすべての値（56個）が適合範囲内にあり、試料採取から分析操作までが適切に行われたものと判断できた。したがって、ケミカルマスキュロージャモデルにより全データを検証することが可能と判定された。

ケミカルマスキュロージャモデルにより地域代表性を検証した結果、推定質量濃度が適合範囲を外れた値は冬季と春季に各1個の合計2個であった。これは、いずれもPM_{2.5}質量濃度が5 µg/m³程度と低い日であり、捕集された量が少なく秤量誤差、分析誤差の両方が大きかったためと推察された。その他のデータは適合範囲内にあることから、調査期間中の並行測定実施場所は都市部一般環境の代表的な状態を表していると考えられる。

参考資料

- 1) Harrison, R.M., Jones, A.M., Lawrence, R.G., 2003. A pragmatic mass closure model for airborne particulate matter at urban background and roadside sites. *Atmospheric Environment*, **37**,4927-4933.
- 2) Environmental Protection Agency, 1999. Visibility Monitoring Guidance EPA-454/R-99-003.
- 3) 環境省, 2007. 微小粒子状物質曝露影響調査報告書.

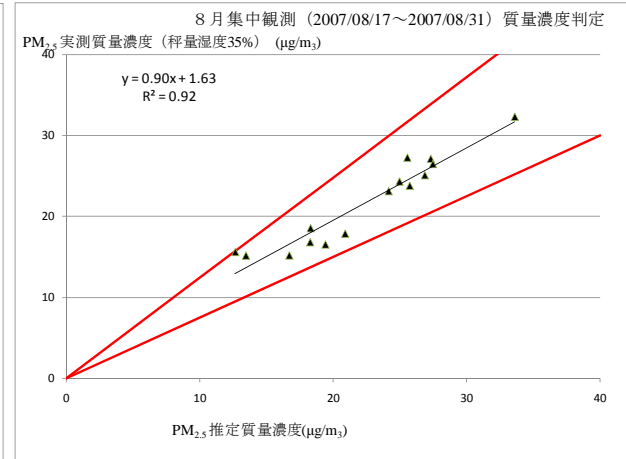
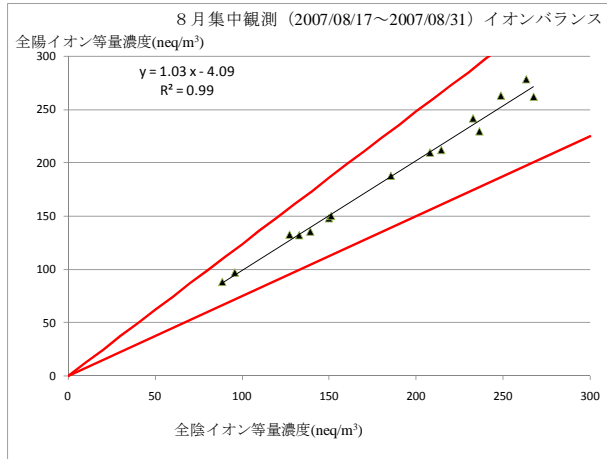
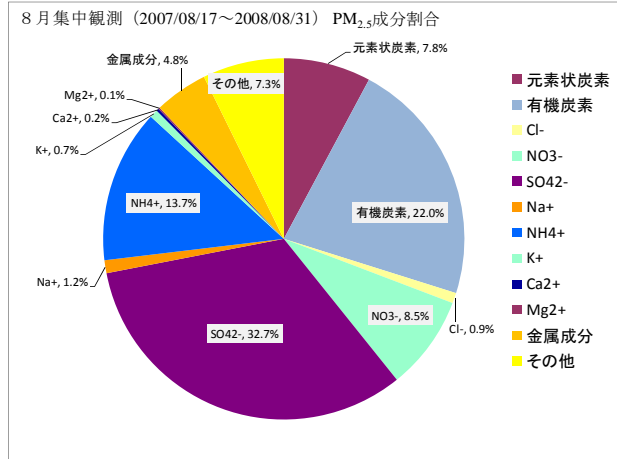


図 4-1 夏季測定結果 (平成 19 年 8 月 17 日より 8 月 31 日)

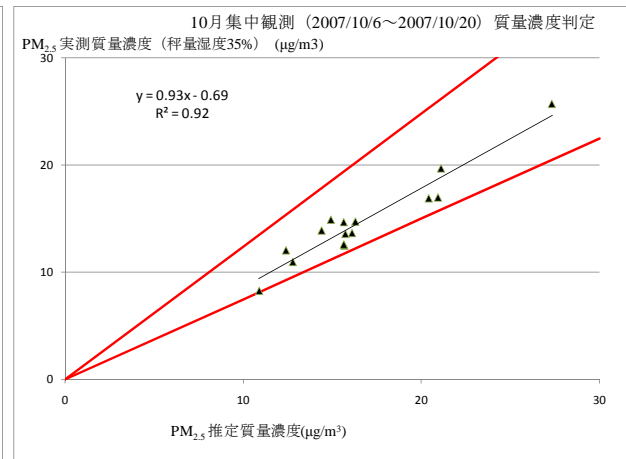
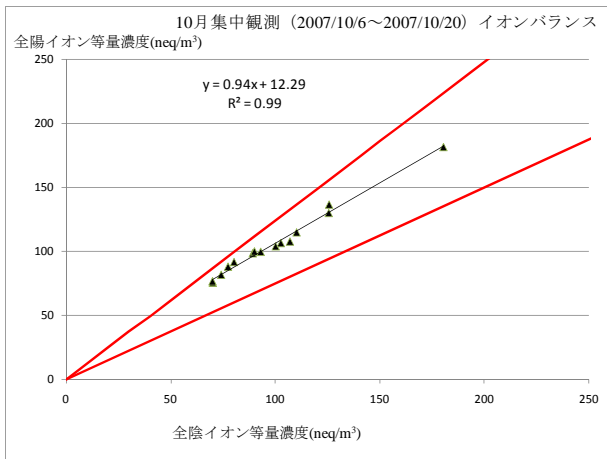
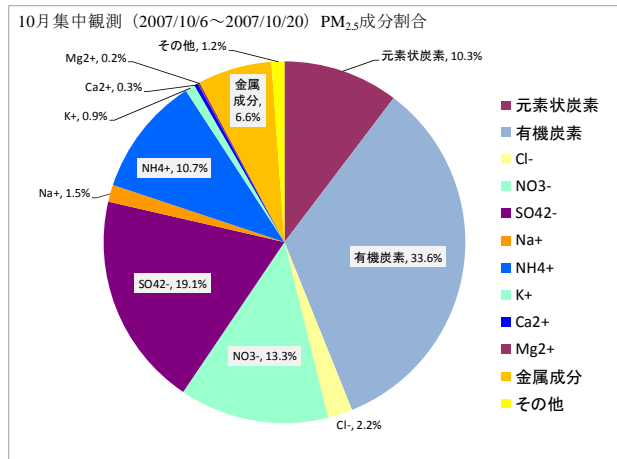


図 4-2 秋季測定結果 (平成 19 年 10 月 6 日より 10 月 20 日)

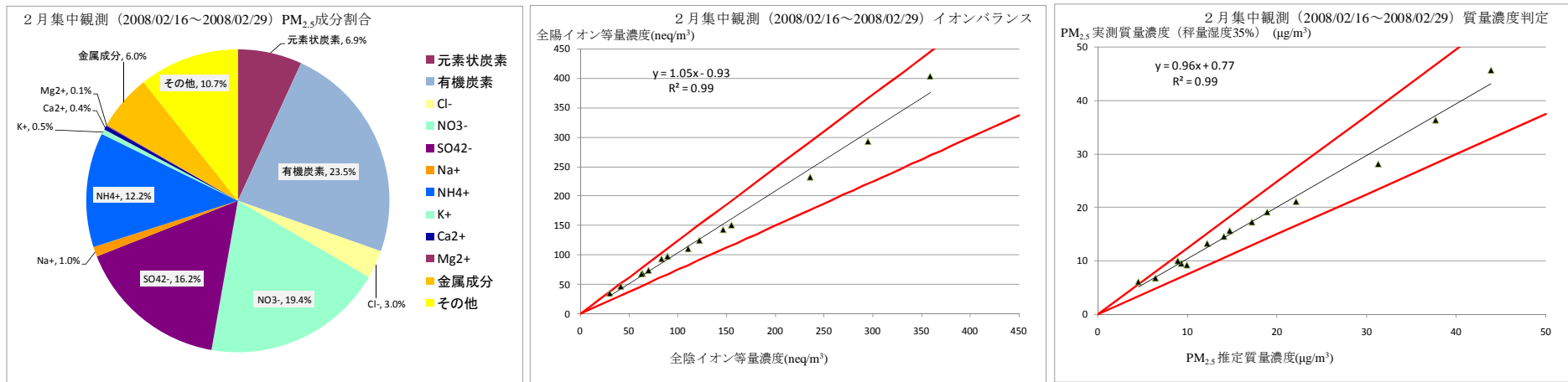


図 4-3 冬季測定結果(平成 20 年 2 月 16 日より 2 月 29 日)

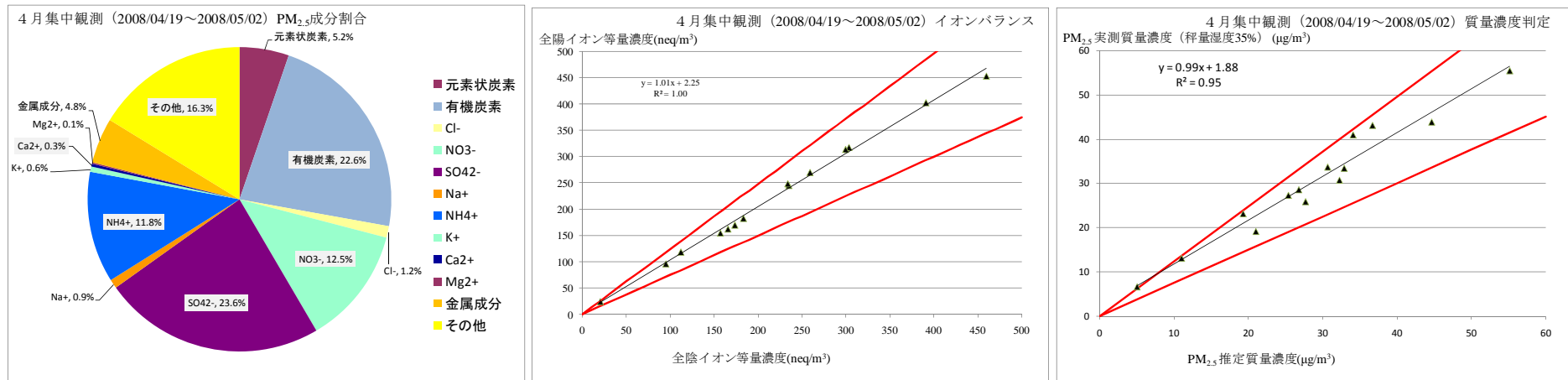


図 4-4 春季測定結果(平成 20 年 4 月 19 日より 5 月 2 日)

5. PM_{2.5}の測定法に関する今後の課題

5-1 フィルタ法及び自動測定機の満たすべき基本的条件の更なる検討

本検討会においては、フィルタ法及び自動測定機の満たすべき基本的条件について検討を行ったが、一部、今後の検討課題として残された条件もある。今後、大気中 PM_{2.5} の測定を行うにあたっては、標準測定法となるフィルタ法及びそれと等価な自動測定機の基本的条件について更に検討を行い、確定する必要がある。加えて、PM_{2.5}測定法は開発途上であることから、基本的条件のより詳細な条件についても継続して調査・検討を行うことが望ましい。

5-2 自動測定機に係る改良及び研究開発の促進

現在、諸外国において PM_{2.5}標準測定法として定められている方法は、米国 EPA の FRM に代表されるフィルタ法であり、信頼性は最も高い。しかしながら、フィルタ法はコストや労力がかかることに加え、得られる測定値は日平均値であり、さらに、秤量に時間がかかるため測定結果を得るまでに数日を要する。したがって、効果的な対策の検討のために必要となる濃度の時間変動のリアルタイムの把握には自動測定機による測定が有用であり、各メーカーにおいては、β線吸収法や TEOM 法の自動測定機を中心に開発や改良が進められている。自動測定機によって測定する 1 時間値については、現段階では標準測定法であるフィルタ法との等価性の確認が困難であるため、参考値として扱うことが適当であると考えられる。しかしながら、1 時間値は発生源や長距離輸送による移流の影響を検討するために必要性が高いことから、精度の確保については今後とも検討が進められることが望ましい。

また、自動測定機の性能や特性等を把握するために実施した、自動測定機とフィルタ法の FRM との並行測定試験では、3-3 (2) に示したとおり、良好な等価性がみられた自動測定機は試料導入管に除湿装置が備えられていた。一方、除湿装置を備えていない自動測定機による測定結果は夏季に FRM より高い傾向を示した。これらのことから、相対湿度の影響を低減させ、標準測定法と等価な測定値を得るためには、試料大気導入管への除湿装置の取り付け等相対湿度の変化による質量濃度の変化を抑制する機能を備えることが有効であると考えられる。

なお、本調査の並行測定結果を踏まえ、追加調査として除湿装置を取り付けた自動測定機と標準測定法との並行測定を行っており、標準測定法との等価性の向上がみられている。

5-3 自動測定機の信頼性の確保

大気中の PM_{2.5}濃度を正確に測定するためには、測定機の信頼性の確保が極めて重要である。PM_{2.5}自動測定機については現在開発途上であるため、同じ測定原理を用いる機種であっても測定結果に差を生じることから、測定機の機種ごとに標準測定法との等価性を評価することが必要であると考えられる。等価性の評価のために標準測定法との並行測定試験を実施する場合には、人工粒子によるチャンバ内での並行測定試験が困難であるため、フィールドでの試験が望ましい。また、等価性評価のための並行測定試験の実施及び評価の運用体制についても、今後の検討が必要である。運用体制の一例としては、国が等価性評価方法の詳細を規定し、公的機関あるいは第三者認証機関が並行測定試験及び評価を実施するという方法が考えられる。

また、測定機の精度管理についても適切に行われる必要がある。現在のところ、PM_{2.5}の測定に係る精度管理についての規定は作成されておらず、PM_{2.5}測定方法暫定マニュアルにおいては、大

気汚染常時監視マニュアルの SPM に係る各項目に準じることとされている。このため、今後は SPM と異なる点や留意すべき点について整理していく必要がある。

測定機の信頼性は国の施策に関わる重要なものであり、信頼性の確保とその検証のための手法を今後確立していく必要がある。将来、全国で PM_{2.5} のモニタリングが開始された場合に、測定値の信頼性を確保し、全国的に統一した精度管理が実施されるためには、標準測定法との等価性の検証、リファレンス測定機とのクロスチェック、保守管理担当者の教育訓練などの機能を有するリファレンスセンターを設置することが望ましいと考えられる。

5-4 成分分析の実施

発生源の寄与率の推定や効果的な対策の検討を行うためには質量濃度の測定だけではなく、成分分析を実施することが重要である。

発生源を把握する代表的な手法として、ケミカルマスバランス（Chemical Mass Balance; CMB）法という、観測地点の成分組成と発生源の成分組成より、発生源から排出される汚染物質の寄与率を推定できるものである¹⁾。発生源やその成分組成は時代とともに変化することから、効果的な対策の検討のためには、継続的な成分分析の実施によって発生源の指標やそれに対応する発生源の成分組成の情報を更新していく必要がある。

しかしながら、質量濃度は自動測定機によって測定できるのに対し、成分分析は現状ではフィルタ上に捕集した PM_{2.5} 粒子を化学分析する必要があるため、時間や労力がかかる。この課題を克服するために、成分組成を自動測定する機器の開発も進められており、一部は市販されている。例えば、エアロゾル質量分析計（Aerosol Mass Spectrometer, AMS）²⁾は、粒径別に有機エアロゾル、硝酸塩エアロゾル、硫酸塩エアロゾル等をリアルタイムで分析できるため多くの情報が得ることができ、国内での測定事例も報告されている³⁾。最近では AMS の観測値にレセプターモデルの一つである PMF（Positive Matrix Factorization）を適用した事例も報告されており⁴⁾、今後の研究の発展が望まれる。

5-5 簡易測定法についての検討

PM_{2.5} の空間濃度分布を把握することは、発生源周辺の住民の健康影響の観点からも重要である。しかしながら、PM_{2.5} の自動測定機や標準測定法であるフィルタ法による測定を同時に多地点で実施することは、機材の確保や費用の面で困難である。したがって、安価で PM_{2.5} の濃度を把握できる簡易測定法が確立されることが望ましい。

現在、簡易測定に関する研究は進んできているが、標準測定法との比較を季節ごとに行っている事例は少なく、季節によっては半揮発成分の揮散の影響により簡易測定法と標準測定法の間には PM_{2.5} 質量濃度や成分組成が異なる可能性がある。簡易測定法の確立のためには簡易測定法と標準測定法の間成分組成の相違について比較検討を行う必要がある。

参考資料

- 1) 例えば、Samara, C., 2005. Chemical mass balance source apportionment of TSP in a lignite-burning area of Western Macedonia, Greece, *Atmospheric Environment*, **39**, 6430-6443.
- 2) Jayne, J.T., Leard, D.C., Zhang, X.F., Davidovits, P., Smith, K.A., Kolb, C.E., Worsnop, D.R., 2000. Development of an Aerosol Mass Spectrometer for Size and Composition Analysis of Submicron Particles, *Aerosol Science and Technology*, **33**, 49-70.
- 3) Takegawa, N., Miyazaki, Y., Kondo, Y., Komazaki, Y., Miyakawa, T., Jimenez, J.L., 2005. Characterization of an Aerodyne aerosol mass spectrometer (AMS): Intercomparison with other aerosol instruments. *Aerosol Science and Technology*, **39**, 760-770.
- 4) 萩野浩之, 高田智至, 國見 均, 坂本和彦, 2008. PMF 法を用いた有機エアロゾル質量スペクトルの事例解析, 大気環境学会誌, **43**, 161-172.

6. 結言

我が国における $PM_{2.5}$ 測定法の確立に資するため、1年間にわたるフィールドでの並行測定試験を実施するとともに、国内外の $PM_{2.5}$ 測定に係る現状や課題について整理し、検討を行った。

我が国の $PM_{2.5}$ の標準測定法としては、最も基本的な測定方法であるフィルタ法が適当であり、諸外国においても標準測定法として採用されている米国 EPA の FRM に準ずることが望ましいと考えられる。このため、FRM に準じ、標準測定法としてのフィルタ法が満たすべき基本的条件をとりまとめた。また、自動測定機については、測定値がリアルタイムで得られ、フィルタ法に比べてコストや労力がかからない等の点で有用であることから、標準測定法の等価法として使用を推進することが望ましいとし、自動測定機の満たすべき基本的条件をとりまとめた。ただし、フィルタ法及び自動測定機の満たすべき基本的条件については、一部、今後の課題として残されている条件もある。大気中の $PM_{2.5}$ 濃度を適切に把握するためには、早急に測定法を確立することが望まれる。

さらに、現在国内において市販されている $PM_{2.5}$ 自動測定機の性能や特性等を検討するために、標準測定法との並行測定試験を行い、自動測定機の等価性評価を行った。自動測定機の多くは夏季に標準測定法に比べて高い値を示す傾向にあった。自動測定機と標準測定法との間に差が生じる要因としては、夏季に高温多湿になることによって捕集された $PM_{2.5}$ 成分が水分を取り込むことや、半揮発性物質が揮散することがあげられる。既にこれらの影響を抑制する自動測定機の開発も進んでおり、今回、並行測定試験を行った機種の中には標準測定法と良好な等価性を示したものが見られた。相対湿度の影響については、試料採取系に除湿装置等の湿度コントロール装置を備えることによって標準測定法との等価性の向上が見られることから、今後の改良により課題を克服することが可能になると考えられる。

以上のように、 $PM_{2.5}$ の自動測定機に関しては、今後も改良及び開発が進むことが期待されるため、継続的に知見を収集することが望ましい。また、今後、自動測定機の標準測定法との等価性を評価する方法の確立が必要である。等価性評価のための並行測定試験の運用方法については、認証機関の設立なども含めて検討する必要がある。また、測定値の信頼性を確保し、統一した精度管理手法のもとにモニタリングが行われるために、リファレンスセンターの設置についても検討する必要があると考えられる。