

### 3-4 等価法としての自動測定機の満たすべき基本的条件

現在、欧米等においては、PM<sub>10</sub> 質量濃度測定 of 標準測定法としてフィルタ法が定められているが、自動測定機による測定については、標準測定法と一定の基準内で一致する場合に等価法として認定することとしており、様々な測定原理に基づく自動測定機が認定されている。我が国における SPM 質量濃度測定においても、等価法として光散乱法、β線吸収法及び圧電天秤法による自動測定機が採用されている。

PM<sub>2.5</sub> についても PM<sub>10</sub> と同様に、等価法として自動測定機が認定されるためには、測定値が標準測定法と一定の基準内で一致することが要求される。現在、米国においては様々な測定原理に基づく自動測定機の認証試験が進められており、2008 年 3 月には、初めて FEM クラスⅢの認証機が現れた (P.15 2-2 参照)。

自動測定機による測定は、常時監視を行う場合に、質量濃度がリアルタイムで得られることやフィルタ法と比較してコストがかからない等の点で有用である。我が国においては、長年にわたり、SPM 質量濃度測定に自動測定機を用いてきた実績もあることから、PM<sub>2.5</sub> 質量濃度測定においても、等価法として自動測定機の使用を推進することは望ましいと考えられる。

自動測定機を等価法として位置付けるにあたって満たすべき基本的条件について、以下 (ア) から (ケ) に示す。

#### (ア) 物理量と質量の関係

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) が明確であることとする。

現在、粒子状物質の質量濃度自動測定に用いられている測定原理は以下に示すものの他、複数の測定原理を複合させたものがある。

- (i) TEOM 法
- (ii) β線吸収法
- (iii) 光散乱法

#### (イ) 分粒装置の特性

分粒装置の特性は 50 %カットオフ径が 2.5 μm であることとする。

分粒装置の性能は、原則として標準測定法であるフィルタ法と同様に、JIS Z 8851 に規定されている分粒装置の規格 (50 %分粒径が 2.5 μm±0.2 μm、80 %分粒径に対する 20 %分粒径の比で規定する傾きが 1.5 以下) と同等のものであることが望ましい。

#### (ウ) 平均化時間 (時間分解能)

自動測定機の平均化時間は 24 時間とする。

標準測定法であるフィルタ法においては、日平均値 (24±1 時間連続捕集) を得ることとされていることから、等価法としても日平均値が得られればよい。一方、発生源対策のためには、現行の SPM 自動測定機と同様に 1 時間値の出力 (記録) が可能であることが望ましい。現在のところ、フィルタ法で 1 時間採取による質量濃度を得ることは困難であり、自動測定機によって得られる 1 時間値については等価性の確認ができないため、参考値として取り扱うこととする。

また、一般環境大気中の  $PM_{2.5}$  は半揮発性物質等を多く含むため、24 時間連続捕集するフィルタ法と、 $\beta$ 線吸収法のように 1 時間捕集を 24 時間繰り返す自動測定機では、これらの物質の捕集時における再揮散による損失量の積算が異なると考えられる。このことは一般環境中でフィルタ法と自動測定機を同時に測定した場合の誤差要因の一つとなる。

#### (エ) 測定濃度範囲

測定濃度範囲は日平均値として  $5\sim 200\ \mu\text{g}/\text{m}^3$  が測定可能であることとする。

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、その等価法としての自動測定機においても日平均値を算出することになり、その測定濃度範囲の上限値は標準測定法であるフィルタ法と同様に  $200\ \mu\text{g}/\text{m}^3$  程度となる。また、下限値についてもフィルタ法と同等のものとするのが適当であるが、自動測定機においては、下限値付近の濃度では誤差の影響が大きく精度が下がるため、 $5\ \mu\text{g}/\text{m}^3$  程度が妥当である。なお、自動測定機の下限値を  $5\ \mu\text{g}/\text{m}^3$  程度としても、我が国のバックグラウンド値は測定可能と考えられる (P.25 3-2 (カ) 参照)。

一方、1 時間値の出力 (記録) を行う場合、過去に 1 時間値として  $700\sim 800\ \mu\text{g}/\text{m}^3$  以上の高濃度が出現した例もあるため、1 時間値の上限としては  $1000\ \mu\text{g}/\text{m}^3$  程度の濃度が測定可能であることが望ましいと考えられる。しかしながら、測定濃度範囲を広くすることは測定精度の低下につながるため、その場合は日平均値の測定濃度範囲の下限値である  $5\ \mu\text{g}/\text{m}^3$  の精度が確保されるよう留意する必要がある。また、精度を確保するために独立した複数の測定範囲を備えるなどの改良も必要である。

#### (オ) 点検及び校正方法

自動測定機は定期的な点検により、測定値の恒常性が維持されることとし、また、各測定原理に基づく点検及び校正に係る技術的方法が確立されていることとする。

#### (カ) 機差

自動測定機の機差は、同種測定機を複数台同時に測定したときの日平均値の差が一定の範囲にあることとする。

#### (キ) 吸引流量

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。流量制御及び表示はフィルタ法と同様に実流量による方法と標準流量による方法の 2 つの方法が考えられるが、自動測定機においても採用する方法については、フィルタ法と同様の観点から、今後検討が必要である。

#### (ク) 相対湿度の変化への対応

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。

PM<sub>2.5</sub>の主要成分は、燃焼による一次発生粒子や反応性の高いガス状物質が大気中で光化学反応すること等により生成する二次粒子であるとされており、水可溶性が高く吸湿性、潮解性を有する粒子状物質が多く存在する。潮解点以上の相対湿度では、フィルタ上に捕集されたPM<sub>2.5</sub>粒子中に存在する硝酸塩や硫酸塩などにおいて潮解による吸湿が生じていることが考えられる。また、二次有機エアロゾルの多くは吸湿性を持ち、成分によっては無機塩と比べて低い相対湿度でも水分を取り込むと考えられる。したがって、従来のSPM質量濃度測定と比較して、相対湿度の影響をより顕著に受けることになる。また、このことは自動測定機とフィルタ法の両方において同様に起きると考えられるが、フィルタ法がフィルタを調湿してから秤量するのに対し、自動測定機は調湿せずに試料の測定を行うため、相対湿度の影響をより大きく受けると考えられ、特に高温多湿となる我が国の夏季において、相対湿度は測定値に大きな影響を与える。

標準測定法に位置付けたフィルタ法との等価性を確保するためには、相対湿度の変化への対応が必要となる。相対湿度を一定値以下に保つ手法としては何種類かあるが、PM<sub>2.5</sub>捕集部（検出部）を高温に設定する方法では、水分だけではなく半揮発性物質の揮散による質量損失を招くことになる。また、清浄乾燥空気を試料大気に導入し、見かけの相対湿度を低下させる又は一定値以下に保つ手法については、余剰に導入した清浄乾燥空気の通過により、より多くの半揮発性物質が揮散し、質量損失を増大させてしまう傾向がある。拡散除湿管を用いた除湿法は半揮発性物質の損失は少ないが、除湿能力が低く相対湿度が高い時に対応しきれない場合がある。

除湿及び調湿方法にはそれぞれ一長一短があり、現時点では確立された方法はないが、今後、技術開発が進むことによって技術的に克服可能と推察される。

#### (ケ) フィルタ法との相関関係

標準測定法であるフィルタ法との並行測定試験の結果が良好な直線関係にあることとする。また、フィルタ法との並行測定試験によって得られた日平均値とフィルタ法との指示差が一定の範囲にあることが望ましい。

なお、等価性の評価にあたっては、並行測定試験の実施方法や評価方法などを確立することに加えて、並行測定試験の実施及び評価主体や運用体制等についての検討が必要である。

### 3-5 各種自動測定機の並行測定試験及びその評価

現在、国内において市販されている PM<sub>2.5</sub> 質量濃度自動測定機の性能や特性等を把握することを目的として、フィルタ法（FRM 規定サンプラを使用）と各種測定原理に基づく自動測定機の並行測定試験を実施した。実施条件を以下に示す。

#### （１） 実施条件

##### （ア） 実施地点

フィルタ法による並行測定試験を実施した神奈川県川崎市の同地点で行った。（P.26 図 3-1）

##### （イ） 実施期間

標準測定法であるフィルタ法と自動測定機との並行測定試験を平成 19 年 7 月 1 日から平成 20 年 6 月 30 日までの 1 年間実施した。

##### （ウ） 標準測定法に採用した機器と集計時間

評価の基準となる標準測定法のサンプラには FRM 2000 を採用した。なお、これはフィルタ法の並行測定試験に使用した機器と同一のものである。

評価対象となる自動測定機のデータの処理は、標準測定法であるフィルタ法の採取時間と合わせて、評価対象機器の 12 時を開始時間とする 23 時間について集計を実施した。

##### （エ） 設置機器

並行測定試験の設置機器について表 3-3 に示す。

並行測定試験を行う自動測定機の選定にあたっては、調達可能な範囲において以下の点を考慮した。

- ・ 単一の測定原理に偏らない
- ・ 新技術が導入されている
- ・ 現状で広く普及している

また、国内の測定機製造企業や海外機器の販売企業等に広く協力を仰いだ。

なお、自動測定機及び標準測定法サンプラはすべて 2 台ずつ設置した。測定風景を図 3-7 及び図 3-8 に示す。

表 3-3 並行測定試験設置機器一覧

自動測定機

機種名	測定原理	測定対象	PM <sub>10</sub> 分粒装置	PM <sub>2.5</sub> 分粒装置	採取口の設置高さ	備考
A	TEOM	PM <sub>2.5</sub>	FRM インパクト	FRM-WINS インパクト (16.7 L/min)	約 11.5m (地上高)	検出部温度 50℃
B	TEOM (FDMS)					拡散除湿管により除湿を行う 検出部温度は 30℃
C	β線吸収法					
D						
E			FEM-VSCC サイクロン (16.7 L/min)			
F	β線吸収法 (バーチャルインパクト)	PM <sub>10</sub> PM <sub>2.5</sub>		バーチャルインパクト (16.7 L/min)		バーチャルインパクト: PM <sub>2.5</sub> (15.31 L/min) ,PM <sub>c</sub> (1.36 L/min)
G	ハイブリッド (β線+光散乱)	PM <sub>2.5</sub>		FEM-VSCC サイクロン (16.7 L/min)		相対湿度 40%以上になると試料 導入管の一部を 70℃に加熱し、 除湿を行う
H	β線吸収法	SPM	SPM(10 μm100%カット)サイクロン(18/min)		約 11.5m (地上高)	

フィルタサンプラ

Thermo Electron (旧 R&P)	自動測定機比較用 標準器	PM <sub>2.5</sub>	FRM インパクト	FRM-WINS インパクト (16.7 L/min)	約 11.5m (地上高)	
Thermo Electron (旧 R&P)	バーチャル インパクト検証	PM <sub>10</sub> PM <sub>2.5</sub>		バーチャルインパクト (16.7 L/min)		四季の観測時のみ使用 バーチャルインパクト: PM <sub>2.5</sub> (15.0 L/min) ,PM <sub>c</sub> (1.67 L/min)
MET ONE	成分分析用	PM <sub>2.5</sub>	—	SCC サイクロン (6.7 L/min)		四季の観測時のみ使用



図 3-7 測定風景



図 3-8 測定風景

## (2) 自動測定機の等価性の評価方法の基本的な考え方

標準測定法であるフィルタ法の等価法として自動測定機を位置付けるためには、等価性の評価方法を確立する必要がある。等価性評価の基本的な考えは、予め定められた条件下において、基準となる測定機と評価対象となる測定機との並行測定試験結果が、評価方法に規定される許容範囲にあるか否かを判断することである。

大気中のPM<sub>2.5</sub>測定用サンプリングを評価する方法は、JIS Z 8851 及び米国 FEM クラスⅢ認定試験において詳細に規定されているが、どちらの方法も基本的な考え方は同じである。以下に、「試験の実施条件」及び「試験結果の評価方法」の要点を示す。また、表 3-4 に JIS Z 8851 及び米国 FEM クラスⅢの等価法試験の比較表を示す。

### (ア) 試験の実施条件

#### (i) 評価試験の実施場所及び時期について

PM<sub>2.5</sub> の主要成分には、水可溶性が高く吸湿性、潮解性を有する粒子も多く存在し、その組成と割合は地域や季節によって異なることが知られている。

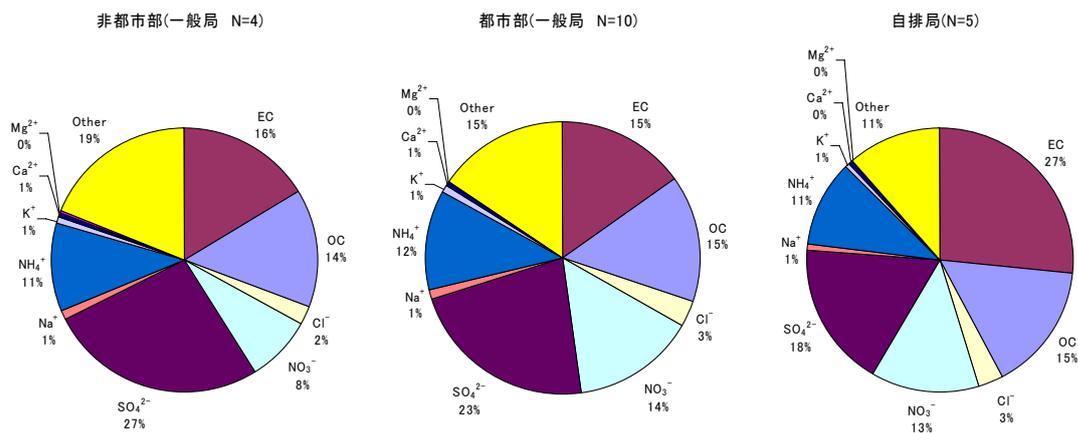
フィルタ法と自動測定機とは測定原理が異なることから、フィルタ法と自動測定機の等価性を評価するためには、変化しうるすべての条件においてフィルタ法との並行測定試験を実施することが最良の方法である。そのためには、人工的に粒径別疑似組成を変更することが可能な PM<sub>2.5</sub> 粒子を作り出すとともに、気象条件（温度、相対湿度、気圧）をダイナミックに変更することが可能なチャンバ内で並行測定試験を行うことが理想であるが、このような装置の製作は技術的に困難である。

したがって、現時点では、フィールドでの実環境大気による並行測定試験を行うことが最も有効な方法であると考えられる。しかしながら、あらゆる環境条件における長期間のフィールド試験の実施は、多大な費用と時間がかかり現実的ではないことから、並行測定試験の実施条件については、成分組成や気象条件等が特徴的である場所及び時期を選定することによって、許容可能な範囲で簡略化が必要である。

我が国における PM<sub>2.5</sub> 成分組成の地域及び季節による特徴を検討するため、環境省の曝露影響調査の報告を参考にした。平成 13 年度から平成 18 年度までの期間に実施された全国 19 箇所における SASS サンプラによる PM<sub>2.5</sub> の成分測定結果について、地域別の平均値及び季節別平均値をそれぞれ図 3-9 及び図 3-10 に示す<sup>4)</sup>。

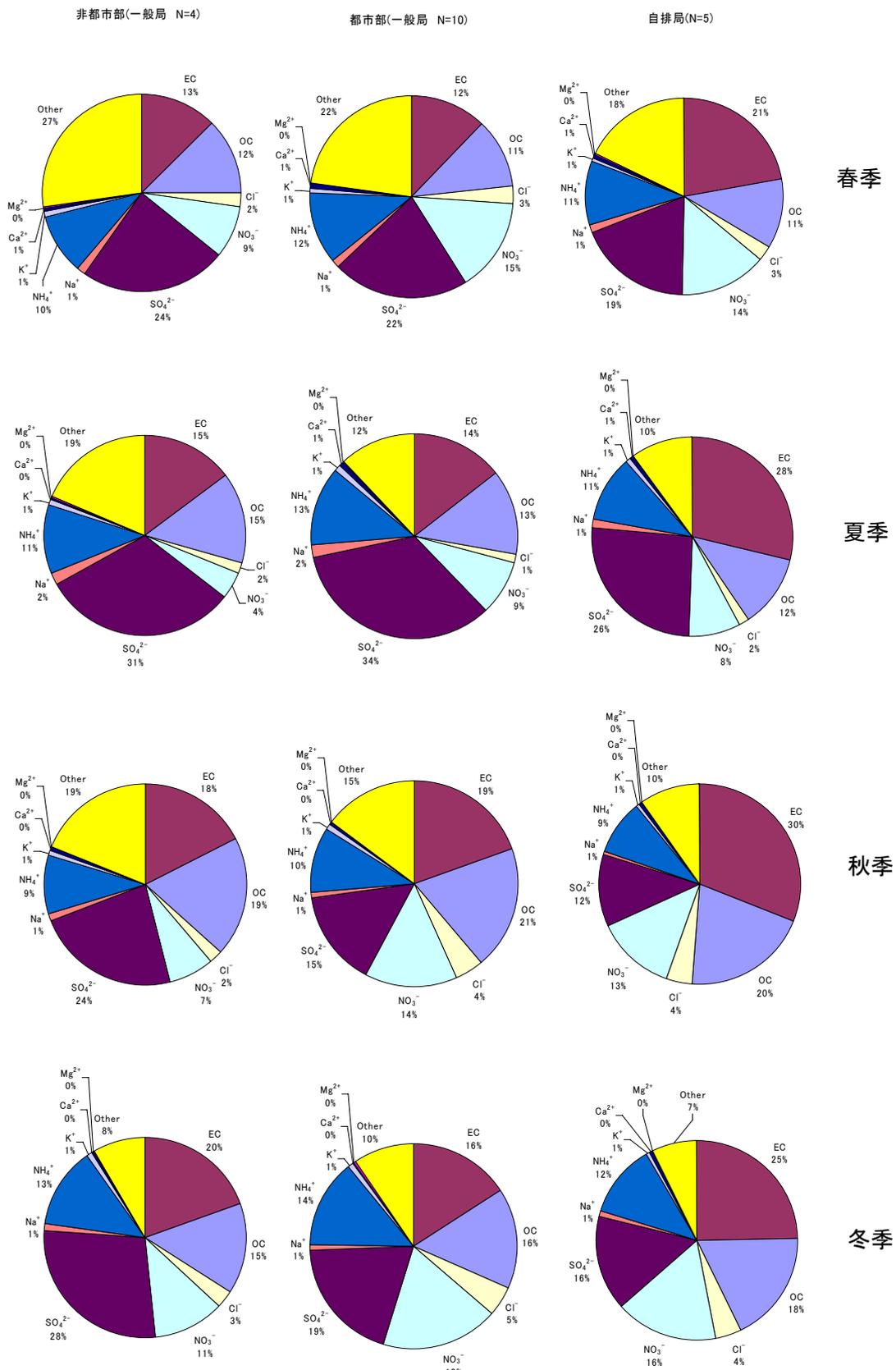
表 3-4 評価法の比較

試験に係る項目	EPA クラスⅢ試験法	JIS Z 8851 大気中PM <sub>2.5</sub> サンブラ	常時監視マニュアル 動的感度確認試験	
試験場所	4つのサイトで試験を実施する サイトA - ロサンゼルス盆地またはカリフォルニアセントラルヴァレー - 冬季と夏季における高濃度の硝酸塩と半揮発性の有機汚染物質が特徴- サイトB - アメリカ西部の高地に位置する都市(デンバー、ソルトレイクシティ、アルバカーキなど) - 冬季における寒冷で、強風と粉じんが特徴- サイトC - 中西部の都市 - 冬季における相当な温度変化と高濃度の硝酸塩が特徴- サイトD - 北東部から中部の大西洋岸 - 夏季における高濃度の硫酸塩と相対湿度が特徴-	記載無し	自動機が設置されている局舎	
試験に用いる機器の台数	標準法 試験対象機 3台以上 3台以上	2台以上 2台以上	記載無し(各1台で可)	
試験期間及び必要データ数	試験場Aで夏季及び冬季、試験場BとCで冬季、試験場Dで夏季 各季23日以上(測定値の採用基準をパスした有効データ数として)	試験季節についての記載無し 20以上(測定値の採用基準をパスした有効データ数として)	試験季節についての記載無し 2~3日間の測定期間で3回以上	
測定値の採用基準	標準法	濃度範囲 3 μg/m <sup>3</sup> 以上200 μg/m <sup>3</sup> 以下	20 μg/m <sup>3</sup> 以下、40 μg/m <sup>3</sup> 以上の濃度が含まれていなければならない	
	異常値機器の却下	各測定日における3台のFRM結果について以下の計算を行う。 ここでR <sub>ij</sub> はテスト日 j のFRM i の測定値 (i) $2 \times R_{1j} / (R_{1j} + R_{2j})$ $2 \times R_{1j} / (R_{1j} + R_{3j})$ 。 二つの値がR <sub>ij</sub> に対して0.93~1.07の範囲から外れている場合、R <sub>1j</sub> は却下する。 (ii) $2 \times R_{2j} / (R_{2j} + R_{1j})$ $2 \times R_{2j} / (R_{2j} + R_{3j})$ 。 二つの値がR <sub>ij</sub> に対して0.93~1.07の範囲から外れている場合、R <sub>2j</sub> は却下する。 (iii) $2 \times R_{3j} / (R_{3j} + R_{1j})$ $2 \times R_{3j} / (R_{3j} + R_{2j})$ 。 二つの値がR <sub>ij</sub> に対して0.93~1.07の範囲から外れている場合、R <sub>3j</sub> は却下する。 上記操作において2個以上のFRM結果が残り、且つその濃度が3 μg/m <sup>3</sup> 以上200 μg/m <sup>3</sup> 以下のものを有効日とし、測定結果を採用する。	基準濃度は2台の基準サンブラによる濃度の平均値とする。 ただし、40 μg/m <sup>3</sup> 以下の濃度においては2台の濃度差が2 μg/m <sup>3</sup> 以上、40 μg/m <sup>3</sup> 以上の濃度においては2台の濃度の平均値との差が±2.5%以上の場合は無効データとする。	
	精度検査	FRMの精度検査のため以下の計算を行う。 (i)各試験場の各季節の測定セットの各々について精度の推定値(RP)を求める $RP_j = \frac{1}{R_j} \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n R_{ij}^2 - \frac{1}{n} \left( \sum_{i=1}^n R_{ij} \right)^2}{n-1}} \times 100\%$ ここで R <sub>j</sub> = テスト日 j の測定値の平均濃度 $\bar{R}_j = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n R_{ij}$ n = 有効な測定の数 (ii)各試験場の精度の推定値(RP)を求める。 $RP = \sqrt{\frac{1}{J} \sum_{j=1}^J (RP_j)^2}$ ここで j = 有効な測定セットの総数 精度の推定値(RP)が10%以下でなければならない。	記載無し	記載無し
	試験対象機	採用データ 標準法において有効日とされた日において2台以上の測定結果が存在するもの	サンブラの濃度は基準サンブラのデータと採気日時が同時の2台のサンブラによる濃度の平均値とする。	記載無し
	精度検査	FEM候補法の精度検査のため以下の計算を行う。 (i)各試験場の測定セットの各々について精度の推定値(CP)を求める $CP_j = \frac{1}{C_j} \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^m C_{ij}^2 - \frac{1}{m} \left( \sum_{i=1}^m C_{ij} \right)^2}{m-1}} \times 100\%$ ここで C <sub>j</sub> = テスト日 j の測定値の平均濃度 $\bar{C}_j = \frac{1}{m} \sum_{i=1}^m C_{ij}$ C <sub>ij</sub> = テスト日 j の測定値 m = 有効な測定の数 (ii)各試験場の精度の推定値(CP)を求める。 $CP = \sqrt{\frac{1}{J} \sum_{j=1}^J (CP_j)^2}$ ここで j = 有効な測定セットの総数 精度の推定値(CP)が15%以下でなければならない。	記載無し	記載無し
評価基準(回帰計算)	傾き	1 ± 0.10以内	1 ± 0.10以内	
	切片	15.05 - (17.32 × slope)【但し-2より大きい】から 15.05 - (13.20 × slope)【但し+1.5より小さい】の範囲にあること。	±2以内	
	相関係数(r)	各試験場の各季節の標準法測定値の変動係数(COV)を求める。 CCV ≤ 0.4の場合は ≥ 0.93、0.4 ≤ CCV ≤ 0.5の場合は ≥ 0.85 + 0.2 × CCV、CCV ≥ 0.5の場合は ≥ 0.95とする。	0.97以上	
その他	試験場について	EPAの事前承認を受けること。 特定の発生源(事業所、道路等)の影響を過度に受けないこと。また建築物等による影響がないこと。 周辺環境濃度を事前に把握しておくこと。	記載無し	記載無し
	設置について	すべてのサンブラーまたは測定機の環境大気吸気口は、地上より2m未満の同じ高さになければならず、またお互いの間を4メートル以上離して設置すること。	各々のサンブラの大気導入口は、同一の高さとし、各々1~2 m離して設置する。	ロウボリウムエアサンブラの設置場所を選定する際は、試料採取口の位置に注意し、両測定機の採取する試料大気濃度に差が出ないようにする。
	採取時間について	測定値は24 ± 1時間において同時並行運転された結果の適切な平均値であること。	24時間又は48時間とする。	記載無し



※Other：質量濃度から炭素及びイオン成分濃度を引いたもの

図 3-9 PM<sub>2.5</sub> (SASS) 炭素・イオン成分の割合 (平成 13~18 年度の平均値)  
曝露影響調査報告書より抜粋



※Other : 質量濃度から炭素及びイオン成分濃度を引いたもの

図 3-10 PM<sub>2.5</sub> (SASS) 炭素・イオン成分の割合 (平成 13~18 年度の季節別平均値)  
曝露影響調査報告書より抜粋

図 3-9 より、PM<sub>2.5</sub>の主要な成分は元素状炭素 (EC)、有機炭素 (OC)、硝酸イオン (NO<sub>3</sub><sup>-</sup>)、硫酸イオン (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)、アンモニウムイオン (NH<sub>4</sub><sup>+</sup>) 等であることが分かるが、その組成割合は、一般局では SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>が最も多く、自排局では EC が最も多い等、測定地域によって異なり、この違いは非都市部一般局と自排局においてより顕著である。このため、評価試験の実施場所としては、成分組成の特徴が異なる非都市部一般局と自排局 (又は道路交通影響が比較的大きい都市部一般局) の少なくとも 2 地域において実施することが望ましいと考えられる。なお、実際の実施場所の選定にあたっては、その場所における PM<sub>2.5</sub> 質量濃度の分布を考慮することや、実施場所の高さ、広さ、周辺環境等詳細な条件を設定する必要がある。

また、図 3-10 に示すように、夏季には一般局及び自排局ともに SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の割合が増加し、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>及び塩化物イオン (Cl<sup>-</sup>) の割合が減少している等、季節によっても成分の組成割合は異なる。春季には土壌性粒子による影響が大きくなる地域も存在すると考えられる。このため、実施時期としては、各季節において実施することが望ましい。ただし、費用の面から各季節での実施が困難な場合には、気温や相対湿度等の気象条件や成分組成の違いが顕著である夏季及び冬季の 2 季に実施する等の対応も考えられる。また、並行測定試験の各実施時期における測定期間については、必要な有効データ数を勘案して設定する必要がある。

#### (ii) 試験に用いる機器の数量とデータの有効判定について

装置が 1 台の場合は装置自身の異常を発見することが困難なため、フィルタ法のサンブラ及び自動測定機は少なくともそれぞれ 2 台ずつ設置することが望ましい。また、機差の許容範囲から外れた値は無効データとして等価性の評価に用いないとするなどの手順を規定することによって、データの有効性の判定を行うことが必要である。

なお、複数台の機器を設置する際の配置方法についても詳細に設定する必要がある。

#### (イ) 試験結果の評価方法について

評価方法としては、一般的に回帰式を用いた方法がとられており、JIS Z 8851 及び米国 FEM クラス III<sup>3)</sup>の等価法試験においても、一次回帰式の傾き、切片及び相関係数等が規定されている。

また、環境大気中のガス状物質の自動測定機に関する一致性の評価方法として、平成 9 年度に (社) 日本環境技術協会によって示された「乾式-湿式測定機の一致性の評価プログラム」<sup>4)</sup>がある (表 3-5 及び図 3-11)。一致性の目安となる値としては、日平均値が測定下限値から環境基準値の間にある場合は、平均値±環境基準値の 1/10 値の範囲内、環境基準値以上の値については、平均値の±10%の範囲内を定め、この目安に対して、差の平均値及び差の標準偏差を用いて、以下に示す 5 段階の評価を行うものであり、PM<sub>2.5</sub> 自動測定機の等価性評価においても準用できると考えられる。

表 3-5 乾式-湿式測定機の一致性の評価プログラムにおける一致性の目安

一致性の評価	レベル	解析結果（一致性の目安の許容範囲に対して）
一致性良好	5	[差の平均値 $\pm 1.96 \times$ 差の標準偏差]が全て納まる
一致性有り	4	[差の平均値 $\pm$ 差の標準偏差]が全て納まる
一致性ボーダーライン	3	差の平均値は納まるが、[差の平均値 $+$ 差の標準偏差]又は[差の平均値 $-$ 差の標準偏差]が外れる
一致性に問題有り	2	[差の平均値 $\pm 1.96 \times$ 差の標準偏差]が一部納まる
一致性なし	1	[差の平均値 $\pm 1.96 \times$ 差の標準偏差]が全て外れる

<注意事項>

- ①一致性の評価プログラムでは統計的な観点からはレベル5が一致性の目標としているが、レベル4でも常時監視の測定値として実用的に支障はないと考えられるため、一致性有りとしている。
- ②レベル3は、長期的な測定値の評価等使用可能な場合もあるが、短期的な評価（例えば光化学オキシダント警報の発令）等には問題があると思われるので、原因究明を行うのが望ましいとしている。
- ③レベル2、1は、原因究明を行う必要があると考えられるとしている。

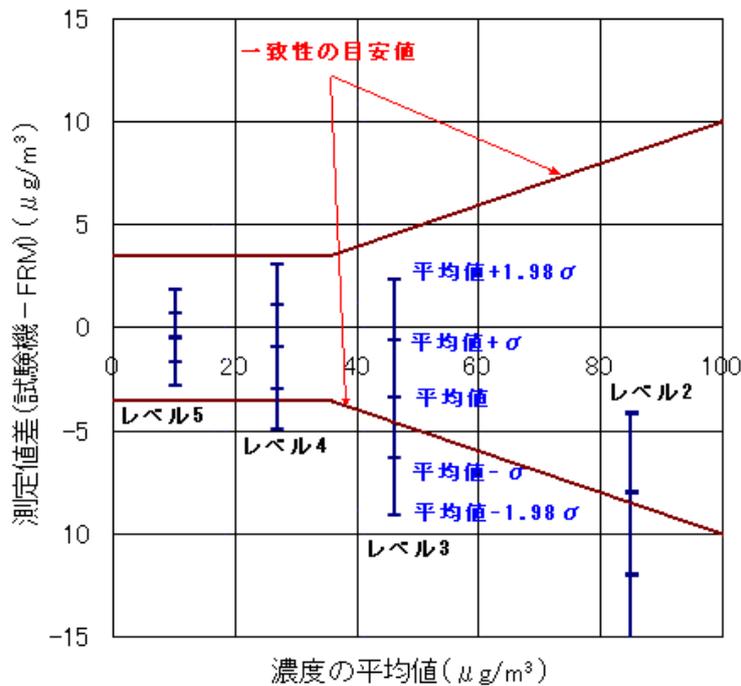


図 3-11 一致性の評価例

(3) 自動測定機の等価性評価方法案

(2) で示した基本的な考え方を踏まえて設定した、自動測定機の等価性評価方法案を以下に示す。

(i) 評価試験の実施条件

(a) 評価試験の実施場所

評価試験（同時並行運転試験）は以下に示す2地域で実施すること。

①道路近傍（自排局など）又は道路交通影響が大きい都市部一般局と同等とみなせる地域

②非都市部一般局と同等とみなせる地域

また、選定にあたっては、事業所などの特定の発生源の影響を過度に受けないこと、建築物等による影響等がないこと、周辺に対して騒音等の問題を生じないこと、周辺及び試験従事者に対して保安上の問題がないこと等を考慮する。

(b) 機器の設置方法

サンプラ及び自動測定機の試料大気導入口は同一の高さとし、各々1～2 m 離して設置すること。また、試料大気導入口より捕集部（又は検出部）までの長さは5 m 未満であること。

(c) 試験に用いる機器の台数

サンプラ及び自動測定機ともに2台以上とする。

(d) 試料採取（測定）時間

サンプラ：24±1 時間

自動測定機：サンプラと同時並行運転された結果の平均値

(e) 評価に用いる測定結果

評価に用いる測定結果は、以下に示す①及び②の操作を順に実施した際に有効と判定された測定日  $i$  の2台のサンプラの平均値 ( $R_i$ ) と2台の自動測定機の平均値 ( $C_i$ ) の組をもって1測定結果とする。

①サンプラ

2台のサンプラをそれぞれ  $R_1$ 、 $R_2$  とする。測定日  $i$  の  $R_1$  の値 ( $R_{1i}$ ) を2倍した ( $2R_{1i}$ ) と、測定日  $i$  の2台の和 ( $R_{1i} + R_{2i}$ ) との比が0.95～1.05の範囲にあり、かつ測定日  $i$  の  $R_2$  の値 ( $R_{2i}$ ) の値を2倍した ( $2R_{2i}$ ) と、測定日  $i$  の2台の和 ( $R_{1i} + R_{2i}$ ) との比が0.95～1.05の範囲にあること。この範囲を外れている場合は測定日  $i$  を無効日とする。測定日  $i$  が有効と判定され、かつその値が  $3 \mu\text{g}/\text{m}^3 \sim 200 \mu\text{g}/\text{m}^3$  の範囲内にある場合、2台のサンプラの値 ( $R_{1i}, R_{2i}$ ) の算術平均値を測定日  $i$  のフィルタ法による値 ( $R_i$ ) とする。

②自動測定機

2台の自動測定機をそれぞれ  $C_1$ 、 $C_2$  とする。①において有効と判断された測定日  $i$  の  $C_1$  の値 ( $C_{1i}$ ) を2倍した ( $2C_{1i}$ ) と、測定日  $i$  の2台の和 ( $C_{1i} + C_{2i}$ ) との比が0.92～1.08の範囲にあり、かつ測定日  $i$  の  $C_2$  の値 ( $C_{2i}$ ) の値を2倍した ( $2C_{2i}$ ) と、測定日  $i$  の2台の和 ( $C_{1i} + C_{2i}$ ) との比が0.92～1.08の範囲にあること。この範囲を外れている場合は測定日  $i$  を無効日とする。測定日  $i$  が有効と判定された場合、2台の自動測定機の値 ( $C_{1i}, C_{2i}$ ) の算術平均値を測定日  $i$  の自動測定機による値 ( $C_i$ ) とする。

(f) 評価に必要なデータ数

四季それぞれを代表する期間に、(e)に示した有効な測定結果を20組以上確保すること。4季2地域において試験を実施する場合には、それぞれ20日以上並行運転試験を実施し、全体として

有効な測定結果 160 組以上が確保される必要がある。また、全体の中で  $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$  以下の濃度を 25 % 以上、 $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$  以上の濃度を 25 % 以上含んでいることが望ましい。

#### (ii) 評価方法

##### (a) 試案 1 (回帰式による評価案)

評価に用いることのできる測定結果 (P.46 (i), (e) 参照) について回帰計算を行って得られた、回帰式の傾き、切片及び相関係数がいずれも以下に示す基準内にあること。

- 傾き (*slope*) :  $1 \pm 0.1$
- 切片 :  $15.05 - (17.32 \times \text{slope})$  から  $15.05 - (13.20 \times \text{slope})$  の範囲にあること。ただし  $-2.0 \sim 2.0$  の範囲にあること。
- 相関係数 : フィルタ法測定値の変動係数 (CCV) を求め、以下の条件により、対応する相関係数を適用する。
  - ①  $\text{CCV} \leq 0.4$  の場合は、相関係数  $\geq 0.93$
  - ②  $0.4 \leq \text{CCV} \leq 0.5$  の場合は、相関係数  $\geq 0.85 + 0.2 \times \text{CCV}$
  - ③  $\text{CCV} \geq 0.5$  の場合は、相関係数  $\geq 0.95$

##### (b) 試案 2 (一貫性評価プログラムを基にした案)

- ① ここでは仮設定として  $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (米国の日平均値による環境基準) を目安となる値 (目安値) の基準とする。
- ② 測定した全データの平均値が  $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$  以下の場合、一貫性の目安値を「フィルタ法測定値の平均値  $\pm 3.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 」以内とし、 $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$  以上の場合、一貫性の目安値を「フィルタ法測定値の平均値  $\pm 10\%$ 」以内とする。
- ③ 有効な測定結果のすべて (160 組以上) について、フィルタ法の値 ( $R_i$ ) と自動測定機の値 ( $C_i$ ) それぞれの平均値  $\overline{R_i}$ 、 $\overline{C_i}$  を求め、続いて差  $\overline{C_i - R_i}$  を求める。
- ④ ③で求めた差について、差の平均値及び差の標準偏差を求め、平均値  $\overline{R_i}$ 、における一貫性の目安値をもとに、(P.45 表 3-5) に従って一貫性の評価レベルを求める。
- ⑤ ④で求めたレベルが 4 以上であること。

#### (4) 自動測定機による並行測定試験結果

各自動測定機の日平均値における機差及び標準測定法の FRM との相関について図 3-12 から図 3-19 に示す。FRM との相関について、除湿機能を持つ機種 G (光散乱値、 $\beta$  線吸収値) 及び機種 B は、FRM との相関係数も高く、傾きが 1 に近かった。一方、除湿機能を持たない  $\beta$  線吸収式の機器類の測定値は、FRM に対して高めの結果となった。

また、月別の FRM との相関について図 3-20 及び図 3-21 に示す。月別結果より、自動測定機と FRM の一次回帰式の傾きは高温多湿となる夏季に大きく、低温低湿となる冬季に小さくなる傾向があることが分かる。この傾向は、長谷川ら<sup>5)</sup>による報告においても同様の傾向が示されている。自動測定機と FRM の一次回帰式の傾きについては、除湿機能を持たない  $\beta$  線吸収式の自動測定機 (機種 C を除く) において、どの月も傾きが 1 より大きく、月ごとの差が大きい傾向がみられたが、機種 B 及び機種 G (光散乱値及び  $\beta$  線吸収値) においては、傾きが 1 に近く、月ごとの差が小さかった。なお、センサ部を  $50^\circ\text{C}$  に加温している機種 A においては、夏季は FRM とほぼ 1 対 1 の関係に近いが、冬季はかなり低めの結果を示した。これは、冬季において  $\text{PM}_{2.5}$  粒子中の半揮発性物質が揮散したことによるものと推察される。

また、除湿機能を持たないβ線吸収式の機器類について、FRMとの質量濃度の差の割合と相対湿度との関係を図3-22に示す。相対湿度と質量濃度差の割合の間には一定の正の関係がみられ、相対湿度の増加による質量増加の影響は無視できないものと推察される。この要因として、硫酸塩や硝酸塩の潮解や吸湿特性を持つ有機エアロゾルによる吸湿が起こると考えられる。

なお、相対湿度は、自動測定機と標準測定法であるフィルタ法の両方の測定値に影響を及ぼすと考えられるが、フィルタ法がフィルタを調湿してから秤量するのに対し、自動測定機は調湿せずに測定を行うため、相対湿度の影響をより大きく受けると考えられる。

機種A

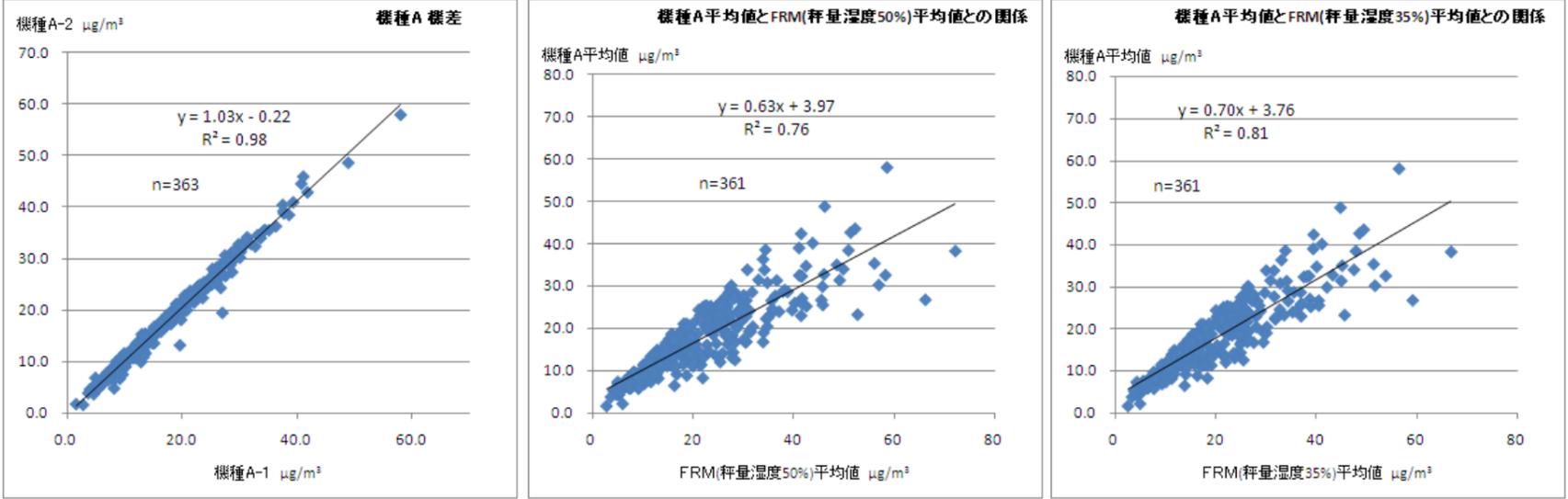


図 3-12 機種 A 結果

機種B \* 7月1日より7月31日の間は一台不調のため除いた。

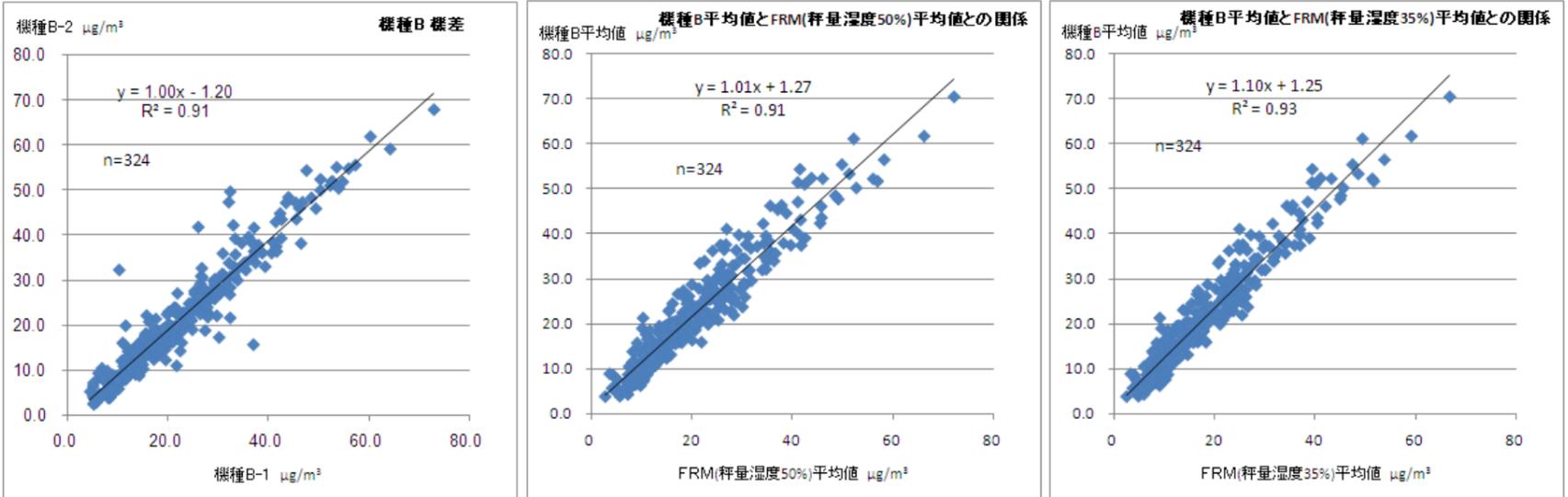


図 3-13 機種 B 結果

機種C \* 西側機器不調のため、11月7日以降の値

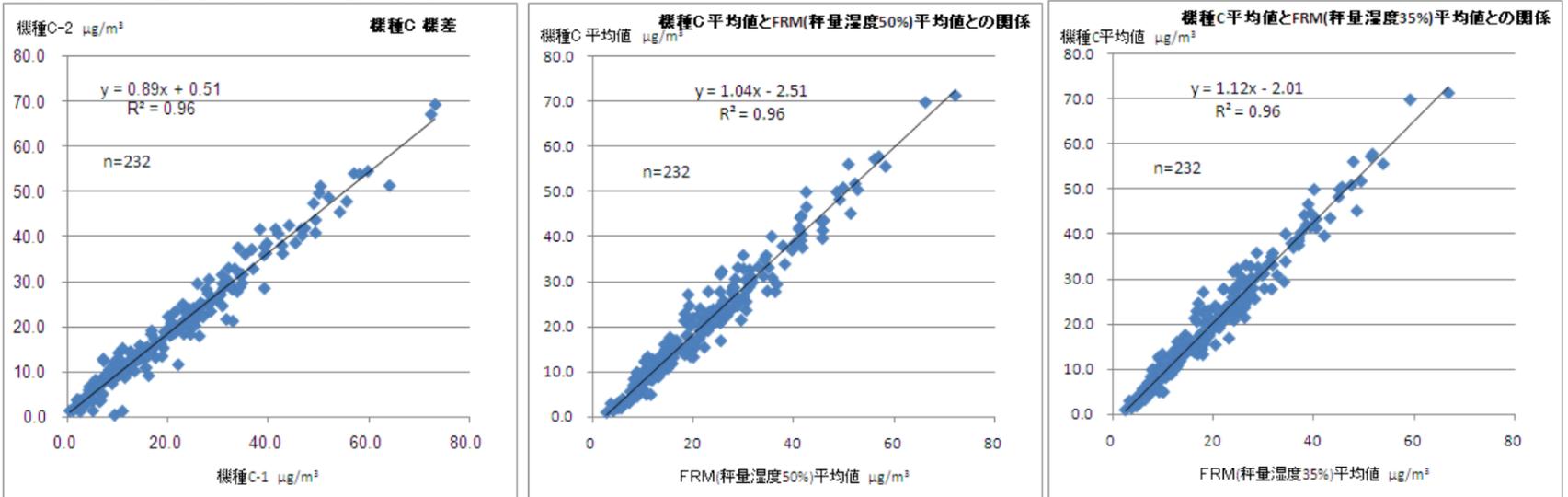


図 3-14 機種 C 結果

機種D \* 9月1日より9月24日の間は一台不調のため除いた。

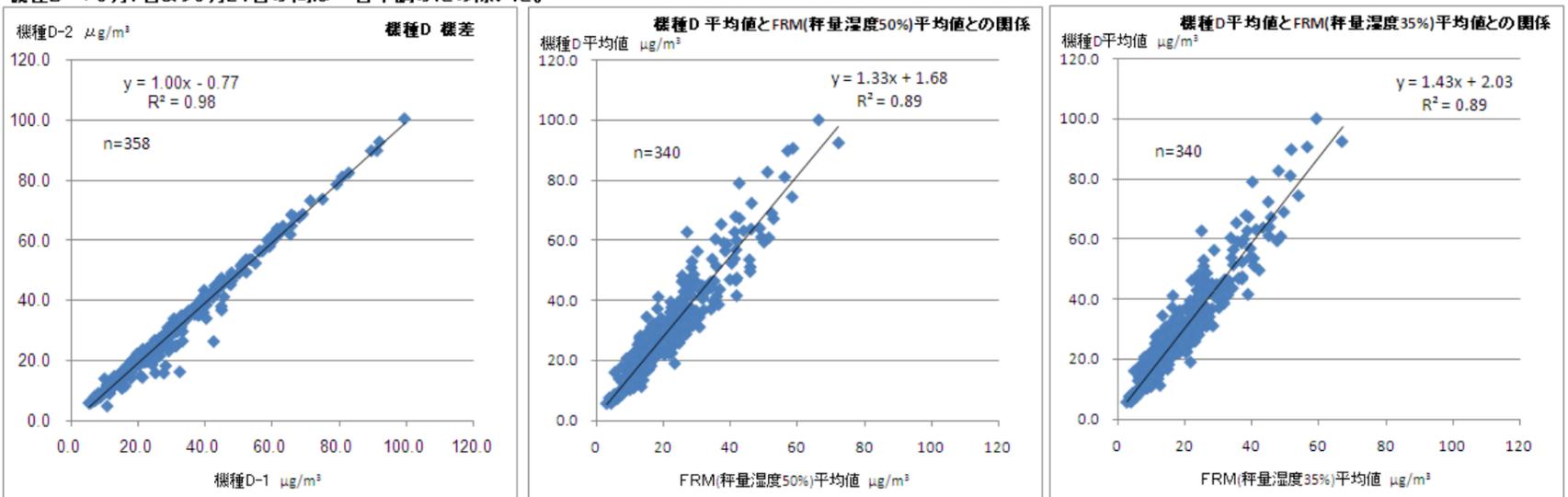


図 3-15 機種 D 結果

機種E

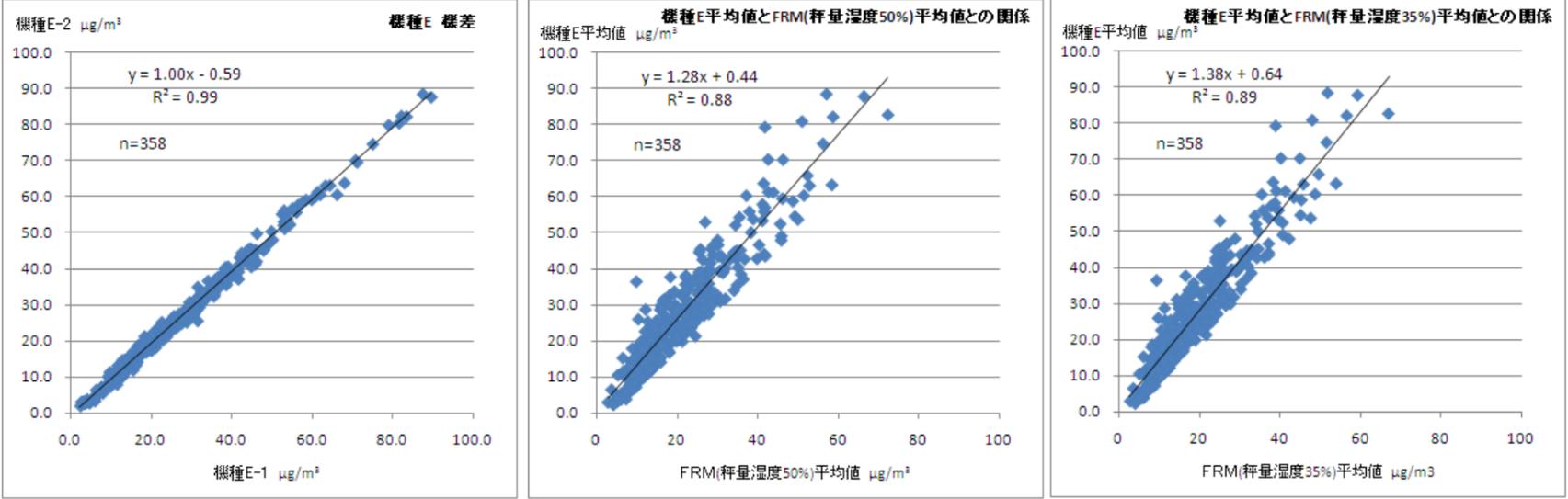


図 3-16 機種 E 結果

機種F \*8月1日より9月4日の間は一台不調のため除いた。

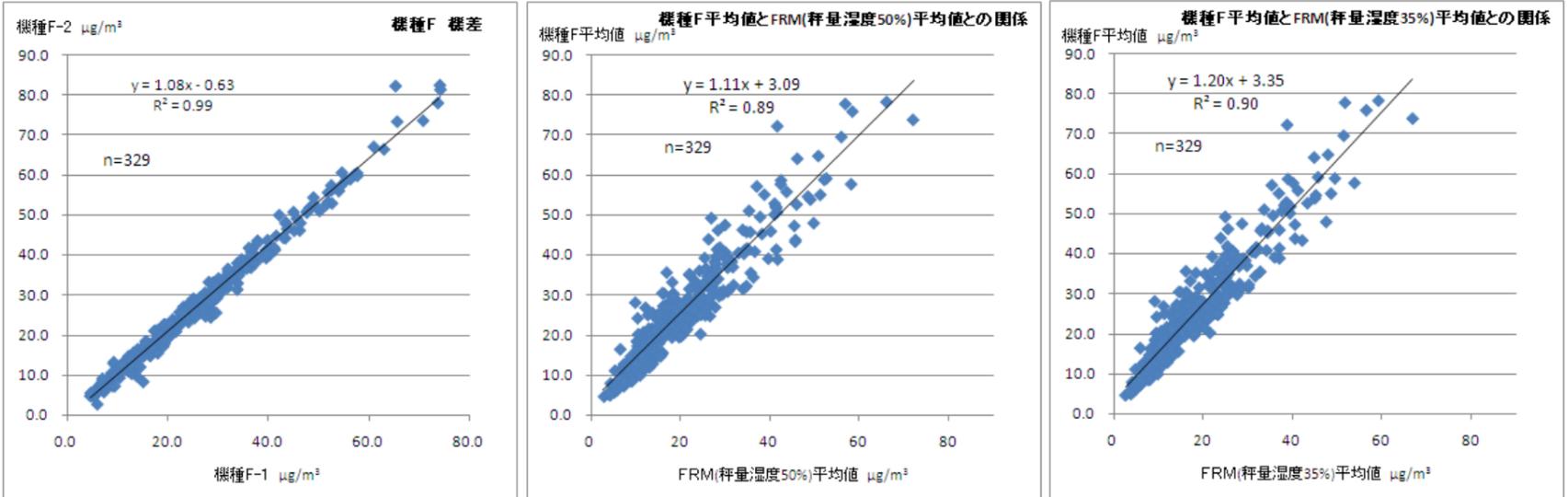


図 3-17 機種 F 結果

機種G(光散乱) \*7/1~7/12の間は除湿ヒーターがOFFになっていたため、これを除いた。

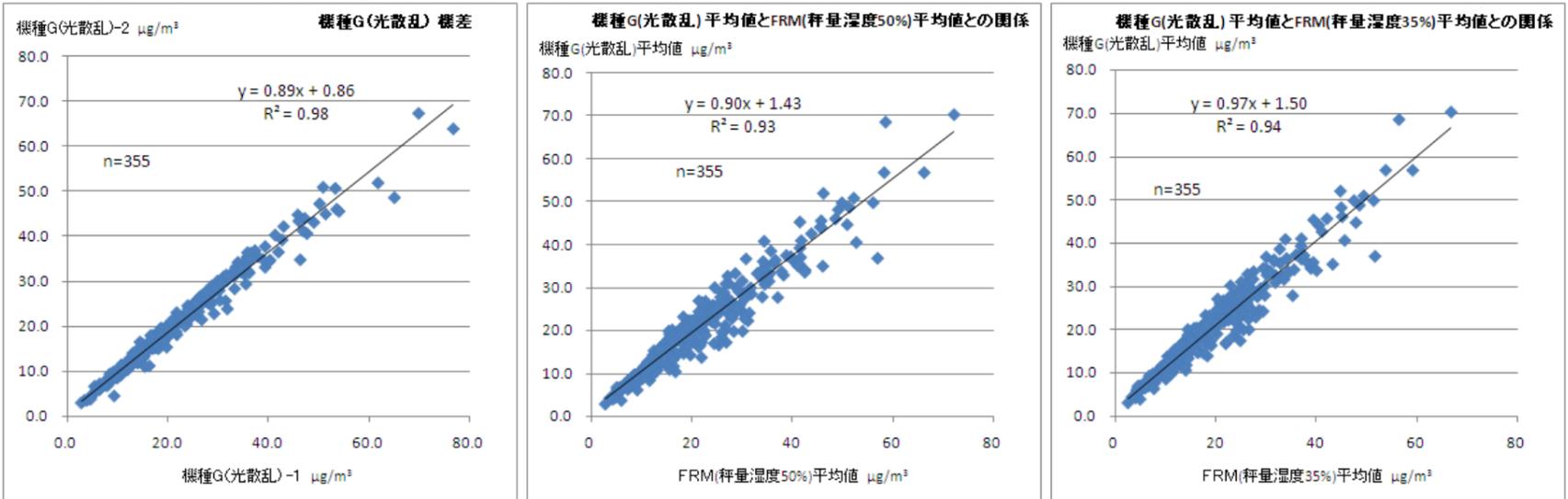


図 3-18 機種 G (光散乱値) 結果

機種G(β線) \*7/1~7/12の間は除湿ヒーターがOFFになっていたため、これを除いた。

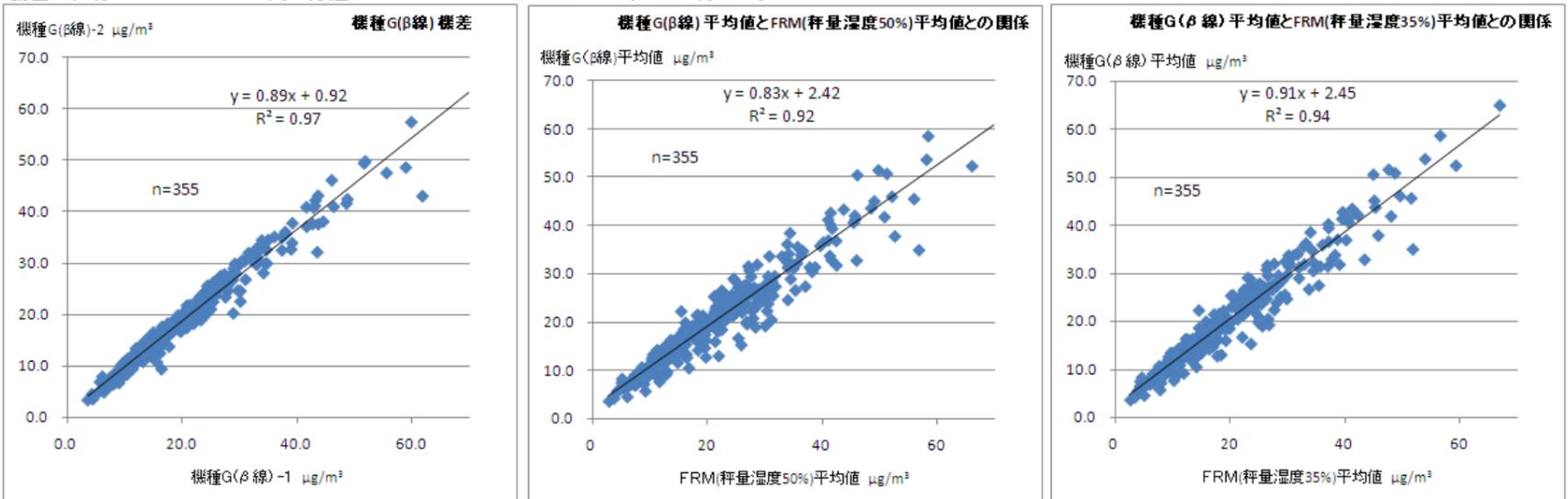
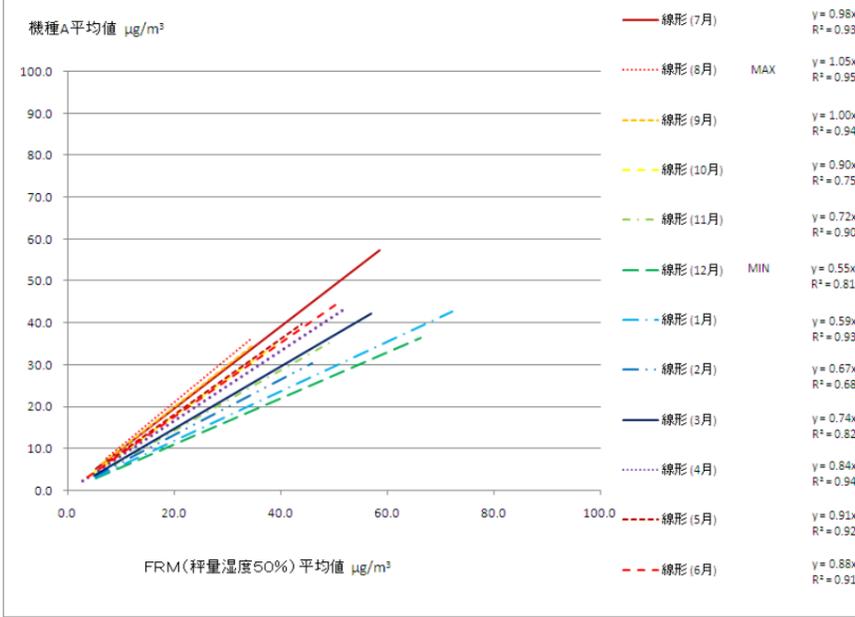


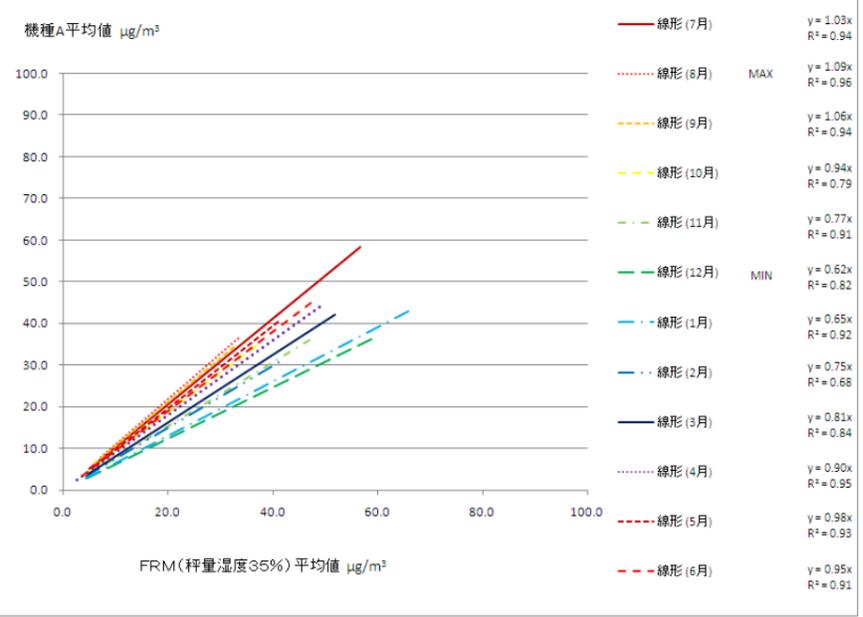
図 3-19 機種 G (β線吸収値) 結果

\*1月最終週は定期点検期間として除く

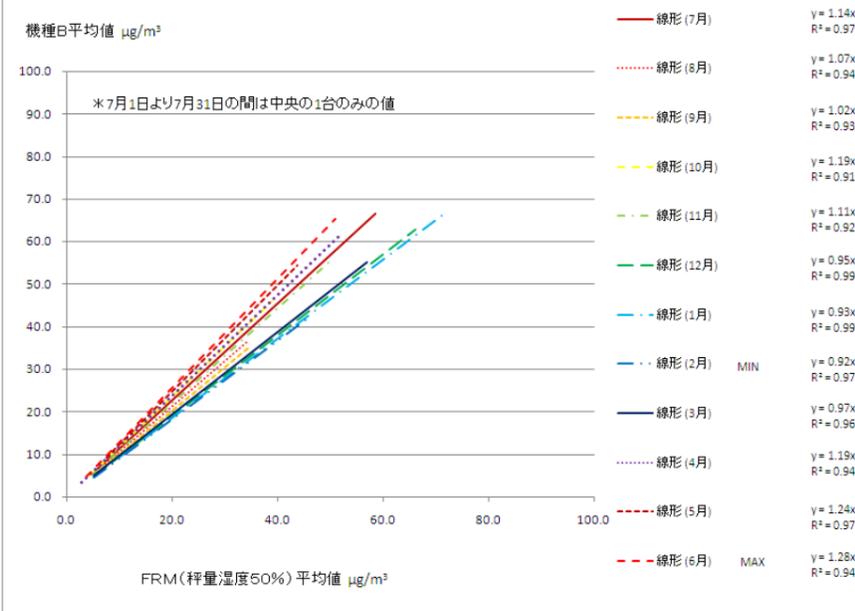
FRM(秤量湿度50%) 平均値 - 機種A平均値



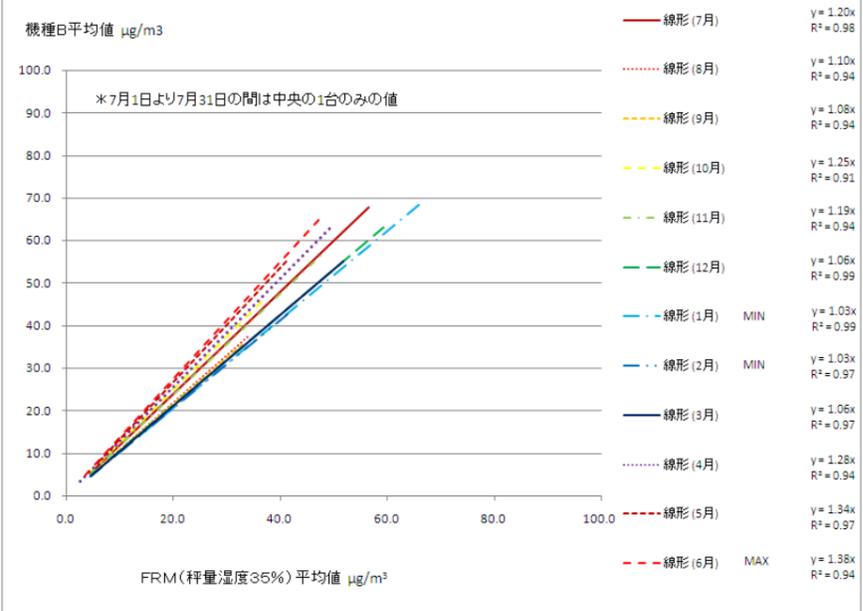
FRM(秤量湿度35%) 平均値 - 機種A平均値



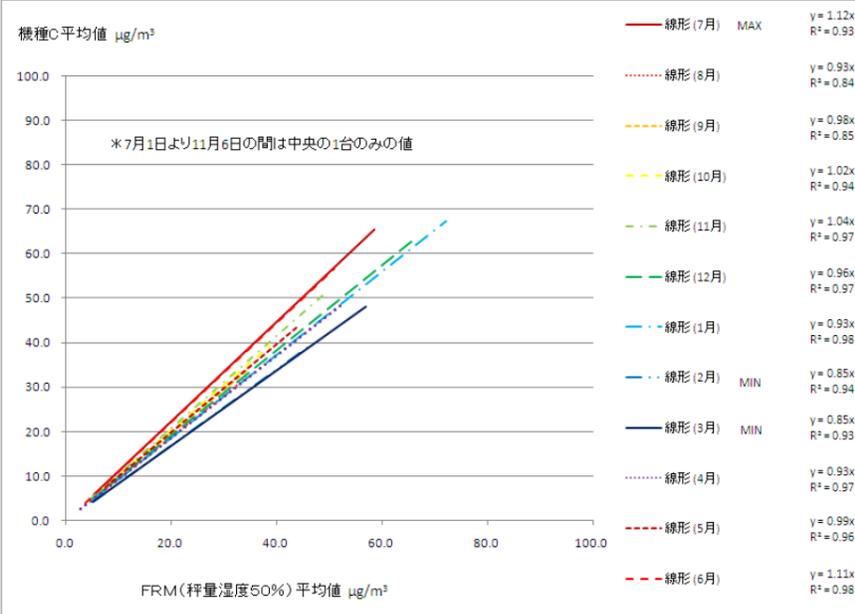
FRM(秤量湿度50%) 平均値 - 機種B平均値



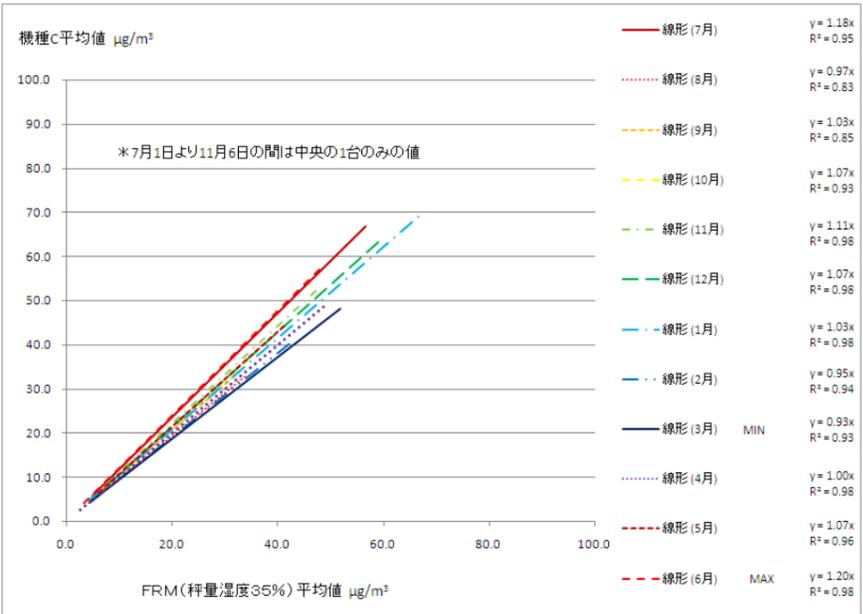
FRM(秤量湿度35%) 平均値 - 機種B平均値



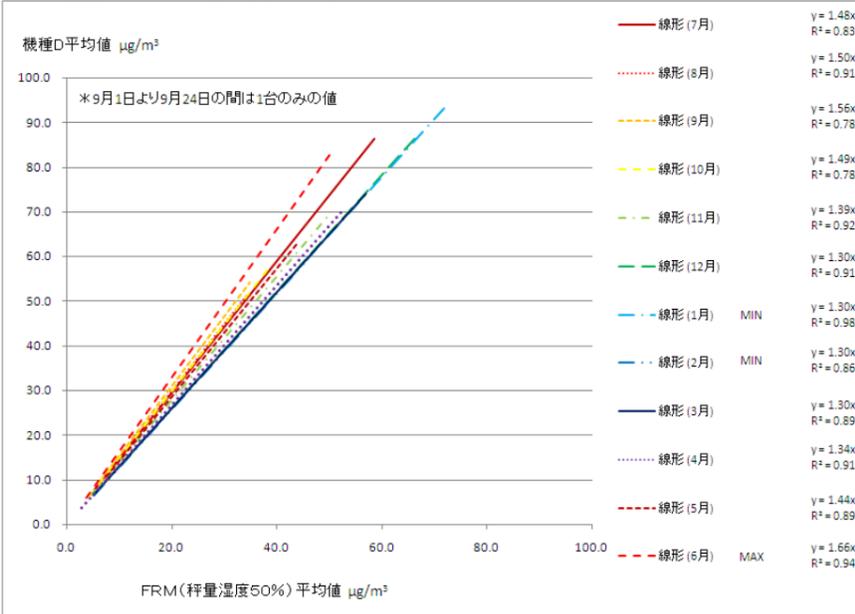
FRM(秤量湿度50%) 平均値 - 機種C平均値



FRM(秤量湿度35%) 平均値 - 機種C平均値



FRM(秤量湿度50%) 平均値 - 機種D平均値



FRM(秤量湿度35%) 平均値 - 機種D平均値

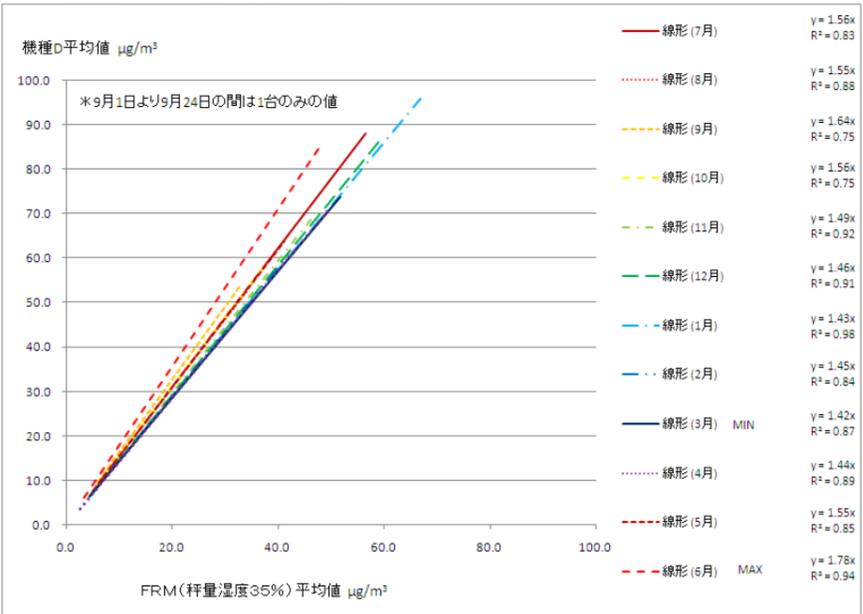


図 3-20 月別結果①