

微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 環境基準設定後10年のまとめ

－日本環境衛生センタークロニクル－

A look back at the 10 years since the establishment of the air quality standard
for fine particulate matter (PM_{2.5})
－ Chronicle of PM_{2.5} measurement methods with JESC －

高橋 克行*

TAKAHASHI Katsuyuki

【要約】微小粒子状物質は環境基準が設定される以前から調査研究が行われており、筆者は20年以上にわたり観測に携わってきた。本稿では2009年の環境基準設定の前後に微小粒子状物質の観測に関連した出来事を振り返るとともに、今後必要な観測についても述べる。PM_{2.5}の環境基準が設定されることに伴い、その測定・分析方法の確立が必要となり、日本環境衛生センターは自動測定機の等価性評価や測定マニュアルの作成を行うことでPM_{2.5}観測に貢献してきた。この10年の間に国内のモニタリング体制は強化され、観測地点は増加しPM_{2.5}の実態把握が進んでいる。また環境基準の達成率も向上している。さらに大気環境の改善にむけた対策を効果的に行うためにも、測定精度の向上と一元的に管理する機関の設立が望まれる。

キーワード：自動測定機，等価性評価，成分測定マニュアル，1時間値，発生源測定

1. はじめに

わが国で微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の環境基準が設定されたのは2009年のことで、すでに10年の歳月が流れた。今でこそPM_{2.5}という言葉は市民の間にも浸透しているが、環境基準が設定されるまでは、大気環境を調査・研究している者の専門用語であった。それが後述するように中国のPM_{2.5}問題に端を発する「騒動」のおかげで広く世間に認知され、新語流行語大賞のトップ10にも選ばれたのである(ちなみに2013年は非常に豊作で、「今でしょ!」、「じぇじぇじぇ!」、「お・も・て・な・し」、「倍返し」が大賞に選ばれている)。

当然のことながらPM_{2.5}、すなわち大気中に浮かぶ粒のうち2.5 μmよりも小さい粒ははるか昔から存在していた。山火事でもPM_{2.5}が発生することを考えれば、太古の昔から存在するといっても過言ではない。

したがって調査研究は環境基準の設定の前にも行われており、筆者はいまから約15年前の1994年に東京都心のビル屋上でアンダーセンサンプラを使った微小粒子状物質(当時はPM_{2.1})の観測をする

機会を得た。図1には1997年から2003年におけるPM_{2.1}とその成分濃度の年平均値の推移を示す(高橋ら，2008¹⁾)。経年的に低下傾向を示した元素状炭素(EC)と塩化物イオン(Cl⁻)はそれぞれディーゼル自動車の運行規制及びダイオキシン対策による廃棄物焼却炉規制により排出量が低下し、その

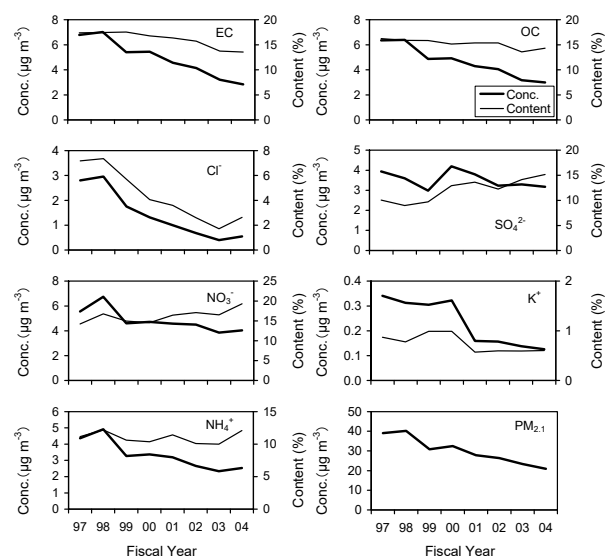


図1 東京都心のビル屋上で観測した微小粒子状物質 (PM_{2.1}) の質量濃度と成分濃度の1997年から2003年における年平均値の推移(高橋ら，2008)

* 環境事業第二部 Environmental Sciences Department

効果でPM_{2.1}が低下したと考えられる。これは定点でのPM_{2.5}の成分組成モニタリングが重要であることを示す先行事例である。その後、観測技術は進歩し、質量濃度の連続測定だけではなく、現在ではPM_{2.5}を構成する成分の連続測定も行われている。本稿ではこれまでの観測にまつわる出来事を振り返りつつ、今後の大気環境にとってあるべき観測について述べてみたい。

2. 環境基準設定前

筆者が微小粒子状物質の観測を始めたころは、PM_{2.5}を測定する装置はなく、アンダーセンサンプラによるPM_{2.1}（粒子の大きさが2.1 μm以下を対象としていた）観測が主流であった。また、PM_{2.5}質量濃度の連続測定機もTEOM（Tapered Element Oscillating Microbalance: 振動素子式マイクロ天秤, Thermo Scientific社）など海外のメーカーの機種がほとんどであった。その後、2001年に国立環境研究所でPM_{2.5}・DEPプロジェクトが開始され、測定法の検討も開始された（国立環境研究所, 2006²）。図2は標準測定法（FRM）と自動測定機（TEOM、ベータ線吸収法（BAM）-1～4及びハイブリッド式）の関係を示したものである。多くの自動測定機がFRMに比べて高めの値となる傾向を示すのに対して、実験対象の装置の中で唯一除湿機能を装着していたハイブリッド式の装置はFRMとの一致性が良好である。除湿機能が自動測定機に求められる基本的条件として明記されたのは、この実験の3年後の2009年である。また、1990年代におきた大

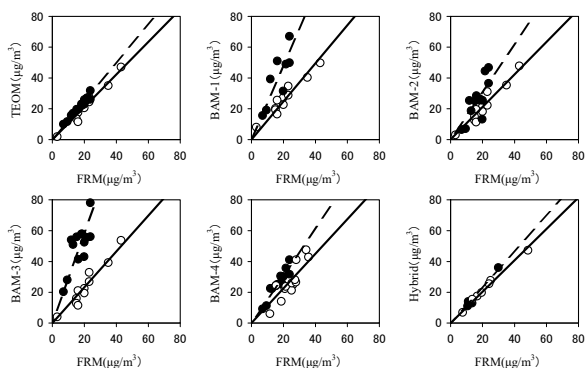


図2 微小粒子状物質の標準測定法（FRM，横軸）と各種自動測定機（縦軸）の測定値の関係（国立環境研究所，2006）

気汚染裁判の和解条項に、国がPM_{2.5}のモニタリングを開始することが盛り込まれた。つまり、このころすでにPM_{2.5}の関心が高まっていたといえる。

3. 環境基準設定後

PM_{2.5}の標準測定法はろ過捕集法（フィルタによる測定法）とすることが、環境省の測定法専門委員会により定められ、自動測定機はそれと等価であることが求められた。等価性を評価する方法として品質管理による手法が確立され、標準測定法と自動測定機で同時に並行してPM_{2.5}を測定して試験することとなった。

筆者は等価性評価の手法の検討にかかわったので、ここで概要を述べておく。異なる2種類の装置を使って同時に測定したとき、その測定値が一致しているかどうかを調べるには、両者の相関を調べる方法がよく用いられる。このとき傾きが1で切片が0、相関係数になるべく1に近い方がよい。（図3（左）のように $y = x$ の直線となる。）米国でもこの手法を使って等価性評価を行っている。しかしわが国では品質管理の手法を採用した。まず図3（左）の $y = x$ の直線の周りに、標準測定法と自動測定機の誤差を加味した管理限界線を引く。管理限界線の詳細については環境省「抜取検査法に基づく評価方法の詳細について³」を参照されたい。次に標準測定法と自動測定機の測定値をプロットする。このプロットが図3（中）のようにほとんど管理限界線に入っていれば合格、図3（右）のように多くが外れていれば不合格とするものである。この外れたプロットの数の許容範囲がわかりづらいが、自宅用にミカンを一箱買ってきたときのことに例えて説明する。箱の中のミカンがすべて傷んでいないことが消費者にとっては望ましいが、生産者にとってはやや厳しめの条件となる。だからと言って傷んだミカンが入っていてもいいことを許容すると、消費者にとって不利益になる。このバランスを考えて、傷んだミカンが何個以内ならその箱のミカンが消費者が受け入れるかということ、数学的に決めるのが品質管理の考え方である。

自動測定機の等価性評価試験は2009年から行われ、現在では5社9機種が標準測定法と等価性を有すると認定されている。この装置が全国の常時監視測定局で運用されており、2011年の全国の測定地点は一般局が105地点、自排局が51地点であった。また年平均濃度は一般局が15.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、自排局が16.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、長期基準及び短期基準の両方を満たした環境基準達成率はそれぞれ27.6%と29.4%であった⁴。

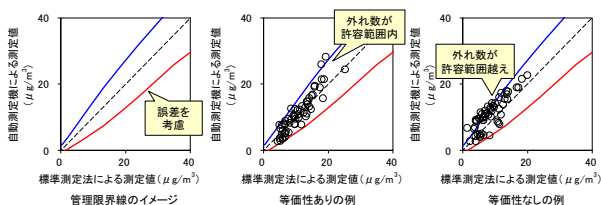


図3 微小粒子状物質の標準測定法と自動測定機の等価性評価の考え方

4. モニタリング体制の強化

2013年に中国北京市でPM_{2.5}高濃度が出現し、それがわが国へも移流していることが報道されると、一般社会にもPM_{2.5}が認知され、健康影響への不安が広がった。このことを受けて、国はPM_{2.5}の濃度が高くなったときに市民へ注意を喚起する判断の指針値(表1)を制定した⁵。それは1日の平均濃度が70 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えた場合である。市民の行動の目安のためにはその日の濃度の「予報」が必要となるため、判断には5時から7時の平均が85 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 超(午前中早めの時間帯での判断の場合)、5時から12時の平均が80 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 超(午後からの活動に備えた判

表1 PM_{2.5}高濃度時の注意喚起の暫定的な指針

レベル	暫定的な指針となる値 日平均値 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	行動の目安	注意喚起の判断に用いる値※3	
			午前中早めの時間帯での判断	午後からの活動に備えた判断
			5時～7時 1時間値 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	5時～12時 1時間値 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
II	70 超	不要不急の外出や屋外での長時間の激しい運動をできるだけ減らす。(高感受性者※2においては、体調に応じて、より慎重に行動することが望まれる。)	85 超	80 超
I (環境基準)	70 以下 35 以下 ※1	特に行動を制約する必要はないが、高感受性者では健康への影響がみられる可能性があるため、体調の変化に注意する。	85 以下	80 以下

※1 環境基準は環境基本法第16条第1項に基づく人の健康を保護する上で維持されることが望ましい基準。PM_{2.5}に係る環境基準の短期基準は日平均値35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、日平均値の年間98パーセンタイル値で評価。

※2 高感受性者は、呼吸器系や循環器系疾患のある者、小児、高齢者等。

※3 暫定的な指針となる値である日平均値を一日の早めの時間帯に判断するための値。

断)が用いられている。しかし、これが後述する「1時間値問題」に波及することとなる。

環境省は観測体制を強化するために全国の測定局数を増加させることとし、その目標を1,300地点とした。そのため測定地点は急速に増加し、2014年には一般局が672地点、自排局が198地点となった⁶。

5. 1時間値の評価

前節で述べた通り、注意喚起の判断のため1時間値の重要性が高まることになった。また、機種によりマイナスの1時間値の出現頻度や、ばらつきが異なることが2013年の大気環境学会等で指摘されるようになった⁷。ところで、もともと1時間値は2009年の環境基準設定時には参考値とすることが明示されている。というのも1時間値は標準測定法と自動測定機の等価性が評価できないためである。そのため、3節で述べた等価性評価試験では日平均値を対象としており、1時間値は詳細な解析を行わなかった。しかし、注意喚起は市民の健康影響を低減するための行動の指針である。その判断は慎重に精度良く行う必要があることから、必然的に1時間値の精度も求められることになった。

PM_{2.5}測定値の正確性を検証するのが難しいのは、目盛り調節用の標準がないことである。例えば天秤であれば、100gの分銅を乗せたときに、表示が100gになるように調節することができる。大気汚染の測定機でもNOx計であれば濃度がわかっているNOガスを導入して、測定機の指示がそのとおりになることを確認・調整できる。しかしPM_{2.5}はガスのようにボンベに既知濃度の空気を詰めておくことができない。そのため等価性評価は標準測定法との並行試験によって日平均値を検証したが、1時間値を評価するには標準測定法のフィルタに1時間で捕集されたPM_{2.5}はあまりに少なすぎる。

では、1時間値の評価をどのようにすればよいだろうか? そのひとつの方法として1時間値の誤差要因を排除した装置との比較評価試験が考えられる。PM_{2.5}の自動測定機は標準測定法と測定値を一

表2 市販のPM_{2.5}自動測定機の評価結果(環境省(2019)を基に作成)

機種名	PM-712 (紀本電子工業製)	FPM-377C (東亜ディーケーケー製)	FH62C14 (Thermo Fisher製)	SHARP 5030 (Thermo Fisher製)
測定原理	β線吸収法(線源: ¹⁴ C, 強度;10 MBq以下)	β線吸収法(線源: ¹⁴ C, 強度;3.7 MBq以下)	β線吸収法(線源: ¹⁴ C, 強度;3.7 MBq以下)	β線吸収法(線源: ¹⁴ C, 強度;3.7 MBq以下)と光散乱のハイブリッド
除湿機構	温度湿度監視による測定値のソフトウェアによる補正(スマートカルク)	加熱方式、周囲湿度に応じ捕集部温度を制御(上限45°C)	加熱方式、ヒータの温度を45°Cに設定して試料大気ガスを常に加熱する	加熱方式、捕集部の相対湿度を一定(40%)に維持するように加熱する
フィルタ材質と送り時間	PTFE、1時間毎	PTFE、1時間毎	ガラス繊維、1日毎	ガラス繊維、1日毎
冬季	15~35 µg/m ³ 付近のばらつき	最大で23 %	最大で28 %	最大で66 %
	NIES-PM25に対する偏り	外気湿度が高く、濃度が高いほどNIES-PM25より濃度が低くなるが、その影響は小さい	外気湿度が高く、濃度が高いほどNIES-PM25より濃度が低くなるがその影響は小さい	外気湿度が高く、濃度が高いほどNIES-PM25より濃度が低くなる
	イオン成分の分析結果からの知見	イオン成分濃度は、NIES-PM25と同程度であった	NO ₃ ⁻ やNH ₄ ⁺ は期間全体を通してNIES-PM25より濃度が低く、加熱による損失がみられた	Cl ⁻ 、NO ₃ ⁻ 及びNH ₄ ⁺ は外気湿度が高いほどNIES-PM25より濃度が低く、加熱による損失がみられた
夏季	15~35 µg/m ³ 付近のばらつき	最大で13 %	最大で13 %	最大で42 %
	NIES-PM25に対する偏り	外気湿度が高く、低濃度のときNIES-PM25より濃度が低くなるが、その影響は小さい	外気湿度によらず、NIES-PM25より濃度が高くなるがその影響は小さい	外気湿度によらず、NIES-PM25より濃度が高くなる
	イオン成分の分析結果からの知見	イオン成分濃度は、NIES-PM25より若干低かった	イオン成分の合計はNIES-PM25と同程度であった	テープフィルタへのHNO ₃ の吸着や、粗大粒子の混入がみられ、イオン成分の合計はNIES-PM25より高かった
運用上の注意点	海塩粒子の影響が大きい場合には補正が不足し、質量濃度が過大評価となる	—	注意喚起の判断に使用する際には、近隣の測定局におけるPM _{2.5} の測定値を考慮したほうがよい	—

致させるために除湿装置を備えている。多くの機種はヒーターにより加熱して試料空気の湿度をコントロールしている。しかし標準測定法の測定条件は実験室で管理するので、両者は必ずしも一致しないため測定値の誤差となる可能性がある。そこで、国立環境研究所が開発した加熱によらない除湿方式の自動測定機⁸との比較試験を2017年から2018年にかけて行った。さらに自動測定機に捕集されたPM_{2.5}の成分の一部を化学分析することにより、機種ごとの特徴を評価した。その結果、夏季の高湿度時期にはヒーターの除湿不足が起こっていることがわかった。さらに化学分析の結果からは、冬季にPM_{2.5}成分の一部がヒーターの加熱により損失していることがわかった⁹。この結果は環境省から自治体向けの事務連絡として発出された(表1¹⁰)。自動測定機のデータにはこのような特性があることを理解したうえで状況を判断すべきであり、そのためには近隣の測定値と平均化するなど誤差を低減する工夫が求められる。

6. 成分測定の必要性

PM_{2.5}対策を効果的に推進するためには、その地

域におけるPM_{2.5}の主要な発生源寄与を精度よく推定する必要がある。また、観測値を使った健康影響調査やシミュレーションモデルの精緻化のためにも、観測精度の向上が求められる。そのため、国では地方自治体にPM_{2.5}の成分測定を大気汚染防止法に基づく常時監視として課している。2011年には成分分析ガイドラインにより、測定地点、測定項目、測定期間の考え方が示された。

PM_{2.5}の成分はイオン成分、炭素成分、無機元素のほか、有機物等があり多岐にわたる。NOやNO₂の窒素酸化物、二酸化硫黄などのほかの大気汚染物質のようにひとつに決まらない。またPM_{2.5}を構成する成分はそれぞれに発生源の特徴を表しているため、多くの成分を分析する必要がある。例えば幹線道路の近くでは自動車の走行に伴う成分が多く含まれ、工業地帯では重油や石炭に含まれる微量元素が検出される。そのため、それぞれの物質に応じた分析手法が必要となり、イオン成分はイオンクロマトグラフ法、無機元素はICP-MS法などが必要となる。

これらの分析法は、同じ分析法だからと言っても、異なる分析機関が同じ検体を分析したときに同じ測定値が得られるとは限らない。機器の設定

条件や分析の処理手順により分析結果は影響を受ける。そのため、統一的な手法による観測を行うことを目的に2012年に成分測定マニュアル¹¹が作成され、順次改訂が行われている。その手法による成分分析地点数は、2018年には一般環境が130地点、沿道環境が33地点、バックグラウンド環境が16地点となった¹²。さらに精度管理のために2017年に目標検出下限値が設定され、2019年には分析値を管理する際の注意事項をまとめた「精度管理解説」が作成された。また2017年には成分自動測定機による観測も全国の10地点で開始され、PM_{2.5}成分の時空間分布を把握する強力なツールとなっている¹³。

7. 発生源調査の現状

このように成分分析データが蓄積される中、レセプターモデルによる発生源寄与割合の推計も広く行われるようになった。先に述べたように発生源寄与割合の推計はPM_{2.5}対策を効果的に推進するために重要である。その手法でよく用いられるのは発生源(例えば煙突の煙)の成分組成データ(発生源プロファイルという)と観測値との組み合わせで推計するCMB(Chemical Mass Balance)法と、観測値のみを用いるPMF(Positive Matrix Factorization)法の2つがある。現在多くの研究では、PMF法が用いられるが、計算された結果と発生源の関係解釈するには、発生源の成分組成の情報を必要とすることから、発生源調査が重要であることは間違いない。発生源の成分組成の調査は1980年代に盛んに行われていたが、その後は報告数が減少し、発生源プロファイルの更新が求められていた。2008年に東京都環境局が発生源調査を行い、さらに2011年に排ガス中のPM_{2.5}の測定法としてバーチャルインパクトがJIS Z 7152に制定されると、地方自治体の間にも固定発生源の成分測定が広まってきた。また凝縮性ダストにも関心が集まっている。凝縮性ダストとは高温の排ガス中では気体であった成分が、煙突から排出された直後に冷却されることで固体となる粒子のことであ

る。その主成分である有機物は、これまで詳細に把握されていなかった。加えて、凝縮して生成した粒子は大気中で再び揮発して気体となり、二次生成有機粒子の前駆体ともなる。そこで2015年から2017年にかけて国立環境研究所では燃焼発生源の凝縮性ダストの測定法を確立¹⁴するとともに、二次生成有機粒子の生成モデルの情報として重要となる揮発性分布の導出の研究を行った。この研究には日本環境衛生センターも参加し、フィルタを使った汎用的な測定手法を確立した。

しかし現在までに行われた凝縮性ダストの測定は一部の業種や施設などに限られており、凝縮性ダストの排出実態を把握するためのデータの蓄積は十分とはいえない。またレセプターモデルによる発生源推定の精度を向上させるには発生源の成分組成の調査研究も引き続き進めていく必要がある。

8. 今後のPM_{2.5}観測のありかた

PM_{2.5}の環境基準が設定されて10年が経過した現在では、全国の観測網も充実してきており、2018年度の質量濃度測定地点は1,050地点となった。PM_{2.5}の年平均値は一般局が11.2 µg/m³、自排局が12.0 µg/m³で、環境基準達成率はそれぞれ93.5%と93.1%である。ただし年平均値はWHOの指針値である10 µg/m³を超過しているため、さらなる改善が必要である。PM_{2.5}観測に求められることとして、今後は発生源対策を意識して、全体の観測体制を議論していく必要がある。また、海外では低価格測定機による測定も行われるようになってきており、わが国でも測定精度と適用範囲を評価した上で、測定手法の一つとして普及が進むことが期待される。

観測手法の確立や開発、観測精度の向上、観測データの解析・評価等が行われてきたが、今後の課題を列記する。データの管理に関してはPM_{2.5}の総合的な解析に必要な成分組成データのほかに、基本的な大気汚染物質のデータや揮発性有機化合物の連続測定値等のデータを系統的にまとめる必要

があるだろう。測定の品質管理、品質保証の面では体系的な精度管理体制の構築が必要なこと、観測技術においては継続的な技術開発やマニュアルの見直しに加えて教育訓練が望まれる。これらは互いに密接に関係しているので、一元的に管理する機関を設立するのもひとつの案である。このことにより現状の課題を効果的に解決していくことが可能になるであろう。

本稿は第60回大気環境学会年会講演要旨集に掲載された「PM_{2.5}観測クロニクル」に加筆修正を加えたものである。

Summary

Fine particulate matter has been studied before the establishment of air quality standards, and I have been involved in such observations for more than 20 years. This paper reviewed the events related to the observation of fine particulate matter before and after air quality standards were introduced in 2009, and suggested the required future observations. Once the environmental standard for PM_{2.5} was established, the development of measurement and analysis methods became necessary. The Japan Environmental Sanitation Center (JESC) has contributed to PM_{2.5} observations by evaluating the equivalency of continuous measuring instruments and developing methods for analyzing the chemical composition of PM_{2.5}. During the past ten years, the domestic monitoring network has been strengthened and the number of monitoring stations has increased. The actual situation of PM_{2.5} is now understood, and the achievement rate of air quality standards has improved. Furthermore, to improve the atmospheric environment, improvement of the measurement accuracy of the existing methods and establishment of a centralized management organization is required.

引用文献

- 1 高橋ら(2008): 東京都心の微小粒子と成分濃度の長期(1994-2004)変動, 大気環境学会誌, 43, pp. 315-322
- 2 国立環境研究所(2006): 大気中微小粒子状物質(PM_{2.5})・ディーゼル排気粒子(DEP)等の大気中粒子状物質の動態解明と影響評価プロジェクト(終了報告), p26
- 3 環境省, 抜取検査法に基づく評価方法の詳細について, http://www.env.go.jp/air/osen/pm/parallelexam/results_b/detail.pdf (2020. 8. 10 閲覧)
- 4 環境省, 平成 23 年度大気汚染の状況, http://www.env.go.jp/air/osen/jokyo_h23/rep07.pdf (2020. 5. 16 閲覧)
- 5 環境省, 微小粒子状物質(PM_{2.5})に関する情報, 注意喚起のための暫定的な指針, <http://www.env.go.jp/air/osen/pm/info.html#GUIDELINE> (2020. 5. 16 閲覧)
- 6 環境省, 平成 24 年度大気汚染の状況, http://www.env.go.jp/air/osen/jokyo_h26/rep07_h26.pdf (2020. 5. 16 閲覧)
- 7 板野ら(2013): PM_{2.5}自動測定機による1時間値の測定精度評価の試み, 第54回大気環境学会年会講演要旨集, p499, 新潟市
- 8 伏見ら(2016): PM_{2.5}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, p355, 札幌市
- 9 柴崎ら(2019): PM_{2.5}自動測定機の測定値に除湿機構及び成分組成が与える影響, 第60回大気環境学会年会講演要旨集, P-27, 府中市
- 10 環境省(2019): 微小粒子状物質(PM_{2.5})質量自動測定機の1時間値の測定精度について(追加検証結果), <http://www.env.go.jp/air/%20air/osen/PM2.5%E%BC%89%20EF%BC%BB%20PDF%20180KB%EF%BC%BD.pdf> (2020. 5. 16 閲覧)
- 11 環境省: 大気中微小粒子状物質(PM_{2.5})成分測定マニュアル, <http://www.env.go.jp/air/osen/pm/ca/manual.html> (2020. 5. 16 閲覧)
- 12 環境省: 平成 30 年度 大気汚染物質に係る常時監視測定結果, http://www.env.go.jp/air/osen/math30taikiosejokyo_full.pdf (2020. 5. 16 閲覧)
- 13 環境省: 微小粒子状物質(PM_{2.5})成分自動測定結果, http://www.env.go.jp/air/%20osen/pm_resultmonitoring/post_25.html (2020. 5. 16 閲覧)
- 14 環境研究総合推進費, 【5-1506】 燃焼発生源における希釈法による凝縮性一次粒子揮発特性の評価法の確立(H27~H29) 研究代表者 藤谷雄二