

## 光散乱法による大気中粒子状物質の測定

神浦俊一、船坂邦弘

## Measurement of Particle Matter by Grimm Light Scattering Dust Monitor

Toshikazu KAMIURA and Kunihiro FUNASAKA

## Abstract

Measurements of PM1/PM2.5/PM10 were performed in the ambient monitoring station at Hirao Elementary School, Osaka City. Results showed that average concentrations of PM1, PM2.5, and PM10 in the periods of 25 August and 25 October, 2009 were, respectively, 12.4, 14.7, and 21.9  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . Results showed that the average PM1/PM2.5 ratio was 0.82, with the range of 0.54–0.95. On days when high concentrations of PM2.5 were observed, the ratio became higher and the concentration of PM1 and PM2.5 showed similar behavior. The concentration of PM10 increased rapidly because of construction work taking place in downstairs rooms of the station.

**Key words:** Grimm light scattering dust monitor, PM1/PM2.5/PM10, PM1/PM2.5 ratio

## I 緒言

粒子状物質はその発生源や構成する成分により微小粒子と粗大粒子とに分かれるが、粒径  $2.5\mu\text{m}$  以下の微小粒子 (PM2.5) は肺の奥深くまで到達できることから浮遊粒子状物質 (SPM) より健康に対する影響が大きいことが明らかとなってきた[1]。そこで環境省は平成21年9月に新たにPM2.5の環境基準(24時間平均値  $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、年平均値  $15\mu\text{g}/\text{m}^3$ )を設定するとともに、その実態を把握するために全国的なモニタリングが実施されようとしている。

PM2.5の標準測定法 (FRM) はテフロンフィルター捕集による質量測定法であるが、SPMと同様、時間変動をリアルタイムに見ることが出来る自動測定機が必要なことからその開発と性能試験が現在行われており、近くFRMと同等の性能を有する等価法としていくつかの自動測定機が認証される予定になっている。

PM2.5は硫酸塩、硝酸塩、有機性炭素、元素状炭素など様々な成分からなり、水分、硝酸塩、有機性エアロゾルなどの半揮発性物質の存在が自動測定機によるPM2.5の測定に影響を与えることは良く知られている[1]。また、粒子結合水を除去するために加熱するタイプの

装置は半揮発性粒子の損失から低値を示すことが分かっている。したがって、これらの半揮発性物質の影響を受けないPM2.5自動測定機が待ち望まれているところである。

最近、水分などの影響を受けないよう改良されたFDMS TEOM (filter dynamic measurement system tapered element oscillating microbalance) と光散乱式のGrimm 180モニターによるPM2.5およびPM10の平行測定がなされ、良い一致が見られたと報告されている[2]。この光散乱式のGrimm 180モニターはPM10、PM2.5とともにPM1も測定可能であり、同時に粒径ごとの粒子数も測定できる自動測定機である。

今回、大阪市内の平尾小学校において2009年8月の下旬から10月下旬の限られた期間であるが、本光散乱式ダストモニターによるPM1/PM2.5/PM10の測定を実施したので報告する。

## II 方法

平尾小学校の屋上においてGrimm 180ダストモニターにより測定した。測定開始から最初の14日間のみ、同じ場所にGrimm 107(全天候ケースGrimm 165と組み

合わせて使用)を設置し、平行測定をおこなった。両装置ともサンプリング間隔は10分間に設定し、PM1、PM2.5、PM10、気温、湿度及び大気圧を同時測定した。窒素酸化物濃度については平尾小学校局のモニタリングデータを使用した。

### Ⅲ 結果

#### 1) PM濃度の経日変化

Fig.1に測定期間中のPM1/PM2.5/PM10濃度の経日変化を示す。この間のPM1、PM2.5及びPM10平均(範囲)濃度はそれぞれ12.4(2.0~31.4)、14.7(3.0~33.7)及び21.9(4.4~43.9)  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。PM10とPM2.5及びPM2.5とPM1の相関係数はそれぞれ0.86、0.99と高く、PM10、PM2.5及びPM1濃度は同様の変動を示した。9月2日のデータに代表されるように、一部、PM10が相対的に高い日は、屋上にある測定局の下に位置する1階、2階、3階トイレの改修工事に伴い、壁や床の剥離による比較的粗い粒子の発生が原因である。

#### 2) PM2.5/PM10 及び PM1/PM2.5 比

日平均PM2.5/PM10濃度比はトイレの改修工事の影響が現れた9月2日の0.33から10月24日の0.96まで変動した。一方PM1/PM2.5比の範囲は0.54~0.95であった。期間中の平均値はPM2.5はPM10の67%を占め、PM1/PM2.5は0.82であり、およそPM2.5の8割以上がPM1に存在していることが明らかとなった。

PM2.5濃度が35未満であるが、 $30\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えた日は10月13日、10月14日と10月24日の3日間であった。これら3日間のPM1と平尾測定局のNO<sub>2</sub>及びNOの1時間濃度の関係をFig.2、Fig.3に示す。これらの日においてはPM1濃度(PM2.5濃度も同様)はNOではなく、主に大気中で反応して生成するNO<sub>2</sub>と良い相関が見られた。

#### 3) 粒子径への発生源の影響

Fig.1でも示されているように、測定場所近傍において壁などの剥離作業が行われていると機械的な破壊によって比較的大きな粒子が発生する。その結果、PM10はPM2.5やPM1とは異なった挙動を取る。Grimm ダストモニターは $0.25\mu\text{m}$ ~ $32\mu\text{m}$ までの粒子数を測定することが可能であり、この各粒子径範囲の粒子数を考察することにより、発生源の推定が可能となる場合もある。

たとえば、9月2日の13時、15時、16時の各粒子径の数濃度と9月2日の平均数濃度の比をプロットするとFig.4に示すように13時では $2.5\mu\text{m}$ 以上の粒子の数濃度が他の時間に比較して増大しているとともに、 $30\mu\text{m}$ まで

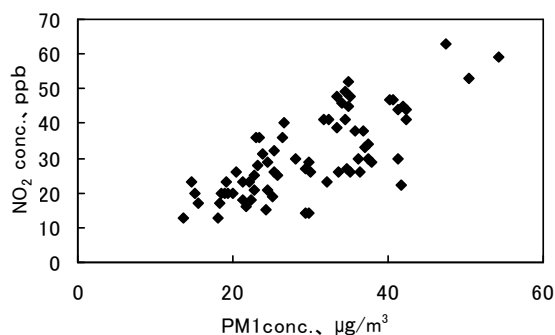


Figure 2. Relationship of PM1 mass and NO<sub>2</sub>

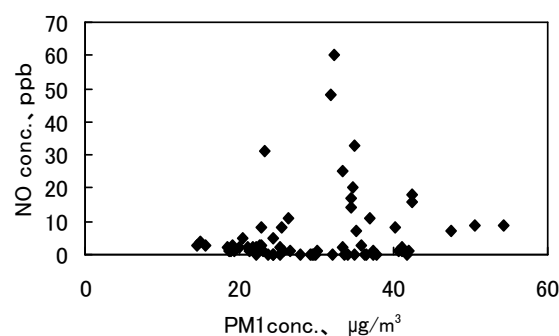


Figure 3. Relationship of PM1 mass and NO

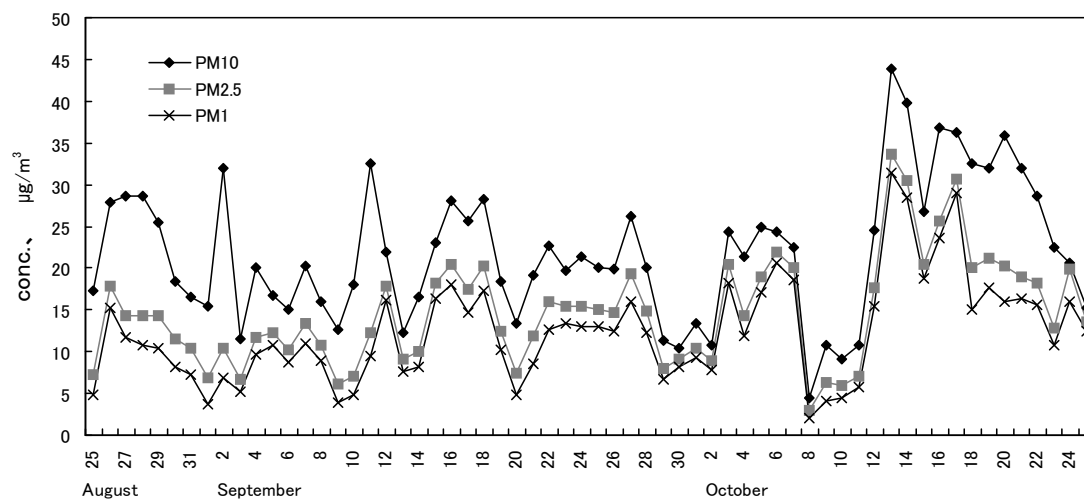


Figure 1. Diurnal variation in the concentrations of PM10, PM2.5, and PM1.

粒子径が大きくなるほど、数濃度比が上昇した。

このことは10分毎のPM1/PM2.5/PM10濃度と合わせて見れば、より明瞭となる。

#### 4) Grimm 180ダストモニターと(Grimm 107+Grimm 165)の比較

Grimm 180ダストモニターとGrimm 107ダストモニターによる並行同時測定結果を表1に示す。両装置の異なる点はGrimm 180ダストモニターが採取入りにナフィオンフィルターを設置し、水分除去をしているのに対し、Grimm 107の方は、湿度の上昇に伴い、シリカゲルを通した清浄な空気測定大気の湿度を低下させることにより、水分の影響を除去している。したがって、Table 1に示すようにほぼ同等の結果を示した。

### IV 考察

粒子状物質は硫酸塩、地殻物質、元素状炭素などの非揮発性物質と硝酸アンモニウム、いくつかの低分子量を持つ有機化合物、水などの半揮発性物質(SVM)とからなっている。PM2.5のかんりの部分を半揮発性物質が占めているので、サンプリング中に粒子からの揮損が生じるため、PM2.5を正確に測定することは難しい[2-3]。現在最も一般的に使用されている粒子状物質の自動測定機はTEOM (tapered element oscillating microbalance)であるが、この装置は捕集部分でフィルターを加熱して水分影響を除去しているため、半揮発性物質の揮散の影響を受けることはよく知られている[1]。

今回測定に使用したGrimm社製ダストモニターは直接、粒径区分ごとの散乱光量から粒子状物質の個数を測定し、粒子が球形であると仮定し、得られた容積分布からPM10、PM2.5などの質量濃度を計算しているが[2, 4, 5]、フィルターを使用しないで直接測定しているため半揮発性物質の揮散がなく、またナフィオンドライ

Table 1. Measurement results of PM10/PM2.5/PM1 by Grimm 107+165 and Grimm 180 dust monitors

Date	Grimm 107+165			Grimm 180		
	PM10	PM2.5	PM1	PM10	PM2.5	PM1
8/25	17.5	7.1	4.5	17.3	7.3	4.9
8/26	26.7	16.1	13.3	27.6	17.5	14.9
8/27	26.7	13.5	10.7	28.8	14.5	11.9
8/28	26.9	13.9	10.0	28.9	14.5	11.0
8/29	24.2	14.2	9.8	25.1	14.2	10.3
8/30	18.4	11.6	7.6	18.6	11.7	8.2
8/31	16.8	10.1	6.5	16.7	10.5	7.2
9/1	15.7	7.2	3.6	15.3	6.9	3.7
9/2	29.4	10.0	6.2	32.1	10.6	6.9
9/3	11.8	6.4	4.8	11.5	6.5	5.2
9/4	20.0	11.8	9.2	19.9	11.7	9.5
9/5	17.0	12.4	10.5	16.9	12.3	10.8
9/6	14.6	9.9	8.1	15.0	10.2	8.7
9/7	20.3	12.9	10.2	20.3	13.3	11.0

ヤーやシリカゲルの使用により水分の影響も受けないことから非揮発性成分と半揮発性成分を含む全PM2.5濃度の測定が可能である。

測定期間中のPM2.5濃度は3.0~33.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で平均では14.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。この値は2009年の春季に測定された沖縄辺戸岬における13.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ [6]よりも若干高く、平成20年度に各季節2週間ずつ、東京都内17地点で実施された全データの平均値21.04 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ [7]より低値であった。またGrimm107ダストモニターを用いた兵庫県における2009年の2月10日から27日までのPM2.5日平均濃度は5.6~52.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった[8]。

埼玉県北部におけるPM1とPM2.5の4年間にわたる平行観測の結果による[9]とPM1及びPM2.5はほぼ同じ濃度変動を示し、両者には高い相関が見られた。我々の調査においてもFig.1に示したようにPM1とPM2.5は同様の挙動を示し、PM2.5の8割以上がPM1に存在していた。PM1がほとんどの粒子が人為発生源から生じ

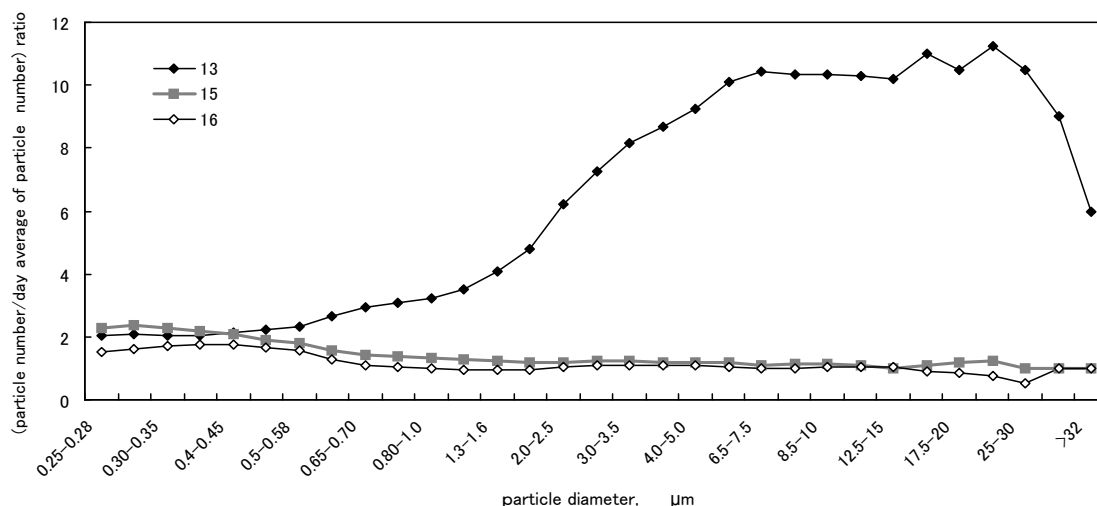


Figure 4. Change of particle distribution due to the construction work

るのに対し、PM2.5の一部については機械的摩損から生じ、これらの多くが自然由来であることから、規制活動という観点からは今後、PM1の測定が重要ではないかと思われる[10]。PM1濃度については現在のところあまりデータがないが、奥田ら[11]による東京都目黒の測定では $16.1 \pm 9.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (2004年1月15日～2月15日)という値が報告されている。首都圏においては近年ディーゼル対策が強力に進められてきたことから、この数値はかなり減少しているものと思われる。

PM1やPM2.5と窒素酸化物の関係 (Fig.3)、粒子径の情報 (Fig.4)、PM10濃度に加えて測定局における風向や風速などのデータから発生源の推定が可能となる場合がある。測定期間中においてトイレの改修工事に伴い比較的粗い粒子が発生したことにより、PM10濃度は上昇し、このことは10分ごとの濃度変動を見れば、よりはっきりと分かる。

さきに述べたように光散乱方式のGrimmダストモニターは屈折率や粒子の形、密度及び粒子径のようなエアロゾルパラメーターにより影響を受ける[5]ことから、この影響を除去するために、いくつかの都市環境においてGrimmと標準測定法 (FRM) による結果を比較して“都市環境”因子を確立し、粒子状物質濃度を計算している。今回の調査においても限られた数であるが、Grimmダストモニターとテフロンろ紙を用いた24時間秤量分析法 (20°C、50%) によるPM2.5平行測定を実施し、比較的良好的な結果を得ている。(Y=0.91X、R<sup>2</sup>=0.82、Y: Grimm法、X: フィルター法、n=13)

GrimmダストモニターはFDMS TEOMと共に水分や半揮発性成分の影響を受けにくい自動測定機であり、ろ紙を使用せず、全くメンテナンスフリーで、3ヶ月ごと、あるいは1年ごとに設置場所を変えていくといった移動局としても使用可能なことから、今後、1年を通した標準測定法による検証が望まれる。

## V まとめ

平成21年8月下旬から10月下旬の約2ヶ月間、GrimmダストモニターによりPM1/PM2.5/PM10の測定を実施した。

期間中のPM1、PM2.5およびPM10の平均濃度はそれぞれ12.4、14.7、21.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。PM1/PM2.5比は0.82であり、およそPM2.5の8割以上がPM1に存在していることが明らかとなった。

期間中、屋上にある測定局の下にあるトイレの改修工事に伴い、PM10濃度の上昇があり、粒径毎の数濃度と時間数濃度/日平均数濃度比から、より鮮明に発生源の影響を確認することができた。

**謝辞** Grimm社製ダストモニターの試用の機会をいただき、測定にご協力をいただいたエヌエス環境株式会社の伊地知 祥氏、グリム社のHisakazu Ken Fukuda氏、

そして大阪市環境局環境保全部環境管理担当の皆様 に感謝いたします。

## 参考文献

- 1) 微小粒子状物質健康影響評価検討会報告書 (平成20年4月), 環境省
- 2) Grimm H, Eatough D J. Aerosol Measurement: The use of optical light scattering for the determination of particulate size distribution, and particulate mass, including the semi-volatile fraction. J. Air & Waste Manage. Assoc. 2009; 59: 101-107.
- 3) Hansen J C, Woolwine III W R, Bates B L, Clark J M, Kuprov R Y, Mukherjee P, et al. Semicontinuous PM2.5 and PM10 mass and composition measurements in Lindon, Utah, during winter 2007. J. Air & Waste Manage. Assoc. 2010; 60: 346-355.
- 4) Meyer M B, Patashnick H, Ambs J L. Ongoing development of a continuous reference standard particulate matter mass monitor for ambient air. In Proceedings from the symposium on Air Quality Measurement Methods and Technology: A&WMA; Pittsburgh, PA. 2002.; Paper No.53
- 5) Cheng Yu-H, Lin Yi-L. Measurement of particle mass concentrations and size distributions in an underground station. Aerosol and Air quality Research 2010; 10: 22-29.
- 6) 長谷川就一, 高見昭憲, 大原利眞. 春季の沖縄辺戸岬におけるPM10およびPM2.5の炭素成分の特徴. 第50回大気環境学会年会講演要旨集, 平成21年(2009). 222頁.
- 7) 三好猛雄, 秋山 薫, 上野広行, 横田久司. 東京都におけるPM2.5大気環境調査. 第50回大気環境学会年会講演要旨集, 平成21年(2009). 395頁.
- 8) 中坪良平, 吉村 陽, 平木隆年. 2009年2月に兵庫県で測定したPM2.5濃度の特徴. 第50回大気環境学会年会講演要旨集, 平成21年(2009). 222頁
- 9) 米持真一, 梅沢夏実. 埼玉県北部におけるサブミクロン粒子 (PM1) とPM2.5の4年間の平行観測. 第50回大気環境学会年会講演要旨集, 平成21年(2009). 401頁.
- 10) Yin J, Harrison R M. Pragmatic mass closure study for PM1.0, PM2.5 and PM10 at roadside, urban background and rural sites. Atmos Environ 2008; 42: 980-988.
- 11) 奥田知明, 勝野正之, 田中 茂, 近藤 豊, 竹川暢之, 駒崎雄一. マルチノズルカスケードインパクタを用いて捕集された都市域PM2.5及びPM1中微量金属濃度の測定と発生源の推定. エアロゾル研究 2007; 22: 126-134.