Environment Research and Technology Development Fund

環境研究総合推進費 終了研究成果報告書

高感度分析技術に基づく空港周辺における超微小粒子状物質の動態解明 (5-1709) 平成29年度~令和元年度

Research on Airborne Ultrafine Particulate Matters around an Airport Based on Advanced Analytical Techniques

> <研究代表機関> 首都大学東京

<研究分担機関> 国立研究開発法人国立環境研究所 国立研究開発法人産業技術総合研究所 株式会社環境計画研究所

〈研究協力機関〉 イサラ研究所 宇宙航空研究開発機構 成田国際空港株式会社 成田国際空港振興協会 関西エアポート神戸株式会社 千葉県 成田市 富里市 神戸市

令和2年5月

I. 成果の概要	· · · · · · 1
1. はじめに (研究背景等)	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発の方法	
4. 結果及び考察	
5. 本研究により得られた主な成果	
6. 研究成果の主な発表状況	
7. 研究者略歴	
Ⅱ.成果の詳細	
Ⅱ-1 超微小粒子状物質の数濃度分布とその変動要因の解明	••••• 1 6
(首都大学東京)	
要旨	
1. はじめに	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発方法	
4. 結果及び考察	
5. 本研究により得られた成果	
6. 国際共同研究等の状況	
7. 研究成果の発表状況	
8. 引用文献	
Ⅱ-2 超微小粒子状物質の化学分析とモデリング手法開発	••••• 36
(国立研究開発法人国立環境研究所)	
要旨	
1. はじめに	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発方法	
4. 結果及び考察	
5. 本研究により得られた成果	
6. 国際共同研究等の状況	
7. 研究成果の発表状況	
8. 引用文献	
Ⅱ-3 国際標準に準拠した粒子濃度計測の精度評価	••••• 53
(国立研究開発法人産業技術総合研究所)	
要旨	
1. はじめに	
2. 研究開発目的	

3. 研究開発方法

- 4. 結果及び考察
- 5. 本研究により得られた成果
- 6. 国際共同研究等の状況
- 7. 研究成果の発表状況
- 8. 引用文献

II-4 空港起源の超微小粒子状物質の影響評価 ・・・・・・ 73 (株式会社環境計画研究所) 要旨

- 1. はじめに
- 2. 研究開発目的
- 3. 研究開発方法
- 4. 結果及び考察
- 5. 本研究により得られた成果
- 6. 国際共同研究等の状況
- 7. 研究成果の発表状況
- 8. 引用文献
- Ⅲ. 英文Abstract

•••• 95

I. 成果の概要

課題名 5-1709 高感度分析技術に基づく空港周辺における超微小粒子状物質の動態解明 課題代表者名 竹川 暢之 (首都大学東京 理学研究科 教授)

研究実施期間 平成29~令和元年度

研究経費(累計額) 86,456千円

(平成29年度:31,460千円、平成30年度:29,776千円、令和元年度:25,220千円) 本研究のキーワード 空港周辺環境、航空機排気、超微小粒子状物質、高感度分析、数値シミュレー ション

研究体制

- (1) 超微小粒子状物質の数濃度分布とその変動要因の解明(首都大学東京)
- (2) 超微小粒子状物質の化学分析とモデリング手法開発(国立研究開発法人国立環境研究所)
- (3) 国際標準に準拠した粒子濃度計測の精度評価(国立研究開発法人産業技術総合研究所)
- (4) 空港起源の超微小粒子状物質の影響評価(株式会社環境計画研究所)

研究協力機関

イサラ研究所

宇宙航空研究開発機構

成田国際空港株式会社

成田国際空港振興協会

関西エアポート神戸株式会社

千葉県

成田市

富里市

神戸市

1. はじめに(研究背景等)

微小粒子状物質による大気汚染は、様々な発生源や気象条件の複合プロセスにより生じる。これまで 様々な対策が講じられ、我が国の大気環境は以前と比べて大きく改善してきた。一方、船舶や航空機な ど国内外を往来する移動発生源の影響については対策や実態把握が遅れている。

本研究開発の背景を図1.0.1に示す。国際民間航空機関(ICA0) 主導のもと、2016年に新たに航空機 排出規制が設けられ、2020年以降の製造エンジンより適用される。このため、規制前の空港周辺におけ る微小粒子状物質への関心が国際的に高まっている。特に、航空機排気に多く含まれる粒径100 nm以下 の超微小粒子状物質(UFP)は気管支や肺への沈着率が高く、健康影響が懸念されていることから、そ の動態解明が喫緊の課題となっている。したがって、実大気におけるUFP濃度を正確に把握し、その変動 要因に関する客観的な知見を蓄積することが重要である。これまでの排出規制は質量濃度ベースが先行 してきたが、大気動態解明ではUFP質量濃度に加えて数濃度と化学組成の情報が鍵となる。



図1.0.1 本研究開発の背景。

2. 研究開発目的

本研究では、これまで研究代表者および分担者らが開発してきた高感度分析技術に基づき、空港内に おけるUFPの数濃度、質量濃度、化学組成を解明することを主目的とする。さらに、移動観測により空港 周辺の濃度分布を測定し、移流拡散モデルと組み合わせて環境影響を評価する。

成田国際空港を調査対象とし、サブテーマ(1)~(4)の有機的な連携により以下の目標を掲げる。目 標達成のために冬季・夏季の定点観測、冬季の移動観測、およびモデル解析を実施する。定点観測では UFP数濃度・質量濃度・化学組成、CO₂、NO_x、PM_{2.5}(簡易型)を測定し、移動観測ではUFP数濃度、CO₂、PM_{2.5} を測定する。

目標① 空港敷地内の夏季と冬季におけるUFP数濃度、質量濃度、化学組成の平均値を明らかにする。
→ サブテーマ(1)~(4)

<u>目標②</u> 飛行機の通過に伴う短時間の変化 (single plume) から、実環境におけるUFP数濃度・質量濃度 $\mathcal{E}(O_2 \circ \mathcal{F})$ と $O_2 \circ \mathcal{F}$ がら、 + サブテーマ(1)、(4)

目標③ 定点観測・移動観測データおよび改良型移流拡散モデルを用いて、空港周辺のUFP濃度・PM_{2.5}濃度に対する影響を評価する。→ サブテーマ(1)、(2)、(4)

目標④ 他の空港に対しても適用可能な効率的な調査方法を含めて、規制後の追跡調査の在り方を提案 する。→ サブテーマ(1)、(4)

3. 研究開発の方法

(1) 超微小粒子状物質の数濃度分布とその変動要因の解明

UFP数濃度の測定・解析および影響評価を主に担当する。超微小凝縮粒子カウンタ(UCPC: 2.5 nm以上)と凝縮粒子カウンタ(CPC: 10 nm以上)を組み合わせた独自の計測装置を用いることで、粒径2.5-10 nmの粒子数濃度を1秒で高速測定できる。10 nm以上の粒径分布は走査型電気移動度分級装置(SMPS)を用いる。CO2濃度は非分散型赤外吸収法により時間分解能1秒で測定する。UCPC、CPC、SMPSのインレットに加熱管(150、250、350℃)を設置して定時で切り替えることで、不揮発性粒子の測定も行う。350℃加熱のCPCデータは、ICAO規制の不揮発性粒子の測定に対応する。これにより、航空機排ガスのUFP特性を包括的に捉えることが可能となる(図3.1.2)。

- 目標①に対する方法:サブテーマ(3)と連携し、実大気観測で用いるUCPC-CPCの校正を行い精度検証するとともに、ICAO規制に対応した350℃加熱の検出性能評価を行う。また、サブテーマ(2)、(4)と連携して成田国際空港敷地内で定点観測を実施する(当初計画では2018年1月と8月だったが、成田国際空港との調整により2月と7-8月に実施)。UFP数濃度の平均値・変動幅などの特徴を明らかにする。また、サブテーマ(3)と連携しUCPC-CPCやSMPSの校正を行い、装置劣化等の有無を評価する。さらに、サブテーマ(2)~(4)と連携し、空港敷地内の夏季と冬季におけるUFP数濃度の平均値・変動幅を明らかにするとともに、その不確実性についても評価する。
- <u>目標②に対する方法</u>: サブテーマ(4)と連携し、観測期間中のsingle plumeイベントを選び出してUFP 数濃度とCO2濃度の比(UFP/CO2排出比)を導出する。平均粒径分布を仮定して数濃度から質量濃度の 推定を行う。加熱分析から揮発成分の寄与を明らかにする。サブテーマ(4)と連携し、実環境におけ る夏季と冬季のUFP/CO2排出比を明らかにする。ICAOデータベースと比較して統計的にまとめる。
- 目標③に対する方法: サブテーマ(4)と連携し、2019年1月に成田空港周辺で移動観測を実施する。空港の風上・風下で車載型装置を用いたUFP数濃度の移動観測を実施する。移動観測により得られたUFP 数濃度とCO2濃度を整理しマッピングするとともに、相関や空間分布について解析する。
- 目標④に対する方法:サブテーマ(4)と連携し、研究期間全体で得られた知見を行政ニーズ、社会ニーズに合わせて整理・要約する。同様の研究を成田空港以外に適用する場合の効果的な調査方法や、2020年の新規制エンジン導入後の追跡調査の在り方について提言をまとめる。



図3.1.2 (Ⅱ-1から転用) 航空機排ガスのUFP特性を包括的に捉えるための大気サンプリングのセット アップ。サブテーマ(2)のNano-MOUDIについても示している。

(2) 超微小粒子状物質の化学分析とモデリング手法開発

UFPのサンプリング、およびその試料に対する質量濃度と化学組成(元素状炭素EC、有機炭素OC、有機 成分、元素成分)の分析を担当する。UFPのサンプリングには、粒径10 nm~10 μmの粒子を粒径別に捕集 可能な低圧多段分級インパクター(NanoMoudi II, MSP)を使用する(図3.2.1)。滑走路の風下でUFPを 捕集し、質量濃度と化学組成分析を行うことで、単一ではなく複数の航空機からの平均的な排出UFPの影 響を把握する。また、当初計画していた観測項目に加えて、リアルタイム粒径分布測定装置EEPS(TSI model 3090,粒径0.006-0.560 μm)を用いた数濃度粒径分布の高速測定(1秒)を実施した。

- 目標①に対する方法:サブテーマ(1)、(4)と連携し、2018年2月および7-8月に成田空港敷地内で定点 観測を実施する。サンプルは自動制御により昼夜別に捕集することで、離発着の有無による系統的な 違いを分けて解析することが可能になる。得られた試料について、秤量、EC/0C分析、有機成分分析、 元素分析を行う。空港敷地内の夏季と冬季におけるUFPの化学組成の特徴や起源(燃料、オイル等)に ついて解析する。夏季と冬季の有機組成の違いから、UFP成分の揮発の程度を明らかにする。
- 目標③に対する方法: サブテーマ(4)と連携し、移流拡散モデル(EDMS)においてUFP数濃度変化を再 現するための計算モジュールを考案する。特に粒径10 nm以下が高濃度で存在する場合には凝集によ る濃度変化が著しいと考えられるため、凝集の時定数を考慮したパラメタリゼーションを組み込む。 考案したモジュールの妥当性を実測により検証する。



図3.2.1(Ⅱ-2から転用)サンプリングから分析までのフロー。

(3) 国際標準に準拠した粒子濃度計測の精度評価

実大気観測で用いる装置(UCPC-CPC、SMPS)の校正を行うとともに、ICAO規定のエンジン排気ガス測 定法(AVL社装置VPR:加熱による揮発成分除去)の動作条件を模擬した校正実験を行う。このため、揮 発性粒子(PAO)と不揮発性粒子(塩化ナトリウムまたは煤)を用いる。UCPC-CPCの検出効率評価のた めの比較型試験・校正設備の模式図を図3.3.2に示す。

目標①に対する方法:サブテーマ(1)と連携し、UFP数濃度計測の校正設備の準備を行う。産総研所有の電気移動度分級器(DMA)カラムと高電圧源を使用し、シース流発生用部品と測定制御を新たに整備する。UCPC-CPC単体の校正を行い、精度を検証する。また、エンジン排気ガス測定法における揮発性粒子の除去効率を測定する。観測終了後にUCPC-CPCやSMPSの事後校正を行い、定点観測・移動観測に伴う装置劣化の有無を評価する。特に、機器内の汚染等によるバックグラウンド計数値の変化や、

流量計の経時変化について詳細に調べる。必要に応じて補正係数を提案するとともに、観測期間を通じた総合的な誤差評価を実施する。



図3.3.2 (Ⅱ-3から転用)比較型試験・校正設備。

(4) 空港起源の超微小粒子状物質の影響評価

成田空港敷地内・空港周辺の環境モニタリングデータの解析、観測に関わる調査および各種調整、移 流拡散モデル(当初計画ではEDMS、後にAEDTにバージョンアップ)を用いた影響評価などを行う。表 3.4.3にAEDTの特長を示す。さらに、実大気観測と航空機の対応関係を把握するために、空港内観測期間 中の航空機離発着データの収集、解析、排出量推計などを行う。

<u>目標①②に対する方法</u>: 観測に先立ち、成田空港内の測定データを収集し、季節別の気象条件や濃度分 布等を把握する。サブテーマ(1)、(2)と連携して調整、装置運用の補助、データ収集を行う。

目標③④に対する方法: サブテーマ(2)と連携し、EDMSにUFP数濃度変化を再現するための計算モジュールを組み込む。改良されたモデルに、飛行機の離発着や排出量データを入力して計算し、再現性の検証を行う。この結果に基づき、空港周辺環境への影響評価(行政ニーズに対応)、PM排出規制の妥当性の検証、航空需要の増加を踏まえた将来濃度の推定など多面的な検討を行う。

	項目	AEDT	EDMS
1	航空機エンジンの 排出係数(EDB)	ICAO Aircraft Engine Emissions Databank (EDB) , Issue 23c. 17 June 2017.	ICAO Aircraft Engine Emissions Databank (EDB) , Issue 19. 15 April 2013.
2	航空機の燃料消費 量・排出量モデル	データの有無、運行モードに応 じて最適なモデルを使用	全てBFFM2 (Boeing Fuel Flow Method 2)
3	自動車(道路、駐車 場)、建設関連	MOVES (Motor Vehicle Emission Simulator) / NONROAD 2008	 MOBILE6 ユーザーが排出係数、稼働時 間等を個別に入力して設定
4	大気拡散モデル	AERMOD/AERMET ⇒Ver 16216r/16216 (2016)	AERMOD/AERMET ⇒Ver 12345/12345 (2013)
5	計算領域	 ● 発生源近傍から全世界まで ● 10,000ft 以上の上空も計算 可能 	 ●発生源近傍 ●上空 3,000 ft まで
6	その他 (AEDTの主な追加機 能)	 騒音計算モデル追加 64bit 計算機対応 軍用機の計算が可能 トラジェクトリモデルによる 上空の排出量、濃度分布計算 濃度分布の作図機能 	

表3.4.3 (II-4から転用) AEDTの特長。

4. 結果及び考察

(1) 超微小粒子状物質の数濃度分布とその変動要因の解明

<u>目標①②に対する結果</u>

2018年2月および7~8月に、成田国際空港A滑走路近傍で集中観測を実施した(図4.1.2)。観測用に仮 設コンテナ2棟を設置し、UFP数濃度、化学成分(サブテーマ(2))、CO₂、NO_x、気象要素の観測を行った。 冬季と夏季では外気温が大きく異なるため、UFPの粒径分布等が異なることが予測されたが、サブテーマ (2)の有機成分分析結果にも見られた通り(P.9に後述)、数濃度の特徴(粒径分布やCO₂との相関)に 関して冬季と夏季で大きな差異は見られなかった。風向きは冬季の方がより好条件であったことから、 以下では主に冬季の結果について記述する。なお、観測結果の詳細はIIに記載し、本項では特に重要な 結果について述べる。



図4.1.2 (Ⅱ-1から転用)成田国際空港における集中観測。左図はGoogle Earthで作成した地図に、 文字・矢印を追記したものである(作成日2019年8月29日)。装置の写真は冬季の観測時の様子を表す。

図4.1.4に冬季観測で得られた結果を示す。航空機の運航時間帯(6:00-23:00)において、滑走路からの風向きの場合に航空機由来のスパイク状の濃度増加(plume)が顕著に観測された(図4.1.4左)。 ここで、UFP数濃度の絶対値は気象条件で変わるが、CO₂のバックグラウンド濃度からの増分で規格化す ると、その効果を補正することができる。この事例を含めて、同程度のCO₂濃度増分についてUFP数濃度 増分を比較すると、非加熱のUFP数濃度は加熱のそれに比べて5~10倍程度大きくなっていた。このこと から、UFP数濃度のほとんどが揮発性成分(煤や金属以外)であることが分かった。また、非加熱・加熱 いずれについても、UFP数濃度の半分程度以上が粒径10 nm以下にあることが明らかになった(図4.1.4 左; Takegawa et al., submitted)。

ここで、粒径10 nm以上の不揮発性粒子は煤や金属粒子から成り、ICA0規制で測定される項目に対応する。一方、粒径2.5 nm以上の全粒子は硫酸塩や有機物などの揮発性成分を含み、実環境で大気中に排出される粒子に対応する。粒径2.5 nm以上の全粒子数濃度、および粒径10 nm以上の不揮発性粒子数濃度のバックグラウンド濃度からの増分(Δ N)を計算し、CO₂のバックグラウンド濃度からの増分(Δ CO₂)との相関を調べたところ、両者の傾きには大きな差が見られた(図4.1.4右)。図4.1.4に示した以外の日についてもplume解析を行い、CO₂排出係数に基づいて粒子数排出係数(燃料1 kgあたりの粒子数)の推定を行った。中央値ベースでは、全粒子数排出係数は 1.1 × 10¹⁷ kg-fuel⁻¹、ICA0規制対応の不揮発性粒子数排出係数は1.8 × 10¹⁵ kg-fuel⁻¹となり、約60倍の差異があることが明らかになった。サブテーマ(2)の有機成分分析の結果から、揮発性成分として未燃のジェットエンジンオイルが重要であることが示されており、これらの結果はICA0によるエンジン排ガス規制効果の解釈や、実環境における粒子排出低減法の策定において重要な示唆を与えるものである。



図4.1.4 (Π - 1から転用) 2018年2月15日に観測された粒子数濃度とCO₂の事例解析。(左) 時系列変化 (上:非加熱、下:加熱)。赤色部分は粒径2.5-10 nmの数濃度、灰色部分は粒径10 nm以上の数濃度を表 し、積み上げにより粒径2.5 nm以上の粒子数濃度となる。左軸のスケールは上下で5倍異なる。(右) 粒 径2.5 nm以上の全粒子数濃度および粒径10 nm以上の不揮発性粒子数濃度のバックグラウンド濃度から の増分(Δ N) とCO₂のバックグラウンド濃度からの増分(Δ CO₂)の相関。

目標③に対する結果

2019年1月に成田国際空港周辺の観測点において車載型の装置を用いた移動観測を行った (図 4.1.11)。冬季は北風が卓越することを考慮して、空港の風上地点として久住体育館 (B滑走路北端から 4 km)、風下地点として富里の共同利用施設 (A滑走路南端から3 km)を選定した。空港敷地内観測の装 備を簡易化して、UCPC、CPC、CO₂、NO_x、気象要素の測定を行った。当初計画では風上で低濃度、風下で 高濃度が観測されることを予測していたが、実際には異なる結果が得られた。すなわち、風上および風 下のいずれにおいても、航空機の離発着が多い昼間の時間帯で、粒径10 nm以下の粒子数濃度の顕著な増 加が見られた。周囲の交通量は極めて少ないことから、この結果は航空機排ガスの影響が広範囲にわた っていることを示唆している。その定量的な解釈については、サブテーマ(4)の項で記述する。



図4.1.11 (Ⅱ-1から転用)成田国際空港周辺における移動観測の概要。左図はGoogle Earthにより作成した地図に、説明のため文字・矢印を追記したものである(作成日2020年4月30日)。

目標④に対する結果

本研究において、成田国際空港を拠点とした観測により多くの成果が得られた。一方で、今後ICA0規 制の効果を検証する上で、他の空港に対しても適用可能な効率的な調査方法を検討することが重要であ る。成田国際空港は離発着数が多く、科学的に有用なデータが得られる一方で、敷地が広大であること から、滑走路近傍に頻繁にアクセスすることは容易ではない。

本件について環境省およびPOと協議を行った結果、神戸空港が調査地点として適しているのではない かという助言を受けた。その理由として、神戸空港は海上空港であるために周囲に大きな発生源がない 点、および敷地境界と滑走路が近いためにアクセスが比較的容易である点が挙げられる。

2019年8月に、携帯型のUFP測定装置を用いて神戸空港の敷地境界付近で簡易観測を実施した。その結 果、離陸、着陸、アイドリング等の離着陸サイクル別のデータが得られることが分かった。したがって、 神戸空港(あるいは同等の規模の空港)で定期的に簡易調査を行うことは、将来の規制効果の効率的な 評価・検証方法として有用であることが示唆された。また、神戸空港での簡易観測の知見は、2020年度 からの新規課題(5-2004)の立案に生かされるなど、次の研究展開につながる成果となった。

(2) 超微小粒子状物質の化学分析とモデリング手法開発

目標①に対する結果

サブテーマ(1)の項で示した通り、成田国際空港で冬季・夏季に観測を実施した。低圧多段分級イン パクター (NanoMoudi-II、粒径10 nm~10µmを13段階に分級)を2台用いて、航空機の離発着のある昼 間(7:00~22:00)、および航空機の離発着のない夜間(0:00~6:00)の試料採取を行った。冬季では、 昼間試料は4日間または2日間連続を計3回、夜間試料は5日間連続を計1回採取した。夏季は昼間試料が計 2回、夜間試料が計2回であった。図3.2.1に示した通り、試料分析は加熱脱着GC/MS法やPIXE法などを用 いて行った。実大気試料に加えて、ジェット燃料およびジェットエンジンオイルの分析も行った。なお、 分析の詳細はⅡに記載し、本項では特に重要な結果について述べる。

図4.2.4に、冬季観測で得られた有機炭素(0C)、元素状炭素(EC)、硫黄(S)、その他元素の粒径別割 合を示す。昼間試料において、ECの占める割合は粒径57~290 nmで高く、最大で30%以上を占めた。対 照的に、UFPでは0Cの比率が大きく、昼間試料No.1の10~32 nmでは0Cの割合は60~67%であった。これ らの結果から、航空機排気UFPの主成分は平均的に見て0Cであることが示唆される。



図4.2.4 ($\Pi - 2$ から転用) 冬季観測における有機炭素 (OC)、元素状炭素 (EC)、硫黄 (S)、その他元素 (Other elements)の粒径別割合。

有機成分分析は粒子の起源や動態に関して有用な情報を与える。図4.2.6に、実大気の昼間および夜間 試料、ジェットエンジンオイル、ジェット燃料のマスクロマトグラム(m/z 85)を示す。ジェット燃料 のマスクロマトグラムからは*n*-アルカン由来の信号が検出された。一方、ジェットエンジンオイルでは、 脂肪酸エステル由来と考えられる強いピーク(保持時間約21~29分)が検出された。自動車に一般的に 使用される鉱物油系潤滑剤から検出される「ハンプ」(ベースラインの上昇)が検出されなかった点は大 変興味深い。昼間試料では、UFP粒径域(10~57 nm)においてジェットエンジンオイルに非常に良く似 たマスクロマトグラムが観測された。夜間試料ではこのような特徴は見られなかった。以上の結果は、 航空機排気UFPにおいて、エンジンオイルが重要な寄与を及ぼしていることを明確に表すものである。航 空機排ガスについて、UFPを含む粒径別組成の特徴を示した例は本研究が初めてである。



図4.2.6 (Ⅱ-2から転用) 冬季観測で採取された昼間試料(サンプルNo.1,2018年2月9~13日) と夜間 試料(サンプルNo.4、2018年2月22~26日)、ジェットエンジンオイル(Jet 0il II)、ジェット燃料(Jet A1)のマスクロマトグラム(m/z 85)の比較。

夏季の粒径別試料についても冬季と同様に組成分析を行った。特に注目している粒径32nm以下において、化学組成は冬季と類似していた。UFPの有機成分に関しては、冬季のマスクロマトグラムは夏季のものと良く類似していたが、保持時間24分以前のピークは最大で約50%だけ夏の方が小さかった。これは顕著な違いではないものの、揮発成分割合が外気温によって変わる可能性を示唆している。

有機成分分析に加えて、PIXE法による元素分析もまた、粒子起源に関して有用な情報を与える。図 4.2.10に冬季観測の結果を示す。昼間試料からは26元素、夜間試料からは25元素が検出・定量された。 主要元素は、Na、Mg、A1、Si、S、C1、K、Ca、Fe及びZnの10元素であり、このうちS、K、Ni、Si、Mg、 Ca、Feは微小粒径や粗大粒径だけでなく、UFP側でも濃度の増大が認められた。したがって、これらの元 素に対して航空機排ガスの寄与が示唆される。元素プロファイルをさらに詳しく解析することで、航空 機排気粒子の生成過程および低減方策に対して有用な知見が得られると期待される。

目標③に対する結果

粒子の諸過程を考慮したボックスモデル計算を行い、凝集の影響を粒径別に推定した。図4.2.11にシ ミュレーション結果を示す。UFPの主要部分であるエイトケンモード粒子の初期濃度が10⁶ cm⁻³以下の場 合には凝集による濃度減衰は限定的であることが分かった。ただし、揮発の効果は考慮していないこと に注意が必要である。この計算結果を踏まえて、サブテーマ(4)において空港周辺の拡散シミュレーシ ョンを行う際には、UFPの動態はPM_{2.5}と同様と仮定して計算することとした。



図4.2.10 (Ⅱ-2から転用) 冬季観測における主要元素の粒径別質量割合。各粒径において、PIXE分析 による元素定量値が粒子質量に占める割合を表す。



図4.2.11 (Ⅱ-2から転用) 大気中への放出後の時間経過に伴うCO(トレーサー)と粒子数濃度のシミ ュレーション結果。(a) 大気中濃度、(b) 粒子個数とCOの濃度比。

(3) 国際標準に準拠した粒子濃度計測の精度評価

目標①に対する結果

サブテーマ(1)で成田国際空港の大気観測に用いた装置に対して、産総研の設備を用いて試験・校正 を行った。さらに、当初予定していたUCPC-CPCおよびSMPSの他に、成田国際空港での観測に用いたEEPS の評価、JAXAとの共同研究によりエンジン排出ガス測定用粒子カウンタ(AVL社製Particle Counter Aviation、APC Aviation)を追加した。APC AviationはICAOの粒子排出規制で用いられる計測器であり、 SAE Aerospace Recommended Practice (ARP) 6320規格文書の仕様を満たすものである。不揮発性粒子 発生器には、SAE ARP 6320規定通り煤粒子発生器と加熱管を組み合わせたもの、揮発性粒子発生器には、 SAE規定通りテトラコンタン (C40H82)を使用したものを整備した。

まず、サブテーマ(1)のUCPCおよびCPCの粒径別検出効率の評価を行った。UCPCは粒径2.5 nm以上の粒子を、CPCは粒径10 nm以上の粒子を検出するための装置であり、校正では、UCPCは粒径5 nmにおいて検出効率が60%を上回ること、CPCは粒径10 nmにおいて検出効率が約50%であることを確認することを目標とした。校正の結果、いずれの装置も適切な感度を有することが確認できた。

次に、APC Aviationの評価を行った。この試験をサブテーマ(1)の加熱管の評価に優先して実施した 理由は、産総研での不揮発性粒子透過効率および揮発性粒子除去効率の試験が、SAE ARP 6320と整合す るものであることを確認するためである。揮発性粒子除去効率の試験では、SAE ARP 6320の規定に沿っ て粒径15 nmおよび30 nmのテトラコンタン粒子を発生させ、APC Aviationの揮発性粒子除去器 (volatile particle remover, VPR) に導入して揮発性粒子除去効率 (VRE) を算出した。得られたVRE は約99.99 %で、これはSAE ARP 6320での規定である99.9 %以上を満たしていた。不揮発性粒子透過効 率の試験では、SAE ARP 6320の規定に沿って粒径15 nm、30 nm、50 nm、100 nmの加熱した煤粒子をVPR に導入して透過効率 (Pen) を算出した。図4.3.2に評価結果を示す。SAE ARP 6320では、Penは上記の4 粒径に対してそれぞれ30%、55%、65%、70%と同等または上回ることと規定されているおり、図では水平 の水色の線で表してある。Penの規定を満たさない1ケースについては、AVL社の希釈のアルゴリズムの問 題であることが分かった。以上から、産総研における除去効率と透過効率の試験はSAE ARP 6320の試験 法に関する規定を満たしていると判断した。



図4.3.2 (Ⅱ-3から転用) APC Aviationに対するPen試験結果。水色の横線は、SAE ARP 6320で規定さ れたPenの下限値。エラーバーは繰り返しのばらつきに対する拡張不確かさ(包含係数2)を表す。

上記において妥当性が確認された産総研の試験法を用い、サブテーマ(1)のUCPC-CPC加熱管の透過効率・除去効率の試験をSAE ARP 6320に従い実施した。図4.3.3に結果を示す。透過効率は全ての粒径で規程値を超えていた。また、除去効率は粒径15 nmおよび30 nmのいずれも99.9%を上回った。これらから、首都大の加熱管はICA0エンジン排出ガス測定法に準拠したものであることを確認できた。



図4.3.3 (Ⅱ-3から転用) サブテーマ(1)の加熱管Penの試験結果。a)はUCPCを、b)はCPCを下流濃度 測定に用いた場合の結果を表す。×印はSAE ARP 6320規格の下限値を表す。

(4) 空港起源の超微小粒子状物質の影響評価

目標①②に対する結果

成田国際空港における気象や大気汚染の状況を把握するため、空港の管理会社が自主的に測定している大気汚染物質の常時監視データを中心に解析した。また、冬季および夏季観測期間における滑走路近傍の気象条件についても解析を行った。さらに、2012~2016年度(5年間)を対象として、空港内および

空港周辺の測定局における環境基準の達成状況を確認した。光化学オキシダント(0x)以外の物質(N0x、S02等)は概ね達成であった。0xについては広域発生源の影響が大きいと推測される。

観測期間中の航空機の運航状況を把握するため、空港管理会社より提供頂いた機種別・エアライン別・ 滑走路別の離着陸データ、ビデオカメラの録画データ、時刻表を用いて解析を実施した。これらの結果 は、サブテーマ(1)と(2)による大気観測結果の解釈において活用された。

目標③④に対する結果

前述の通り、当初計画では航空機専用モデルEDMSを用いる予定であったが、研究期間中にAEDTにバー ジョンアップされたため、本研究では後者を用いて解析を行った。AEDTは米国連邦航空局 (FAA) によ って開発されたモデルであり、航空機エンジンをはじめとした空港内の主要な発生源から排出される大 気汚染物質の排出量、および空港内外の濃度分布を計算することが可能である。本研究では、冬季観測 の条件に合わせて、NO_x、SO_x、PM等を計算した。サブテーマ(1)(実環境の排出比)とサブテーマ(2) (粒子拡散解析)の結果に基づき、PMにスケーリングすることで粒子数濃度(粒径10 nm)を計算した。 なお、スケーリング因子の根拠となる排出係数には大きな変動幅 (6倍程度) がある。これは測定精度 の問題ではなく現実の排出量のばらつきによるところが大きい。このため、実測の粒子数濃度との比較 は桁での整合性確認までとするのが妥当である。

図4.4.9に2018年冬季の空港敷地内観測、および2019年冬季の移動観測の条件に対応する粒子数濃度 のシミュレーション結果を示す。なお、ここで示す観測値・計算値はともに全粒子数濃度であるが、そ のほぼ全てがUFP粒径域にあるので、粒子数濃度とUFP数濃度はほぼ同義と考えてよい。滑走路近傍およ び久住・富里周辺の粒子数濃度は概ね実測に近い桁となっており、計算結果の妥当性が示された。空港 敷地内では、粒子数濃度は滑走路およびターミナルエリアで高くなっていた。平均的に見ると、粒子数 濃度が最も高くなるのはA滑走路東側のターミナルエリアであった。なお、計算では航空機以外の排出を ゼロとしているが、実際は粒子数濃度で10³~10⁴ cm⁻³のバックグラウンドがある。空港敷地内は定常的 な高濃度が見られる一方、空港周辺の粒子数濃度分布は気象データの精度に強く依存する結果となった。 ただし、空港周辺の濃度分布は単純な風上・風下の関係ではなく、航空機の運行ルート等を反映した分 布となっていた。この結果は、図4.1.11で示した移動観測結果の解釈に対して重要な示唆を与える。前 述の通り計算値には不確実性が大きく、観測期間以外の長期間平均値については比較データがないため、 より確実な知見を得るには今後継続的な検証が必要である。



図4.4.9(Ⅱ-4から転用)(左)2018年冬季の空港敷地内観測、および(右)2019年冬季の移動観測の 条件に対応する粒子数濃度のシミュレーション結果。局所的な(放射状の)濃度コントラストは気象デ ータの精度によるところが大きいと考えられる。

12

5. 本研究により得られた主な成果

(1)科学的意義

<u>航空機UFP排出特性</u>

- ・成田国際空港の滑走路近傍で観測を実施し、航空機由来のUFPの動態解明に資するデータを取得した。
 特に、UFP数濃度・粒径別化学組成が融合した包括的なデータセットは国際的に見ても例がなく、新規
 性の高い成果である。これらのデータを国立環境研究所のアーカイブに集約した。
- ・実環境における離陸時の全粒子数排出係数の半分以上が10 nm以下にあり、かつ規制対象となる10 nm 以上の不揮発性粒子に比べ中央値で60倍程度大きいことが明らかになった (Takegawa et al., submitted)。
- ・航空機UFPの揮発性成分として未燃のジェットエンジンオイルの重要性が初めて明らかになった (Fushimi et al., 2019)。また、航空機UFPの発生源解析において必須となる、燃料や潤滑油中の元素 プロファイルが初めて明らかになった (Saitoh et al., in press)。
- ・以上の成果は、航空機排出粒子の低減方法の策定において重要な知見を与えるものである。

航空機排気粒子の広域影響

・観測データで検証された数値モデル(AEDT)を用いて、成田国際空港周辺の航空機排気粒子の拡散シミ ュレーションを実施し、空港内外の粒子数濃度分布の特徴を明らかにした。

国際連携体制の構築

・推進費の成果を契機に、スイスの研究グループとの間でエンジン排ガス測定に関する共同研究体制を 構築した。また、研究代表者の竹川、サブテーマ(2)代表の伏見、研究協力者の齊藤が、SAE-E31(航 空機排ガス測定に関する委員会)への参画を実現した。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

環境省の「船舶・航空機排出大気汚染物質の影響把握に関する検討委員会」に、研究代表者の竹川と サブテーマ(2)代表の伏見が委員として出席してきた。当該検討委員会では、成田国際空港における大 気観測や空港周辺のシミュレーションなど、本推進費の研究成果が定期的に報告され、相互に情報・意 見交換が行われた。また、本推進費で得られた研究論文(Fushimi et al., 2019)が、当該委員会の文 献レビューでも取り上げられた。

<行政が活用することが見込まれる成果>

国際的な活動への貢献

本推進費の成果は、国際的な委員会等において、我が国からの科学的知見に基づいた情報発信や各種 提案に活用されることが見込まれる。実際に、2020年1月に英国で開催されたSAE-E31会合ではジェット エンジンオイルに関する話題が頻繁に取り上げられており、当該推進費の成果が一定の影響を与えたこ とが伺える。

国内行政への活用

本推進費では、航空機排気粒子の諸特性・濃度分布を明らかにするとともに、NO_xなど常時監視項目に ついて環境基準との比較を行った。これらの知見は、UFP健康影響の文献調査と合わせて、航空機排ガス の健康影響評価を行う上での基礎データとなることが期待される。また、本推進費で提案された簡易調 査方法(神戸空港等における粒子数濃度のモニタリング)は、ICAO規制効果の持続的なアセスメントに 活用されることが期待される。

6. 研究成果の主な発表状況

(1) 主な誌上発表

<査読付き論文>

- Fushimi A., Saitoh K., Fujitani Y., Takegawa N. (2019) Identification of jet lubrication oil as a major component of aircraft exhaust nanoparticles, Atmos. Chem. Phys., 19, 6389-6399.
- Saitoh K., Fushimi A., Sera K., Takegawa N., Elemental analysis of jet engine lubrication oil and jet fuel using in-air PIXE, International Journal of PIXE, in press.
- Saitoh K., Fushimi A., Sera K., Takegawa N., Quantification of major and trace elements contained in aircraft JET A-1fuel by PIXE analysis, International Journal of PIXE, in press.

【査読付き学術誌に投稿中の論文】

1) Takegawa, N., Murashima, Y., Fushimi, A., Misawa, K., Fujitani, Y., Saitoh, K., and Sakurai, H., Characteristics of sub-10 nm particle emissions from in-use commercial aircraft observed at Narita International Airport, submitted to Atmos. Chem. Phys. (Atmos. Chem. Phys. Discuss. で公開済)

<査読付論文に準ずる成果発表>

(2) 主な口頭発表(学会等)

- 1) 齊藤 勝美,伏見 暁洋,藤谷 雄二,森野 悠,早乙女 拓海,竹川 暢之,世良 耕一郎, ジェットエンジンオイルと燃料の元素組成,第24回NMCC共同利用研究成果発表会 (2018年5月、 盛岡).
- 2) 齊藤 勝美,伏見 暁洋,藤谷 雄二,森野 悠,早乙女 拓海,竹川 暢之,成田国際空港滑走路近 傍で捕集した超微小粒子状物質の元素特徴,第59回大気環境学会年会,福岡,2018年5月.
- 3) 竹川 暢之, 三澤 健太郎, 早乙女 拓海, 村島 淑子, 伏見 暁洋, 桜井 博, 航空機からの粒子排出 係数の推定, 大気環境学会 自動車環境分科会 シンポジウム, 東京電機大学, 2019年1月(招待講 演).
- 4) Fushimi, A., Saitoh, K., Fujitani Y., and Takegawa, N., Jet engine lubrication oil as major component of aircraft exhaust nanoparticles, 23rd ETH-Conference on Combustion Generated Nanoparticles, Zurich, Switzerland, June 18, 2019.
- 5) 竹川暢之, 三澤 健太郎, 伏見 暁洋, 村島 淑子, 桜井 博, 成田国際空港で測定された民間航空 機からの粒子排出特性, 第36回エアロゾル科学・技術研究討論会 広島市, 2019年9月6日.
- 6) 三澤 健太郎,竹川 暢之,藤谷 雄二,伏見 暁洋,村島淑子,桜井 博,航空機排ガスの粒子質量 排出係数の推定,第36回エアロゾル科学・技術研究討論会 広島市,2019年9月6日.
- 7) 竹川 暢之,三澤 健太郎,伏見 暁洋,村島淑子,桜井 博,航空機ナノ粒子の物理・化学特性
 (1):粒子数濃度,第60回大気環境学会年会,東京都府中市,2019年9月20日.
- 三澤 健太郎,藤谷 雄二,伏見 暁洋,村島 淑子,桜井 博,竹川 暢之,航空機ナノ粒子の物理・化学特性(3):粒子質量排出係数,第60回大気環境学会年会,東京都府中市,2019年9月20日.
- 9) 村島 淑子, 桜井 博, 藤谷 雄二, 竹川 暢之, 航空機ナノ粒子の物理・化学特性(2): 粒径分布 測定器の評価, 第60回大気環境学会年会, 東京都府中市, 2019年9月20日.

- 10) 伏見 暁洋, 齊藤 勝美, 藤谷 雄二, 竹川 暢之, 航空機ナノ粒子の物理・化学特性(4): 有機組 成と起源, 第60回大気環境学会年会, 東京都府中市, 2019年9月20日.
- 11) 齊藤 勝美,伏見 暁洋,藤谷 雄二,竹川 暢之,航空機ナノ粒子の物理・化学特徴(5):化学組成,第60回大気環境学会年会,東京都府中市,2019年9月20日.
- 12) Takegawa, N., Misawa, K., Fushimi, A., Murashima Y., and Sakurai, H., Particle emissions from in-use commercial aircrafts observed at the Narita International Airport, American Association for Aerosol Research (AAAR) 37th Annual Conference, Portland, OR, USA, October 17, 2019.
- 13) 竹川 暢之,村島 淑子,伏見 暁洋,三澤 健太郎,藤谷 雄二,齊藤 勝美,桜井 博,航空機から のナノ粒子排出特性,第24回大気化学討論会,愛知県蒲郡市,2019年11月5日.

7. 研究者略歴

研究代表者

竹川 暢之

東京大学理学部卒業、博士(理学)、現在、首都大学東京 理学研究科教授

研究分担者

- 1) 三澤 健太郎
 - 東京工業大学 理工学研究科 化学専攻修了、博士(理学) 現在、首都大学東京 理学研究科助教
- 2)伏見 暁洋 横浜国立大学大学院工学研究科修了、博士(工学) 現在、国立環境研究所 環境計測研究センター 主任研究員
- 3) 藤谷 雄二

北海道大学大学院工学研究科修了、博士(工学)

現在、国立環境研究所 環境リスク・健康研究センター 主任研究員

4) 森野 悠

東京大学大学院理学系研究科修了、博士(理学)

- 現在、国立環境研究所 地域環境研究センター 主任研究員
- 5) 桜井 博

米国ペンシルベニア州立大学大学院理学系研究科卒業、PhD

現在、(国研)産業技術総合研究所物質計測標準研究部門粒子計測研究グループ長

6) 早乙女 拓海

筑波大学大学院生命環境科学研究科環境科学専攻修了、修士(環境科学)

現在、株式会社環境計画研究所 調查研究部 副主任研究員

7) 神山 敏

京都大学大学院理学研究科地球物理学専攻修了、修士(理学) 現在、株式会社環境計画研究所代表取締役

II. 成果の詳細

Ⅱ-1 超微小粒子状物質の数濃度分布とその変動要因の解明

首都大学東京

理学研究科	化学専攻	竹川	暢之
理学研究科	化学専攻	三澤	健太郎

平成29~令和元年度研究経費(累計額):47,170千円(研究経費は間接経費を含む) (平成29年度:17,394千円、平成30年度:16,646千円、令和元年度:13,130千円)

[要旨]

民間航空機の需要は経済発展とともに大きく増加し、航空機排ガスの環境影響に対する国際的な関心 が高まっている。国際民間航空機関(ICAO)主導のもと2016年に新たに排出規制が設けられ、2020年以 降の製造エンジンより適用されることになった。このため、空港周辺における航空機排ガスの影響評価、 特に粒径100 nm以下の超微小粒子状物質(UFP)の動態解明が喫緊の課題となっている。

本サブテーマでは、これまで研究代表者らが開発してきた高感度分析技術に基づき、空港内における UFPの数濃度および質量濃度を解明することを主目的とする。サブテーマ(3)と連携し、大気観測に用い るUFP測定装置の精密な性能評価を実施し、測定の信頼性を多角的に検証した。サブテーマ(2)および (4)と連携し、成田国際空港の滑走路近傍でUFPの総合的な観測を実施した。実環境における離陸時の全 粒子数排出係数は、その半分以上が10 nm以下にあり、かつ規制対象となる10 nm以上の不揮発性粒子排 出係数に比べ中央値で60倍程度大きいことが明らかになった。この結果は、サブテーマ(2)の化学分析 と合わせて、航空機排出粒子の低減方法の策定において重要な知見を与えるものである。また、実環境 における平均的な粒子質量排出係数をトップダウン的に導出した。先行研究の個別エンジン試験のボト ムアップ的な推定と相補的に用いることで、空港周辺へのPM2.5質量濃度への影響を総合的に評価するた めの基盤となると期待される。

さらに、サブテーマ(4)との連携により、観測データで検証された数値モデル(AEDT)を用いて、成田 国際空港周辺の航空機排気粒子の拡散シミュレーションを実施し、空港内外の粒子数濃度分布の特徴を 明らかにした。本サブテーマで得られた成果は、他サブテーマの成果と合わせて、我が国からの科学的 知見に基づいた情報発信や各種提案に活用されることが見込まれる。

[キーワード]

空港周辺環境、航空機排気、粒子状物質、粒子数濃度、不揮発性粒子

1. はじめに

民間航空機の需要は経済発展とともに大きく増加してきた。その結果、航空機排ガスの環境影響が国際的な関心事となってきた^{1),2)}。航空機排ガスの環境影響には、上空の粒子排出に伴う気候影響(氷雲の生成)と、空港周辺を中心とした健康影響がある。健康影響の観点では、粒径100 nm以下の超微小粒子状物質(UFP)が重要と考えられている¹⁾。UFPは気管支や肺への沈着率が高く、かつ粒径が小さいほど肺胞から血中に移行しやすくなるため、呼吸器以外の様々な部分に影響を与えうる³⁾。また、航空機UFPの健康影響は粒子排出時の条件により異なり、アイドリング時に排出される粒子の方がより顕著な健康影響があるという報告もある⁴⁾。

これまでに、エンジン試験設備や実環境における航空機UFP排出特性の研究事例は数多く報告されて おり、様々な知見が得られている⁵⁾⁻¹¹⁾。また、これらの研究と並行して、国際民間航空機関(ICAO)主 導のもと2016年に新たに航空機排出規制が設けられ、2020年以降の製造エンジンより適用されることに なった。ICAO規制動向を受けて空港周辺におけるUFPへの関心がより高まっており、その動態解明が喫緊 の課題となっている。したがって、実大気におけるUFP濃度を正確に把握し、その変動要因に関する客観 的な知見を蓄積することが重要である。これまでの排出規制は質量濃度ベースが先行してきたが、大気 動態解明ではUFP質量濃度に加えて数濃度の情報が鍵となる。また、ICAO規制では、粒子を350℃に加熱 して蒸散せずに残った粒径10 nm以上の不揮発性粒子(主に煤)を測定するため、実環境で排出される 粒子との乖離も指摘されているが、定量的には不確実性が大きい。

ここで、過去の研究およびICAO規制における重要な技術的課題の一つが、サンプリング時における粒 子損失である^{8),9),11)}。この効果は特に粒径20 nm程度以下で顕著である。上記の通りICAO規制では350℃ 加熱を用いており、高濃度の排ガスの希釈や加熱処理に伴う粒子損失はかなり大きい。この点は、定量 的な評価においては慎重に考慮すべき要素であるが、依然として不確実性が大きい。

2. 研究開発目的

サブテーマ(1)では、これまで研究代表者および分担者らが開発してきた高感度分析技術に基づき、 空港内におけるUFPの数濃度および質量濃度を解明することを主目的とする。さらに、移動観測により空 港周辺の濃度分布を測定し、移流拡散モデルと組み合わせて環境影響を評価する。

本プロジェクトでは、成田国際空港を調査対象としてサブテーマ(1)~(4)の連携により以下の全体 目標①~④を掲げている。サブテーマ(1)はこれらの目標全てに関与する。目標達成のために冬季・夏 季の定点観測、冬季の移動観測、およびモデル解析を実施する。定点観測ではUFP数濃度・質量濃度・化 学組成、CO₂、NO_x、PM_{2.5}(簡易型)を測定し、移動観測ではUFP数濃度、CO₂、PM_{2.5}を測定する。

目標① 空港敷地内の夏季と冬季におけるUFP数濃度、質量濃度、化学組成の平均値を明らかにする。
→ サブテーマ(2)~(4)との連携

<u>目標②</u> 飛行機の通過に伴う短時間の変化 (single plume) から、実環境におけるUFP数濃度・質量濃度 $\& CO_2$ の排出比を推定する。→ サブテーマ(4)との連携

<u>目標③</u> 定点観測・移動観測データおよび改良型移流拡散モデルを用いて、空港周辺のUFP濃度・PM_{2.5}濃度に対する影響を評価する。→ サブテーマ(2)、(4)との連携

目標④ 他の空港に対しても適用可能な効率的な調査方法を含めて、規制後の追跡調査の在り方を提案 する。→ サブテーマ(4)との連携

3. 研究開発方法

UFP数濃度の測定・解析および影響評価を主に担当する。図3.1.1にその概念図を示す。超微小凝縮粒 子カウンタ(TSI社UCPC3776:粒径2.5 nm以上の総粒子数濃度N_{2.5})と凝縮粒子カウンタ(TSI社CPC3771: 粒径10 nm以上の総粒子数濃度N₁₀)を組み合わせた独自の計測システムを用いる^{12),13)}。UCPCとCPCはいず れも1-ブタノールの凝縮成長を利用して粒子数濃度を測定する装置であるが、UCPCはキャピラリ型の凝 縮成長管と高いブタノール過飽和度によって、CPCに比べて小さい粒径までの測定が可能である。ただ し、UCPCのメーカー出荷仕様のキャピラリ流量には不確実性が大きいため、流量制御系に改良を加えている¹³⁾。UCPCとCPCは一体型のラックに組み込まれており、1-ブタノールの供給、データの定期保存等を 含めて操作は完全自動となっている。UCPCとCPCの時間分解能は1秒である。N_{2.5}とN₁₀の差分を取ること で、粒径10 nm以下の粒子数濃度を推定できる。

粒径10 nm以上の粒径分布は走査型電気移動度分級装置(TSI社SMPS)を用いる。粒径走査には3分を 要し、これを5分毎に繰り返す。UCPC、CPC、SMPSのインレットに加熱管(150、250、350℃)を設置して 定時(本研究では8時間毎)で切り替えることで、不揮発性粒子(主に煤粒子)の測定も行う。350℃加 熱のCPCデータは、ICAO規制の不揮発性粒子の測定に対応する。これにより、航空機排ガスのUFP特性を 包括的に捉えることが可能となる(図3.1.2および図3.1.3)。PM2.5質量濃度は光散乱式の簡易型モニタ ー(TSI社DustTrak II)を用いる。また、CO2濃度は非分散型赤外吸収法により時間分解能1秒で測定す る(LI-COR社LI840)。CO2測定装置の校正は400 ppmvと1000 ppmvの標準ガスを用いて、1日に2回自動で 行った。

- 目標①に対する方法:サブテーマ(3)と連携し、実大気観測で用いるUCPC-CPCの校正を行い精度検証するとともに、ICAO規制に対応した350℃加熱の検出性能評価を行う。特に、希釈や加熱に伴う粒子損失について精密に評価する。また、サブテーマ(2)、(4)と連携して成田国際空港敷地内で定点観測を実施する(当初計画では2018年1月と8月、成田国際空港との調整により2月と7-8月に実施)。UFP数濃度の平均値・変動幅などの特徴を明らかにする。また、サブテーマ(3)と連携しUCPC-CPCやSMPSの校正を行い、装置劣化等の有無を評価する。さらに、サブテーマ(2)~(4)と連携し、空港敷地内の夏季と冬季におけるUFP数濃度の平均値・変動幅を明らかにするとともに、その不確実性についても評価する。
- <u>目標②に対する方法</u>: サブテーマ(4)と連携し、観測期間中のsingle plumeイベントを選び出してUFP 数濃度とCO2濃度の比(UFP/CO2排出比)を導出する。平均粒径分布を仮定して数濃度から質量濃度の 推定を行う。加熱分析から揮発成分の寄与を明らかにする。サブテーマ(4)と連携し、実環境におけ る夏季と冬季のUFP/CO2排出比を明らかにする。ICAOデータベースと比較して統計的にまとめる。
- 目標③に対する方法: サブテーマ(4)と連携し、2019年1月に成田空港周辺で移動観測を実施する。空港の風上・風下で車載型装置を用いたUFP数濃度の移動観測を実施する。移動観測により得られたUFP 数濃度とCO2濃度を整理しマッピングするとともに、相関や空間分布について解析する。
- <u>目標④に対する方法</u>: サブテーマ(4)と連携し、研究期間全体で得られた知見を行政ニーズ、社会ニー ズに合わせて整理・要約する。同様の研究を成田空港以外に適用する場合の効果的な調査方法や、2020 年の新規制エンジン導入後の追跡調査の在り方について提言をまとめる。



図3.1.1 サブテーマ(1)で用いるUFP数濃度計測装置の概念図。



図3.1.2 航空機排ガスのUFP特性を包括的に捉えるための大気サンプリングのセットアップ。サブテーマ(2)のNano-MOUDIについても示している。(Iと共用)



図3.1.3 非加熱(全粒子)および350℃加熱(不揮発性粒子)の測定によって期待される結果を表す概 念図。

4. 結果及び考察

4.1. UFP測定装置の性能評価(目標①に対する結果)

サブテーマ(3)との共同により、産総研の粒子計測設備において、ICAO規程のSAE ARP 6320規格¹⁴に 準拠した方法に基づき性能評価実験を行った。実験全体の詳細はサブテーマ(3)で記述しているため、 ここでは非加熱・350℃加熱のUCPCおよびCPCの性能評価実験のハイライト部分について述べる。

図4.1.1上はUCPCとCPCの検出効率の評価実験結果を表す。評価用の粒子にはエレクトロスプレー法で 生成したスクロースを用いた。実験値は、配管・装置内のブラウン拡散を考慮した理論計算と良く一致 しており、測定の妥当性が示された。一方、メーカーの仕様値と比べると、特にUCPCで有意な差が見ら れている。過去の研究の多くはこのような評価を行っていない(少なくとも論文には示されていない)。 これは、実大気のUFP観測データの解釈において、メーカー仕様値ではなく現実的な配管構成で評価した 値を用いることの重要性を示す結果である。

図4.1.1下は加熱管の不揮発性粒子の透過率の測定結果である。評価用の粒子にはプロパン燃焼法で 生成した煤粒子を用いた。加熱管を室温に設定した場合には、実験値は配管・装置内のブラウン拡散を 考慮した理論曲線と良く一致した。加熱管を350℃に設定した場合の理論曲線は乱流の効果を適切に考 慮することが難しいことから、室温の理論曲線を実験値にスケーリングすることで推定した。

図4.1.1に示す理論曲線はやや複雑であり、UCPCとCPCの違いをもって粒径10 nm以上・以下という表現 は厳密には正しくない可能性がある。上記の理論曲線を用いて、典型的な粒径分布の幅(幾何標準偏差 1.4-1.6) を仮定して感度計算を行った (ここでは計算の詳細は示さずに結果の概要のみ記す)。非加 熱・加熱いずれも、N₁₀/N_{2.5}比が0.5となるのは粒径分布の中心(幾何平均粒径)が10 nm程度の場合であ った。したがって、N₁₀/N_{2.5}比は粒径10 nm以上・以下の割合を示す指標と考えてよいことになる。

さらに、揮発性粒子の除去効率の評価もテトラコンタン粒子を用いて行った。加熱管の温度が150℃または250℃のときは粒子が残存したが、350℃加熱では除去効率が99.9%以上であることを確認した。以上は、サブテーマ(1)の加熱管の性能がICA0規程の基準を満たすことを示す重要な結果である。



図4.1.1(上)UCPC(赤点)とCPC(黒点)の粒子検出効率。破線はメーカーの仕様値を表し、実線は配 管・装置内のブラウン拡散を考慮した理論曲線を表す。(下)加熱管の不揮発性粒子の透過率の測定結 果。実験は室温(黒丸)と350℃(赤丸)で行った。実線は室温条件における配管・装置内のブラウン 拡散を考慮した理論計算値を表す。+印はICA0規程のSAE ARP 6320規格の基準値を表す。

4.2. 成田国際空港における観測(目標①②に対する結果)

<u>粒子数濃度の変動</u>

上記で評価したUCPCとCPCを用いて、2018年2月および7~8月に成田国際空港A滑走路近傍で集中観測 を実施した(図4.1.2)。観測用に仮設コンテナ2棟を設置し、UFP数濃度、化学成分(サブテーマ(2))、 CO₂、NO_x、気象要素の観測を行った。航空機の運用方法自体は冬季と夏季で大きな差はないものの、外気 温の違いによる揮発性粒子の濃度の違いが生じる可能性があるため、同じ観測点で同様の装置を用いて 冬季と夏季の観測を実施した。



図4.1.2(Iと共用)成田国際空港における集中観測。左図はGoogle Earthで作成した地図に、文字・ 矢印を追記したものである(作成日2019年8月29日)。装置の写真は冬季の観測時の様子を表す。

図4.1.3に冬季および夏季観測で得られた結果の例を示す。航空機の運航時間帯(6:00-23:00)において、滑走路からの風向きの場合に航空機由来のスパイク状の濃度増加(plume)が観測された¹⁵⁾。ここで、UFP数濃度の絶対値は気象条件で変わるが、CO₂のバックグラウンド濃度からの増分で規格化すると、その効果を補正することができる。同程度のCO₂増分に対する全粒子数濃度の増分は冬季と夏季で類似しており、粒子排出特性に大きな差異がないことが分かった。なお、北寄りの風が卓越し、降水の影響が少なかった冬季の方が、滑走路から移流する航空機排ガスを直接捉えるという意味ではより好条件であった。このため、本研究の主目的に鑑みて、以降では冬季の観測データの解析結果について議論する。

図4.1.4に2018年2月15日に観測された全粒子・不揮発性粒子の数濃度と CO_2 の事例解析を示す。この事例を含めて、同程度の CO_2 濃度増分について粒子数濃度増分を比較すると、全粒子では加熱のそれに比べて5~10倍程度大きくなっていた。このことから、粒子数濃度のほとんどが揮発性成分(煤や金属以外)であることが分かった。ここで、不揮発性粒子 N_{10} は煤や金属粒子から成り、ICAO規制で測定される項目に対応する。一方、全粒子 $N_{2.5}$ は硫酸塩や有機物などの揮発性成分を含み、実環境で大気中に排出される粒子全体に対応する。全粒子 $N_{2.5}$ および不揮発性粒子 N_{10} のバックグラウンド濃度からの増分(ΔCO_2)との相関を調べたところ、両者の傾きには大きな差が見られた(図4.1.4右)。

さらに、図4.1.4左からは、全粒子・不揮発性粒子のいずれについても、粒子数濃度の半分程度以上が 粒径10 nm以下にあることが分かる。この粒径分布の特徴は他の事例でも共通して見られ、また夏季でも 同様の傾向が見られた。



図4.1.3(上)2018年2月21日に観測されたCO₂および全粒子N_{2.5}とN₁₀の時系列。赤色部分は粒径2.5-10 nm の数濃度、灰色部分は粒径10 nm以上の数濃度を表し、積み上げにより粒径2.5 nm以上の粒子数濃度となる。(下)2018年8月に観測された同様の時系列。スパイク状の濃度増加(plume)について、同程度の CO₂増分に対する粒子数濃度の増分は冬季と夏季で類似していた。



図4.1.4 (Iと共用) 2018年2月15日に観測された粒子数濃度と CO_2 の事例解析 (Takegawa et al., submitted¹⁵⁾のデータから作成)。(左) 時系列変化 (上:全粒子、下:不揮発性粒子)。赤色部分は粒径 2.5-10 nmの数濃度、灰色部分は粒径10 nm以上の数濃度を表し、積み上げにより粒径2.5 nm以上の粒子 数濃度となる。左軸のスケールは上下で5倍異なる。(右) 全粒子数 $N_{2.5}$ および不揮発性粒子 N_{10} のバック グラウンド濃度からの増分 (ΔN) と、 CO_2 のバックグラウンド濃度からの増分 (ΔCO_2)の相関。

全粒子については、硫黄化合物などの核生成により粒径10 nm以下の粒子数濃度が増えることは知られていた⁷⁾。一方で、不揮発性粒子についてはモード粒径が20 nm程度以上であると言われてきた^{8),9),11)}。 したがって、本研究で得られた結果は、全粒子については定性的には整合する結果であるが、不揮発性 粒子については大きく異なる結果となった。

ー般に、大気エアロゾル粒子を加熱・冷却した場合、揮発したガスの核生成・再凝縮による擬似的な カウント(核生成アーティファクト)が問題になる場合がある。ただし、この効果は粒子濃度に強く依 存し、低濃度の場合には核生成が起こらないか、もしくは核生成しても検出可能な大きさに成長しない。 実際、観測時の条件で計算したところ、かなり過大に見積もっても核生成アーティファクトでは観測さ れた現象を説明できないことが分かった。

粒径分布

|粒径10 nm以下の寄与についてさらに詳しく検討するために、SMPSおよびEEPS(サブテーマ(2))に よる粒径分布を詳細に解析した。SMPSではUCPCやCPCと同様に加熱・非加熱を定時で切り替えて5分毎に 3分間の測定を行ったが、EEPSでは非加熱粒子を時間分解能1秒で測定を行った。このため、両者の比較 には注意を要する。図4.1.5は全粒子についての比較結果である。まず、EEPSの粒径分布(粒径10 nm以 上)を積分した総粒子数は、CPCによる全粒子N₁₀とほぼ近い値となっていた。これは、CPCとEEPSの整合 性を示す結果である。次に、全濃度N10の変化が緩やかな場合と急な場合についてSMPSとEEPSのデータを 調べた。航空機排ガスの粒子の多くは粒径30 nm以下にあり、SMPSは粒径15-30 nmを走査するのに約30秒 を要する。装置間のわずかな応答時間のずれ等を考慮して、EEPSデータはSMPS操作開始の10秒前から30 秒後を平均してSMPSデータと比較した。図4.1.5aにおいて、14:10前後の全粒子N10は、変動はあるものの 系統的な増加・減少はなかった。この時間帯ではSMPSとEEPSの数濃度・体積濃度分布は良く一致してい た(図4.1.5bとc)。一方、14:20直後には全粒子N10は大きく減少した後に増加していた。この時間帯では SMPSの走査中に不自然な濃度変化が見られており、これは走査中の濃度変動によるものと解釈できる。 逆に、全粒子N₁₀の系統的な変動が少ない時間帯を選ぶことで、SMPSとEEPSは整合的な結果を与えると考 えられる。なお、図4.1.5cでは粒径30 nm以下の粒子が体積濃度 (または質量濃度) に占める割合は小 さく、体積濃度の積分値はバックグラウンド濃度で支配されていた。実際、簡易型のPM2.5モニターでは 航空機の通過に伴う顕著な濃度増加は見られなかった。このため、航空機排ガスのPM2.5質量濃度への影 響を見る上では、粒径別に分けて解析を行う必要がある。

図4.1.6は不揮発性粒子の粒径分布に関する結果を表す。前述の通り、CPCとSMPSは不揮発性粒子、EEPS は全粒子を測定している。図4.1.5に従って濃度変動が少ない時間帯を選んで解析したところ、SMPSは EEPSに比べて1桁程度濃度が低くなっていた。これは、図4.1.4で議論した全粒子と不揮発性粒子の差異 と整合的である。SMPSデータでは、粒径15-50 nmで粒径が小さくなるにつれて緩やかに濃度が増加する 傾向が見られた。このような傾向は、先行研究で得られた知見とは異なる結果である。

本研究と先行研究の差異について様々な角度から検討を行った。まず、本研究における加熱測定の誤 差について、前述の通り核生成アーティファクトは無視できるものと推定される。一方、350℃加熱で蒸 散しない成分の有無については現段階では不確実である。産総研における性能評価では、ICAO規程に従 ってテトラコンタンの除去率を測定し、基準を満たすことを確認している。次に先行研究における誤差 について、冒頭で述べた通りエンジン排ガスの直接測定では希釈・加熱に伴う粒子損失(壁吸着または 凝集)が大きいことが分かっている。この効果は粒径20 nm程度以下で顕著であると考えられることか ら、先行研究では粒径10 nm以下の寄与を過小評価している可能性がある。

他の不揮発性粒子生成の要因として、実環境ではエンジンの状態に応じて金属粒子の寄与がありうる。 サブテーマ(2)の粒径別組成分析の結果によれば、粒径10-30 nmで多様な金属元素が検出されている。 ただし、この点についてはエンジン排ガスの元素データが不足しており不確実性が大きい。今後の検証 が必要と考えられる。



図4.1.5 2018年2月15日の全粒子の粒径分布の例¹⁵⁾。(a) 全粒子N₁₀とEEPS積分値の時系列。(b) 各時刻 におけるSMPSとEEPSの全粒子数濃度粒径分布の比較。SMPSは5分毎に3分の走査を繰り返しており、粒径 15-30 nmの走査に約30秒を要する。EEPSデータはSMPS走査開始の10秒前から30秒後を平均している。(c) 前記(b)と同時刻の体積濃度粒径分布の比較。



図4.1.6 2018年2月15日の全粒子(EEPS) と不揮発性粒子 (SMPS) の粒径分布の例¹⁵⁾。解析方法は図 4.1.5と同様である。

粒子数排出係数の推定

図4.1.4に示した以外の日についてもplume解析を行い、CO₂排出係数に基づいて粒子数排出係数(燃料 1 kgあたりの粒子数)の推定を行った。すなわち、増分比 $\Delta N/\Delta CO_2$ (cm⁻³ ppmv⁻¹) にCO₂の排出係数および単位変換係数を乗じることで、粒子数排出係数EI(N)を得ることができる。測定モードと粒径範囲に応じて、非加熱EI(N_{2.5})、非加熱EI(N₁₀)、350℃加熱EI(N_{2.5})、350℃加熱EI(N₁₀)の4種類の排出係数が得られた(表4.1.1)。

中央値ベースでは、非加熱EI($N_{2.5}$)は 1.1×10^{17} kg-fuel⁻¹、ICAO規制対応の350℃加熱EI(N_{10})は 1.8×10^{15} kg-fuel⁻¹となり、約60倍の差異があることが明らかになった。この差は、ICAO規制で測定される粒子数排出係数と、実際の環境で排出される粒子数排出係数に大きな乖離があることを定量的に示した結果である。サブテーマ(2)の有機成分分析の結果から、揮発性成分として未燃のジェットエンジンオイルが重要であることが示されており、これらの結果はICAOによるエンジン排ガス規制効果の解釈や、実環境における粒子排出低減法の策定において重要な示唆を与えるものである。

|--|--|

	25 percentile	50 percentile	75 percentile	
全粒子				
$EI(N_{2.5})$	$8.9 imes 10^{16}$	1.1×10^{17}	1.3×10^{17}	
$\mathrm{EI}(N_{10})$	3.2×10^{16}	$4.2 imes 10^{16}$	5.2×10^{16}	
10 nm以下の数割合	0.53	0.63	0.70	
不揮発性粒子				
$EI(N_{2.5})$	2.4×10^{15}	5.7×10^{15}	1.1×10^{16}	
$\mathrm{EI}(N_{10})$	1.1×10^{15}	1.8×10^{15}	4.0×10^{15}	
10 nm以下の数割合	0.44	0.54	0.72	

粒子質量排出係数の推定

図4.1.5の事例解析で議論した通り、航空機排ガスが質量濃度(体積濃度)に及ぼす影響は、PM2.5質量 濃度では判別しにくいと考えられる。以下の解析では、粒子密度1g cm⁻³を仮定してEEPS体積濃度を質 量濃度に換算する。図4.1.7は、全粒径範囲および粒径50 nm以下についてそれぞれ積分した質量濃度に ついて、観測全期間の平均日変化を計算したものである¹⁶⁾。成田国際空港では9:00-12:00と17:00-19:00 に離着陸のピークがある。粒径50 nm以下ではその影響が明確に見える一方で、全粒径範囲では他時間帯 との差が見えにくい。このことからも、航空機排ガスは粒径50 nm以下の質量濃度に対して特に顕著な影 響を与えることが分かる。

図4.1.8は、質量濃度への影響が顕著に見られた2018年2月16日の18:00-19:00の事例解析である。全粒 径範囲および粒径50 nm以下についてCO2濃度との相関が見えているが、相関の傾きに大きな差はない。 この点も、上述の粒径依存性の特徴を反映したものと考えられる。

上記の相関の傾きにCO₂排出係数を乗じることで、多数の航空機を積算した有効粒子質量排出係数が得 られる。図4.1.9は各日の夕方の時間帯のデータを取り出して、相関の傾きから粒子質量排出係数を導出 したものである。平均値の範囲は燃料1 kgあたり31-107 mg(全粒径6-560 nm)および14-75 mg(50 nm 以下)であった。先行研究における測定例では、燃料1 kgあたり10-500 mg¹⁷⁾あるいは 100-700 mg¹⁸⁾な どの値が報告されており、本研究の結果は系統的に低い値となっていた。本研究の推定では粒子を球形 と仮定しており、それに伴う不確実性がある。また、先行研究は10年程前の結果であり、航空機ジェッ トエンジンは様々な技術的改良がなされていることから、比較には注意を要する。



図4.1.7 (a) 全粒径範囲および (b) 粒径50 nm以下について、EEPS粒径分布積分で得られた質量濃度の 観測全期間の平均日変化¹⁶⁾。体積濃度から質量濃度への換算には粒子密度1 g cm⁻³を仮定している。(c) 成田国際空港の離陸数の日変化。9:00-12:00と17:00-19:00に離着陸のピークがあり、粒径50 nm以下で はその影響が明確に見える。



図4.1.8 2018年2月16日の18:00-19:00における、(左) 全粒径範囲および(右) 粒径50 nm以下の質量 濃度とCO₂濃度との相関¹⁶⁾。データは10秒平均値を用いている。実線は回帰直線、破線は5%および95%信 頼区間を表す。

本研究で導出した有効粒子質量排出係数は、実環境における多数の航空機の粒子質量排出係数を平均 したものに相当する。この値はトップダウン的な推定であり、先行研究の個別エンジン試験のボトムア ップ的な推定と相補的に用いることで、空港周辺へのPM2.5質量濃度への影響を総合的に評価するための 基盤となる。



図4.1.9 各観測日の17:00-18:00、18:00-19:00、19:00-20:00を選んで導出した(a) 全粒径範囲および (b) 粒径50 nm以下についての平均粒子質量排出係数¹⁶⁾。エラーバーは5%および95%信頼区間を表す。

データアーカイブの構築

本研究では、成田国際空港の滑走路近傍およびその周辺で大気観測を実施し、航空機由来UFPの数濃 度・粒径別化学組成に関するデータセットを得ることに成功した。このような包括的なデータの取得は 国際的に見ても例がない新規性の高い成果であり、航空機の環境影響に関する強固な科学的基盤の確立 に貢献することが期待される。これらのデータを国立環境研究所のアーカイブに集約した(図4.1.10)。 サイトはhttps://fxp.nies.go.jp/であり、現在はアクセス制限をかけているが、データの一部について 適宜公開する予定である。



10 Narita airport winter observation, 2018/02/16 CO2, final data, ver 2.1, 2018/08/30 (validated 2020/04/22) CO2: LI-COR LI-840 PI: Nobuyuki Takegawa (Tokyo Metropolitan University) Simple time series format CO2_center_time_v2_1, hh:mm:ss JST, integration 1sec CO2_ppmv_v2_1, CO2 mixing ratio, ppmv, null -999 Comment: Corrections for time shift and calibrations (397.2 and 1032 ppmv) are incorporated. CO2_center_time_v2_1,CO2_ppmv_v2_1 O1:00:00, 420.06 01:00:01, 420.37 01:00:02, 420.66

図4.1.10(上)本研究で構築されたデータアーカイブの概念図。(下)データフォーマットの例。将来 的に幅広く活用される可能性があることを想定し、データの取得日、解析日(バージョン)、データ品 質等に関する情報をヘッダに記載している。当該フォーマットは、米国航空宇宙局(NASA)の観測キャ ンペーン等のフォーマットに倣ったものである。

4.3. 成田国際周辺における観測(目標③に対する結果)

成田国際空港周辺へのUFP拡散状況を調べるために、成田国際空港、千葉県、成田市、富里市などのご 協力を得て、空港周辺の観測点の検討を行った。冬季は北風が卓越することを考慮して、空港の風上に 相当する北側の候補地、および風下に相当する南側の候補地を中心に調べた。土地使用制限等のため観 測点の決定には各方面との慎重な調整を要したが、最終的には空港の風上地点として久住体育館(B滑 走路北端から4 km)、風下地点として富里の共同利用施設(A滑走路南端から3 km)を選定した(図 4.1.11)。

2019年1月に車載型コンテナに装置を搭載して移動観測を実施した。このコンテナは成田国際空港敷 地内の観測で用いたコンテナと同じ型のものである。空港敷地内観測の装備を簡易化して、UCPC、CPC、 CO₂、NO_x、気象要素の測定を行った。久住体育館では1月18-22日、富里共同利用施設では1月22-27日に観 測を実施した。

図4.1.11に両地点で得られた観測事例を示す。当初計画では風上で低濃度、風下で高濃度が観測され ることを予測していたが、実際には異なる結果が得られた。すなわち、風上および風下のいずれにおい ても、航空機の離発着が多い昼間の時間帯で、粒径10 nm以下の粒子数濃度の顕著な増加が見られ、粒径 10 nm以下の数割合は半分程度に達した。周囲の交通量は極めて少ないことから、間欠的に短時間だけ観 測されるスパイク状の濃度増加を除くと、自動車の影響は小さいと推定される。濃度の絶対値は境界層 高度の変化にも影響されるため複雑であるが、これらの観測結果は航空機排ガスの影響が広範囲にわた っていることを示唆している。同様の事例は他の日でも観測された。

サブテーマ(4)との連携により、観測データで検証された数値モデル(AEDT)を用いて、成田国際空港 周辺の航空機排気粒子の拡散シミュレーションを実施し、空港内外の粒子数濃度分布の特徴を調べた。 シミュレーション結果からも、航空機排ガスの影響が広範囲にわたっていることが示唆されており、観 測と整合的であることが確認された(詳細はⅡ-4で述べる)。



図4.1.11(Iと共用)成田国際空港周辺における移動観測の概要。左図はGoogle Earthにより作成した 地図に、説明のため文字・矢印を追記したものである(作成日2020年4月30日)。

4.4. 神戸空港周辺における観測(目標④に対する結果)

本研究において、成田国際空港を拠点とした観測により多くの成果が得られた。一方で、今後ICA0規 制の効果を検証する上で、他の空港に対しても適用可能な効率的な調査方法を検討することが重要であ る。成田国際空港は離発着数が多く、科学的に有用なデータが得られる一方で、敷地が広大であること から、滑走路近傍に頻繁にアクセスすることは容易ではない。

本件について環境省およびPOと協議を行った結果、神戸空港が調査地点として適しているのではない かという助言を受けた。その理由として、神戸空港は海上空港であるために周囲に大きな発生源がない 点、および敷地境界と滑走路が近いためにアクセスが比較的容易である点が挙げられる。

2019年8月19-22日に、簡易的なUFP測定装置を用いて神戸空港の敷地境界付近で簡易観測を実施した。 具体的には、TSI社の携帯型凝縮粒子カウンタ(CPC 3007)と携帯型SMPS(NanoScan 3910)を用いた。 図4.1.12にその概要と観測事例を示す。夏季のため突発的な雷雨の影響があり、実質的なデータが取得 できた時間は限られていたが、当初の狙い通り、観測点において航空機排ガス由来のUFPを的確に捉える ことが可能であることが分かった。さらに、離発着数がそれ程多くないことから、離陸、着陸、アイド リング等の離着陸(LT0)サイクル別のデータが得られることも分かった。冒頭で述べたとおり、航空 機UFPの健康影響はLT0サイクルによって変わり、アイドリング時の方が高い毒性を有する可能性が指摘 されている⁴⁾。したがって、神戸空港(あるいは同等の規模の空港)で定期的に簡易調査を行うことは、 将来の規制効果の効率的な評価・検証方法として有用であることが示唆された。また、神戸空港での簡 易観測の知見は、2020年度からの新規課題(5-2004)の立案に生かされるなど、次の研究展開につなが る成果となった。



図4.1.12 神戸空港における簡易観測の概要。左図はGoogle Earthにより作成した地図に、説明のため 文字・矢印を追記したものである(作成日2019年8月29日)。右下の図はNanoScanにより得られた粒径分 分布の時系列イメージ図(赤色に行くにつれて高濃度)であり、航空機の離着陸のタイミングで小さい 粒径側の濃度(図の下側)が増えている様子が捉えられた。

5. 本研究により得られた成果

(1)科学的意義

航空機UFP排出特性

- ・成田国際空港の滑走路近傍で観測を実施し、航空機由来のUFPの動態解明に資するデータを取得した。
 特に、UFP数濃度・粒径別化学組成が融合した包括的なデータセットは国際的に見ても例がなく、新規
 性の高い成果である。これらのデータを国立環境研究所のアーカイブに集約した。
- ・実環境における離陸時の全粒子数排出係数は、その半分以上が10 nm以下にあり、かつ規制対象となる 10 nm以上の不揮発性粒子排出係数に比べ中央値で60倍程度大きいことが明らかになった (Takegawa et al., submitted)。この結果は、サブテーマ(2)の化学分析と合わせて、航空機排出粒子の低減方 法の策定において重要な知見を与えるものである。
- ・実環境における平均的な粒子質量排出係数をトップダウン的に導出した (Misawa et al., to be submitted)。先行研究の個別エンジン試験のボトムアップ的な推定と相補的に用いることで、空港周辺のPM_{2.5}質量濃度への影響を総合的に評価するための基盤となると期待される。

航空機排気粒子の広域影響

・サブテーマ(4)との連携により、観測データで検証された数値モデル(AEDT)を用いて、成田国際空港 周辺の航空機排気粒子の拡散シミュレーションを実施し、空港内外の粒子数濃度分布の特徴を明らか にした。

国際連携体制の構築

・推進費の成果を契機に、スイスの研究グループとの間でエンジン排ガス測定に関する共同研究体制を 構築した。また、研究代表者の竹川、サブテーマ(2)代表の伏見、研究協力者の齊藤が、SAE-E31(航 空機排ガス測定に関する委員会)への参画を実現した。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

環境省の「船舶・航空機排出大気汚染物質の影響把握に関する検討委員会」に、サブテーマ(1)代表 の竹川とサブテーマ(2)代表の伏見が委員として出席してきた。当該検討委員会では、成田国際空港に おける大気観測や空港周辺のシミュレーションなど、本推進費の研究成果が定期的に報告され、相互に 情報・意見交換が行われた。

<行政が活用することが見込まれる成果>

国際的な活動への貢献

サブテーマ(1)の成果は、国際的な委員会等において、我が国からの科学的知見に基づいた情報発信 や各種提案に活用されることが見込まれる。

国内行政への活用

サブテーマ(1)で得られた航空機排気粒子の諸特性・濃度分布に関する知見は、UFP健康影響の文献調 査と合わせて、航空機排ガスの健康影響評価を行う上での基礎データとなることが期待される。また、 本サブテーマで提案された簡易調査方法(神戸空港等における粒子数濃度のモニタリング)は、ICAO規 制効果の持続的なアセスメントに活用されることが期待される。

6. 国際共同研究等の状況

前項に記載の通り、推進費の成果を契機に研究代表者の竹川、サブテーマ(2)代表の伏見、研究協力 者の齊藤が、SAE-E31(航空機排ガス測定に関する委員会)への参画を実現した。また、サブテーマ(2) 代表の伏見が中心となり、スイスの研究グループ(Zurich University of Applied Sciences のDr. Julien Anet, Dr. Lukas Durdina 他)との研究交流を開始した。このスイスの研究グループはICAO規制 等に中心的に関わってきており、当該共同研究は、ICAOやSAE-E31における日本からの情報発信の場とし て有効なものになると期待される。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文(査読あり)>

【サブテーマ(2)との共著】

- Fushimi A., Saitoh K., Fujitani Y., Takegawa N. (2019) Identification of jet lubrication oil as a major component of aircraft exhaust nanoparticles, Atmos. Chem. Phys., 19, 6389-6399.
- Saitoh K., Fushimi A., Sera K., Takegawa N., Elemental analysis of jet engine lubrication oil and jet fuel using in-air PIXE, International Journal of PIXE, in press.
- Saitoh K., Fushimi A., Sera K., Takegawa N., Quantification of major and trace elements contained in aircraft JET A-1fuel by PIXE analysis, International Journal of PIXE, in press.

<その他誌上発表(査読なし)>

【サブテーマ(2)との共著】

1) 齊藤勝美、伏見暁洋、藤谷雄二、森野悠、早乙女拓海、竹川暢之、世良耕一郎(2019) ジェット エンジンオイル・燃料と成田国際空港滑走路近傍で捕集した粒径別粒子(粒径10 nm-10 µm)の 元素組成, NMCC 共同利用研究成果報文集24 (2017年度),41-52.

(2) 口頭発表(学会等)

- 竹川 暢之,三澤 健太郎,早乙女 拓海,村島 淑子,伏見 暁洋,桜井 博,航空機からの粒子排出 係数の推定,大気環境学会 自動車環境分科会 シンポジウム (2019年1月,東京電機大学)(招待 講演).
- 2) 竹川暢之, 三澤 健太郎, 伏見 暁洋, 村島 淑子, 桜井 博, 成田国際空港で測定された民間航空 機からの粒子排出特性, 第36回エアロゾル科学・技術研究討論会 広島市, 2019年9月6日.
- 3) 三澤 健太郎,竹川 暢之,藤谷 雄二,伏見 暁洋,村島淑子,桜井 博,航空機排ガスの粒子質量 排出係数の推定,第36回エアロゾル科学・技術研究討論会 広島市,2019年9月6日.
- 4) 竹川 暢之,三澤 健太郎,伏見 暁洋,村島淑子,桜井 博,航空機ナノ粒子の物理・化学特性
 (1):粒子数濃度,第60回大気環境学会年会,東京都府中市,2019年9月20日.
- 5) 三澤 健太郎,藤谷 雄二,伏見 暁洋,村島 淑子,桜井 博,竹川 暢之,航空機ナノ粒子の物理・化学特性(3):粒子質量排出係数,第60回大気環境学会年会,東京都府中市,2019年9月20日.
- 6) Takegawa, N., Misawa, K., Fushimi, A., Murashima Y., and Sakurai, H., Particle emissions from in-use commercial aircrafts observed at the Narita International Airport, American Association for Aerosol Research (AAAR) 37th Annual Conference, Portland, OR, USA, October 17, 2019.
- 7) 竹川 暢之,村島 淑子,伏見 暁洋,三澤 健太郎,藤谷 雄二, 齊藤 勝美,桜井 博, 航空機から

のナノ粒子排出特性,第24回大気化学討論会,愛知県蒲郡市,2019年11月5日.

【他サブテーマとの共著】

- 8) 齊藤 勝美,伏見 暁洋,藤谷 雄二,森野 悠,早乙女 拓海,竹川 暢之,世良 耕一郎, ジェットエンジンオイルと燃料の元素組成,第24回NMCC共同利用研究成果発表会 (2018年5月、 盛岡).
- 9) 齊藤 勝美,伏見 暁洋,藤谷 雄二,森野 悠,早乙女 拓海,竹川 暢之,成田国際空港滑走路近傍で捕集した超微小粒子状物質の元素特徴,第59回大気環境学会年会(2018年5月、福岡).
- 10) Fushimi, A., Saitoh, K., Fujitani Y., and Takegawa, N., Jet engine lubrication oil as major component of aircraft exhaust nanoparticles, 23rd ETH-Conference on Combustion Generated Nanoparticles, Zurich, Switzerland, June 18, 2019.
- 11) 村島 淑子, 桜井 博, 藤谷 雄二, 竹川 暢之, 航空機ナノ粒子の物理・化学特性(2): 粒径分布 測定器の評価, 第60回大気環境学会年会, 東京都府中市, 2019年9月20日.
- 12) 伏見 暁洋, 齊藤 勝美, 藤谷 雄二, 竹川 暢之, 航空機ナノ粒子の物理・化学特性(4): 有機組 成と起源, 第60回大気環境学会年会, 東京都府中市, 2019年9月20日.
- 13) 齊藤 勝美,伏見 暁洋,藤谷 雄二,竹川 暢之,航空機ナノ粒子の物理・化学特徴(5):化学組成,第60回大気環境学会年会,東京都府中市,2019年9月20日.

(3) 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

(4) 「国民との科学・技術対話」の実施 特に記載すべき事項はない。

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

(6) その他

【査読付き学術誌に投稿中の論文】

1) Takegawa, N., Murashima, Y., Fushimi, A., Misawa, K., Fujitani, Y., Saitoh, K., and Sakurai, H., Characteristics of sub-10 nm particle emissions from in-use commercial aircraft observed at Narita International Airport, submitted to Atmos. Chem. Phys. (Atmos. Chem. Phys. Discuss. で公開済)

【学会におけるポスター発表】

- 1) Hiromu Sakurai, Yoshiko Murashima, Hitoshi Fujiwara, Nobuyuki Takegawa, Uncertainties in the determination of the penetration efficiency of the volatile particle remover used in number emission measurement of non-volatile nanoparticles from aircraft turbine engines, ETH-Conference on Combustion Generated Nanoparticles (2018年6月、Switzerland).
- Saitoh, K., Fushimi, A., Fujitani, Y., and Takegawa, N., Characteristics of chemical composition for ultrafine particle collected at Narita International Airport, 23rd ETH-Conference on Combustion Generated Nanoparticles, ETH Zurich, Switzerland, June 17-20, 2019.
- 3) 桜井 博,村島 淑子,藤原 仁志,竹川 暢之,航空機エンジン排ガス測定用揮発性粒子除去器に 対する粒子透過率の測定,日本エアロゾル学会,名古屋,2018年7月.
- 4) Akihiro Fushimi, Katsumi Saitoh, Yuji Fujitani, Yu Morino, Takumi Saotome, Nobuyuki
Takegawa, Chemical characterization of ultrafine particles in aircraft emissions observed in the Narita International Airport, Japan: Possible contributions of fuel and lubricating oil, 2018 joint 14th iCACGP Quadrennial Symposium/15th IGAC Science Conference, 高松市, 2018年9月.

- 5) Sakurai, H., Murashima, Y., Fujitani, Y., and Takegawa, N., Accuracy of particle size distribution and number concentration measured by the Engine Exhaust Particle Sizer (EEPS) spectrometer for particles in the size range from 6 nm to 300 nm, ETH Zurich, Switzerland, June 17-20, 2019.
- 村島淑子,桜井博,藤谷雄二,竹川暢之, Engine Exhaust Particle Sizer Spectrometer (EEPS)の個数濃度測定精度の評価方法,第36回エアロゾル科学・技術研究討論会 広島市,2019 年9月4-6日.
- 7) Murashima, Y., Sakurai, H., Fujitani, Y., and Takegawa, N., Laboratory evaluation of an Engine Exhaust Particle Sizer (EEPS) spectrometer for fast measurements of particle number size distributions in aircraft exhaust plumes, AAAR 37th Annual Conference, Portland, OR, USA, October 14-18, 2019.
- Fushimi, A., Saitoh, K., Fujitani, Y., and Takegawa, N., Aircraft exhaust nanoparticles: great contribution of jet engine lubrication oil, AAAR 37th Annual Conference, Portland, OR, USA, October 14-18, 2019.
- 9) 長崎 安奈,池田 春輝,竹川 暢之,ナノ粒子組成分析計評価のための航空機潤滑油粒子の生成, 第36回エアロゾル科学・技術研究討論会,広島市,2019年9月4-6日.

8. 引用文献

- Masiol, M., and Harrison, R. M.: Aircraft engine exhaust emissions and other airportrelated contributions to ambient air pollution: A review, Atmos. Environ., 95, 409-455, 2014.
- 2) International Civil Aviation Organization, "Doc 10075. Assembly Resolutions in Force (as of 6 October 2016)" (ICAO, 2017; https://www.icao.int/Meetings/a39/Documents/Resolutions/10075_en.pdf).
- Oberdörster, G., Oberdörster, E., and Oberdörster, J.: Nanotoxicology: An emerging discipline evolving from studies of ultrafine particles, Environ. Health Perspect., 113, 823-839, 2005.
- 4) Jonsdottir, H. R., Delaval, M., Leni, Z., Keller, A., Brem, B. T., Siegerist, F., Schönenberger, D., Durdina, L., Elser, M., Burtscher, H., Liati, A., and Geiser, M.: Non-volatile particle emissions from aircraft turbine engines at ground-idle induce oxidative stress in bronchial cells, Commun. Biol., 2, 90, 2019.
- 5) Herndon, S. C., Jayne, J. T., Lobo, P., Onasch, T. B., Fleming, G., Hagen, D. E., Whitefield, P. D., and Miake-Lye, R. C.: Commercial aircraft engine emissions characterization of in-use aircraft at Hartsfield-Jackson Atlanta International Airport, Environ. Sci. Technol., 42, 1877-1883, 2008.
- 6) Westerdahl, D., Fruin, S. A., Fine, P. L., and Sioutas, C.: The Los Angeles International Airport as a source of ultrafine particles and other pollutants to nearby communities, Atmos. Environ., 42, 3143-3155, 2008.
- 7) Timko, M. T., Onasch, T. B., Northway, M. J., Jayne, J. T., Canagaratna, M. R., Herndon, S. C., Wood, E. C., Miake-Lye, R. C., and Knighton, W. B.: Gas turbine engine emissions: Part II: Chemical properties of particulate matter, J. Eng. Gas Turbines Power, 132, 061505, 2010.

- 8) Lobo, P., Durdina, L., Smallwood, G. J., Rindlisbacher, T., Siegerist, F., Black, E. A., Yu, Z., Mensah, A. A., Hagen, D. E., Miake-Lye, R. C., Thomson, K. A., Brem, B. T., Corbin, J. C., Abegglen, M., Sierau, B., Whitefield, P. D., and Wang, J.: Measurement of aircraft engine non-volatile PM emissions: Results of the Aviation-Particle Regulatory Instrumentation Demonstration Experiment (A-PRIDE) 4 campaign, Aerosol Sci. Technol., 49, 472-484, 2015.
- 9) Lobo, P., Hagen, D. E., Whitefield, P. D., and Raper, D.: PM emissions measurements of in-service commercial aircraft engines during the Delta-Atlanta Hartsfield Study, Atmos. Environ. 104, 237-245, doi: http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosenv.2015.01.020, 2015.
- 10) Moore, R. H., Shook, M. A., Ziemba, L. D., DiGangi, J. P., Winstead, E. L., Rauch, B., Jurkat, T., Thornhill, K. L., Crosbie, E. C., Robinson, C., Shingler, T. J., and Anderson, B. E.: Take-off engine particle emission indices for in-service aircraft at Los Angeles International Airport, Sci. Data, 4, 170198, 2017.
- 11) Durdina, L., Brem, B. T., Schönenberger, D., Siegerist, F., Anet, J. G., and Rindlisbacher, T.: Nonvolatile particulate matter emissions of a business jet measured at ground level and estimated for cruising altitudes, Environ. Sci. Technol., 53, 12865-12872, 2019.
- Takegawa, N., and Sakurai, H.: Laboratory evaluation of a TSI condensation particle counter (Model 3771) under airborne measurement conditions, Aerosol Sci. Technol., 45, 272-283, 2011.
- 13) Takegawa, N., Iida, K., and Sakurai, H.: Modification and laboratory evaluation of a TSI ultrafine condensation particle counter (Model 3776) for airborne measurements, Aerosol Sci. Technol., 51, 235-245, 2017.
- 14) Society of Automotive Engineers, "Procedure for the continuous sampling and measurement of non-volatile particulate matter emissions from aircraft turbine engines: - Aerospace recommended practice 6320" (SAE International, 2018; https://saemobilus.sae.org/content/ARP6320/#scope).
- 15) Takegawa, N., Murashima, Y., Fushimi, A., Misawa, K., Fujitani, Y., Saitoh, K., and Sakurai, H.: Characteristics of sub-10 nm particle emissions from in-use commercial aircraft observed at Narita International Airport, submitted to Atmos. Chem. Phys.
- 16) Misawa, K., Fujitani, Y., Fushimi, A., Murashima, Y., Sakurai, H., and Takegawa, N.: Estimation of particle mass emission indices from in-use commercial aircraft based on filed Observations at Narita International Airport, to be submitted.
- 17) Kinsey, J. S., Dong, Y., Williams, D. C., Logan, R., 2010. Physical characterization of the fine particle emissions from commercial aircraft engines during the Aircraft Particle Emissions eXperiment (APEX) 1-3, Atmospheric Environment 44, 2147-2156.
- 18) Lobo, P., Hagen, D. E., Whitefield, P. D., 2012. Measurement and analysis of aircraft engine PM emissions downwind of an active runway at the Oakland International Airport, Atmospheric Environment 61, 114-123.

Ⅱ-2 超微小粒子状物質の化学分析とモデリング手法開発

国立研究開発法人国立環境研究所

環境計測研究センター	伏見	暁洋
環境リスク・健康研究センター	藤谷	雄二
地域環境研究センター	森野	悠

<研究協力者>

イサラ研究所

代表 齊藤 勝美(国立環境研究所 客員研究員)

平成29年度~令和元年度研究経費(累計額):19,201千円(研究経費は間接経費を含む) (平成29年度:6,071千円、平成30年度:6,760千円、令和元年度:6,370千円)

[要旨]

民間航空機の需要が世界的に見て急速に増えており、航空機排気粒子の環境影響への関心が高まって いる。しかしながら、航空機排気粒子の化学的な特徴や起源には不確実性が大きい。本サブテーマでは、 これまでに開発してきた高感度分析技術に基づき、空港内における超微小粒子状物質(UFP、粒径<100nm) の化学組成の特徴や起源を明らかにすることを主な目的とした。また、移流拡散モデルにおいてUFP数濃 度変化を再現するための計算モジュールを開発することも目的とした。

成田国際空港の滑走路近傍で冬季(2018年2月)および夏季(2018年7-8月)に大気観測を行った。低 圧多段分級インパクター(NanoMoudi-II、MSP)を2台同時に用いて、粒径10 nm~10µmの粒径別試料を 取得した。離発着のある昼間(7:00~22:00)とバックグラウンド試料としての夜間(0:00~6:00)を 分けて採取した。これらの試料に対して、炭素分析法による元素状炭素ECと有機炭素OC、加熱脱着(TD)-GC/MSによる有機成分、PIXE法による元素、イオンクロマトグラフ法によるイオン成分の分析を実施した。 また、当初予定に加えて、リアルタイム粒径分布測定装置(EEPS)による測定を行った。

EEPSにより、航空機の離発着がある場合に粒径10 nm程度をピークとして高濃度のUFP(総粒子数濃度>1×10⁶ cm⁻³)が検出された。化学分析の結果から、昼間のUFP試料(粒径10~32 nm)は、ECではなく OCに富む粒子であることが明らかになった。この観測結果は、サブテーマ(1)で行われた不揮発性粒子 の測定結果と整合的であった。粒子の起源解析のため、ジェット燃料とジェットエンジンオイルの有機 成分と元素の分析も行った。その結果、昼間のUFPのマスクロマトグラム(m/z 85)はジェットエンジ ンオイルのものとよく似ていることが示された。この結果から、航空機排気UFPの起源としてオイルが重 要であることが初めて明らかになった。クロマトグラムから近似的に見積もると、TD-GC/MSで検出され た有機成分の約半分がオイル起源と推定された。これらの知見は、航空機排ガスの環境影響評価、およ び粒子排出の少ないエンジンの開発に貢献するものと考えられる。

さらに、移流拡散モデルに活用するためのボックスモデル計算を行い、凝集の影響を粒径別に推定したところ、UFPの初期濃度が10⁶ cm⁻³以下の場合には凝集による濃度減衰は限定的であることが分かった。 この計算結果は、サブテーマ(4)における空港周辺のシミュレーションに活用された。

[キーワード]

高感度化学分析、粒径別組成分析、モデリング手法開発、高速粒径分布測定、ジェットエンジンオイル

1. はじめに

ジェットエンジン航空機の使用が世界的に急速に増えてきている。航空機は地上から上部対流圏まで 大気中に粒子を直接排出している¹⁾。ターボファンおよびターボジェット航空機エンジンの新しい粒子 状物質排出基準が2020年から施行されたこともあり²⁾、近年、航空機の排気粒子の特性評価に関心が高 まっている。先行研究により、空港周辺の大気中UFPに対して、航空機の影響が水平方向に約16 kmまで 及ぶ可能性が示されている³⁾。UFPは人の気道の奥深くまで侵入し、人の健康に悪影響を及ぼす可能性が 指摘されている^{4,5)}。ディーゼル車の排気の場合、UFPは有機化合物(アルカン、アルケンなど)で主に構 成されており、大気中での寿命はサブミクロン粒子よりも揮発や凝集のため短いと考えられている^{6,7)}。 ジェットエンジンから排出されるUFPの生成メカニズムや大気中での物理化学的変化を理解するには、 現実の使用条件下で航空機から大気中に排出されるUFPの粒径分布や化学組成を把握することが重要で ある。このように、健康・気候影響の観点から、航空機が排出するUFPの特徴を把握することは重要であ るが、その化学的な特徴や起源はよく分かっていない。

2. 研究開発目的

サブテーマ(2)では、これまで開発してきた高感度分析技術に基づき、空港内における超微小粒子状 物質(UFP)の数濃度、質量濃度、化学組成を解明することを主目的とする。さらに、組成分析の結果に 基づき、飛行機から排出されるUFPの起源(ジェット燃料、ジェットエンジンオイル(潤滑油)等)や環境 動態を明らかにする。また、UFPの空港周辺の濃度分布を推定するためのモデリング手法を開発する。こ れらは全体目標①と③に関与する。

3. 研究開発方法

3.1. 成田国際空港における大気観測

サブテーマ(1)(4)と連携し、成田国際空港のA滑走路の近く(滑走路端からの直線距離140m)で冬季 (2018年2月5~26日)と夏季(2018年7月27日~8月15日)にそれぞれ約1ヶ月間大気観測を行った。我々 のサブテーマ(2)では、粒径分布の高速測定と粒径別試料採取と化学分析を行い、結果を解析した。以 下に方法と結果を示す。

空港大気の粒子数濃度粒径分布の高速測定

当初計画していた観測項目に加えて、リアルタイム粒径分布測定装置EEPS (TSI model 3090, 粒径 0.006-0.560 µ m)を用いた数濃度粒径分布の高速測定(1秒)を実施した。EEPSの性能評価については、 サブテーマ(3)において詳しく述べる。

空港大気中粒径別粒子、ジェットエンジンオイル・燃料の化学分析

成田空港冬季観測では、低圧多段分級インパクター(NanoMoudi-II、MSP、粒径10 nm~10 μ mを13段階 に分級)を2台用いて、航空機の離発着のある昼間(7:00~22:00)のみ4日間または2日間連続での粒径 別粒子試料の採取を計3回(2月9~13日、13~17日、19~20日)、航空機の離発着のないバックグラウン ド試料として夜間(0:00~6:00)のみ5日間連続の粒子試料の採取1回(2月22~26日)を行った。 NanoMoudi IIの粒子捕集材には1台は金(AU)ホイル(バックアップフィルターは石英繊維フィルター)、 もう1台にはポリカーボネート(PC)フィルター(孔径0.2 μ m、47mmФを用いた。バックアップフィルタ ーにはテフロンフィルター(TFH-47、堀場製作所)または石英繊維フィルターを用いた。

夏季にも冬季と同様に、航空機の離発着のある時間帯(昼間)のみ4日間連続の試料採取を2回(7月27 ~31日、8月6~10日)、バックグラウンド試料として離発着のない時間帯(夜間)のみ5~6日間連続の 試料採取を2回(8月1~6日、8月11~15日)、計4回の粒径別試料採取を行った。

冬季と夏季の粒径別粒子試料のうち金ホイル試料を用いて、秤量、炭素分析、そして有機成分分析を 行った。粒径別ポリカーボネートフィルター試料を用いて、秤量、元素分析、水溶性イオン成分分析を 行った(図3.2.1)。また、排気粒子の起源解析を進めるうえで重要な、ジェット燃料とジェットエンジ ンオイルの有機成分分析と元素分析も行った。なお、燃料中の硫黄分は粒子の排出特性に大きく影響す るので、その濃度を把握することは重要である。



図 3.2.1 (Iと共用) サンプリングから分析までのフロー。

NanoMoudiIIで採取した粒径別粒子試料(金ホイルフィルター試料及びポリカーボネートフィルター 試料)を用い、試料採取前後での捕集材の秤量値の差から粒子質量を求めた。秤量は気温21.5℃、湿度 35%に調整されたチャンバー(CHAM-1000、 堀場製作所)内に設置した電子天秤(最小表示0.1µg、UMX 2、Mettler Toledo)を用いて行った。ポリカーボネートフィルター試料は、イオンバランサー(TAS-182 NWM, Trinc Corporation)で静電気を取り除いてから秤量した。繰り返し許容誤差を0.5µg(金ホイル) または2.0µg(ポリカーボネートフィルター、石英繊維フィルター)として2 回秤量し、秤量結果を平 均した。石英繊維フィルターは秤量前に24 時間以上チャンバー内で恒量化したが、金ホイルとポリカー ボネートフィルターは吸湿性が小さいため恒量化しなかった。

粒径別試料(金ホイル、バックアップは石英繊維フィルター)に含まれる炭素成分(元素状炭素:EC、 有機炭素:OC、全炭素:TC)を熱分離・光学補正式炭素分析計(Model 2001 Carbon Analyzer、DRI)を 用いてIMPROVEプロトコルで分析した。AUホイルはホイルのブランク影響を低減するため、28mmΦに打ち 抜いた内側エリアの8分の3を扇状に切り出し分析に供した。バックアップフィルターとして使用した石 英繊維フィルターは8 mmφを分析した。

粒径別試料(金ホイル、バックアップは石英繊維フィルター)の有機成分を加熱脱着GC/MS法により分析した。加熱脱着導入には加熱脱着装置(TDU;ゲステル)と昇温気化型GC注入口(CIS 4;ゲステル)を用い、GCには6890 GC (Agilent Technologies)、GCカラムにはDB-5MS(長さ30 m、内径0.25 mm、膜厚 0.25 μ m: Agilent Technologies)、MSには二重収束型質量分析計(JMS-700K、JEOL)を用いた。加熱脱着条件は我々の従来研究⁸⁾と同様とし、MSは質量分解能1,000でScan法(m/z 35~400)で測定した。分析した粒子質量は1~20 μ gである。試料はオートサンプラー(MPS;ゲステル)によりTDU内に入れた後、内標準物質2種類(13 C-PAHs混合試薬とC₂₄D₅₀とC₃₀D₆₂ m アルカン混合試薬)を添加してから加熱脱着を開始した。航空機用の燃料(Jet-A1燃料2種)とJetエンジンオイル2種(Jet 0il IIとJet 0il 254、Mobil、合成エステル油)は、mへキサンで約1,000倍に希釈した後、加熱脱着GC/MSにより粒径別粒子試料の場合と同じ条件で測定した。

粒径別試料(ポリカーボネートフィルター、バックアップはテフロンまたは石英繊維フィルター)に 含まれる元素の定量分析を、日本アイソトープ協会仁科記念サイクロトロンセンター(NMCC)のPIXE装 置を用いて実施した。PIXE分析の照射試料は、捕集試料の一部をマイラー製のターゲットフレームに貼 り付けて作成した。PIXE分析では、スモールサイズのサイクロトロンからの2.9MeVのプロトンビーム(5 mm Φ)を真空チャンバー内で照射試料に照射し、これにより発生した特性X線を低エネルギー用と高エ ネルギー用の2台のSi (Li)検出器で同時に測定してスペクトルを得た。検出された元素のピーク面積を 解析するには解析プログラム "SAPIX"⁹、ピーク面積から定量値を求めるにはExternal-Standard法¹⁰を 用いた。

ジェットエンジンオイルとジェット燃料 (Jet A-1) に含まれる主要元素を大気PIXE (In-Air-PIXE) 法により測定・定量した。分析対象としたエンジンオイルは、多くの航空機に用いられているMOBIL JET 0il II、MOBIL JET 0il 254、及びTurbo 0il 2380とした。燃料は一般的に用いられているJET A-1を、 購入時期による組成(特に硫黄濃度)の変動を把握するため、一箇所(石野礦油、東京都三鷹市)から 5回異なる時期(#1: 2017.9.14、#2: 2017.12.18、#3: 2018.7.17、#4: 2018.8.7、#5: 2018.8.29)に 購入し分析した。エンジンオイルと燃料の元素分析は、日本アイソトープ協会仁科サイクロトロンセン ター(NMCC)の大気PIXE装置で行った。大気PIXE装置は、通常のPIXE装置とは異なりプロトンビームを 大気中に取り出して試料に照射することができるため、液体試料や植物を無処理で元素分析をすること ができる。エンジンオイルと燃料の照射試料は、バッキングフィルムを貼り付けたターゲットフレーム に試料を数µL滴下して作成した。照射試料に照射して発生する特性X線を低エネルギー用と高エネル ギー用の2台のSi (Li)検出器で同時に測定してスペクトルを得た。検出された元素のピーク面積を解析 するには解析プログラム "SAPIX"⁹⁾、ピーク面積から定量値を求めるにはScを内標準とする内標準法¹¹⁾ を用いた。2000 wt-ppm Scの標準物質はオイルベースなので、Scの他にオイル由来の元素が含まれてい る。そのため、Sc標準物質を添加しない試料を測定し、次に試料0.5mLにSc標準試料1mLを加えた測定試 料、Sc標準試料を測定した。エンジンオイルと燃料の元素定量値は、Sc標準試料を加えた測定試料の測 定値からSc標準物質の測定値を差引いて求めた。

大気PIXEでは検出されない低濃度元素を定量するため、上記5検体のジェット燃料(Jet A-1)を以下 に述べる方法で処理し、真空PIXE(通常のPIXE法)で測定した。分析に先立ち、ジェット燃料試料3mLを 10mLガラス管に入れ、N₂ガスを吹き付けて燃料の主成分である有機物を揮発させた。次に、濃硝酸0.5mL と1000wt.ppmのSc標準液(関東化学株式会社)0.5mLをガラス管に加え混合した。内部標準は大気PIXEの 場合と同じScである。真空PIXE分析はNMCCで行った。ターゲットの燃料サンプルに小型サイクロトロン からの2.9 MeVの陽子を照射した⁹⁾。ビーム電流、蓄積電荷、および典型的な測定時間は、20~40 nA、24 ~48 µC、15~20分であり、ビームサイズは5 mm ¢ である。My1ar®ターゲットフレームに取り付けたバッ キングフィルム(4-µm Prolene®)に前処理済の燃料サンプルを2滴(5 µLずつ)ピペットで滴下し、タ ーゲット燃料試料とした。元素の定量は、内標準法で行った¹¹⁾。X線スペクトルは、SAPIXプログラムを 使用して分析した⁹⁾。

イオン成分分析の対象成分は、F⁻、Cl⁻、NO₂⁻、Br⁻、NO₃⁻、SO₄²⁻、シュウ酸イオン(C₂O₄²⁻)、Na⁺、 NH₄⁺、K⁺、Mg²⁺、Ca²⁺とした。15 mL ポリプロピレン製容器にフィルター試料の4分の1を入れ、超純水 (18.2 MQ·cm)を7 mL加えた後、超音波抽出(10 分× 2 回、ASONE 製US-5A)した。抽出液をポアサ イズ0.45 μ m のディスポーザブルメンブレンフィルター(セルロースアセテートタイプ)で濾過し、イ オンクロマトグラフ(Metrohm 製IC850)で分析した。陰イオンの分析のカラムにはShodex IC SI-90 を、 溶離液にはNaHCO₃(1.7 mmol/L) + Na₂CO₃(1.8 mmol/L)を用い、溶離液の流量は1.2 mL/min、試料注 入量は200 μ L とした。陽イオンの分析には、カラムにShodex IC YK-421、溶離液にH₃PO₄(4mmol/L) + 18-Crown-6(0.15 mmol/L)を用い、溶離液流量は1.0mL/min、試料注入量は200 μ L とした。標準溶液濃 度は0.0005、0.001、0.005、0.01、0.05、0.1、0.5、1、2 mg/L とし、レスポンスファクタ(RF、感度 係数または校正係数)法を用いて定量した。

3.2. モデリング手法開発

サブテーマ(4)で移流拡散モデル (EDMS)を用いてUFP数濃度変化を再現するための計算モジュール を検討した。具体的には、CMAQのエアロゾルモジュール¹²⁾に基づくボックスモデル計算を以下の条件で 行った。下記の幾何平均径(質量ベース)の一次有機エアロゾル(POA)の排出を仮定した。

エイトケンモード: 30 nm (SD=1.7)

蓄積モード: 300 nm (SD=2.0)

粗大モード: 6 µm (SD=2.2)

凝集は考慮したが、凝縮・蒸発・沈着は考慮していない。空気塊の希釈率は、プルームモデルを基に、 プルーム中心の濃度変化を計算した(Briggsの内挿式、田園地域、安定度A(不安定)¹³⁾)。POAの初期濃度 は10³, 10⁴, 10⁵ μ g/m³と設定し、そのうち、99%が蓄積モード、1%がエイトケンモードと仮定した(個数 濃度は各々10⁵, 10⁶, 10⁷ cm⁻³ オーダーに相当)。

4. 結果及び考察

4.1. 成田国際空港における大気観測(目標①に対する結果)

空港大気の粒子数濃度粒径分布の高速測定

冬季観測において、EEPSによる総粒子個数濃度は、滑走路側から測定地点に向かう風(北風または東 風)が吹いていて航空機が離着陸したときに一貫して顕著に増加し、1×10⁶ cm⁻³を超えるレベルとなっ た(図4.2.1)。



図4.2.1 EEPSによる総粒子個数濃度(2018年2月15日11~12時)

EEPSで測定された粒子数濃度の粒径分布の典型例を図4.2.2に示す。航空機排気プルーム到達時にモード径は約10 nm以下となった(図4.2.2a)。このモード径はディーゼル排気粒子の値⁸⁾よりも小さく興味深い。一方、航空機排気プルーム非到達時には核モード粒子は観測されなかった。粒子密度を1.0 g/cm³ と仮定し実測された粒子個数濃度から粒子質量濃度を推定すると、凝集モードはプルーム到達時と非到達時で同等なのに対して核モードはプルーム到達時に顕著に増加している(図4.2.2b)。この結果から、粒径30nm以下のUFPに関して、粒子個数だけでなく粒子質量に対しても航空機排気が強く影響していることが強く示唆された。



図4.2.2 EEPS測定による航空機排気プルーム到達時 (Plume) と非到達時 (No Plume) の粒子個数濃度 の粒径分布。 (a) 粒子数濃度。 (b) 粒子個数から推定した粒子質量濃度。両イベントの平均化時間は 約20秒。測定期間は「Plume」が2018年2月15日の11:43:42~11:44:01、「No Plume」が11:43:11 ~11:43:30。

夏季に滑走路側から風が吹いた際の粒径分布、個数濃度レベルは冬季の場合とよく似ており、夏季においてもUFPが高濃度に存在することが明らかになった。沿道大気の場合、夏季には大気中での成分揮発のためUFPの個数濃度が下がるが、それとは大きく異なる結果であり、興味深い。

空港大気中粒径別粒子、ジェットエンジンオイル・燃料の化学分析

粒子の質量濃度、0C、EC、硫黄、他の元素を図4.2.3に示す。粒子質量濃度は、微小モード(直径:0.11 ~0.56µm)と粗大モード(1.0~9.9µm)の二山分布を示した。粒子質量の総濃度は、昼間は9.7~ 13.4µg/m³、夜間は10.7µg/m³であった。UFPの特徴が強く表れると考えられる粒径10~57 nmの間の3 つのステージ(S11~S13)には各々4~10µg程度と、化学分析に足りると思われる量の粒子試料が捕集 された。NanoMoudi II-AUとNanoMoudi II-PCの粒子質量濃度の粒径分布は概ね一致した。

昼間サンプルNo.1とNo.2に関して、0Cは粒径0.11~1.0µmの微小モードだけでなく粒径18~57 nmに も核モードのピークがある二山分布であった。同様に、硫黄も全ての昼間試料において、10~32 nmの核 モードと微小モードの二山の粒径分布を示した。一方、ECは、モード径が0.11~0.56µmの一山分布であ った。

0C、EC、硫黄、他の元素の粒径別割合を図4.2.4に示す。図4.2.5には、昼間と夜間の試料について、 イオン成分を含めた主要成分の構成割合を示す。昼間のサンプルにおいて、ECの占める割合は粒径0.057 ~0.29μm(ステージ8~10)で高く、最大で30%以上を占めた。対照的に、UFPでは0Cの比率が大きく、 昼間サンプルNo.1のUFP(10~32 nm)では、0Cの構成割合は60~67%であった。昼間サンプルNo.1のUFP (10~32 nm)において、元素総量とイオン総量の構成割合はそれぞれ7~28%、5~9%であった。これ らの結果から、様々な使用過程民間航空機から排出されるUFPの主成分が0Cであることが示唆される。先 行研究ではUFPの揮発性とバルク粒子(総粒子)の組成との間に不整合があったが、UFPの主成分が0Cだ という今回の我々の測定結果は、UFPの揮発性が高いという従来の知見と整合するものであり興味深い。



図4.2.3 粒子質量、有機炭素 (OC)、元素状炭素 (EC)、硫黄 (S)、その他元素 (Other elements) の 粒径別大気中濃度。硫黄と他の元素のデータは、各ステージ(粒径)におけるNanoMoudi II-PCサンプル の粒子質量がNanoMoudi II-Auサンプルの粒子質量と等しくなるように調整した。



図4.2.4 (Iと共用) 冬季観測における有機炭素 (OC)、元素状炭素 (EC)、硫黄 (S)、その他元素 (Other elements) の粒径別割合。



図4.2.5 冬季の昼間(サンプルNo.1,2018年2月9~13日)と夜間(サンプルNo.4、2018年2月22~26日) に成田国際空港内で捕集した粒径別粒子の主成分組成(イオンを含む)。元素測定とイオン測定の両方 で測定された成分については重複がある。

我々はさらに、航空機排気UFPに含まれる0Cの詳細な組成分析を行い、その起源や動態を解析した。昼 間(07:00~22:00、航空機の離発着のある時間帯)と夜間(00:00~06:00、航空機の離発着のない時間 帯)に滑走路近くで捕集した粒径別粒子、ジェットエンジンオイルとジェットA1燃料のマスクロマトグ ラム (m/z:85)を図4.2.6に示す。ジェットA1燃料のマスクロマトグラム (炭化水素の指標であるm/z 85) からは一連のmアルカンが検出された。mアルカンの炭素数はC11~C18の範囲で、C14が最大であった。興 味深いことに、自動車に一般的に使用される鉱物油系潤滑剤から検出される「ハンプ」(ベースライン の上昇)が、ジェットオイル (Mobil Jet Oil IIおよびMobil Jet Oil 254)からは検出されなかった。 その一方で、2つのジェットオイルからは、ペンタエリスリトールの脂肪酸エステルと思われる約25本の 強いピークが保持時間約21~29分(分子量約380~530に対応)に検出された(図4.2.6)。ジェットオイ ルの主要構成成分はペンタエリスリトールのC5~C10脂肪酸エステルの混合物であるため^{15,16)}、本研究の 測定結果は妥当と思われる。さらに、3つの化合物群(N-フェニル-ナフチルアミン、アルキルジフェニ ルアミン、リン酸トリクレジル)がジェットオイルから検出された。これらは、ジェットオイルの製品 安全データシート(MSDS)に有害物質として報告されている。これら3つの化合物群と脂肪酸エステルは、 鉱物油系潤滑剤には通常含まれないため、ジェットオイルまたはジェットエンジン排気のよいマーカー になると考えられる。実際、TD-GC-MS分析において、これらのマーカー成分はディーゼル車用の鉱物油 系潤滑油からは検出されなかった。また、nーアルカンは、2つのジェットオイルからは検出されなかった。

昼間の空港大気UFPサンプル(S13:10~18nm、S12:18~32nm、およびS11:32~57 nm)からは、保持時間約21~27分にオイルマーカー(ペンタエリスリトールの脂肪酸エステルと推定)のピークがはっきりと検出された(図4.2.6)。また、保持時間22.3分以降のこれらのピークの強度比は、ジェットオイルの強度比と非常によく似ていた(図4.2.7)。ただし、22.3分以前のピークの強度は、昼間の大気サンプルの方がジェットオイル中よりも低かった。これは、沿道大気やディーゼル排気UFPの場合と同様^{6,7)}、大気中で揮発性成分の一部が揮発したためかもしれない。

昼間の空港大気UFPの保持時間21~27分のピークのマススペクトルは、ジェットオイルのマススペク トルと非常によく似ていた(図4.2.8に例示)。一方、もっと粒径の大きい粒子(例えばS9:105~170 nm やS7:290~560 nm)では、オイルマーカー成分のピークは非常に小さく、夜間に捕集したUFPからは検 出されなかった(図4.2.6)。上述したジェットオイルの他のマーカー成分は昼間のUFPサンプルからは 検出されたが、夜間のサンプルからは検出されなかった。ジェットエンジン排気以外の発生源からの関 与と思われるC22~C33 n-アルカンは、昼間のS9やS7サンプル等からは検出されたが、UFPからは弱いか検 出されなかった。



図4.2.6 (Iと共用) 冬季観測で採取された昼間試料 (サンプルNo.1,2018年2月9~13日) と夜間試料 (サンプルNo.4、2018年2月22~26日)、ジェットエンジンオイル (Jet 0il II)、ジェット燃料 (Jet A1) のマスクロマトグラム (m/z 85) の比較。



図4.2.7 成田国際空港の昼間大気UFP (No.1、2018年2月9~13日、S12、粒径:18~32 nm)、ジェット オイルII、金ホイルブランクのマスクロマトグラム (*m/z* 85)。保持時間23.51分の空港UFP試料とジェ ットオイル試料のマススペクトルを次の図に示す。



図4.2.8 成田国際空港で昼間に捕集したUFP試料(No.1、2018年2月9~13日、S12、粒径18~32 nm)と ジェットオイルIIのマススペクトル(TD-GC-MSクロマトグラムの保持時間23.51分のピーク)。

夏季の粒径別試料についても、冬季と同様に組成分析を行った (図4.2.9)。特に注目している粒径 32nm以下においては、化学組成は冬季と似ていた。UFPの有機成分に関して、冬季のマスクロマトグラム は夏季のものとよく似ていたが、保持時間24分以前のピークは最大約50%夏の方が小さかった。このこと から、あまり顕著な違いはないが、大気中での(外気温での)成分揮発の程度は冬季よりも夏季の方が 大きい可能性がある。



図4.2.9 冬季と夏季の昼間に採取されたUFP試料(S12:18-32nm)のマスクロマトグラム(m/z 85)の 比較。見やすさのためシフトさせている。

PIXE法による元素分析の結果、冬季の航空機離発着時間帯(昼間)の試料からNa、Mg、A1、Si、P、S、 C1、K、Ca、Ti、V、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、Ga、As、Se、Br、Rb、Sr、Hg及びPbの26元素、バッ クグラウンド(夜間)試料からはRbを除く25元素が検出・定量された。主要元素は、Na、Mg、A1、Si、 S、C1、K、Ca、Fe及びZnの10元素であった。このうち、S、K、Ni、Si、Mg、Ca、Feは微小粒径や粗大粒 径だけでなく、UFP側でも濃度の増大が認められたことから、これらの元素に対して航空機の関与が示唆 される(図4.2.10に例示)。

In-Air PIXE法による元素分析の結果、ジェットエンジンオイル3種から検出された元素はリン、硫黄 及び鉄の3種類だけであり、鉱物油に高濃度に含まれるCaやZnは検出されなかった(表4.2.1)。エンジ ンオイルにはリンが1400~2500ppmと高濃度に含まれる一方、硫黄と鉄の濃度は低かった。

同じくIn-air-PIXE法で測定・定量したジェットA1燃料中の硫黄濃度は10 ppm以下から530 ppmと広 い範囲であり、平均濃度は160 ppmであった(表4.2.2)。Jet-A1燃料中のリンは10 ppm以下、鉄は0.5 ppm以下と低かった。

PIXE法で測定・定量したジェットA1燃料中の元素濃度を表4.2.3に示す。In-Air-PIXE法では検出され なかった9つの元素(Si, Cl, K, Ca, Cr, Ni, Cu, Zn, Pb)を定量することに成功した。燃料中の硫黄 濃度は30.4~440ppmであり、In-Air-PIXE法による値と近かった。



図 4.2.10 (Iと共用) 冬季観測における主要元素の粒径別質量割合。各粒径において、PIXE分析による元素定量値が粒子質量に占める割合を表す。

表4.2.1 In-Air-PIXE法によるジェットエンジンオイル中の元素濃度(重量ppm)

Element	JET Oil II	JET Oil 254	Turbo Oil 2380
Р	2500	1400	2500
S	80	<10	90
Fe	2.5	0.5	< 0.5

Element	#1	#2	#3	#4	#5
Р	<10	<10	<10	<10	<10
S	<10	530	140	50	50
Fe	< 0.5	< 0.5	< 0.5	< 0.5	< 0.5

表4.2.2 In-Air-PIXE法によるジェットA1燃料中の元素濃度(重量ppm)

表4.2.3 PIXE法によるジェットA1燃料中の元素濃度(重量ppm) 括弧内はIn-Air-PIXE法による定量値。*1: Not detected.

Element	#1	#2	#3	#4	#5
Na	19.5	14.5	ND	ND	ND
Mg	13.4	ND	ND	ND	7.55
Al	ND*1	ND	5.98	<0.50	ND
Si	11.6	7.71	12.0	22.6	8.26
Р	ND (<10)	ND (<10)	3.03 (<10)	16.7 (<10)	3.52 (<10)
S	46.4 (<10)	440 (530)	110 (140)	49.2 (50)	30.4 (50)
Cl	< 0.50	< 0.50	4.35	< 0.50	<0.50
К	6.80	5.72	6.61	< 0.50	3.65
Ca	7.52	1.15	<0.50	14.4	1.99
V	1.26	ND	ND	2.24	ND
Cr	< 0.10	0.70	0.48	< 0.10	0.54
Fe	1.17 (<0.5)	0.84 (<0.5)	1.38 (<0.5)	4.26 (<0.5)	4.81 (<0.5)
Ni	4.98	2.08	10.4	1.67	0.94
Cu	1.34	0.90	2.30	1.09	0.70
Zn	4.25	6.06	19.7	10.2	13.2
Pb	0.51	0.68	0.68	6.08	1.02

4.2. モデリング手法開発(目標③に対する結果)

ボックスモデル計算を行い、凝集の影響を粒径別に推定したところ、UFPの主要部分であるエイトケン モード粒子の初期濃度が10⁶ cm⁻³以下の場合には凝集による濃度減衰は限定的であることがわかった(図 4.2.11)。ただし揮発の効果は考慮していないことに注意が必要である。この計算結果をふまえ、サブ テーマ(4)において空港周辺の拡散シミュレーションを行う際、UFPの動態はPM_{2.5}と同様と仮定して計 算された。



図4.2.11 (Iと共用) 大気中への放出後の時間経過に伴うCO(トレーサー) と粒子数濃度のシミュレーション結果。(a) 大気中濃度、(b) 粒子個数とCOの濃度比。

4.3.まとめ

成田国際空港の滑走路直近における大気観測及びジェットエンジンオイル、燃料の分析、およびシミ ュレーションによって以下の点が明らかになった。

- ・実大気中で(高負荷時を含む種々の運転状態の平均として)航空機から排出される UFP は EC ではなく 0C に富む粒子であった。この観測結果は、加熱により UFP 個数が激減することと整合的である。
- ・TD-GC/MS 分析の結果から、航空機排出 UFP の有機成分の半分程度がジェットエンジンオイル起源であることが初めて明らかになった。
- ・航空機から排出される UFP のモード径は 10 nm 程度またはそれ以下であった。冬季と夏季の粒子数濃 度粒径分布や UFP の化学組成はよく似ていた。ただし、有機成分分析では UFP 中の揮発性成分の比率 は夏季の方が冬季よりも最大 50%程度低かったことから、大気中での成分揮発の程度は冬季よりも夏 季の方が大きい可能性がある。
- ・昼間に採取された大気粒子において S、K、Ni、Si、Mg、Ca、Feの濃度増大が UFP 側でも認められたことから、これら元素に対する航空機の関与が示唆された。
- ・In-Air PIXE 法による元素分析の結果、ジェットエンジンオイル3種から検出された元素はリン、硫 黄及び鉄の3種類だけであり、鉱物油に高濃度に含まれる Ca や Zn は検出されなかった。
- In-air-PIXE 法で測定・定量したジェット A1 燃料中の硫黄濃度は 10 ppm 以下から 530 ppm と広い範囲であり、平均濃度は 160 ppm であった。また、ジェット A1 燃料を前処理した後 PIXE 法で測定することで、In-Air-PIXE 法では検出されなかった 9 つの元素(Si, Cl, K, Ca, Cr, Ni, Cu, Zn, Pb)の定量に成功した。
- ・ボックスモデル計算により凝集の影響を粒径別に推定したところ、凝集による濃度減衰は限定的であることがわかった。この結果に基づき、サブテーマ(4)において、空港周辺の拡散シミュレーションを行う際、UFPの動態は PM2.5と同様と仮定して計算された。

5. 本研究により得られた成果

(1)科学的意義

サブテーマ(2)の研究グループが培ってきたUFPの試料採取や高感度分析技術を駆使することで、航空機が排出するUFPの化学組成が初めて網羅的に示された。また、航空機排気由来のUFPにジェットエンジンオイルが強く関与していることが初めて明らかになった。このことから、オイル回収機構の改良などによってジェットエンジンオイルの大気への放出を減らすことができれば、航空機からの粒子排出を大幅に低減できる可能性がある。これらの知見は、ICAO排出規制への対応、新規エンジン開発、空港周辺環境への影響評価の観点で重要と考えられる。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

環境省の「船舶・航空機排出大気汚染物質の影響把握に関する検討委員会」にサブテーマ(2)の代表 である伏見は研究代表者の竹川とともに委員として出席してきた。当該検討会では、成田国際空港にお ける大気観測やそれに基づく空港周辺のシミュレーションなど、本推進費の研究成果が定期的に報告さ れ、相互に情報・意見交換が行われた。また、当該検討会での文献レビューで、本推進費の研究論文 (Fushimi et al., 2019)が取り上げられた。

<行政が活用することが見込まれる成果>

2019年6月のスイスETHでの国際会議において、本推進費の成果を伏見、齊藤、桜井が発表したことを 契機として、伏見、齊藤、竹川がSAE-E31(航空機排ガス測定に関する国際的な専門委員会)にオブザー バーとしての参加を招待された。2020年1月にはイギリス・カーディフで開催された会合に参加し、成田 国際空港で実施した大気観測により得られた知見について報告・議論を行った。当該SAE会合においても ジェットエンジンオイルに関する話題が頻繁に取り上げられており、当該推進費の成果が一定の影響を 与えたことが伺える。

6. 国際共同研究等の状況

同じく2019年6月のETHでの国際会議を契機にスイスの研究グループ(Zurich University of Applied Sciences のDr. Julien Anet, Dr. Lukas Durdina 他)との交流を開始した。スイスのチューリッヒ国際空港内にあるジェットエンジンのメンテナンス・排気計測施設(SR Technics)を用いた国際共同研究を、2020年度からの推進費の新規課題(5-2004)の枠組みで開始するに至った。このスイスの研究グループは、長年にわたって航空機排気粒子の国際規制等に中心的に関わっている。したがって、ICAOやSAE-E31会合において我々の共同研究成果を発信していくことが可能であり、日本からの情報発信の場として非常に有用なものになると期待される。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文(査読あり)>

- Fushimi A., Saitoh K., Fujitani Y., Takegawa N. (2019) Identification of jet lubrication oil as a major component of aircraft exhaust nanoparticles, Atmos. Chem. Phys., 19, 6389-6399.
- Saitoh K., Fushimi A., Sera K., Takegawa N., Elemental analysis of jet engine lubrication oil and jet fuel using in-air PIXE, International Journal of PIXE, in press.
- Saitoh K., Fushimi A., Sera K., Takegawa N., Quantification of major and trace elements contained in aircraft JET A-1fuel by PIXE analysis, International Journal of PIXE, in press.

<査読付論文に準ずる成果発表>

<その他誌上発表(査読なし)>

1) 齊藤勝美、伏見暁洋、藤谷雄二、森野悠、早乙女拓海、竹川暢之、世良耕一郎(2019) ジェット エンジンオイル・燃料と成田国際空港滑走路近傍で捕集した粒径別粒子(粒径10 nm-10 µm)の 元素組成,NMCC 共同利用研究成果報文集24 (2017年度),41-52.

(2) 口頭発表(学会等)

- 1) 齊藤勝美,伏見暁洋,藤谷雄二,森野悠,早乙女拓海,竹川暢之,世良耕一郎(2018.5.11-12, 盛岡)ジェットエンジンオイルと燃料の元素組成,第24回NMCC共同利用研究成果発表会,7.
- 2) 齊藤勝美, 伏見暁洋, 藤谷雄二,森野悠,早乙女拓海,竹川暢之(2018.9.12-14,福岡)成田 国際空港滑走路近傍で捕集した超微小粒子状物質の元素特徴,第59回大気環境学会年会,講演要 旨集,216.
- 3) Fushimi A., Saitoh K., Fujitani Y., Takegawa N. (June 17th 20th, 2019 at ETH Zurich, Switzerland) Jet engine lubrication oil as major component of aircraft exhaust nanoparticles, 23rd ETH-Conference on Combustion Generated Nanoparticles, Book of Abstracts Paper, 23-24.
- 4) 伏見暁洋、齊藤勝美,藤谷雄二,竹川暢之(2019.9.18-20,東京都府中)航空機ナノ粒子の物理・化学特性(4):有機組成と起源,第60回大気環境学会年会,3E0945,512.
- 5) 齊藤勝美,伏見暁洋,藤谷雄二,竹川暢之(2019.9.18-20,東京都府中)航空機ナノ粒子の物理・ 化学特性(5):化学組成,第60回大気環境学会年会,3E1000,513.
- 6) 齊藤勝美,伏見暁洋,竹川暢之,世良耕一郎(2019.11.13-15,東京・二子玉川)ジェット燃料 (JET A-1)の含有元素,第35回PIXEシンポジウム,14.

【他サブテーマとの共著】

- 7) 竹川暢之,三澤健太郎,早乙女拓海,村島淑子,伏見暁洋,桜井博(2019.1.25,東京都足立区)航 空機からの粒子排出係数の推定,大気環境学会 自動車環境分科会 シンポジウム,"陸・海・空 移動発生源のPM2.5低減への取り組み.
- 8) Takegawa N., Misawa K., Fushimi A., Murashima Y., and Sakurai H. (October 14-18, 2019, Portland, Oregon, USA) Particle number emission factors from individual in-use aircrafts observed at the Narita international airport, 37th AAAR (American Association for Aerosol Research) Annual Conference, Abstract Number 419,11CO.6.
- 9) 三澤健太郎,竹川暢之,藤谷雄二,伏見暁洋,村島淑子,桜井博(2019.9.5-6,広島県東広島) 航空機排ガスの粒子質量排出係数の推定,第36回エアロゾル科学・技術研究討論会,A216,177-178.
- 10) 竹川暢之, 三澤健太郎, 伏見暁洋, 村島淑子, 桜井博(2019.9.5-6, 広島県東広島) 成田国際空 港で測定された民間航空機からの粒子排出特性, 第36回エアロゾル科学・技術研究討論会, A215, 175-176.
- 11) 竹川暢之,三澤健太郎,伏見暁洋,村島淑子,桜井博(2019.9.18-20,東京都府中) 航空機ナノ粒 子の物理・化学特性(1): 粒子数排出係数,第60回大気環境学会年会,3E0900,509.
- 12) 三澤健太郎,藤谷雄二,伏見暁洋,村島淑子,桜井博,竹川暢之(2019.9.18-20,東京都府中)航 空機ナノ粒子の物理・化学特性(3):粒子質量排出係数,第60回大気環境学会年会,3E0930, 511.
- 13) 竹川暢之,村島淑子,伏見暁洋,三澤健太郎,藤谷雄二,齊藤勝美,桜井博(愛知県蒲郡,2019 年11月5日~7日) 航空機からのナノ粒子排出特性,第24回大気化学討論会,5.

(3) 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

(4) 「国民との科学・技術対話」の実施

国立環境研究所夏の大公開(2019年7月20日)「粒子をみてみよう」と題して、来場者に簡単な実験 をして頂いた。

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

(6) その他

【受賞】

 Trojan Horse Award 2019 (Swiss Association "Doctors for Environmental Protection") (June 17th - 20th, 2019)

受賞対象者: Katsumi Saitoh

- 受賞の根拠となった発表: Saitoh K., Fushimi A., Fujitani Y., Takegawa N. (June 17th 20th, 2019, ETH Zurich, Switzerland) Characteristics of chemical composition for ultrafine particle collected at Narita International Airport, 23rd ETH-Conference on Combustion Generated Nanoparticles, Book of Abstracts Poster, 101-102. http://nanoparticles.ch/2019_ETH-NPC-23_Trojan_horse_awards.html
- 2) 日本エアロゾル学会「エアロゾル計測賞」(2019年9月5日) 受賞対象:伏見暁洋、加熱脱着GC/MS 法による高感度有機分析法の開発とナノ粒子への適用

【 査読付き学術誌に投稿中の論文(他サブテーマとの共著)】

1) Takegawa, N., Murashima, Y., Fushimi, A., Misawa, K., Fujitani, Y., Saitoh, K., and Sakurai, H., Characteristics of sub-10 nm particle emissions from in-use commercial aircraft observed at Narita International Airport, submitted to Atmos. Chem. Phys. (Atmos. Chem. Phys. Discuss. で公開済)

【学会におけるポスター発表】

- Fushimi A., Saitoh K., Fujitani Y., Morino Y., Saotome T., Takegawa N. (2018. 9. 25-29, Takamatsu, Kagawa, Japan) Chemical characterization of ultrafine particles in aircraft emissions observed in the Narita International Airport, Japan: Possible contributions of fuel and lubricating oil, 14th iCACGP and 15th IGAC Symposium, 1.029.
- 2) Saitoh K., Fushimi A., Fujitani Y., Takegawa N. (June 17th 20th, 2019 at ETH Zurich, Switzerland) Characteristics of chemical composition for ultrafine particle collected at Narita International Airport, 23rd ETH-Conference on Combustion Generated Nanoparticles, Book of Abstracts Poster, 101-102.
- Fushimi A., Saitoh K., Fujitani Y., Takegawa N. (October 14-18, 2019, Portland, Oregon, USA) Aircraft exhaust nanoparticles: great contribution of jet engine lubrication oil, 37th AAAR (American Association for Aerosol Research) Annual Conference, Abstract Number 401, 9CO. 4.

8. 引用文献

1) Masiol, M. and Harrison, R. M.: Aircraft engine exhaust emissions and other airportrelated contributions to ambient air pollution: A review, Atmos. Environ., 95, 409-455, https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2014.05.070, 2014.

- International Civil Aviation Organization: Assembly Resolutions in Force (as of 6 October 2016), Doc 10075, 2017.
- 3) Hudda, N., Gould, T., Hartin, K., Larson, T. V., and Fruin, S. A.: Emissions from an international airport increase particle number concentrations 4-fold at 10 km downwind, Environ. Sci. Technol., 48, 6628-6635, https://doi.org/10.1021/es5001566, 2014.
- 4) Oberdörster, G., Finkelstein, J. N., Johnston, C., Gelein, R., Cox, C., Baggs, R., and Elder, A. C.: Acute pulmonary effects of ultrafine particles in rats and mice, Res Rep Health Eff Inst, 5-74; disc 75-86, 2000.
- 5) Biswas, P. and Wu, C. Y.: Nanoparticles and the environment, J. Air Waste Manage. Assoc., 55, 708–746, 2005.
- 6) Fushimi, A., Hasegawa, S., Takahashi, K., Fujitani, Y., Tanabe, K., and Kobayashi, S.: Atmospheric fate of nuclei-mode particles estimated from the number concentrations and chemical composition of particles measured at roadside and background sites, Atmos. Environ., 42, 949-959, 2008.
- 7) Harrison, R. M., Jones, A. M., Beddows, D. C. S., Dall' Osto, M., and Nikolova, I.: Evaporation of traffic-generated nanoparticles during advection from source, Atmos. Environ., 125, 1-7, 2016.
- Fushimi, A., Saitoh, K., Fujitani, Y., Hasegawa, S., Takahashi, K., Tanabe, K., and Kobayashi, S.: Organic-rich nanoparticles (diameter: 10-30 nm) in diesel exhaust: Fuel and oil contribution based on chemical composition, Atmos. Environ., 45, 6326-6336, 2011.
- 9) Sera K., T. Yanagisawa, H. Tsunoda, S. Futatukawa, Y. Saitoh, S. Suzuki and H. Orihara, "Bio-PIXEat the Takizawa facility (Bio-PIXE with a baby cyclotron)", Int J PIXE, 2, 325-330 (1992).
- Sera K., S. Futatsugawa and K. Saitoh, "Method of quantitative analysis making use of bromine in aNuclepore filter", Int J PIXE, 7, 71-85 (1997).
- 11) Futatukawa S., S. Hatakeyama, Y. Saitoh and K. Sera, "Present status of NMCC and samplepreparation method for bio-samples", Int J PIXE, 3, 319-328 (1993).
- 12) Binkowski, F. S., and S. J. Roselle, Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) model aerosol component, 1, Model description, J. Geophys. Res., 108(D6), 4183, 2003.
- 13) 環境庁, 浮遊粒子状物質汚染予測マニュアル, 198-201, 1997
- 14) Fushimi, A., Kondo, Y., Kobayashi, S., Fujitani, Y., Saitoh, K., Takami, A., and Tanabe, K.: Chemical composition and source of fine and nanoparticles from recent direct injection gasoline passenger cars: Effects of fuel and ambient temperature, Atmos. Environ., 124, 77–84, 2016.
- 15) Timko, M. T., Onasch, T. B., Northway, M. J., Jayne, J. T., Canagaratna, M. R., Herndon, S. C., Wood, E. C., Miake-Lye, R. C., and Knighton, W. B.: Gas Turbine Engine Emissions - Part II: Chemical Properties of Particulate Matter, J. Eng. Gas Turbines Power, 132, 061505-1-061505-15, 2010.
- 16) Yu, Z., Herndon, S. C., Ziemba, L. D., Timko, M. T., Liscinsky, D. S., Anderson, B. E., and Miake-Lye, R. C.: Identification of lubrication oil in the particulate matter emissions from engine exhaust of in-service commercial aircraft, Environ. Sci. Technol., 46, 9630-9637, 2012.

Ⅱ-3 国際標準に準拠した粒子濃度計測の精度評価

国立研究開発法人産業技術総合研究所

計量標準総合センター 物質計測標準研究部門 粒子計測研究グループ 桜井 博

〈研究協力者〉

計量標準総合センター 物質計測標準研究部門 粒子計測研究グループ 析島 淑子

平成29~令和元年度研究経費(累計額):5,291千円(研究経費は間接経費を含む) (平成29年度:3,081千円、平成30年度:1,820千円、令和元年度:390千円)

[要旨]

サブテーマ(1)(2)による成田国際空港における実大気観測に使用した粒子数濃度測定器、前処理装置(加熱・希釈器)、粒径分布測定器に対して、産総研の管理する粒子計測標準に準拠した試験・校正を行った。産総研が既に所有していた試験・校正設備に加えて、本研究のために新たな試験設備を構築した。航空機排ガス測定に関わる国際規格(SAE規格)との整合性について詳細に検討を行い、上記の試験設備の妥当性を確認した。

これらの設備を用いて各種試験を実施し、サブテーマ(1)で用いた粒子数濃度測定器と加熱・希釈器 が、航空機排ガス規制における測定精度の要求仕様を満たすことを確認した。また、サブテーマ(2)で 用いた粒径分布測定器に対して、航空機排ガスで特に重要となる粒径10 nm近傍での測定精度を重点的 に調べた。当該測定器は濃度を過小評価しつつも、モード径は精確に測定していたことを確認した。さ らに、粒径分布測定器の検出効率の特性を詳細に評価することで補正係数を導出し、航空機排ガスと同 様の粒径分布を持つエアロゾルに対して、測定の定量性・信頼性の大幅な向上に資する新しい方法を考 案した。

[キーワード]

試験・校正、国際標準、不確かさ

1. はじめに

航空機から排出される超微小粒子状物質の測定においては、測定に用いる濃度測定器や粒径分布測定 器の性能の変動や、前処理として行う希釈や加熱処理での不具合などによって、測定結果に大きな誤差 が生じうる。信頼性の高い測定データを得るためには、測定器や前処理装置の性能とその経時変化を定 量的に調べるための試験・校正が不可欠である。そこで、サブテーマ(3)では空港観測で用いられた機 器の試験・校正に特化した研究開発を行った。

2. 研究開発目的

サブテーマ(3)は全体目標①に対応しており、成田国際空港での実大気観測に用いられた装置に対し て試験・校正を行い、空港観測において得られた観測データの精確さを検証することを主な目的とする。 さらに、観測前後に試験・校正を行うことによって、観測中の測定性能の変動の有無を確認することも 目指す。試験・校正は国際的に認められた規格等に規定されている方法を用いることとし、産業技術総 合研究所(以下、産総研)が開発してきた粒子計測の国家標準を積極的に活用し、客観的な試験・校正 データを取得する。

3. 研究開発方法

3.1. 試験・校正の項目

評価対象とした装置は、超微小凝縮粒子カウンタ(Ultrafine condensation particle counter; UCPC)、 凝縮粒子カウンタ(Condensation particle counter; CPC)、粒子数濃度測定の加熱・希釈器、走査型電 気移動度分級測定器(Scanning mobility particle sizer spectrometer; SMPS)、リアルタイム粒径分 布測定装置(Engine exhaust particle sizer spectrometer; EEPS)である。装置と試験・校正項目の 一覧を表3.3.1に示す。

装置の役割	装置	試験・校正項目		
約乙粉濃度測空	UCPC	検出効率 η(d)		
松丁奴侲及侧足	CPC			
粒子数濃度測定	加劫,杀和兕	揮発性粒子の除去率 VRE(d)		
の前処理	加烈。市权奋	不揮発性粒子の透過率 Pen(d)		
始汉八本测学	SMPS	単分散粒子に対する総個数濃度の感度 η(d,C)		
杜 住刀 巾 例 足	EEPS	多分散粒子に対する dC/dlogd の参照器との比較		

表3.3.1 試験・校正対象装置と試験・校正項目。

粒子数濃度測定装置の試験・校正

粒子数濃度測定器 (UCPC、CPC) に対する検出効率 $\eta(d)$ とは、装置のインレットにおける真の粒子数 濃度 C_0 に対する装置の指示する粒子数濃度 C_1 の比、すなわち $\eta = C_1/C_0$ である。UCPC・CPCの検出効 率は粒径 d の関数であり、UCPCの場合は粒径 2.5 nm付近で、CPCの場合は粒径 10 nm付近において急 激に変化し、小粒径側では検出効率がゼロに、大粒径側ではほぼ 1 になる。(ただし、大粒径側におい て粒径が1 µmを超えると検出効率が再びゼロに低下する。)産総研は国家計量標準機関として気中粒子 数濃度の国家標準を保有し、国家標準へのトレーサビリティが確立された、かつ、CPC校正の国際規格ISO 27891¹¹に準拠した校正サービスを実施している。本プロジェクトにおける校正では、校正結果の精確さ を高めるため、産総研が行っている校正サービスの実績を活用し、国家標準を用いて校正されたファラ デーカップ・エアロゾルエレクトロメータ (AE) を参照標準として用い、ISO 27891の手順にしたがって 実施した。

粒子数濃度測定の前処理装置の試験・校正

加熱・希釈器は、高濃度のエアロゾル粒子を希釈し、UCPC・CPCの測定可能レンジまで粒子数濃度を下 げるとともに、加熱によって揮発性粒子を除去するための前処理装置である。揮発性の粒子に対しては 確実に除去するとともに、不揮発性の粒子に対しては、できる限り損失を生じさせないことが求められる。これらは揮発性粒子除去率VRE(*d*)と不揮発性粒子透過率Pen(*d*)の2つのパラメータによって表され、いずれも粒径*d*の関数である。揮発性粒子除去率 VRE(*d*)は、揮発性粒子が加熱・希釈器内で加熱気化によって消失する割合を表すもので、加熱・希釈器入口での粒子数濃度*C*₁に対する出口での粒子数濃度*C*₂の比に希釈部の希釈倍率(DF)の補正をしたのち、1から差し引いたものである。

$$VRE(d) = 1 - \frac{DF \times C_2}{C_1}$$

除去性能が良ければ100%に近い値となる。

不揮発性粒子透過率Pen(*d*)は、加熱・希釈器内で生じる粒子損失の度合いを表すもので、加熱・希釈器入口での粒子数濃度*C*₁に対する出口での粒子数濃度 *C*₂の比に希釈倍率補正した量である。

$$\operatorname{Pen}(d) = \frac{\operatorname{DF} \times C_2}{C_1}$$

粒子損失が少なければ100%に近い値となる。加熱・希釈器の試験は、試験結果の国際的な整合性を確立 するため、ICAO規制で引用されるSAE APR 6320²⁾において規定された、揮発粒子除去器(Volatile Particle Remover; VPR)の性能試験方法に準拠して行った。

粒径分布測定装置の試験・校正

粒径分布測定器(SMPS、EEPS)に対しては、2種類の試験・校正を行った。1つは単分散粒子、すなわち粒径の揃った粒子を用いた試験・校正、もう1つは多分散粒子、すなわち、大小の粒子が混ざった、粒径分布の広い粒子を用いた試験である。空港で観測する粒子は多分散であることから、試験・校正においても多分散粒子を用いることが望まれるが、その反面、多分散粒子を用いた試験は、結果の定量的な評価が困難である。そこで、実際に測定する粒子に似た多分散粒子ではなく、単分散粒子を用いた校正も行った。単分散粒子を用いた校正では、粒径分布測定器が求めた粒径分布を粒径に対して積分して得られる総粒子数濃度を、参照CPC(国家標準を用いて校正したもの)による総粒子数濃度と比較することで、粒径分布測定器の濃度測定精度をCPCにおける検出効率のような"感度"として定量化し、校正することができる(図3.3.1)。産総研ではこの方法の開発に2014年から取組み、粒径分布測定器の定量的な性能評価に有効であるとの実証データを蓄積しており、その実績を活用して、多分散粒子を用いた半定量的な試験方法と合わせ、本サブテーマにおける試験方法として採用した。



図3.3.1 単分散粒子を用いた粒径分布測定器に対する濃度測定精度試験の概念図。

3.2. 試験・校正設備の具体的構成

試験・校正設備の概要

本プロジェクトにおける試験・校正の実施には、主に3種類の設備の整備が必要であった。第一は、試 験・校正対象測定器と参照測定器とで並行・同時に試験・校正用粒子を測定し、参照測定器との比較に よる性能評価を行う設備である(図3.3.2)。この設備は、粒子数濃度測定器(UCPC、CPC)の検出効率の 校正と、粒径分布測定器(SMPS、EEPS)の単分散・多分散粒子を用いた試験・校正を行うために整備し た。粒子数濃度測定器(UCPC、CPC)の検出効率の校正においては、前述のように、産総研の保有する国 家標準によって校正されたAE(TSI製3068B型)を参照測定器として用いた。粒径分布測定器(SMPS、EEPS) の単分散粒子を用いた校正では、産総研の保有する国家標準によって校正されたCPC(TSI製3775型)を 参照測定器として用いた。粒径分布測定器(SMPS、S936型または3938型)を参照測定器として用いた。産総研が標 準器として運用する粒径分布測定器(TSI製SMPS、3936型または3938型)を参照測定器として用いた。産 総研の粒径分布測定標準器は、粒径に対する粒径標準物質を用いた校正と、粒子数濃度に対する単分散 粒子を用いた校正がなされたものである。図3.3.2に示した比較型試験・校正は、産総研が以前から行っ ている測定であることから、十分な精度が得られると期待される。

第二は、試験対象装置の入口と出口に1つずつ粒子数濃度測定器を取り付け、入口と出口において測定 された粒子数濃度の比から、装置内での粒子数濃度の変化を評価する設備である(図3.3.3)。この設備 は、加熱・希釈器の揮発性粒子除去率と不揮発性粒子透過率を試験するために整備した。2つの粒子数濃 度測定器は、同一メーカー・同一モデルのCPC(TSI製3775型)を使用した。濃度変化率(除去率、透過 率)の測定を高精度で行うには、濃度測定器の濃度応答直線性が重要であるが、使用したCPCは、単一粒 子計数モードでの測定可能濃度上限が5×10⁴ 個/cm³であり、上限濃度以下では良好な濃度応答直線性を 有することが確認できていた。そこで、入口側の粒子数濃度をおよそ5×10⁴ 個/cm³以下にすることで、 濃度変化率の精確な測定を実現した。また、本プロジェクトで整備した試験設備によって除去率と透過 率に対する妥当な試験が得られることを確認するため、後述のように、SAE ARP 6320に沿った試験のな された市販の揮発粒子除去器(Volatile Particle Remover; VPR)を用いた実証試験を行った。図3.3.3 に概要を示した変化率試験については、産総研で通常行っている試験とは異なるため、その妥当性につ いて確認を行う必要がある。



図3.3.2(Iと共用)比較型試験・校正設備の概念図。



図3.3.3 変化率評価型試験設備の概念図。

第三は、上記2つの設備に接続する試験・校正用粒子発生のための設備である。表3.3.2に試験・校正 用粒子の一覧を示す。ショ糖粒子とPSL粒子の発生にはTSI製3480型エレクトロスプレー式エアロゾル発 生器を用いた。煤粒子の発生には、Matter Engineering製CAST-2型のプロパン燃焼エアロゾル発生器を 用いた。銀粒子とテトラコンタン粒子の発生には、管状電気炉を用いた蒸発凝縮型エアロゾル発生器を 自作して用いた。PAO粒子の発生にはTopas製ATM226型アトマイザーを用いた。

単分散粒子の発生には、微分型移動度分析器(differential mobility analyzer; DMA)による電気移 動度分級を利用した。サンプル流量の大きな測定器への単分散粒子の供給を可能にするため、通常のDMA より取り出せる流量が2倍以上大きいDMAを整備した。

煤粒子を不揮発性粒子透過率の試験に用いる場合、350 ℃で加熱処理し、揮発成分を除去したうえで 試験粒子として用いることがSAE ARP 6320に規定されている。これは、煤粒子表面に付着した揮発成分 が加熱管内で蒸発して粒径が小さくなる可能性があり、透過率試験に誤差が生じ得るためである。本プ ロジェクトにおいても管状電気炉を使用し、350 ℃で加熱処理を行った。

装置	試験・校正項目	粒径分布	粒径 (nm)	粒子種
	於山边交 m(4)	出八卦	$5 \sim 30$	ショ糖
			$10 \sim 100$	煤
		平力取	$30 \sim 100$	ポリスチレン
			30 100	ラテックス (PSL)
	揮発性粒子の	用分野	15 30	テトラコンタン
加熱・希釈器	除去率 VRE(d)	甲分取	15, 30	$(C_{40}H_{82})$
	不揮発性粒子の	畄分散	15 30 50 100	煤
	透過率 Pen(d)	平方版	15, 50, 50, 100	(加熱処理後)
	単分散粒子に対す る総個数濃度の感 度 η(d,C)	単分散	$5 \sim 11$	銀
		単分散	$10 \sim 100$	煤
		単分散	$30 \sim 200$	ポリスチレン
SMPS、 EEPS				ラテックス (PSL)
	多分散粒子に対す る dC/dlogd の参 照器との比較	多分散	6, 8, 10 (モード径)	銀
		多分散	20 (モード径)	煤
		多分散	60(モード径)	ポリアルファ
				オレフィン(PAO)

表3.3.2 試験・校正用粒子の一覧。

粒子数濃度測定器の試験・校正

粒子数濃度測定器(UCPC、CPC)の検出効率の校正は、図3.3.2の比較型試験・校正設備によるもので ある。具体的な装置構成を図3.3.4に示す。実験は空港観測前の2017年11月と空港観測後の2018年11月に 行った。粒子発生にはエレクトスプレー式エアロゾル発生器またはプロパン燃焼エアロゾル発生器を用 い、空港観測前は粒径5 nm~30 nmにおいてはショ糖粒子、粒径10 nm~100 nmにおいて煤粒子を発生さ せた。空港観測後は粒子発生器の不具合により一部に空港観測前と異なる粒子種と粒径を用い、粒径6 nm~15 nmにおいてはショ糖粒子、粒径30 nmにおいてはPSL粒子を発生させた。



図3.3.4 粒子数濃度測定器(UCPC、CPC)の検出効率の校正での装置配置図。図中の数値は流量(L/min)を表す。

加熱・希釈器の試験・校正

空港観測に用いた加熱・希釈器のVRE(d)の試験は、図3.3.3の変化率評価型試験設備によるものであ る。具体的な装置構成を図3.3.5に示す。管状電気炉による蒸発凝縮型エアロゾル発生器でテトラコンタ ン粒子を発生させ、Am-241とDMAを用いて粒径15 nmと30 nmの単分散粒子とした。変化率の測定では、入 口側濃度の測定はAPC Aviationの妥当性確認試験の際と同様のCPC(TSI製3775型)を用いたが、出口側 濃度の測定は、入口側濃度測定と異なり、空港観測において加熱・希釈器と一体となったUCPC・CPCによ って行った。加熱管の設定温度は、SAE ARP 6320と同じ350 ℃のほか、空港観測において350 ℃の他に 150 ℃に設定したことに合わせて、150 ℃も加えた。

図3.3.3に概要を示した変化率試験については、産総研で通常行っている試験とは異なるため、その試験方法の妥当性について確認を行う必要がある。そこで、宇宙航空研究開発機構(JAXA)の保有するAVL 製Particle Counter Aviation (APC Aviation)を借用し、そのVPR部に対する試験を行った。APC Aviation は、メーカー (AVL社)による試験において、以下に示すSAE ARP 6320の揮発性粒子除去率 VRE(d) と不 揮発性粒子透過率Pen(d)の要求仕様1、2を満たす装置である。

(仕様1) テトラコンタン粒子に対する除去率VRE(d)は、粒径15 nmと30 nmのいずれも99.9 %以上。

(仕様2)加熱処理された煤粒子に対する透過率Pen(d)は、粒径15 nm、30 nm、50 nm、100 nmでそれぞれ
 30%以上、55%以上、65%以上、70%以上。

APC AviationのVRE(*d*)の妥当性評価を図3.3.6に示す設備を用いて行った。図中に青色で示したもの がAPC AviationのVPR部である。入口側の濃度をCPC-1で、出口側の濃度をCPC-2で測定した。試験粒子に は、管状電気炉を用いた蒸発凝縮型エアロゾル発生器を用いたテトラコンタン粒子を用いた。この図の Heated tube(管状電気炉)にテトラコンタンの粉末を置き、加熱によって気化させ、その後にHeated tube下流で室温のAirを加えることで、蒸気の凝縮を生じさせ、テトラコンタンの多分散粒子を発生させ た。アメリシウム241 (3 MBq)による両極電荷調整を施したうえで、DMAによる電気移動度分級を15 nm と30 nmで行った。電気移動度分級には柴田科学製DMA(分級長80 cm)を使用した。シース流量とエアロ ゾル流量はそれぞれ5 L/minと50 L/minに設定した。VRE(*d*)の測定は、粒径と濃度の安定したところで、 CPC-1とCPC-2による粒子数濃度の記録を1秒間隔で5分間行った。この5分間の測定データを5つの1分間 データに分割し、5回の繰り返し測定データとした。(これらの測定手順は、以降の加熱・希釈器の試験 でも同様とした。) APC Aviationには希釈倍率(dilution factor; DF)として68倍、340倍、1349倍の 3通りが設定可能であったうち、SAE ARP 6320の規定に沿って、68倍についてのみ VRE(*d*)の測定を行 った。



図3.3.5 テトラコンタン粒子による VRE(d) の試験設備の装置配置図。



図3.3.6 APC Aviationを用いた妥当性確認での装置配置図。図中の数値は流量(L/min)を表す。

空港観測に用いた加熱・希釈器のPen(*d*)の試験も、図3.3.3の変化率評価型試験設備によるものである。 具体的な装置構成を図3.3.7に示す。粒径はSAE ARP 6320の要求仕様に合わせて15 nm、30 nm、50 nm、 100 nmとした。VRE(*d*)の試験と同様、Pen(*d*)の試験においても、入口側濃度の測定はCPC(TSI製3775 型)を用い、出口側濃度の測定はUCPC・CPCを用いて行った。加熱管の温度設定は、SAE ARP 6320と同じ 350 ℃のほか、空港観測において350 ℃の他に250 ℃、150 ℃、加熱無しに設定したことに合わせて、 250 ℃、150 ℃、加熱無しを加えた。

同様にAPC AviationのPen(d)の妥当性評価を図3.3.8に示す設備を用いて行った。回転式希釈器による 濃度調節、管状電気炉による350 ℃の加熱処理、アメリシウム241 (3 MBq) による両極電荷調整を施し たうえで、DMAによる電気移動度分級を15 nm、30 nm、50 nm、100 nmで行った。分級粒径に応じて2種類 のDMAを使用した。粒径15 nmと30 nmにおいては、TSI製3085型ナノDMA (分級長5 cm)を使用した。シー ス流量とエアロゾル流量はそれぞれ3 L/minと30 L/minに設定した。粒径50 nmと100 nmにおいては、柴 田科学製DMA (分級長80 cm)を使用した。シース流量とエアロゾル流量はそれぞれ5 L/minと50 L/minに 設定した。図中のSMPSは、DMA分級された粒子の粒径をVPR入口において確認することと、VPR内の加熱部 を通過した後に粒径が変化していないことをVPR出口において確認することを目的として使用した。 Pen(d)の測定は、粒径と濃度の安定したところで、CPC-1とCPC-2による粒子数濃度の記録を1秒間隔で 5分間行った。この5分間の測定データを5つの1分間データに分割し、5回の繰り返し測定データとした。 (これらの測定手順は、以降の加熱・希釈器の試験でも同様とした。) APC Aviationには希釈倍率とし て68倍、340倍、1349倍の3通りが設定可能であったため、3通りすべてについてPen(d)の測定を行った。



図3.3.7 煤粒子による Pen(d)の試験設備の装置配置図。



図3.3.8 APC Aviationを用いた妥当性確認での装置配置図。図中の数値は流量(単位L/min)。

<u>粒径分布測定器(SMPS、EEPS)の試験・校正</u>

粒径分布測定器の試験は成田国際空港における観測の前後に異なるセットアップで実施した。空港観 測前は図3.3.9に示す設備を用いてSMPSとEEPSの試験を行った。試験用粒子に多分散のポリアルファオ レフィン (PAO) 粒子と煤粒子を用いた。煤粒子の場合はモード径を20 nmに、PAO粒子の場合は60 nmと した。参照標準には、Ref. SMPSとRef. CPCを用いた。



図3.3.9 粒径分布測定装置(SMPS、EEPS)の試験の装置配置図。

空港観測後の試験はEEPSを対象として行った。サブテーマ(2)の図4.2.2に示す通り、観測では粒径10 nm近傍にピークを持つ粒径分布が観測されたが、観測前の校正ではこの粒径域でのEEPSの測定精度についての検証が不十分であった。このため、粒径10 nm近傍を中心にEEPSの測定精度を調べる試験を行った。EEPSの試験では、参照装置にCPC(Ref. CPC)とSMPS(Ref. SMPS)を使用した。Ref. CPCとRef. SMPSの両方とも、産総研の保有する気中粒子数濃度標準による校正を行った(図3.3.10)。粒径30 nmから200 nmでは、単分散粒子を用い、Ref. CPCを参照標準として総個数濃度の比較を行った。一方、粒径10 nm付近においては、多分散粒子を用い、Ref. SMPSを参照標準として dC/dlogd の比較を行った。比較においては、Ref. SMPS の粒径区分数をEEPSに合わせ、粒径1桁あたり16区分とした。EEPSの粒径分布算出における装置マトリックスにはdefaultを使用した。



図3.3.10 粒径10 nm近傍を中心としたEEPS試験の装置配置図。

4. 結果及び考察

粒子数濃度測定器の試験・校正

粒子数濃度測定器(UCPC、CPC)の校正結果を図4.3.1に示す。a)は空港観測前、b)は空港観測後の結 果であり、また、赤印はUCPC、黒印はCPCの検出効率を表す。エラーバーは平均の実験標準偏差である。 UCPCとCPCのいずれも、30 nmの検出効率が空港観測の前後で良く一致した。また、他の粒径においても、 観測前後で粒子種・粒径が完全に一致していないことと、粒径30 nm以下ではわずかな配管チューブ形状 の違いが検出効率の校正に影響しうることを考慮すると、一致は良好であり、空港での観測結果の解釈 に影響を及ぼすような大きな差異はなかったと言える。



図4.3.1 粒子数濃度測定器(UCPC、CPC)の検出効率校正の結果。a)空港観測前、b)空港観測後。

加熱・希釈器の試験・校正の妥当性確認

妥当性確認におけるAPC AviationのVRE(d)の測定結果を表4.3.1に示す。粒径15 nmと30 nmのいずれ もVRE(d)は99.9 %を上回り、SAE ARP 6320で規定されたVRE(d)の要求仕様を満たした。このことから、 本プロジェクトにおいて整備したVRE(d)試験設備と、それを用いた試験手順は妥当であると結論した。

d (nm)	DF	$N_{ m in}$ (cm ⁻³)	VRE (<i>d</i>)	拡張不確かさ U(k = 2)	合否 > 99.9 % ?
15	68	5.9 x 10^4	99.995	0.001	合格
30	68	5.7 x 10^4	99.994	0.002	合格

表4.3.1 APC Aviationに対するVRE(d)試験結果。

妥当性確認におけるAPC AviationのPen(d)の測定結果を図4.3.2に示す。粒径ごとに4つのプロットに 分け、1つのプロットの中には3つの希釈倍率設定の結果を示す。SAE ARP 6320で規定されたPen(d)の下 限値(例えば粒径15 nmでは30 %)を水色の横線で示した。全部で12点の試験結果のうち、11点はPen(d) が規定値を数%上回り、試験を行ったAPC AviationがSAE ARP 6320の要求仕様を満たすものであること と整合する結果であった。その一方、粒径15 nm、希釈倍率1349倍の設定では、Pen(d)の値が要求仕様を 下回った。この理由について入念な検討を行ったが、試験設備側に問題は見いだせず、そのため、VPRの 性能が規定値を満たしていなかったとの可能性が残された。Pen(d)の規定を満たさない1ケースについて は、後にAVL社の希釈のアルゴリズムの問題であることが分かった。以上より、APC AviationのPen(d)は SAE ARP 6320の要求仕様を満たすことが確認できたので、本プロジェクトにおいて整備したPen(d)試験 設備と、それを用いた試験手順は妥当であると結論した。



図4.3.2 (Iと共用) APC Aviationに対する**Pen(d)**試験結果。水色の横線は、SAE ARP 6320で規定され た**Pen(d)**の下限値。エラーバーは繰り返しのばらつきに対する拡張不確かさ(包含係数2)を表す。

上記の妥当性確認の結果を利用して、Pen(d)の試験の不確かさ評価を粒径15 nmの場合に対して行った。粒径15 nmを取り上げたのは、Pen(d)の値が小さいことから、繰り返し性と再現性が低く、誤差が生じやすいと考えられたためである。不確かさ評価においては、以下の点を要因として取り上げた。

- ・試験用粒子の粒径の不確かさ: Pen(d)は粒径依存性があるため、試験用粒子の粒径がずれていると、 試験結果に誤差が生じる。まず、APC Aviationについて、粒径に対するPen(d)の感度係数 (dPen(d)/dd の)を実験的に調べ、粒径15 nmにおいては 3 %/nmであることを求めた。次に、本プロジェクトにお いて発生させた粒径15 nmの試験用粒子の粒径の不確かさを評価し、用いた粒径標準粒子の不確かさ などから、標準不確かさを0.4 nmと推定した。これらを合わせ、粒径の不確かさに由来するPen(d)の 標準不確かさは、粒径15 nmにおいては 1.2 %と推定された。
- ・VPR出口側での粒子数濃度測定のばらつき:粒径が小さいためにPen(d)が低く、さらに希釈倍率が高い 場合(すなわち1349倍)、VPR入口の粒子数濃度を5000 個/cm³に設定すると、出口の濃度はおおよそ1 個/cm³である。この粒子数濃度は、試験に使用したCPC(検出流量0.3 L/min)の場合、1分間の計数粒 子数が300個に対応する。この計数粒子数に対するばらつきは、ポアソン確率分布を仮定した場合、相 対標準偏差6%(= $1/\sqrt{300}$)になる。5回の繰り返し測定によって平均値を求める場合、平均値の相対 標準不確かさは6%/ $\sqrt{4}$ = 3%となり、Pen(d) = 30%の場合、標準不確かさは0.9%と推定された。
- ・粒子の帯電状態:2種類の帯電状態を実現し、Pen(d)の値を比較した。1つはDMA分級後の状態である、 全てが+1価の状態、もう1つはDMA分級後にアメリシウム-241を透過させた平衡帯電状態とした。実験 の結果、平衡帯電状態の方がわずかに Pen(d) が大きかった。この要因による15 nmでの標準不確かさ を0.5 %と推定した。
- ・2つのCPCの検出効率の不確かさ:入口と出口の濃度測定に用いたCPCに対しては校正を行い、精確な測定を実現しつつも、小さいながら不確かさが存在する。検出効率の比の標準不確かさは、Pen(d) = 30%の場合は0.5%と推定された。
- ・多価帯電粒子の混在によるPen(d)の偏り:電気移動度分級された試験用粒子には、多価に帯電した粒径の大きな粒子が混入する。粒径が大きな粒子は透過率が高いため、多価帯電粒子の混入はPen(d)の過大評価をもたらす。本プロジェクトで用いた粒子発生器の場合、この要因による標準不確かさは、粒径15 nmでは0.3%であった。

これらの要因を合わせると、Pen(*d*) = 30 %に対し、拡張不確かさは約3 % (包含係数 2) と推定された。本プロジェクトのように、用いた機器に高度な精度管理を行っていても、1割程度の大きさの不確かさが生じるということであり、さらに、機器の校正が適切になされていないなど、精度管理が十分でない場合は、さらに大きな不確かさが生じる可能性があることがわかった。

なお、今回は十分な評価を行えなかったが、粒径が100 nmを下回ると、配管チューブ内を流れる粒子 の損失が生じやすくなる。例えば、同じ流量で同じ長さのチューブを通しても、シリコーンチューブの ような柔らかいチューブの場合、チューブの曲がり具合のわずかな違いによって粒子の透過率が変化し、 粒径によってはチューブ出口の濃度が数 %程度変化しうる。本プロジェクトにおける試験・校正におい ても粒子の輸送にシリコーンチューブを使用しており、試験・校正結果の再現性低下をもたらしている 可能性がある。

加熱・希釈器の試験・校正

成田国際空港の観測で用いた加熱・希釈器について、観測後のVRE(*d*)試験結果を表4.3.2に示す。加熱 管温度350 ℃では、粒径15 nmと30 nmのいずれにおいても、VRE(*d*)は100%となった。表には示してい ないが、観測前も同様の結果であった。このことから、観測に用いた加熱・希釈器は、観測期間にわた って、SAE ARP 6320に規定された揮発性粒子除去性能を満たすことが確認された。加熱管温度を150 ℃ に設定した場合は、予想通りに除去性能が低下し、特に30 nmでは、除去率が40 % (UCPC) ~70 % (CPC) に低下した。このことから、テトラコンタンと同程度の揮発性の粒子の場合は、150 ℃前後が加熱管内 で残存するか消失するかの境界であることが分かった。

同様に観測で用いた加熱・希釈器について、観測後のPen(d)試験結果を図4.3.3に示す。この結果から、 いずれの温度設定においてもPen(d)はSAE ARP 6320で規定された許容下限値を上回ることが分かった。 また、図には示さないが、空港観測前も同様の結果であった。このことから、空港観測に用いた加熱・ 希釈器は、観測期間にわたって、SAE ARP 6320に規定された揮発性粒子除去性能を満たすことが確認さ れた。

観測に用いた加熱・希釈器のVRE(d)の試験結果。 表4.3.2 加熱管温度 分級粒径 VRE (CPC) VRE (UCPC) 30 nm 100.00 100.00 350 °C 15 nm 100.00 100.00 30 nm 68.54 41.00 150 °C 99.90 15 nm 98.57



図4.3.3 (Iと共用)加熱管のPen(d)試験結果。a)はUCPCを、b)はCPCを下流濃度測定に用いた場合の結 果を表す。オレンジ・黄・灰・青色は設定温度の違いを表し、×印はSAE ARP 6320で規定されたPen(d) の許容下限値を表す。

<u>粒径分布測定器(SMPS、EEPS)の試験・校正</u>

SMPSおよびEEPSの多分散粒子を用いた観測前の試験結果を図4.3.4に示す。水色はRef. SMPS、緑色と オレンジ色は空港観測で用いられたEEPSとSMPSを表す。半定量的な比較ではあるが、これら3つの粒径分 布測定器は、a)とb)の両方において、得られた粒径分布が重なっていることが分かる。なお、Ref. SMPS のデータは単分散粒子を用いた校正に基づく濃度補正はなされていない。したがって、この一致からは、 空港観測で用いられたEEPSとSMPSに対する濃度測定の精確さは分からない。濃度測定の精確さについて は、これらの粒径分布測定と同時に行ったRef. CPCによる総個数濃度測定と比較した。その結果、a)に おいて約40 %、b)において約30 %、濃度を過小評価していた。この過小評価は、3つの粒径分布測定器に 対して同様であったということである。

次に、観測後に行ったEEPSに対する試験・校正について述べる。粒径30 nm、60 nm、100 nm、200 nm の単分散PSL粒子に対する試験結果を図4.3.5に示す。図に見られるように、EEPSによって得られた粒径 分布は、Ref. SMPSによる粒径分布に比べて幅が広く高さが低い。また、60 nm、100 nm、200 nmでは、 EEPSは粒径を過小評価している。EEPSによる粒径分布では、10 nmと30 nm付近にノイズのピークが見ら れ、これらは装置のゼロ調節機能を利用しても除去することができなかった。

この結果をさらに詳しく解析するために、EEPSとRef. SMPSの総個数濃度の比較を行った。上記のノイズの影響を除外するため、図4.3.5の両矢印に対応する粒径範囲を積分区間とした。EEPSによる総個数濃度 C_{EEPS} とRef. CPCによる総個数濃度 C_{ref}^* の比較結果を図4.3.6に示す。a)は C_{ref}^* と C_{EEPS} の比較を散布図で示したもの、b)はa)に対し、粒径ごとに直線回帰して得られた傾きと切片を表したものである。

粒径60 nm、100 nm、200 nmにおいては傾きがほぼ1であるのに対し、粒径30 nmでは傾きが0.67であり、 感度が低いことが分かる。また、粒径30 nm、60 nm、100 nmでは切片(オフセット)が数百個/cm³程度 であることが分かった。



図4.3.4 粒径分布測定器の試験結果。a)はモード径20 nmの多分散煤粒子、b)はモード径60 nmの多分散 PAO粒子の結果。



図4.3.5 PSL粒子に対するEEPSとRef. SMPSによる粒径分布の比較。実線はRef. SMPS、破線はEEPSによる粒径分布。



図4.3.6 PSL粒子を用いた総個数濃度比較試験の結果。a) 4つの粒径における C_{ref}^* と C_{EEPS} の比較に 対する散布図。b) 4つの粒径に対しa)の散布図から得られる傾きと切片。

モード径が6 nm、8 nm、10 nmである多分散の銀粒子を用いた試験の結果を図4.3.7に示す。EEPSによ り得られた粒径分布はRef. SMPSによる粒径分布に比べて濃度を過小評価しているが、粒径分布の形に は大きな差異は見られなかった。なお、図4.3.7ではRef. SMPSに対して単分散粒子を用いた校正に基づ く濃度補正が加えられている。特に、モード径は6 nm、8 nm、10 nmのいずれにおいてもEEPSとRef. SMPS が良く一致した。この結果から、空港観測で見られた高濃度粒子の粒径分布は、濃度を過小評価してい たとしても、モード径は精確に測定できていたことを示唆している。

次に、上記の測定データを利用して、EEPSの粒径分布データの補正方法を検討した。初めに、図4.3.7 に示した結果を用い、粒径区分ごとの粒径分布関数の比 [dC/dlogd]_{EEPS}/[dC/dlogd]_{Ref.SMPS} をモード径6 nm、8 nm、10 nmの多分散粒子それぞれについて算出した(図4.3.8)。図4.3.8から、EEPSの補正は各粒 径区分ごとの単純な補正係数では表せないということが分かる。例えば粒径区分10.7 nmに着目すると、 モード径6 nmの粒子を測定した場合、EEPSはRef. SMPSに対して3倍過大評価するが、その一方、モード 径10 nmの粒子を測定した場合、EEPSはRef. SMPSに対し半分以下に過小評価する。このように、測定対 象粒子の粒径分布によって誤差の符号が入れ替わると、1つの補正係数による補正では誤差は解消しない。

以上を踏まえ、EEPSに内蔵された粒径分布算出アルゴリズムを利用しない独自の方法による粒径分布 算出の可能性を検討した。EEPSが測定データとして出力するファイルには、EEPS内部の22個の検出電極 における生の(粒径分布算出アルゴリズム適用前の)粒子電流信号データが含まれるので、この情報を 直接利用することを検討した。検討した方法では、各電極がある特定の粒径区分に対応するとの近似を し、図4.3.7に示したRef.SMPSの dC/dlogd と各電極の電流信号の対応を調べた。例として、第2番電極 に対して行った考察で作成した相関プロットを図4.3.9に示す。決定係数ポに基づいてa)~c)を比較する と、第2番電極における電流信号は粒径区分8.06 nmとの相関が最も高いことが分かる。さらに、8.06 nm に対する相関プロットでの回帰式から、電流から粒径分布関数への変換係数は14451 cm⁻³ fA⁻¹であるこ とが分かる。これと同様にして、第1番から第6番までの電極に対し、最も相関の高い粒径区分を見つけ るとともに、変換係数を決定した。その結果を表4.3.3に示す。第3番電極を除いて決定係数は0.9を上回 ることから、電極と粒径区分の組み合わせによっては、EEPS電流信号とRef.SMPSの dC/dlogd に良い相 関が見られることが分かった。



図4.3.7 モード径6 nm、8 nm、10 nmの多分散銀粒子に対するEEPSとRef. SMPSによる粒径分布測定の 比較。青線はRef. SMPS、オレンジ・黄・灰色線はEEPSによる測定結果。



図4.3.8 モード径6 nm、8 nm、10 nmの多分散銀粒子に対する、EEPSとRef. SMPSの粒径区分ごとの粒径 分布関数の比。粒径区分の代表径 (nm) は、6.04、6.98、8.06、9.31、10.7、12.4、14.3、16.5、19.1。



図4.3.9 EEPSの第2番電極における電流信号とRef. SMPSによる dC/dlogd の相関。a) 粒径区分6.98 nm、b) 8.06 nm、c) 9.31 nm。

EEPS 電極番号	Ref. SMPSの 粒径区分 (nm)	变换係数 (cm ⁻³ fA ⁻¹)	R^2
1	6.98	5. 43 \times 10 ⁴	0.938
2	8.06	1.45×10^4	0.908
3	9. 31	7.46 \times 10 ³	0.815
4	10.7	2.15 \times 10 ³	0.963
5	14.3	1.12×10^{3}	0.915
6	19.1	7.37×10^2	0.984

表4.3.3 第1番から第6番電極に対応する粒径区分、変換係数、決定係数

上記で得られた変換係数を用いてEEPS電流信号から dC/dlogd を算出し、Ref. SMPSとの一致度を調べた。比較結果を図4.3.10に示す。図4.3.7と比較すると、いずれの多分散粒子に対してもRef. SMPSとの一致が大幅に向上し、濃度の過小評価が解消されている。このことから、電流信号に変換係数を乗じる単純な方法によって、粒径分布関数を精確に算出できることが示された。

なお、今回考察した粒径分布算出法は、粒径10 nm近傍に高濃度の粒子が局在し、粒径20 nm以上には ごくわずかな粒子しか存在しない、限られた場合にのみ当てはまるものと考えられる。このような条件 が満たされる場面は限定的と思われるが、航空機排気粒子の測定はこの条件が当てはまる一例である。


図4.3.10 モード径6 nm、8 nm、10 nmの多分散銀粒子に対する、EEPS電流信号から算出した粒径分布と Ref. SMPSによる粒径分布の比較。青線はRef. SMPS、オレンジ・黄・灰色線はEEPSによる測定結果。

5. 本研究により得られた成果

(1)科学的意義

- ・EEPS粒径分布測定器による粒径10 nm近傍での粒径分布測定の精度が明らかになった。EEPSはディー ゼル車・ガソリン車の排ガス測定に長く用いられてきたが、これらの測定では粒径10 nm近傍での測 定精度は重要ではなかった。今後、航空機排ガスの測定において粒径10 nm近傍での精度が重要にな ると予想され、本プロジェクトの成果が活用されると期待される。
- ・SAE ARP 6320において規定されたVPRの不揮発性粒子透過率試験における、Pen(d) 測定の不確かさと その要因が明らかになった。今後、SAE ARP 6320に基づく試験が複数の機関において行われる際、 本プロジェクトで明らかにされた不確かさ要因を一つ一つ検討することによって、良好な再現性を 実現できると期待される。

(2)環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

<行政が活用することが見込まれる成果>

本研究で行ったVPR試験に関わる各要因の不確かさ評価(例えば試験粒子の粒径の不確かさ評価)について、航空機排ガス測定器の主要なメーカーであるAVL社とも情報共有している。今後も継続的に交流することで、これらの評価方法が排ガス測定器の試験手順の一部として取り入れられることが望まれる。

6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<**論文(査読あり)>** 特に記載すべき事項はない。

<査読付論文に準ずる成果発表>

特に記載すべき事項はない。

<**その他誌上発表(査読なし)**> 特に記載すべき事項はない。

(2) 口頭発表(学会等)

1) 村島淑子、桜井博、藤谷雄二、竹川暢之「航空機ナノ粒子の物理・化学特性(2): 粒径分布測定 器の評価」第60回大気環境学会年会(2019)

(3)知的財産権

特に記載すべき事項はない。

(4) 「国民との科学・技術対話」の実施 特に記載すべき事項はない。

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

(6) その他

【査読付き学術誌に投稿中の論文(他サブテーマとの共著)】

1) Takegawa, N., Murashima, Y., Fushimi, A., Misawa, K., Fujitani, Y., Saitoh, K., and Sakurai, H., Characteristics of sub-10 nm particle emissions from in-use commercial aircraft observed at Narita International Airport, submitted to Atmos. Chem. Phys. (Atmos. Chem. Phys. Discuss. で公開済)

【学会におけるポスター発表】

- H. Sakurai, Y. Murashima, H. Fujiwara, N. Takegawa, Uncertainties in the determination of the penetration efficiency of the volatile particle remover used in number emission measurement of non-volatile nanoparticles from aircraft turbine engines, 22nd ETH Conference on Combustion Generated Nanoparticles, Zurich, Switzerland, 2018.
- 2) 桜井博,村島淑子,藤原仁志,竹川暢之,航空機エンジン排ガス測定用揮発性粒子除去器に対する 粒子透過率の測定,第35回エアロゾル科学・技術研究討論会,2018年.
- 3) 村島淑子,桜井博,藤原仁志,竹川暢之,航空機エンジン排ガス測定用揮発性粒子除去器に対する 粒子透過率の測定,第59回大気環境学会年会,2018年.

- Y. Murashima, H. Sakurai, Y. Fujitani, N. Takegawa, Evaluation method for testing accuracy of particle number concentration by Engine Exhaust Particle Sizer (EEPS), Asian Aerosol Conference 2019, Hong Kong, 2019.
- 5) H. Sakurai, Y. Murashima, Y. Fujitani, N. Takegawa, Accuracy of particle size distribution and number concentration measured by the Engine Exhaust Particle Sizer (EEPS) spectrometer for particles in the size range from 6 nm to 300 nm, 23rd ETH Conference on Combustion Generated Nanoparticles, Zurich, Switzerland, 2019.
- 6) 村島淑子, 桜井博, 藤谷雄二, 竹川暢之, Engine Exhaust Particle Sizer Spectrometer (EEPS) の個数濃度測定精度の評価方法, 第36回エアロゾル科学・技術研究討論会, 2019年.
- 7) Y. Murashima, H. Sakurai, Laboratory evaluation of an Engine Exhaust Particle Sizer (EEPS) spectrometer for fast measurements of particle number size distributions in aircraft exhaust plumes, 37th Annual Conference of the American Association for Aerosol Research, Portland, Oregon, U.S.A., 2019.

8. 引用文献

- ISO 27891, Aerosol particle number concentration Calibration of condensation particle counters (2015)
- SAE Aerospace Recommended Practice (ARP) 6320, Procedure for the Continuous Sampling and Measurement of Non-Volatile Particulate Matter Emissions from Aircraft Turbine Engines (2018)

Ⅱ-4 空港起源の超微小粒子状物質の影響評価究

株式会社環境計画研究所	早乙女	、 拓海
株式会社環境計画研究所	神山	敏

平成29年度~令和元年度研究経費(累計額):14,794千円(研究経費は間接経費を含む) (平成29年度:4,914千円、平成30年度:4,550千円、令和元年度:5,330千円)

[要旨]

サブテーマ(4)では、サブテーマ(1)(2)が実施した成田国際空港における実大気観測の補助、およ び数値モデルを用いた航空機排ガスの影響評価手法の構築を目的とした。滑走路近傍は制限区域であり、 観測機器の設置においては高い安全管理が求められる。このために必要な諸手続きを行い、観測作業の 円滑な実施に貢献した。また、観測結果の解釈に資する情報を提供することを目的として、航空機の離 着陸データ、大気汚染物質常時監視データ、気象データ等の解析を行い、成田国際空港における航空機 の活動状況や空港周辺の大気汚染状況を整理した。さらに、2012~2016年度(5年間)を対象として、空 港内及び空港周辺の測定局における大気汚染に係る環境基準の達成状況を確認したところ、光化学オキ シダント以外の物質は概ね達成であった。

航空機排ガス影響評価手法の構築について、航空機排ガス専用のシミュレーションモデルであるAEDT を使用して、成田国際空港を対象とした計算体制を構築した。AEDTでは空港レイアウトや航空機等の各 種排出源の詳細なインプットが必要であり、成田国際空港から提供頂いた情報等に基づいて準備を行っ た。また、AEDTには粒子数濃度を計算する機能がないため、サブテーマ(1)(2)と連携して粒子数濃度 を簡易的に予測するための方法を検討した。

上記モデルを用いて、冬季観測期間中の粒子数濃度のシミュレーションを行った。計算には様々な不 確実性要因があるものの、滑走路近傍および空港周辺の粒子数濃度における実測データに概ね近い値が 得られており、計算結果の妥当性が示された。本研究において構築した影響評価手法は、航空機起源の 大気汚染物質が空港周辺の大気環境に与える影響を予測するための基盤となる。今後、航空機に関わる 環境行政に活用されることが期待される。

[キーワード]

航空機排ガス、超微小粒子状物質、PM2.5、数値シミュレーション

1. はじめに

航空機から排出される大気汚染物質に関する対策等については、国際民間航空機関(International Civil Aviation Organization, ICAO)において、国際的な枠組みの中で規制強化の議論が進められている。航空機起源の大気汚染物質の排出削減等については、ICAOが策定した「国際民間航空条約附属書16」に定められており、国内では「航空法」において当該規則が担保されている。

航空機エンジンから排出される大気汚染物質については、一酸化炭素(CO)、炭化水素(HC)、窒素 酸化物(NO_x)、粒子状物質(PM)を対象とした規制値が設けられている^{1),2)}。COとHCは現行の全てのエ ンジンが規制を満たしているが、NO_xについては段階的な規制強化が図られているところである。PMにつ いては、排ガスをフィルターに通した際の汚れ具合から評価を行う指標であるSN(スモークナンバー) に基づく規制値が定められているが、航空機エンジンから排出される粒子は超微小粒子状物質(UFP)が 主であること等から、2016年9月に開催された第39回ICAO総会において、不揮発性粒子(nvPM)の質量濃 度に関する規制と数濃度に関する測定値の届出義務が設けられた³⁾。さらに、2020年9月に開催された第 40回ICAO総会において、nvPMの数濃度に対する規制値の策定、SNの廃止、環境影響評価方法の策定等が 決議されるとともに、引き続き環境影響や規制値の妥当性等に関する調査を継続することとされた^{3),4)}。

このような背景もあり、近年はUFPに関する研究事例が多く報告されている。空港周辺において測定し た事例では、いずれも空港の風下側で粒子数の濃度が高く、粒径がナノレベルの粒子が主であることが 報告されている^{5,6}。VOCsを測定した事例も報告されており、夏に最も高くなること、トルエンが最も多 く、ベンゼン、イソペンタン、アセチレン、n-ブタンと続くこと等が報告されている⁷⁰。また、エンジン 試験により航空機排ガス中の大気汚染物質を分析した事例も多く報告されており、二次粒子が一次粒子 よりも約2桁大きいこと⁸⁰、高負荷時は潤滑油由来と思われる粒子が支配的であること⁹⁰、低負荷時は二 次粒子の質量の90%以上を有機物が占めること⁸⁰等が報告されている。近年は航空機排ガスの健康影響 に着目した研究結果についても報告されており、空港の風下側で曝露実験を実施した事例¹⁰⁰、空港のエ プロンで採取したガスをマウスに暴露させて影響を調査する事例¹¹⁰等が報告されており、多くの事例は 健康に影響を与えるとされている。一方、詳細なモデルを構築して粒子数濃度分布や航空機の寄与を予 測した事例は限られており、さらなる研究が必要とされている。

2. 研究開発目的

サブテーマ(4)は、サブテーマ(1)とともに全体で掲げた目標①~④の全てに関与しており、具体的 には以下の項目を主な目的としている。

- ・観測に先立ち、成田国際空港内及び空港周辺の大気汚染物質モニタリングデータ、気象データ、航空 機離着陸データ等を解析し、空港周辺の大気環境を把握することによって、観測のための情報(観測 に適した季節、観測地点等)を整理する。
- ・観測期間中の大気汚染物質モニタリングデータ、気象データ、航空機離発着データ、固定発生源等の 活動量データ等を解析し、観測期間中の大気環境及び航空機の活動状況を把握する。
- ・サブテーマ(2)の研究結果を踏まえ、航空機排ガス専用のモデル(Aviation Environmental Design Tool; AEDT)を用いて航空機起源の粒子数濃度を予測するためのモデルを構築する。
- ・構築したモデルを用いて、成田国際空港を対象とした粒子数濃度分布の予測を実施し、航空機排ガスの影響範囲や寄与等を把握する。これらの結果を踏まえ、空港から排出される大気汚染物質の影響評価のための手法を提案する。

3. 研究開発方法

3.1. 成田国際空港における航空機離着陸データ、大気汚染物質モニタリングデータの解析

航空機離着陸データの解析

成田国際空港における滑走路の利用状況や主要な航空機の機種、時刻別の離発着状況等を把握するため、航空機の離発着データ等を収集し、解析を実施した。データ種別、期間、解析項目は以下の通りである。

【データ】成田国際空港株式会社より提供いただいた航空機の離発着データ

機種、離発着時刻、進行方向、利用した滑走路 成田国際空港の時刻表、各エアラインの運航スケジュール、利用するターミナルビル

【期間】 冬季調査の期間:2018年2月5日 ~ 2018年2月26日(22日間)

【解析項目】時刻別の平均離着陸回数、各エアラインの利用状況

大気汚染物質モニタリングデータの解析

【データ】

成田国際空港では、空港管理会社である成田国際空港(株)により、自主的に大気汚染物質の測定(以下、「自主測定局」という。)が実施されている(図3.4.1;青色の丸)。自主測定局うち、A滑走路北局、A滑走路南局、B滑走路北局の3局は空港敷地内に位置する。B滑走路南局はB滑走路の南南東方向約2,200 m地点に位置している(※ 2017年5月12日まで。5月15日より空港内のB滑走路近傍に移動。)。東部局はB滑走路の東側約1,000 m地点の小規模な住宅地に位置し、西側約500 mにごみ焼却施設がある。西部局はA滑走路の西側約1,000 m地点の住宅地(東部局よりも住宅が密集)に位置している。

自主測定局における測定項目を表3.4.1に示した。測定項目や測定器等の測定条件は一般的な大気汚 染物質常時監視局(以下、「常時監視局」という。)と同じである。一方、空港中央から約10 km以内に は6局(一般局:5局、自排局:1局)の常時監視局があるため、これらのデータについても解析に使用し た(図3.4.1の黄色の丸、表3.4.2)。さらに、環境基準が定められている物質(0_x、S0₂、C0、SPM、N0₂、 PM_{2.5})について達成状況を評価した。

なお、自主測定局のデータについては、成田国際空港株式会社より提供いただいた。常時監視局のデ ータについては、国立環境研究所の環境数値データベース、気象データについては気象庁のホームペー ジからダウンロードした。

(環境数値データ (最終アクセス2020.3.30): https://www.nies.go.jp/igreen/)

【期間】自主測定局:2007年4月1日 ~ 2017年3月31日 (10年間) 常時監視局:2009年4月1日 ~ 2017年3月31日 (8年間)

【解析項目】

空港内の風況(自主測定局等の風向・風速データを解析) 空港内の大気汚染状況 (自主測定局の経年変化、月変化、時刻変化) 空港周辺の常時監視局との比較 風向・風速別濃度 大気汚染に係る環境基準との比較



図3.4.1 成田空港周辺の常時監視局及び自主測定局(地図の出典:Google マップ。B滑走路南局は2017年5月12日までの測定地点)。

	測定項目										
測定局名	SO_2	NO	NO ₂	NOx	CO	0x	NM HC	CH4	THC	SPM	PM2.5
A滑走路北	0	0	0	0	0		0	0	0	0	
A滑走路南	0	0	0	0	0		0	0	0	0	
B滑走路北	0	0	0	0	0		0	0	0	0	
B滑走路南	0	0	0	0	0		0	0	0	0	
西部	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	
東部	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	

表 3.4.1 成田国際空港㈱による自主測定局における測定項目。

表 3.4.2 成田国際空港周辺の常時監視局における測定項目。

	測定項目										
測定局名	S0 ₂	NO	NO ₂	NOx	CO	0x	NM HC	CH4	THC	SPM	PM2.5
成田大清水	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	
成田幡谷	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	
成田加良部	0	0	0	0		0	0	0	0	0	0
成田花崎		0	0	0	0					0	0
成田奈土	0	0	0	0		0				0	
芝山山田		0	0	0		0				0	

注:自排局を網掛けで示した。

3.2. 航空機排出ガスを対象とした影響評価手法の構築

使用したシミュレーションモデル

当初計画では、米国連邦航空局(FAA)により開発された航空機排ガス専用のシミュレーションモデル であるEDMS(Emissions and Dispersion Modeling System)を用いて、成田国際空港のモデルを構築す ることを予定していたが、その後、後継モデルであるAEDTが2017年9月にリリースされた。

EDMSとAEDTの相違点を表3.4.3に示す。AEDTはEDMSをベースに最新のデータや知見を踏まえて開発されたモデルであり、Boeing 787やAirbus 350のような最新機種のデータが含まれており、自動車排ガスの予測モデルであるMOVESと連動して航空機以外の発生源についても精度よく予測することが可能であることから、本研究においてはAEDTを使用することとした(図3.4.2)。

	項目	AEDT	EDMS	
1	航空機エンジンの 排出係数(EDB)	ICAO Aircraft Engine Emissions Databank (EDB) , Issue 23c. 17 June 2017.	ICAO Aircraft Engine Emissions Databank (EDB) , Issue 19. 15 April 2013.	
2	航空機の燃料消費 量・排出量モデル	データの有無、運行モードに応 じて最適なモデルを使用	全てBFFM2 (Boeing Fuel Flow Method 2)	
3	自動車(道路、駐車 場)、建設関連	MOVES (Motor Vehicle Emission Simulator) / NONROAD 2008	 MOBILE6 ユーザーが排出係数、稼働時 間等を個別に入力して設定 	
4	大気拡散モデル	AERMOD/AERMET ⇒Ver 16216r/16216 (2016)	AERMOD/AERMET ⇒Ver 12345/12345 (2013)	
5	計算領域	 ● 発生源近傍から全世界まで ● 10,000ft 以上の上空も計算 可能 	 ●発生源近傍 ●上空 3,000 ft まで 	
6	その他 (AEDTの主な追加機 能)	 騒音計算モデル追加 64bit 計算機対応 軍用機の計算が可能 トラジェクトリモデルによる 上空の排出量、濃度分布計算 濃度分布の作図機能 		

表3.4.3 (Iと共用) AEDTの特長。



図3.4.2 AEDTのシステム構成(出典:AEDT 2d Technical Manual, FAA, September 2017.)。

空港レイアウトの設計

AEDTは航空写真や地形図を基に、正確な滑走路や誘導路、建物、道路等の空港レイアウトを設定する ことができる。以降、作成した主なレイアウトの概要を示す。

【滑走路、ターミナル、誘導路】

モデルに設定した滑走路、ターミナル(離発着ゲート)、誘導路を表3.4.4及び図3.4.3に示す。飛行 場内において、航空機が滑走路やターミナル、格納庫、エプロン等の施設間を地上走行するために設け られた道路。タキシング道路とも呼ばれる。滑走路はA滑走路とB滑走路の両方を設定した。ターミナル は面源であり、乗降時や待機時(アイドリング・タキシング)の航空機排出、空港内作業車(GSE)の排 出等が対応する。本調査では第1ターミナル側と第2・第3ターミナル側に分けてモデル化し、衛星画 像を基に領域を指定した。

成田国際空港は各滑走路に対応した複数の誘導路があるが、複雑なオペレーションにより運行されて おり、それらを正確に設定するための根拠となるデータが得られなかったことから、簡略化してターミ ナルと各滑走路の端を結ぶルートのみ設定した。

	X0. 1. 1	
項	目	設 定 値
	滑走路 A滑走路	長さ 4,000 m × 幅 60 m、 標高 43 m ^(出典)
Û	間定路 B滑走路	長さ 2,500 m × 幅 60 m、 標高 43 m ^(出典)
2	誘導路	 ・幅 25 m、 標高 43 m^(出典) ・移動速度 12.1 m/s (モデルのデフォルト値) ※ ターミナルエリア (離発着ゲート)から各滑走路の端に直結する誘導路のみ設定
3	ターミナル(ゲート)	 ・ 空港第1ターミナル側(A滑走路側) ・ 空港第2・第3ターミナル側(B滑走路側)

表3.4.4 滑走路、誘導路、ターミナルの設定値。

出典:成田国際空港株式会社HP (2018.11.6アクセス) https://www.naa.jp/jp/airport/about_layout.html



図3.4.3 成田国際空港レイアウト詳細(空港関連の施設のみ示す。なお、この他に計算時は道路と駐 車場を設定した)。

【建築物等】

空港中央から約5 km四方の主要な建物(概ね高さが20 m以上)をモデルに設定した。空港ターミナル ビル等の空港内の主要施設の高さについては、成田国際空港株式会社より提供頂いたデータにより把握 できた(表3.4.5)。一方、高さの情報が得られなかった建物については、数m程度の誤差が計算結果に 与える影響は小さいと予想されるため、前記した高さが把握できる建物や航空機の全高(約17 ~ 20 m) を参考に、Google Map (3D)から類推した(図3.4.4)。一方、成田国際空港は敷地境界に防音堤・防音 林があり、ある程度の高さがあるためモデルに考慮することとした(場所によらず一律10 mとした)。

建物名	高さ (m)	建物名	高さ(m)
第1旅客ターミナル	28.1	第1貨物ビル	15.6
第2旅客ターミナル	35.0	第2貨物ビル	13.3
管制塔	87.0	第3貨物ビル	17.2
空港管理ビル	63.5	第4貨物ビル	33. 3
NAAビル	29.7	第5貨物ビル	16.1
南オペレーションセンター	36.2	第6貨物ビル	9. 7
ANAスカイセンタービル	29.0	第7貨物ビル	10.4
	25.0	第1貨物代理店ビル	18.5
輸入共同上屋	35.0	第2貨物代理店ビル	19.2
貨物管理ビル	35.4	NCAライン整備ハンガー	38.6

表3.4.5 成田国際空港内及び周辺に位置する建物の高さ。

出典1:成田国際空港株式会社提供資料。

出典2:成田国際空港株式会社HP(2018.11.30アクセス) https://www.naa.jp/jp/airport/about_layout.html。 出典3:NCAライン整備ハンガーパンフレット。(2018.11.6アクセス) https://www.nca.aero/



図3.4.4 建物高さの確認方法の例(ハンガーの図(上段); NCAライン整備ハンガーパンフレット (2018.11.6アクセス) https://www.nca.aero/ 地図(下段);画像 ©2018 Google、Data SIO, NOAA U.S. Navy, NGA GEBCO地図データ ©2018 Google、ZENRIN。) 発生源の設定

【航空機(メインエンジン)】

航空機の活動量は、成田国際空港株式会社より提供いただいたデータ観測期間中の離着陸データを利用した。航空機の年間の活動量については、成田国際空港株式会社による公表資料「空港運用状況(2017年度)」(2017年4月1日~2018年3月31日の実績)を使用した(表3.4.6)。

機種構成のうち、小型機、判別不明の機種、エンジンタイプや排出係数等の情報が得られない機種(主 に小型機)については、「DHC-8-400 (デ・ハビランド・カナダ)」で代用した。なお、これらの機種 グループの構成比は1.2 %と小さい。一方、成田国際空港はエアラインごとに利用するターミナルが割 り当てられているため、観測期間中のデータ(エアライン別の離着陸回数)に基づき設定することとし た(表3.4.7)。なお、各エアラインが利用するターミナルは、成田国際空港のホームページを参考にし た。(成田国際空港 航空会社案内 https://www.narita-airport.jp/jp/t_info)

AEDTは計算対象とする機体の重量や主な搭載エンジン・APU等の性能情報を基に、詳細な排出量を計算 することができる(例えば、機体重量の重い機体は離着陸時の滑走距離が長くなる)。これらの性能情 報については、AEDTの組込みデータを使用することとした。

国内/国際	航空機区分(回)	合 計	宝 △		
国内/国际	旅客便	貨物便	その他	(回)	刮	
国 際 線	171, 731	24,631	2,552	198,914	79 %	
国内線	52,204	686	643	53, 533	21 %	
合 計	223, 935	25, 317	3,195	252, 447	—	

表3.4.6 (参考)離着陸回数(2017年度実績)。

出典:成田国際空港株式会社HP (2018.11.8 アクセス) https://www.naa.jp/jp/airport/unyou.html

表3.4.7 ターミナルの利用状況(構成比)。

ターミナル	主なエアライン ^{出典1、出典2}	構成比 ^{出典1}
第1ターミナル (空港西側、A滑走路側)	 ・ 全日本空輸 (ANA) ・ ユナイテッド航空 (UAL) ・ デルタ航空 (DAL) ・ 大韓航空 (KAL) ・ 中国国際航空 (CCA) ・ ベトナム航空 (HVN) など計 45 社 	46.7 %
第2・第3ターミナル (空港東側、B滑走路側)	 ・日本航空 (JAL) ・ジェットスター・ジャパン (JJP) ・バニラエア (VNL) ・キャセイ パシフィック (CPA) ・中華航空 (CAL) ・ティーウェイ航空 (TWB) など計 42 社 	53.3 %

出典1:成田国際空港株式会社 提供データ (2018.2.6-26)

出典2:成田国際空港 航空会社案内(2018.11.14 アクセス) https://www.narita-airport.jp/jp/t_info 注1:利用するターミナルビルの情報が判明したエアラインの離着陸回数のみを使用した。 注2:モデルに設定した数値(構成比)を太枠の数値で示す。 【航跡(Track)】

AEDTは滑走路ごとに航空機の航跡を設定することによって、上空(クライム、クルーズ)の排出量を 計算することができる。そのため、本調査では成田国際空港における航跡図(図3.4.5)を参考に、空港 周辺の範囲(概ね千葉県内)の航跡を設定した。参考として、AEDTにおける離陸時の航跡の計算結果を 図3.4.6に示す。



図3.4.5 航跡の設定(出典:成田空港 環境こみゅにてい)。 (2018.12.3 アクセス http://airport-community.naa.jp/course/)。



図3.4.6 AEDTにおける航跡の計算結果の例(エアバス A300-622R)。

【空港内作業車(GSE)】

AEDTはインプットする航空機の機種ごとに、離着陸時に使用するGSEを定義する必要がある。本調査で は成田国際空港のGSE利用状況に関する詳細なデータが得られていないため、AEDTデフォルトの設定値 を使用した(表3.4.8)。

東雨 夕		k/t 生.	1回あたりの稼働時間(分)		
中国	1/1	<i>K</i> //14	離陸時	着陸時	
1	トーイングカー	ディーゼル	8	0	
2	AC電源車	ディーゼル	7	0	
3	給水車	電力	12	0	
4	給油車両	ディーゼル	$12 \sim 20$	0	
5	冷暖房車	電力	23	$0 \sim 7$	
6	手荷物トラクター (タグ車)	ガソリン	$18 \sim 60$	$0 \sim 60$	
\bigcirc	ベルトローダー	ガソリン	$15 \sim 24$	$0 \sim 24$	
8	キャビンサービストラック	ディーゼル	$10 \sim 18$	$0 \sim 17$	
9	ハイリフトローダー	ディーゼル	40	$0 \sim 40$	
10	トイレトラック	ディーゼル	0	$0 \sim 25$	
11	ケータリングトラック	ディーゼル	$8 \sim 10$	$0 \sim 10$	
12	サービストラック	ディーゼル	8	$0 \sim 7$	

表3.4.8 モデルに設定したGSE及びパラメータの例。

【補助動力装置(APU)】

APU (Auxiliary Power Unit)とは、航空機の各部に圧縮空気や油圧、電力を供給するために搭載され た小型のエンジンである。ジェットエンジンを起動するために必要な圧縮空気の供給、また駐機中にお ける各装置への空気圧や電力等の動力の供給等に利用される。各機種に対応するAPUについて、成田国際 空港における個別の情報が得られていないため、AEDTのデフォルト設定を使用することとした(表3.4.9、 APUの稼働時間は13分/回)。

なお、成田国際空港ではAPUの使用制限措置がとられており、GPU(地上動力施設)の利用率が2016年 度は85.2 %と高い水準となっているため、計算値は実際よりも過大となっている可能性がある。ただ し、供給電力不足やオペレーション時間短縮等の理由により、GPUの利用率が低下していることに留意す る必要がある。

機種	名	A P U		
1	Airbus A300B4-600 Series	APU GTCP331-200ER (143 HP)		
2	Airbus A320-100 Series	APU GTCP 36-300 (80HP)		
3	Airbus A321-200 Series	APU GTCP 36-300 (80HP)		
(4)	Airbus A330-200 Series	APU GTCP 331-350		
5	Airbus A330-300 Series	APU GTCP 331-350		
6	Airbus A340-300 Series	APU GTCP 331-350		
\bigcirc	Boeing 737-300 Series	APU GTCP85-129 (200 HP)		
8	Boeing 737-600 Series	APU 131-9		
9	Boeing 737-800 Series	APU 131-9		
10	Boeing 737-900 Series	APU 131-9		

表3.4.9 モデルに設定した機種とAPUの対応関係の例。

バックグラウンド濃度の設定

空港以外の発生源の寄与については、空港周辺の測定局の濃度をバックグラウンドとして加算するこ とで考慮することとした。バックグラウンド局は空港排ガスの影響を受けにくい地点が望ましいため、 各季節における卓越風向に基づき、空港の風上側に位置する測定局を設定した(例えば、冬季は北風が 卓越するため、空港の北側に位置する成田幡谷をバックグラウンド局として使用)。

なお、粒子数濃度は常時監視局で測定していないため、バックグラウンドとして加算できないが、先 行研究及び推進費における観測結果を見る限り航空機の排出が支配的であるため、それ以外の発生源の 影響は小さいと考えられる。

粒子数濃度の計算方法の構築

AEDTでは航空機からの粒子質量排出係数が考慮されており、大気中の粒子質量濃度を計算することが 可能である。一方、本研究で対象とする粒子数濃度の扱いは一般に難しく、モデルでは陽に考慮されて いない。しかしながら、航空機排気粒子の健康影響を考える上では粒子数濃度が重要なパラメータであ ることを考慮すると、不確実性を考慮した上で推定を行うことは重要である。

サブテーマ(1)で実施した観測データの解析結果の通り、航空機からの粒子排出係数には大きな変動 幅がある。離陸時の条件において、粒径10 nm以上の全粒子に対する粒子数排出係数(燃料1 kgあたり) は3.2~5.2×10¹⁶、粒径6-560 nmに対する粒子質量排出係数(燃料1 kgあたり)は31~107 mgであっ た。実際の環境では、粒子排出係数は航空機の運航モードに大きく依存し、粒子数排出係数と粒子数濃 度排出係数は単純な比例関係にはならない。このため、それぞれの下限値(あるいは上限値)は1:1に は対応しない。

ここでは、燃料1 kgあたりの粒子数排出係数として下限値に相当する3×10¹⁶、粒子質量排出係数とし て上限値に相当する100 mgを用いる。サブテーマ(2)におけるUFPのモデル化に関する研究結果から、発 生源のごく近傍を除けば粒子数濃度とPM2.5は同程度の空間広がりを持つと仮定できる。このため、質量 濃度の計算結果に以下のスケーリング因子を適用することによって粒子数濃度に換算した。

 $EN/EM = (3 \times 10^{16} \text{ (B)})/(100 \text{ mg})$

EN:粒子数排出係数、EM:粒子質量排出係数

もし燃料1 kgあたりの粒子数排出係数として上限値に相当する5×10¹⁶、粒子質量排出係数として下限値 に相当する30 mgを用いると、スケーリング因子は上記の6倍程度になる。したがって、モデルで計算さ れる粒子数濃度は最大で6倍程度までの幅を持つ。一方、実測の粒子数濃度も気象条件に応じて大きな変 動を示すことがありうる。このため、粒子数濃度の観測値と計算値の比較は桁での整合性確認までとす るのが妥当である。

気象データ

AEDTは気象条件に応じて航空機の活動量や燃料消費量等を推計するため(※ 航空機パフォーマンス モデル)、地表から上空までの詳細な気象データを準備する必要がある。AEDT専用の気象データは主に NOAAのサイトからダウンロードできるが、対象地域が米国のみであったため、本調査では表3.4.10及び 表3.4.11に示すデータを収集し、独自にAEDT入力形式の気象データベースを作成して使用した。

なお、これらのデータが用意できない場合や簡易的に計算する場合は、空港の年平均値(気温、気圧、 海面更正気圧、相対湿度、露点温度、風速の年平均値)を用いることもできる。

※ 例えば、風速が小さいほど離陸に多くの燃料を使用する、視程が著しく悪い時間帯は離陸しない、向 かい風になるように離陸の方向を選択するなど。

区分	÷	項目	データの出典 等
\bigcirc	航空機パフォー	風向 (度)	・【気象庁】地域気象観測所観測データ (成
	マンスモデル	風速 (Knot)	田空港地方気象台) ^{出典1}
	(航空機燃料消費	気温 (℃)	- 地表付近の値
	量/排出量計算)	露点温度 (℃)	・【気象庁】ラジオゾンデによる上空大気の
		相対湿度 (%)	観測結果(館野) ^{出興2}
		気圧 (mb)	- 上空(ト部成層圏まで)の値
		海面更正気圧 (mb)	
		視程 (m)	• 【NOAA】 NNDC Climate Data Online
		雲底高度 (100*feet)	- 観測サイトは「NARITA」を選択
		雲量 (-)	- CEILING、CLOUD LAYERの値を使用
		雲底高度 (m)	

表3.4.10 使用した気象データ(航空機パフォーマンスモデル用)

出典1:気象庁HP (2018.11.12 アクセス) https://www.data.jma.go.jp/gmd/risk/obsdl/index.php 出典2:University of Wyoming HP (2018.11.12 アクセス)

http://weather.uwyo.edu/upperair/sounding.html

出典3:NNDC Climete Data Online (2018.11.12 アクセス) https://www7.ncdc.noaa.gov/CD0/cdo

表3.4.11 使	「用した気象 [、]	データ(拡	、散計算用)
-----------	---------------------	-------	--------

区分		項目	データの出典 等			
 拡散計 (濃度 	算 分布)	風向 (度) 風速 (Knot) 気温 (℃) 露点温度 (℃)	 ・【気象庁】地域気象観測所観測データ (成田空港地方気象台)^{出典1} - 地表付近の値 ・【気象庁】ラジオゾンデによる上空大気の観測結果(館野)^{出典2} - 上空(下部成層圏まで)の値 			
		雲底高度 (100*feet) 視程 (mi)	・【NOAA】 NNDC Climate Data Online - 観測サイトは「NARITA」を選択 - CEILING、CLOUD LAYERの値を使用			

出典1:気象庁HP (2018.11.12 アクセス) https://www.data.jma.go.jp/gmd/risk/obsdl/index.php 出典2:University of Wyoming HP (2018.11.12 アクセス)

http://weather.uwyo.edu/upperair/sounding.html

出典3:NNDC Climete Data Online (2018.11.12 アクセス) https://www7.ncdc.noaa.gov/CD0/cdo

計算条件

計算領域を図3.4.7、計算条件を表3.4.12に示す。燃料中の硫黄分については、サブテーマ(2)が実施 した燃料の分析結果を参考に200 ppmとした。



図3.4.7 計算領域(緑枠の領域)

項	目	設定値等
1	モデル	【航空機(メインエンジン、APU)】 Aviation Environmental Design Tool (AEDT) Ver.2d 【大気拡散計算(濃度分布、寄与濃度)】 AERMOD/AERMET Ver 16216r/16216 (2016)
2	対象期間	【期間①】 2018年2月5日~23日 (連続19日間) ※ 推進費において実施した2018年冬季観測の期間 【期間②】 2019年1月15日~28日 (連続14日間) ※ 推進費において実施した2019年移動観測の期間
3	大気汚染物質	NOx, SOx, CO, NMHC, PM10, PM2.5
4	計算項目	 ・発生源別の燃料消費量 ・大気汚染物質排出量(地表面、上空) ・濃度分布(発生源別寄与割合)
5	計算領域	 ・ 空港中心から約20 km四方 (図3.4.7) ⇒ X軸200 m×100点 / Y軸200 m×100点 (計算点:10,000) ・ 上記に加え、成田国際空港の大気汚染常時監視局(6地点)の位置 座標を個別に設定
6	燃料中の硫黄分	200ppm

表3.4.12 計算条件(成田国際空港モデル)

4. 結果及び考察

4.1. 成田国際空港における航空機離着陸データ、大気汚染物質モニタリングデータの解析 (目標① ②に対する結果)

前記の解析項目のうち、主な結果を示す。風の測定データと各大気汚染物質の測定データを用いて、 風向・風速階級別に各大気汚染物質の平均濃度を算出した。本研究における観測期間である夏季(8月)・ 冬季(2月)及びA滑走路近傍の測定局(A滑走路北局、A滑走路南局)に着目すると、SO₂は滑走路(航空 機)との対応関係は不明確であったが、濃度が高くなる風向は限られており、A滑走路南局では西風や東 風が卓越する際に濃度が高くなる傾向がみられた(図4.4.1)。



図4.4.1 風向・風速階級別平均濃度 (SO2、NO; 平成19~28年度)

一方、A滑走路南局では、滑走路方向から風が吹く際にNOが高くなる傾向があり、特に風速が大きいほ ど濃度が高く、最大で30ppb程度の差がみられた。一方、NO₂については対応関係が不明瞭であるため、 航空機から排出されたNO_xはNOのまま測定地点に到達していると推察される。この傾向はA滑走路南局ほ ど顕著ではないものの、A滑走路北局でもみられた。ただし、A滑走路北局の場合は、NOよりもNO₂の方が 明確に上昇していた。

成田国際空港における航空機の活動状況について、主な結果を示す。成田国際空港は、国際線の着陸 回数が国内最多であり、国内線と併せても東京国際空港(羽田空港)に次ぐ国内第2位の空港である。 成田国際空港における発着回数の推移を図4.4.2に示す。発着回数は近年(平成24年度以降)増加傾向に あり、平成28年度には245,705回/年に達し、1日あたりの平均発着回数は673回/日となっている。内訳 をみると、国際線の占める割合が徐々に増加しており、平成13年度に3%であったのが、平成23年度に 11%、平成28年度に21%まで増加している。

一方、月別にみると、平成28年度は3月に最大(21,514回)であり、日数の少ない2月に最小(18,977回)となっている(図4.4.3)。結果は割愛するが、日平均でみた場合でも概ね同様の傾向があり、年度によって若干差がみられた。また、月によって日平均発着数に50回程度(約1割)の差がみられた。

一方、実測期間中のA滑走路の利用状況をみると、離陸は9~12時頃と17~19時頃の二つ山のピークで あり、14~16時は着陸が多く、離陸が少ない傾向がみられる等、時間帯による差が顕著であった(図4.4.4 左)。また、結果は割愛するが、観測期間中の時刻別の推移をみると、運航方向が変わる場合は概ね半日 単位であり、同一時刻内に切り替わることは少ないことが確認された。冬季は観測期間を通じて、午前 中は北向運航となることが多くなる傾向がみられた。

エアライン別に集計した結果を図4.4.4右に示す。2018年冬季の観測期間中に離着陸を行ったエアラ インは91社であった。エアライン別の構成比を見ると、全日本空輸(ANA)や日本航空(JAL)等の国内 のエアラインの離発着回数が多く、上位10エアラインが全体の約6割を占めていた。



図4.4.2 成田国際空港における発着回数の推移(年度計)。出典:成田国際空港株式会社ウェブサイト (2017/9/26 アクセス:https://www.naa.jp/jp/airport/unyou.html)を基に作成。



図4.4.3 成田国際空港における月別発着回数の推移(平成28年度)。出典:成田国際空港株式会社ウェ ブサイト(2017/9/26 アクセス:https://www.naa.jp/jp/airport/unyou.html)を基に作成。



図4.4.4 成田空港A滑走路における冬季観測期間中の航空機離着陸状況(2018年2月5日~26日)。(左) A滑走路における時刻別の平均離着陸回数。(右) エアライン別の離着陸回数。成田国際空港株式会社からの提供資料に基づき作成。

大気汚染に係る環境基準との比較

成田国際空港周辺の常時監視局(6局)および自主測定局(6局)について(詳細は図 3.4.1参照)、 0_x、S0₂、C0、SPM、N0₂、PM_{2.5}の6物質を対象として、その達成・非達成の状況を確認した。評価対象年 度は2012年度~2016年度の5年間とした。

各局における評価結果を表 4.4.1 に示す。SO₂、CO、NO_xについては、全ての期間・測定局において環 境基準を達成していた。O_xについては達成率が全国的に低いことから、局所的な発生源(空港)ではな く広域の発生源の影響によって非達成であったものと推察される。同様に、PM_{2.5}が非達成となった 2013 ~2014 年度は全国的に環境基準の達成率が低いことから、O_xと同様に広域的な要因によるものと推察さ れる。なお、SO₂と NO₂については、後述するシミュレーション結果から空港内で最大値が算出された地 点を対象として、計算値に基づく評価を実施したところ、環境基準を達成していると予測された。

物質	評価結果				
SO_2 , CO , NO_2	・全期間、全測定局で達成				
SPM	・A 滑走路南局:2013 年度のみ非達成、それ以外の期間は達成注2				
	・A 滑走路北局:2013 年度のみ非達成、それ以外の期間は達成 ^{注2}				
	・上記以外の測定局は全期間で達成				
O _x	・全期間、全測定局で非達成				
PM _{2.5}	・成田加良部:2013 年度のみ非達成、それ以外の期間は達成 ^{注3}				
	・成田花崎:2013年度、2014年度が非達成、それ以外の期間は達成注3				
	・上記以外の測定局は全期間で達成				
	※自主測定局は PM2.5 の測定なし				

表4.4.1 大気汚染に係る環境基準の評価結果(2012~2016年度)

注1:対象とした測定局は、常時監視局:成田大清水、成田幡谷、成田加良部、成田花崎、成田奈土、芝山山田。 自主測定局:A滑走路南局、A滑走路北局、B滑走路南局、B滑走路北局、西部局、東部局。

注 2:環境基準(1時間値の1日平均値が0.10 mg/m³以下)を超える日が2日以上連続したことにより非達成。 注 3:環境基準のうち、短期基準(1日平均値の98%値が35μg/m³以下)を超過したことにより非達成。

4.2. 航空機排出ガスを対象とした影響評価手法の構築(目標③④に対する結果)

排出量推計結果

AEDTにおける航空機の活動区分を図4.4.5に示す。排出量はこの区分に基づき算出される。成田国際空港における1運航辺りの航空機用燃料の消費量は1日あたり627トンと予測され、このうち75%が離陸時(Taxi Out、テイクオフ、クライム)に消費される(表4.4.2)。成田国際空港では、一日約680回の離着陸があるため、着陸1回あたり約490kg、離陸1回あたり約1,360kgの燃料が消費されると予測された。

一方、大気汚染物質の排出量は運行モードによって差があり、PM2.5はクライム時の排出が最も多く、 全体の70%を占める(表4.4.2、表4.4.3、図4.4.6)。一方、NOxはテイクオフやクライム等、高負荷時の 排出が大部分を占める。SOxは概ね燃料消費量に比例するため、他の物質と比較してTaxi Out、Taxi In 等の負荷率は低いが、活動時間の長い運行モードの排出が大きくなる傾向がみられた。

AEDTにおけるPMは、生成プロセス等に応じて3種類計算され、合計値がPM_{2.5}として出力される (図 4.4.7)。トータルの排出量は、有機物由来のPM (FO) が最も多いが、テイクオフは不揮発性のPM (nvPM) の割合が大きい。



図4.4.5 航空機の運航モード。



図4.4.6 航空機燃料消費量、排出量の構成。



図4.4.7 PM排出量の構成 (kg/日)。nvPM:不揮発性のPM、PM(S):燃料中の硫黄分由来のPM、PM(FO):有機 物由来のPM。

生作 口 2月		燃料消	NO	50	DM10	DM9 E	(注2)		
19F (上	仍尽	費量注1	NOX SOX PMIC		PM10 PM2.5		nvPM	PM(S)	PM(FO)
着陸	アプローチ	110,916	1,019	43	27	27	6	2	19
	ランディング	653	6	0	0	0	0	0	0
	逆噴射	7,557	62	3	1	1	0	0	1
	Taxi In	46, 528	464	40	5	5	1	1	2
離陸	Taxi Out	170,000	766	66	8	8	2	2	3
	テイクオフ	86,765	3,224	34	4	4	2	1	1
	クライム	205,210	5,621	79	164	164	31	11	121
APU		_	240	25	20	20	—	_	—
GSE		_	114	5	6	6	_	—	—
合	計	627,630	11, 518	296	235	234	43	19	147

表4.4.2 運行モード別の燃料消費量、排出量(kg/日)

注1:燃料消費量は航空機用燃料(ジェット燃料)の消費量。

注2:nvPM:不揮発性のPM、PM(S):燃料中の硫黄分由来のPM、PM(F0):有機物由来のPM。

排出源		CO	HC	TOG	VOC	NMHC	C0 ₂	H ₂ 0
着陸	アプローチ	1,240	165	191	190	191	349, 941	137, 204
	ランディング	3	0	0	0	0	2,059	807
	逆噴射	69	8	9	9	9	23,842	9,348
	Taxi In	2,768	306	354	352	354	325, 238	127, 518
離陸	Taxi Out	4,626	505	584	581	584	536, 350	210, 290
	テイクオフ	78	9	11	11	11	273, 208	107,118
	クライム	203	23	27	27	27	636, 588	249, 591
APU		101	9	11	11	11	—	
GSE		848	0	36	34	32	_	_
合	計	9, 937	1,026	1,223	1,214	1,218	2, 147, 226	841,876

表4.4.3 運行モード別の燃料消費量、排出量(kg/日)

観測値との比較

モデルの再現性を確認するため、計算結果と成田国際空港内のモニタリング地点の濃度を比較した。 各物質の比較結果のうち、粒子数濃度(PN)の結果のみ抜粋して示す(図4.4.8)。サブテーマ(1)の観 測結果(A滑走路中央西側)と計算結果の推移は、ともに10⁴~10⁶ cm⁻³の濃度レベルであった。(前述の 通り粒子数濃度は桁で変動するため、縦軸は対数とした)。

空港周辺の粒子濃度分布

図4.4.9に2018年冬季の空港敷地内観測、および2019年冬季の移動観測の条件に対応する粒子数濃度 のシミュレーション結果を示す。滑走路近傍および久住・富里周辺の粒子数濃度は概ね実測に近い桁と なっており、計算結果の妥当性が示された。空港敷地内では、粒子数濃度は滑走路およびターミナルエ リアで高くなっていた。平均的に見ると、粒子数濃度が最も高くなるのはA滑走路東側のターミナルエリ アであった。なお、計算では航空機以外の排出をゼロとしているが、実際は粒子数濃度で10³~10⁴ cm⁻³ のバックグラウンドがある。空港敷地内は定常的な高濃度が見られる一方、空港周辺の粒子数濃度分布 は気象データの精度に強く依存する結果となった。ただし、空港周辺の濃度分布は単純な風上・風下の 関係ではなく、航空機の運行ルート等を反映した分布となっていた。この結果は、図4.1.11で示した移 動観測結果の解釈に対して重要な示唆を与える。前述の通り計算値には不確実性が大きく、観測期間以 外の長期間平均値については比較データがないため、より確実な知見を得るには今後継続的な検証が必要である。



図4.4.8 計算値と実測値のPNの1時間値の比較 (注:計算結果はバックグラウンド濃度として1.0×10⁴ cm⁻³を加算した)。



図4.4.9(左)2018年冬季の空港敷地内観測、および(右)2019年冬季の移動観測の条件に対応する粒子数濃度のシミュレーション結果。バックグラウンド濃度の2次元分布は不確実であるため加算していない。局所的な(放射状の)濃度コントラストは気象データの精度によるところが大きいと考えられる。

5. 本研究により得られた成果

(1)科学的意義

これまで研究事例がなかった航空機から排出される粒子数濃度を計算するためのモデルを構築した。 その結果、空港周辺における航空機由来の粒子数濃度の空間分布を予測することが可能となった。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

環境省の「船舶・航空機排出大気汚染物質の影響把握に関する検討委員会」において、当該サブテー マの研究成果(航空機排出ガスに関する研究動向、モデルを用いた予測手法・結果等)を報告した。

<行政が活用することが見込まれる成果>

本研究において構築した影響評価手法により、航空機排気粒子が空港周辺の大気環境に与える影響を 予測することが可能となる。例えば、行政において航空機・空港に関わる発生源対策を検討する際に、 本研究による評価手法を用いて各種対策の効果を推定・評価することによって、効果的な対策の選定に 活用できると期待される。また、これらの知見を国際会議・委員会等における情報発信に活用すること が期待される。

6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文(査読あり)>

特に記載すべき事項はない。

<査読付論文に準ずる成果発表>

特に記載すべき事項はない。

<その他誌上発表(査読なし)>

【サブテーマ(2)との共著】

1) 齊藤勝美、伏見暁洋、藤谷雄二、森野悠、早乙女拓海、竹川暢之、世良耕一郎(2019) ジェット エンジンオイル・燃料と成田国際空港滑走路近傍で捕集した粒径別粒子(粒径10 nm-10 µm)の 元素組成, NMCC 共同利用研究成果報文集24 (2017年度),41-52.

(2) 口頭発表(学会等)

【他サブテーマとの共著】

- 1) 齊藤勝美,伏見暁洋,藤谷雄二,森野悠,早乙女拓海,竹川暢之,世良耕一郎(2018.5.11-12, 盛岡)ジェットエンジンオイルと燃料の元素組成,第24回NMCC共同利用研究成果発表会,7.
- 2) 齊藤勝美, 伏見暁洋, 藤谷雄二,森野悠,早乙女拓海,竹川暢之(2018.9.12-14,福岡)成田 国際空港滑走路近傍で捕集した超微小粒子状物質の元素特徴,第59回大気環境学会年会,講演要 旨集,216.
- 3) 竹川暢之,三澤健太郎,早乙女拓海,村島淑子,伏見暁洋,桜井博(2019.1.25,東京都足立区)航 空機からの粒子排出係数の推定,大気環境学会 自動車環境分科会 シンポジウム,"陸・海・空 移動発生源のPM_{2.5}低減への取り組み.

(3) 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

(4) 「国民との科学・技術対話」の実施 特に記載すべき事項はない。

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

(6) その他

特に記載すべき事項はない。

8. 引用文献

- 山本武:日本マリンエンジニアリング学会誌,第47巻,第6号,58-63 (2012),航空機用ジェットエンジンの排気 国際排出基準と燃焼器技術の動向.
- 2)町田茂,藤原仁志: 航空環境研究, No.15, 32-36 (2011), ICAO CAEPの動向 WG3.
- 3) ICAO 2019 Environmental Report.
- 4) ICAO 40th ウェブサイト, https://www.icao.int/Meetings/a40/Pages/default.aspx (2020.4.28ア クセス).
- 5) Richard H. Moore, Michael A. Shook, Luke D. Ziemba, Joshua P. DiGangi, Edward L. Winstead, Bastian Rauch, Tina Jurkat, Kenneth L. Thornhill, Ewan C. Crosbie, Claire Robinson, Taylor J. Shingler & Bruce E. Anderson: Scientific Data volume 4, Article number 170198, (2017), Take-off engine particle emission indices for in-service aircraft at Los Angeles International Airport.
- 6) Mauro Masioll, 2, Roy M. Harrisonl, a, Tuan V. Vul, and David C. S. Beddows: Atmospheric Chemistry and Physics, 17, 12379-12403, (2017), Sources of sub-micrometre particles near a major international airport.
- 7) Xiaowen Yang, Shuiyuan Cheng, Gang Wang, Ran Xuc, Xiaoqi Wang, Hanyu Zhang, Guolei Chen: Environmental Pollution, Volume 238, 491-499, July (2018), Characterization of volatile organic compounds and the impacts on the regional ozone at an international airport.
- Kılıç, Doğuşhan, El Haddad, Imad, Brem, Benjamin, Bruns, Emily, Bozetti, Carlo, Corbin, Joel, Durdina, Lukas, Huang, Ru-Jin, Jiang, Jianhui, Klein, Felix, Lavi, Avi, Pieber, Simone M., Rindlisbacher, Theo, Rudich, Yinon, Slowik, Jay G., Wang, Jing, Baltensperger, Urs, Prévôt, André S.H.: Atmospheric Chemistry and Physics, 18, 7379-7391, (2018), Identification of secondary aerosol precursors emitted by an aircraft turbofan.
- 9) Zhenhong Yu, Michael T. Timko, Scott C. Herndon, Richard C. Miake-Lye, Andreas J. Beyersdorf, Luke D. Ziemba, Edward L. Winstead, Bruce E. Anderson: Atmospheric Environment Volume 218, 1 December (2019), 116974, Mode-specific, semi-volatile chemical composition of particulate matter emissions from a commercial gas turbine aircraft engine.
- 10) Rima Habre, Hui Zhou, Sandrah P.Eckel, Temuulen Enebish, Scott Fruin, Theresa Bastaina, Edward Rappaport, Frank Gilliland: Environment International, Volume 118, 48-59 (2018), Short-term effects of airport-associated ultrafine particle exposure on lung function and inflammation in adults with asthma.
- 11) Katja Maria Bendtsen, Anders Brostrom, Antti Joonas Koivisto, Ismo Koponen, Trine Berthing, Nicolas Bertram, Kirsten Inga Kling, Miikka Dal Maso, Oskari Kangasniemi, Mikko Poikkimaki, Katrin Loeschner, Per Axel Clausen, Henrik Wolff, Keld Alstrup Jensen, Anne Thoustrup Saber & Ulla Vogel: Particle and Fibre Toxicology volume 16, Article number 23 (2019), Airport emission particles: exposure characterization and toxicity following intratracheal instillation in mice.

III. 英文Abstract

Research on Airborne Ultrafine Particulate Matters around an Airport Based on Advanced Analytical Techniques

Principal Investigator: Nobuyuki TAKEGAWA Institution: Tokyo Metropolitan University 1-1 Minami-Osawa, Hachioji, Tokyo 192-0397, JAPAN Tel: +81-42-677-2532 / Fax: +81-42-677-2532 E-mail: takegawa@tmu.ac.jp

Cooperated by: National Institute for Environmental Studies, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, Research Institute for Environmental Strategies, Inc.

[Abstract]

Key Words: Airport environment, Aircraft emission, Ultrafine particle, Advanced analytical technique, Numerical simulation

Civil aviation is growing rapidly because of global economic development. The International Civil Aviation Organization (ICAO) has authorized a new regulatory standard for mass and number of emissions of particulate matter from turbofan engines. Consequently, the environmental impact of aircraft emissions - especially ultrafine particles (UFPs; diameter <100 nm) - has been recognized as an important issue. The major purposes of this project are to obtain a better understanding of the physical and chemical characteristics of UFPs emitted from in-use aircraft, and to investigate the potential impacts of aircraft emissions on the spatial distributions of UFPs in and around Narita International Airport (NRT). We used advanced analytical techniques to measure the number and mass concentrations and size-resolved chemical compositions of UFPs. We also used numerical model simulations to estimate the dispersion of aircraft emissions around the airport.

We conducted field measurements of UFPs near a runway at NRT in February 2018 and July-August 2018, and in regions surrounding NRT in January 2019. We estimated the particle number emission indices (EIs) from in-use commercial aircraft during take-off phases. The median total (volatile + nonvolatile) particle number EI for particles of diameter >2.5 nm was 60 times the median non-volatile-particle number EI for particles of diameter >10 nm. This difference can be interpreted as the difference between total particle number emissions under real-world conditions and non-volatile-particle number emissions regulated by standard engine tests. Analysis of the chemical compositions of UFPs revealed that jet-engine lubrication oil was the major source of volatile UFPs with diameters ranging from 10 to 30 nm. These findings may contribute to the development of future engine technologies for reducing particulate emissions from aircraft.

Furthermore, we performed numerical simulations of UFPs in and around NRT by using an Aviation Environmental Design Tool (AEDT) model. In case studies for the field observation period, we estimated that the highest number concentrations of UFPs occurred near the terminal areas of NRT, whereas moderately high number concentrations of UFPs tended to be spread over wide areas with a horizontal scale of 20 km.

To summarize, we have successfully obtained new datasets and simulation results for improving our understanding of particulate emissions from aircraft and UFP dispersion around an airport. The project outcomes should provide a firm scientific basis for future assessments of the effects of aircraft emissions on climate and human health.