

講演 5. 自動車排出粒子計測法の高度化 —PMP による活動のこれまでとこれから—

環境研究領域 ※山田 裕之 後藤 雄一

1. PMP の設立から PMP-PN 測定法の決定

Particulate Measurement Program (以下 PMP)は国連欧州経済委員会自動車基準調和世界フォーラムの排出ガス・エネルギー専門会合(GRPE)において 2001 年に設立されたワーキンググループである。英国、ドイツ、スウェーデン、フランス各国政府の強い協力により立ち上げられ、後に日本、韓国、スイスが加わった。この組織の目的は、従来自動車排出ガス中の粒子状物質(PM)規制に用いられてきた重量法に代わる新たな計測法の開発である。PMP の活動は当初 3つのフェーズで計画されていた。フェーズ 1で PM の新計測方法の調査を実施し、フェーズ 2 ではフェーズ 1で挙げられた計測法を評価し、のちのフェーズ 3で行われる評価試験で実施する計測方法の決定が行われた。その結果、従来の重量法の高度化および粒子個数(Particle Number: PN)測定が基となる測定法(PMP-PN 法)について、フェーズ 3で評価を行うこととなった。

この PMP-PN 法の概要を図 1 に示す。この計測法は Volatile Particle Remover (VPR) と Particle Number Counter(PNC)の二段階に分かれる。全量希釈装置により希釈された排気エミッションは、50%カットオフ粒径(D_{50})が $2.5 \mu\text{m}$ の分級装置を経て VPR 部に導入される。ここでは 2 段階の希釈、加熱により不安定な揮発性粒子が除去され、PNC 部で粒子個数の計測が行われる。PNC としては凝集粒子カウンタ(Condensed Particle Counter: CPC)を用いることを想定しており、検出下限側 D_{50} が 23 nm となるように求めている。つまり、PMP-PN 法の測定対象は 23 nm 以上の固体粒子数ということになる。なお次章からは従来の重量法による結果を PM、PMP-PN 法による結果を PN と称する。

2. PMP-PN 法の評価

2.1 軽量車の評価

フェーズ 3 として軽量車と重量車それぞれで評価プログラムが実施され、その中で軽量車の評価は、重量車に先駆けて実施された¹⁾。ここではこの軽量車の評価として実施された Inter-Laboratory Correlation Exercise (ILCE)について記す。

ILCE は、the European Commission's Joint Research Centre の Vehicle Emission Laboratory が中心となり、同研究所、Ricardo (イギリス)、AVL-MTC (スウェーデン)、RWTÜV (ドイツ)、Aristotle University (ギリシャ)、Shell Global Solutions (イギリス)、UTAC (フランス)、交通安全環境研究所 (日本)、NMVERL (韓国)で行われた。ILCE の内容としては、PMP-PN 法に基づく統一測定器(Golden Particle Measurement System 以下 GPMS)および排出ガス基準車(Golden Vehicle 以下 GV)をすべての実施機関に巡回させ、GV の排出粒子を GPMS で測定し、その計測安定性、再現性を評価した。GV はディーゼル機関と Diesel Particulate Filter(DPF)を有し、EURO IV 規制に適合している。また、ILCE 試験を統括する管理者(Golden Engineer)が各拠点での試験方法、結果を管理した。

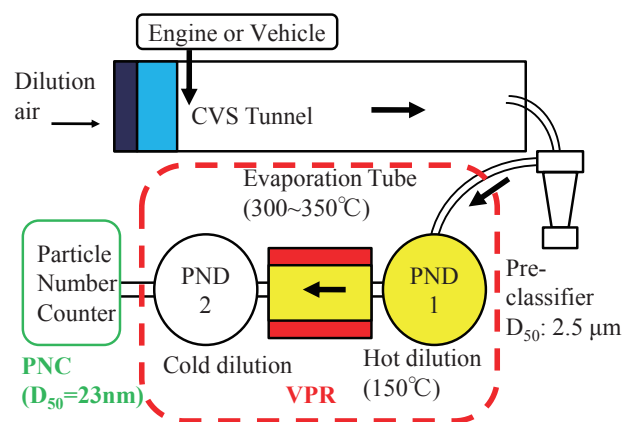


Fig. 1 Schematic graph of PMP methodology.

図2に各研究機関におけるGVからのPMおよびPNを示す。ILCEにおける主要な目的であるGVからのPMおよびPNの計測安定性については、双方ともほぼ同等であるという結果になった。ただしILCEの結果の中で計測安定性の比較以上に重視されたのが、図3に示す様々なエンジンからのPMおよびPNの排出実態である。これによると、PNの排出量は、PMにくらべエンジンの違いによる排出量の違いが大きい。このことにより、PMP-PN法は従来の重量法に比べ、自動車の排気エミッション測定において感度が高いと結論付けられた。この結果を受け欧州においては2011年にディーゼル車にPMP-PN法によるPN規制が導入された。その際の規制値は 6×10^{11} /kmであり、これは図3に示す試験結果において1台を除くDPF付車両が達成している排出レベルであり、実質的にはディーゼル軽量車にDPFの装着を義務付けるものとなった。

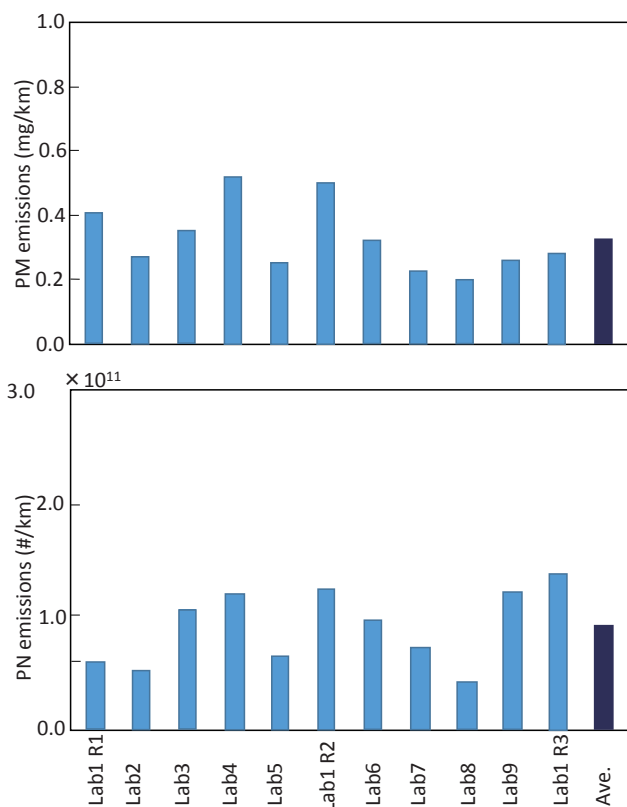


Fig.2 PM and PN emissions from GV.

2.2 重量車の評価

軽量車でのPMP-PN法による規制導入決定を受けて、重量車へのPN規制の可否を判断するための評価が行われた。この重量車の評価では2つのプログラム

が並行して実施された²⁾。ひとつはValidation Exerciseと称され、軽量車ILCE同様に基準エンジン、基準計測装置を各研究機関で持ち回り評価しその試験はGolden Engineerが管理した。ただしこのValidation Exerciseについては、装置移動の煩雑さによる試験期間の増大を避けるために、欧州内の研究機関に限定して実施された。もうひとつの評価は基準エンジン(Validation Exerciseに用いられたものとは別)のみを持ち回り、計測装置は各研究機関が用意するRound Robin Testにより行われた。このRound Robin Testは欧州のみならず日本、韓国でも実施された。日本からは交通安全環境研究所、日本自動車研究所の2つの機関が参加した。

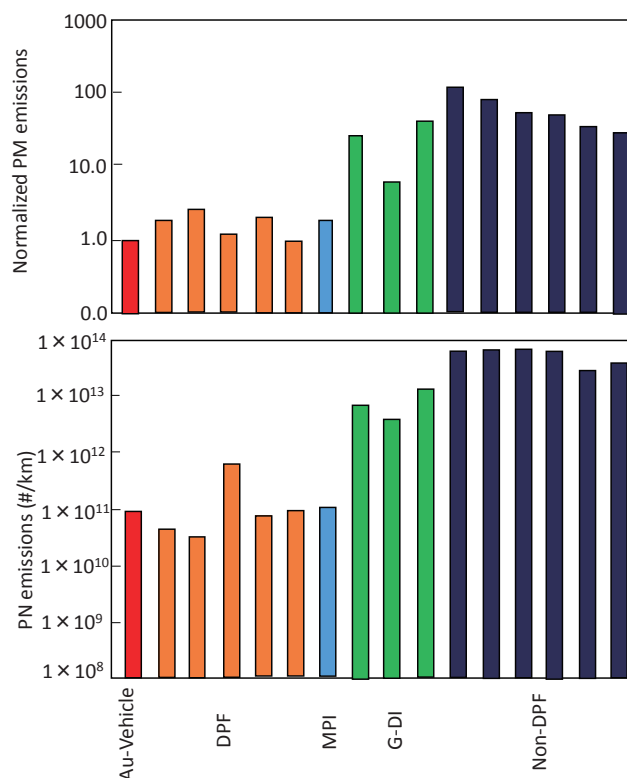


Fig.3 Comparisons of PM and PN from various type of engines. Au-vehicle: GV, DPF: DPF diesel vehicle, MPI: Multi point injection vehicle and Non-DPF: diesel vehicle without the DPF.

重量車における評価ではPMおよびPNの計測安定性の評価に加えて、部分希釈装置と全量希釈装置の比較も行われた。得られた結論としてはDPFを装着したディーゼル機関からの排気は全量希釈装置を用いた場合は、トンネル内のバックグラウンドであるトンネルブランクとほぼ同等であるのに対して、部分希釈

装置を用いた場合は全量希釈装置とくらべトンネルブランクを低く抑えることが可能であるとされた。計測再現性については PM のほうが計測再現性および計測安定性が高いとされたが、これは PM の大半を占めると思われるトンネルブランクが安定的に観測されたためではないか、とされた。このように PMP における重量車評価において PMP-PN 法による計測安定性は確認されなかったが、Round Robin Test に先駆けて交通安全環境研究所および日本自動車研究所で行われた国内ラウンドロビン試験においては PMP-PN 法の優位性を示すデータが得られている³⁾。この試験においては、全量希釈装置および部分希釈装置双方を用いてエンジンからの PM および PN、つまり 4 つのデータを同時に測定した。その際に PM および PN の計測安定性についてはほぼ同等であったが、図 4 に示す様々なモードにおける全量希釈装置による結果 / 部分希釈装置の結果では PM と PN の計測安定性に明確な差が確認された。なお図中の誤差表示は 1σ を示している。この結果は、PN の計測ばらつきはエンジンのコンディショニング等の影響による実際のエンジン排気エミッションのばらつきに起因しているのに対して、PM の計測に現れるばらつきは計測法の持つばらつきであることを示唆している。これらの議論を経て欧州では 2013 年に重量車においても PN 規制が導入された。

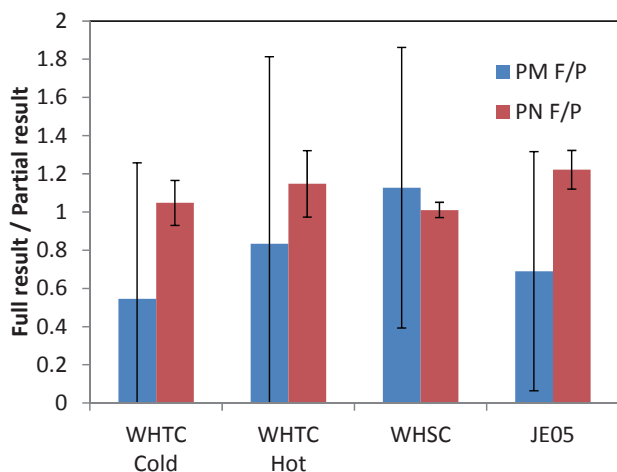


Fig. 4 PM and PN with full flow dilution system / partial flow system.

2.3 ガソリン直噴車からの PN

図 3 に示した ILCE の結果でもわかるように、ガソリン直噴車からの PM および PN 排出レベルは DPF ディーゼル車よりも高く、規制値を超過する場合もあった(ただし ILCE で評価されたガソリン直噴車は現在販売されていないリーンバーン式の直噴車であり、ストイキ直噴車の評価は行われていない)。そのため 2014 年から欧州ではガソリン直噴車においても PN 規制が導入された。これは、2009 年にはすでにガソリン直噴車に PM 規制が導入されていることと整合性を保つために、PN 規制も同様にガソリン直噴車に導入されるべきである、という考えに基づくものである。この際、European commission としては規制の整合性を保つために、ディーゼルに用いられている規制値と同値 ($6 \times 10^{11} / \text{km}$) での規制が検討されたが、メーカー側業界団体から、現状のガソリン直噴の技術ではこの規制の達成が厳しいこと、また、それにより通常にポート噴射型ガソリン車に比べ二酸化炭素排出に有利なガソリン直噴車を市場から締め出すことになってしまうことへの懸念が示され、その後の議論の結果、規制が導入される 2014 年から 3 年間の間に限り、限定的にガソリン直噴車の規制値を $6 \times 10^{12} / \text{km}$ とし、その後 2017 年からはディーゼル車と同じ $6 \times 10^{11} / \text{km}$ とすることとなった。

3. PMP-PN 法に関する研究等

3.1 PN 規制値の PM 換算

そもそも PMP-PN 法開発の目的は PM 重量計測法を補完代替する計測法を開発することであった。従って現在欧州では、同じ粒子状物質に対して PM と PN という 2 つの規制がかけられていることになる。この PM と PN の値には強い相関はないものの、図 3 に示したように大まかな相関は存在する。従ってたとえば日本と欧州の PM 規制を比較する場合には、単純に PM の規制値を比較すればよいわけではなく、PN 規制値がどの程度の PM に相当するかを考慮する必要がある。図 5 にはガソリン直噴車および DPF ディーゼル車からの PN と PM の関係を示す⁴⁾。これによると欧州のガソリン直噴車に導入されている規制値 ($6 \times 10^{12} / \text{km}$) は PM に換算すると 1 - 4 mg/km に相当し、ディーゼル車の規制値 ($6 \times 10^{11} / \text{km}$) は 0.3 - 0.5 mg/km に相当する。欧州の PM 規制値は日本と同様に 5 mg/km であるが、PN 規制を考慮すると日本と比べ厳しい規制が導入されているといえる。

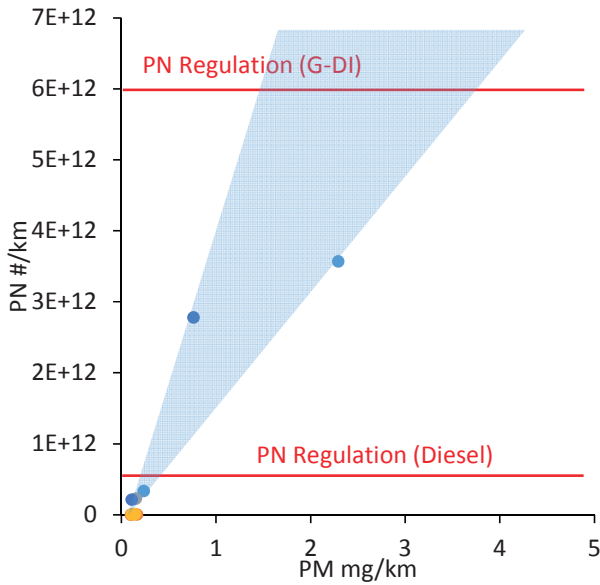


Fig. 5 PN vs. PM from various passenger cars.

3.2 DPF 再生周期と PN 排出特性

DPF は捕集した粒子状物質を周期的に燃焼除去するいわゆる DPF 再生を行う必要がある。この DPF 再生が PM および PN に与える影響を調べた結果を図 6 に示す⁵⁾。これは DPF を有する大型車をもちいて、シャーシダイナモ上で JE05 サイクルを繰り返した際の PM および PN の値を再生が発生したテストサイクルからの試験回数で示したものである。この中で赤い点が再生時の排出を表している。これによると、PM は再生時に通常の 3 倍程度の排出を示し、それ以外の条件ではほぼ一定の値を示している。一方で PN は再生時に高い値を示し、その後指数関数的に減少していくのがわかる。PN の排出が安定するは DPF 再生の発生から 10 回程度試験を繰り返した以降であった。

このような DPF の状態による排気エミッションの変化については、認証試験においても考慮されており、認証値は再生時と通常時の排出量を、再生頻度を考慮した重み付平均により算出する。ただし PN が示したような再生終了後、排出が安定するまでの変化は考慮されていない。また、図 7 には DPF 再生周期全体の平均値に対する各テストサイクルの寄与を示す。これによると平均値の 81% は再生が発生したテストが寄与し、その後の 2 サイクルと併せると全体の 99% を占める。そして、通常の認証時に行われる PN の排出が安定した状態での試験結果の平均値への寄与は皆無に近い結果となった。

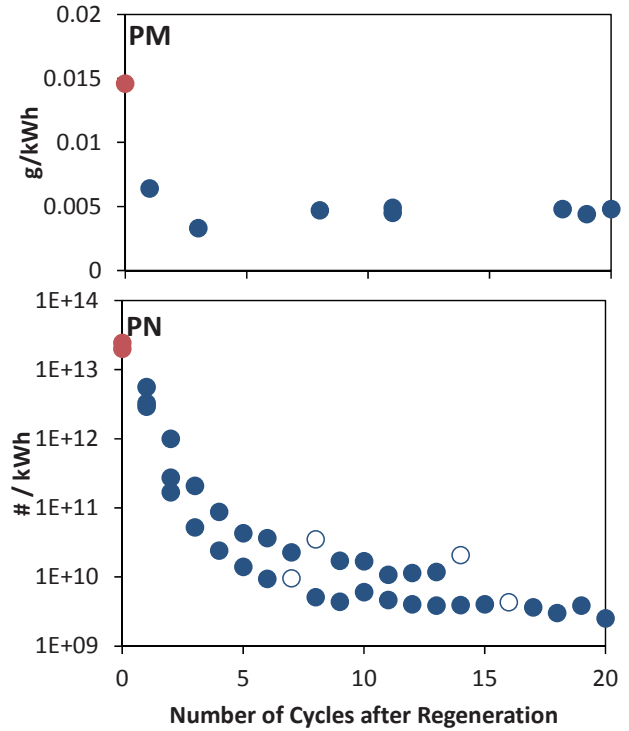


Fig. 6 PM and PN as functions of the number of cycle after the regeneration.

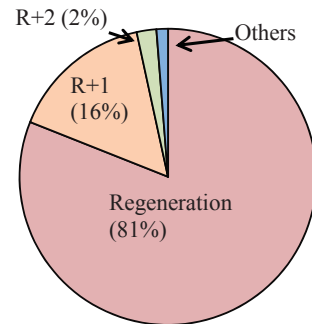


Fig. 7 Contribution of DPF regeneration to average PN.

3.2 検出下限 D_{50} の微小粒径側への拡大

現在の PMP-PN 法では前記のように、 D_{50} は 23 nm とされている。PMP-PN 法開発のひとつの要因となった、より微小な粒子ほど人体に対して高い毒性を持つ可能性を考えると、 D_{50} は可能な限り低く設定することが望ましい。また、ガソリン直噴車からの PN はディーゼル車からの PN に比べ粒径のピークが微小粒径側にシフトしている可能性が示唆されている。以上のことより、 D_{50} を 23 nm より微小粒径側に変更するべきという議論が

ある。ただし、 D_{50} を下げることは、装置の校正等をむつかしくし、認証用装置として最も重要な装置の同等性に悪影響を与える可能性がある。そこで、 D_{50} を下げた場合の影響について検証を行った⁶⁾。まず D_{50} が 2.5 nm の CPC を用いて、PMP-PN 法の校正手順に則した検出効率の評価を、10 nm 以下の粒子を用いて行った。その際の際の CPC 入口における校正粒子の個数と、検出効率の Coefficient of Variant (CoV)を図 8 に示す。微小な粒子ほど拡散によるロスが大きいため、粒子発生装置から CPC 入口までの距離は極力短くしたが、5 nm より微小な粒子を用いた校正では CPC 入口の粒子濃度は 1000 個/cc を下回る値となった。また、CoV は 10 nm では十分に低い値であったが、粒子濃度が低くなる 5 nm より微小な粒径においては 10%を超える結果となった。

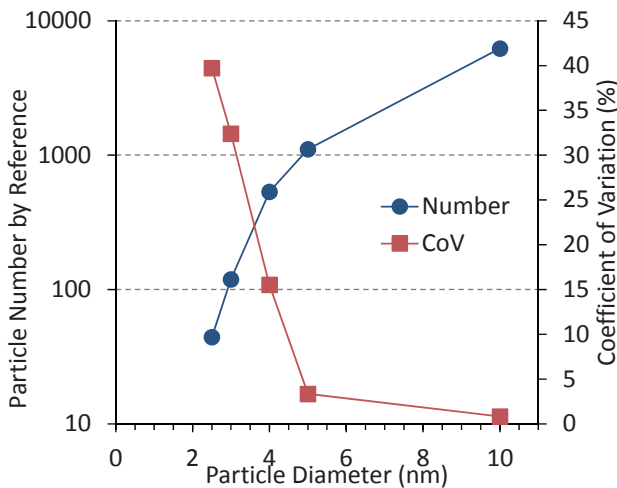


Fig. 8 The number of particles for calibration and CoV of Detection Efficiency calibrations.

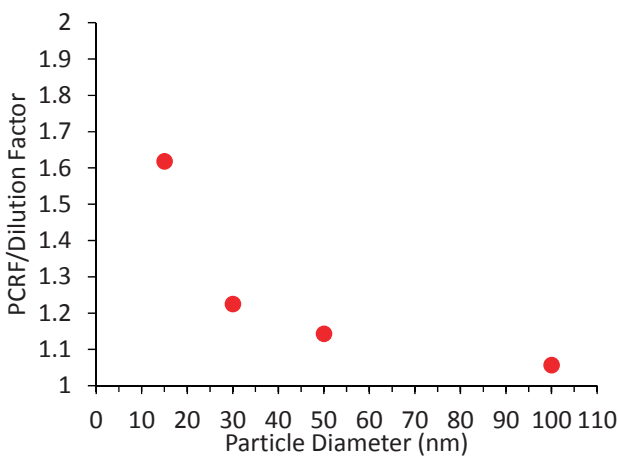


Fig. 9 Observed PCRf / Dilution Factor at 15, 30, 50 and 100 nm.

次に微小な粒子を用いて粒子損失補正係数を算出した。VPR における粒子損失は補正するために以下で求められる PCRf(Particle Concentration Reduction Factor)という値が用いられる。

$$\text{PCRf}(n) =$$

$$\frac{\text{VPR 入口の粒子濃度}}{\text{VPR 出口の粒子濃度}}$$

n: 粒径

これは粒子損失を含む希釈倍率と考えることができ、PMP-PN 法では 30、50 および 100 nm においてこの PCRf を求めておき、この 3 つの粒径における値の平均値を用いて粒子損失を補正している。また、この値を、ガスを用いて算出した希釈倍率で割ることにより粒子損失のみの補正係数となる。この損失補正係数を PMP-PN 法で求められている 30、50 および 100 nm に加えて 15 nm で測定した結果を図 9 に示す。この結果によると、粒径が小さくなるほど粒子ロスが増加する傾向が確認でき、15 nm においてはロスが 30%以上となる結果であった。この結果問題となるのは、粒径分布考慮せず補正を行っている現在の PMP-PN 法の損失補正をどのように変更すべきか? という点である。まず、従来通りの 3 点での補正の場合は、微小粒径側で多くの損失が発生するため、過小評価につながってしまう点である。逆に 15 nm の値を使うと、全体の補正係数が大きな値になってしまうため、過大評価となる可能性がある。

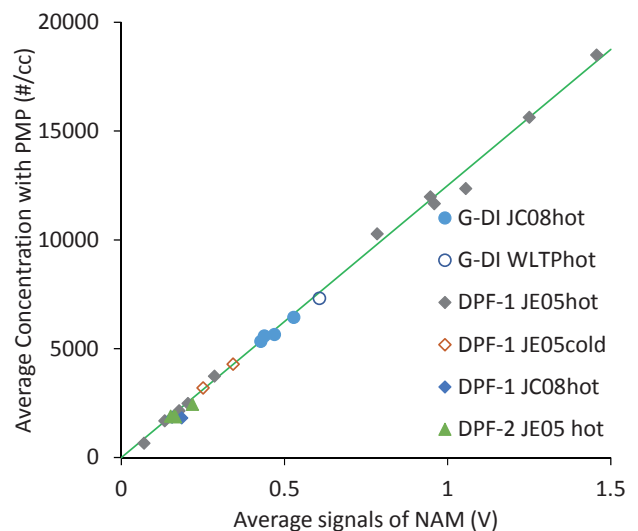


Fig. 10 PN vs PN equivalent results without VPR.

3.3 PMP-PN 法装置の簡素化

欧州では Portable Emission Measurement System (PEMS)の認証試験への導入が議論されている。これは PN 測定についても検討されており、PN-PEMS 装置の開発が盛んにおこなわれている。PN-PEMS の開発において重要なのは、省スペース、省電力という点である。PMP-PN 法において電力という観点で問題となるのが、VPR である。ここではサンプリングしたガスを 300°C 以上に加熱するため、消費電力が大きくなる。図 10 には様々な車両、モードを用いて測定した PN と PN-PEMS 装置の PNC 部として開発した Nano-Aerosol Monitor (NAM)による測定結果の比較を示す⁷⁾。ここで NAM の結果は VPR を用いておらず、サンプル粒子を直接 PNC に導入している結果であり、PN は PMP-PN 法に基づき VPR を使用している。この図によると VPR の有無による測定結果の差異は確認できず、VPR を省略しても PMP-PN 法と等価な結果を得られる可能性を示唆している。

4. PMP の今後

ここまで示したように、PMP において従来の PM 重量法に代わる PMP-PN 法が提案され、欧州では軽量車、重量車に規制が導入された。また本稿では触れなかったが、欧州では Non Road Mobile Machinery(NRMM)への PMP-PN 法による規制の導入も決定している。このように規制への導入も終わり、本稿で述べたように問題点はあるものの、PMP 設立当初の目標はほぼ達成した。しかし PMP は解散せず、2013 年に Terms of Reference (ToR)が変更され引き続き下記のような検討がなされることになった。

- ・ PM 測定法の高度化
- ・ PN 測定法の高度化
 - DPF 再生時の PN 測定手法
- ・ D₅₀ の 23nm 以下への引き下げ
- ・ 校正法の高度化
- ・ Non Exhaust Pipe Emissions (NEPE)

基本的に今まで PMP が扱ってきた項目の延長であるが、全く新しい項目として NEPE が追加された。ここで NEPE として考えられているのがタイヤ、ブレーキからの粒子であり、現在は計測法、およびモー

ドの作成に関する議論が行われている。それ以外の項目についても現在は並行して議論が行われている。

参考文献

1. Andersson, J., Giechaskiel, B., Munoz-Bueno, R., Dilara, P., “Particle Measurement Programme (PMP): Light-Duty Inter-Laboratory Correlation Exercise (ILCE LD)—Final Report”, GRPE-54-08-Rev.1 (2008).
2. Andersson, J., Mamakos, T., Martini, G., Giechaskiel, B., “Particle Measurement Programme (PMP) Heavy-Duty Inter-Laboratory Correlation Exercise (ILCE HD) Final Report” (2010).
3. 交通安全環境研究所、”平成 19 年度 粒子状物質計測法の高度化に係る調査報告書”(2008).
4. 交通安全環境研究所、”平成 26 年度粒子状物質の粒子数等に係る測定法に関する調査業務報告書”(2015).
5. Yamada, H., “PN Emissions from Heavy-Duty Diesel Engine with Periodic Regenerating DPF”, SAE International Journal of Engines, 6, 1178-1189, 2013-01-1564 (2013).
6. Yamada, H., Funato, K., Sakurai, H., “Application of the PMP Methodology to the Measurement of Sub-23 nm Solid Particles: Calibration Procedures, Experimental Uncertainties, and Data Correction Methods”, Journal of Aerosol Science, 88, 58-71 (2015).
7. Yamada, H., Okuda, H., “Proposal of New Method of Particle Number Measurement for PN-PEMS”, International Journal of Engine Research (In Press)