

バイオディーゼル燃料 (BDF) 使用時における排出ガス等への影響調査 (第2報)

— BDF 使用時の PM 並びに多環芳香族炭化水素 (PAH) の排出特性について —

環境研究領域 ※堀 重雄 佐藤 辰二 阪本 高志 河合 英直 野田 明

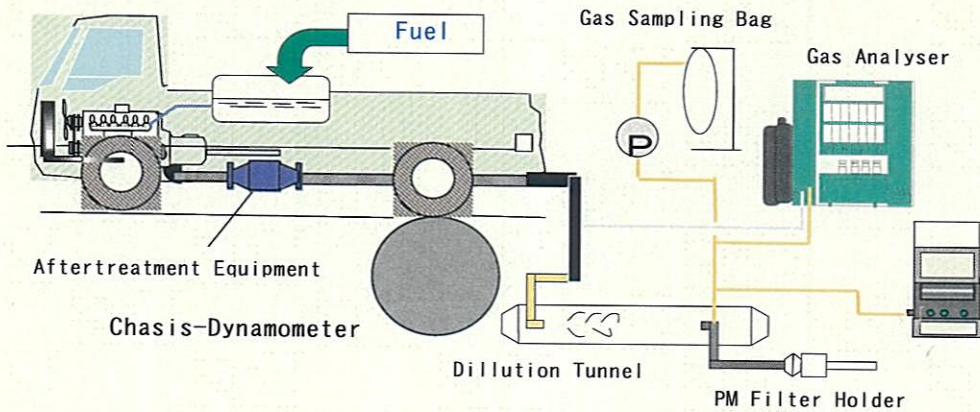


図1 実験装置の概略

表1 実験車両のエンジンの諸元

Type	4 Cycle, 4 Cylinder
Combustion System	Direct Injection
Fuel Supply System	Common Rail
Injection Nozzle	Multi Hole
Valve System	4 Valve
Bore (mm)	115
Stroke (mm)	115
Displacement (L)	4777
Aspiration	Natural Aspiration
Compression Ratio	18.5
Maximum Power (kw/rpm)	96/3000
Peak Torque (N·m/rpm)	333/1500
Emission Control System	Cooled EGR Catalyst

1. はじめに

地球温暖化対策技術および化石燃料の枯渇化に対する燃料資源の多様化という点から軽油代替としてバイオディーゼル燃料の使用が注目されている。しかしながら、実用に際してはバイオディーゼル燃料をディーゼル車の代替燃料として使用したときの排気ガスに与える影響について十分な検証、検討が必要である。(1, 2, 3)

今回、特に、軽油と比較して変動することが指摘されているPMと環境省により未規制有害物質の優先取り組み物質の一つに指定されているBaPを含む多環芳香族炭化水素 (PAH) に注目した。新短期規制適合のコモンレール式触媒装着ディーゼル車両を対象にして、バイオディーゼル燃料 (BDF) および低硫黄市販軽油混合時におけるPMおよび4環から6環の代表的なPAHの各種運転条件における排出特性を触媒装着、未装着時について検討した。

また、軽油と比較した BDF 使用時における PM および PAH の排出低減効果について考察した。

2. 実験方法

図1に実験装置の概略、図2に分析の操作手順および表1に実験車両の諸元を示す。実験車

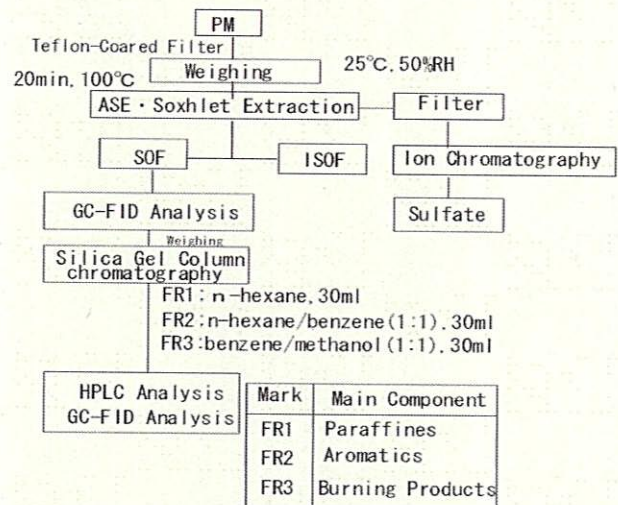


図2 分析の操作手順

両は新短期規制に適合した2トン積みディーゼルトラックで高圧コモンレール式の燃料噴射システムおよびクールドEGRを装備し、酸化触媒を装着している。実験は、シャシーダイナモメータ上でディーゼル13モード、新長期規制用のトランジェント走行モードであるJE05モードおよび20km/h定速、80km/h定速の4条件を走行し、排出ガスを最大流量60m³/minの全量希釈トンネルに導入し、その一部分をフィルタによりPM捕集した。また、触媒装置を取り外した条件における実験も実施した。フィルタ捕集したPMは重量測定した後、ジクロロメタンを抽出溶媒として高速溶媒抽出法(ASE法)により有機可溶成分(SOF)を抽出し、高速液体クロマトグラフ法によりSOF中に含まれる多環芳香族炭化水素(PAH)の定量およびFID-ガスクロマトグラフによるSOFの組成パターン分析を行った。SOF量はASE抽出前後のフィルタ重量の差より求めた。

表2に実験に使用した燃料の性状を示す。軽油は市販の硫黄分50ppm以下のJIS2号軽油であり、バイオ燃料として、欧州から輸入した菜種のバージンオイル(BDF)と京都市で使用されている廃食油から作成されたバイオ燃料(BDFⅢ)を使用した。軽油とバイオ燃料を混合した実験も実施した。

バイオ燃料は軽油と比較して、密度および動粘度、流動点が高く、沸点範囲が狭く高沸点成分を多く含んでいる。また、バイオ燃料はPAHを含む芳香族成分や硫黄分をほとんど含まず、酸素を10%程度含んでいるという特徴を有する。BDFおよびBDFⅢは、主として炭素数が18の

表2 使用燃料の性状

	JIS NO.2	BDF	BDFⅢ
Density(15°C)g/m ³	0.8323	0.8824	0.885
Sulfur(ppm)	34	2	2
Viscosity cst(30°C)	4.199	5.555	5.617
Flash Point °C	66	186	176
Distillation °C			
IBP	169	322.5	316
T10	216.5	335	334
T50	292	338	337
T90	345	351	Decomp.
Cetane Index(JIS)	58.7	58	52.5
CH Ratio	6.3753		
O(Maas%)		10.5	10.7
PAH Conc. (ppm)			
Phe	19.5	0.1	0.03
Py	9.9	0.04	ND
BaP	0.16)	0.002	0.001
BghiP	0.05)	ND※	ND

※ ND: Phe:0.02 Py:0.02 BaP:0.001 BghiP:0.02

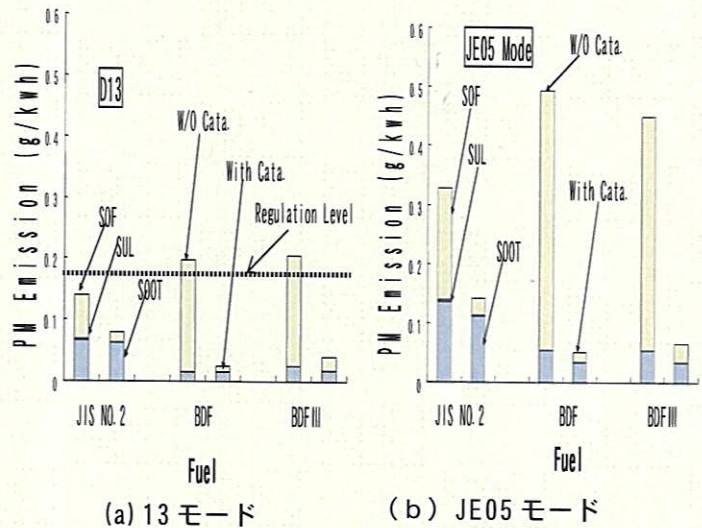


図3 各燃料使用時における触媒装着、非装着でのPM排出量の比較

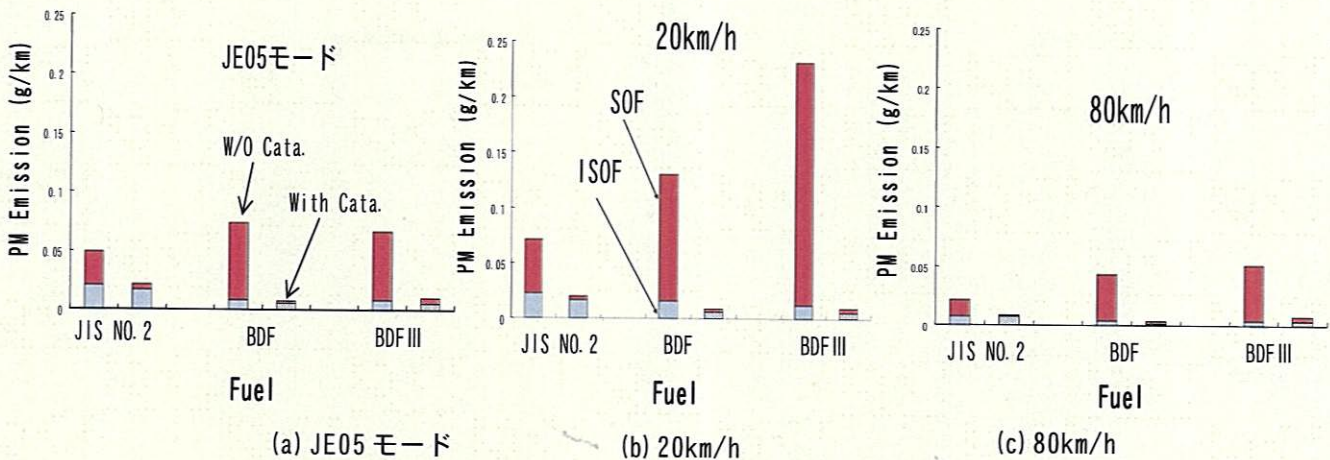


図4 走行条件におけるPM排出特性

不飽和脂肪酸メチルエステルから構成されており、BDFはBDF IIIと比較して、二重結合を一つ含むオレイン酸メチルが多く二重結合を二つ含むリノール酸メチルが少ない組成である。(3)

3. 実験結果および考察

3. 1. PM 排出特性

3. 1. 1. 各種運転条件におけるPM 排出特性

図3に触媒装着、非装着時の13モード試験とJE05モード走行でのPM排出レベルを比較した結果を示す。軽油の場合、バイオ燃料と比較して硫黄含有量が多いのでサルフェートの分析を実施しISOFをサルフェート(SUL)とSOOTに分けて示したが、SUL量はごくわずかであり、ISOFとSOOTはほぼ同じと考えてよい。以下、PMをISOFとSOFに分けて示す。

モード間の排出レベルを比較すると、JE05モードは13モードと比較してISOF、SOFともに排出量がいずれの燃料においても増加している。したがって、この車両に対して、PM規制のモードとしては、JE05モードは13モードと比べてより厳しい走行モードといえる。一方、軽油と比較してバイオ燃料では分子中に酸素を含むためISOFの筒内酸化が促進される等のためと考えられるが、触媒未装着の場合、いずれのモードでもISOF排出は低減するが、SOF排出が増加するためPM排出量は増加し、D13モードでは規制レベルを超える。しかしながら、触媒を装着することによりSOF分が効果的に浄化されるためSOF排出は大幅に低減する。バイオ燃料ではISOFが低減する効果により、PM排出量は軽油使用時より大幅に低減する結果を示している。以上のように、バイオ燃料使用には酸化触媒の装着は極めて有効であり不可欠といえる。

図4は、触媒未装着と装着時において、g/kmの単位でJE05モード、および低速走行(20km/h)、高速走行時のPM(ISOF、SOF)のバイオ燃料使用時の排出傾向を、軽油使用時と比較して示している。

触媒未装着の場合、軽油と比較してバイオ燃料使用時では、いずれの走行条件においてもSOF排出が増加傾向を示し、特に20km/h定速走行時ではその傾向が顕著でSOF排出は大幅に多い。これは、バイオ燃料成分の沸点が高く、

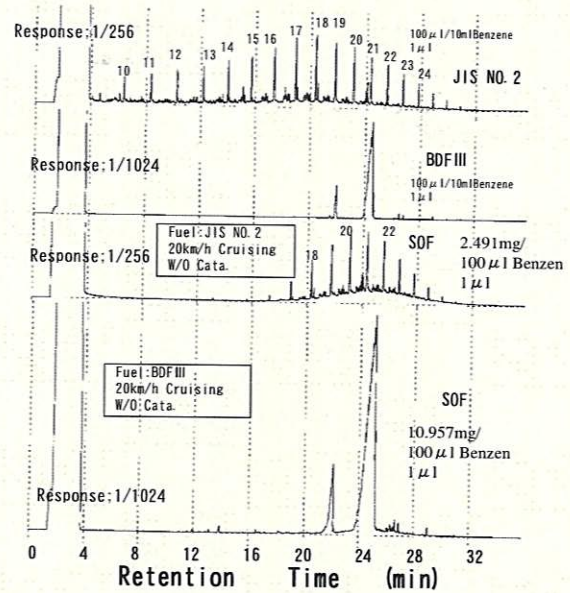


図5 20km定速走行時の各SOFのガスクロマトグラフパターンと比較

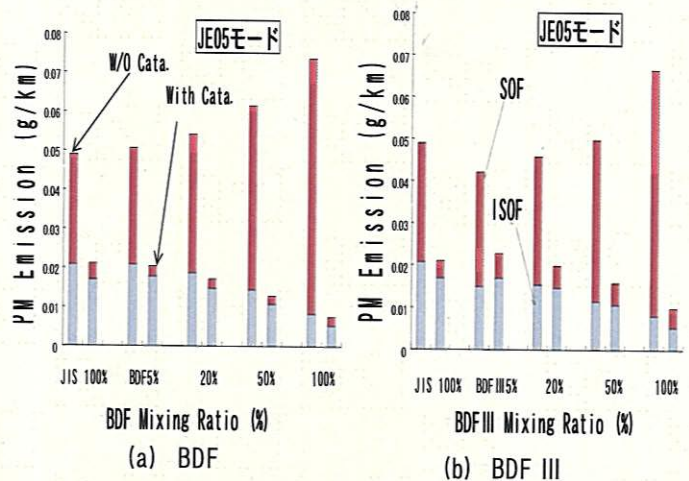


図6 バイオ燃料混合率がPM排出に与える影響

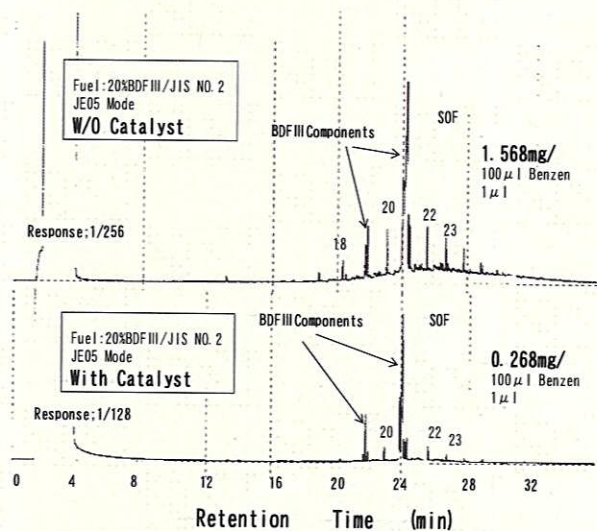


図7 20%BDF III混合時の触媒未装着、装着でのSOFガスクロマトグラフパターンと比較

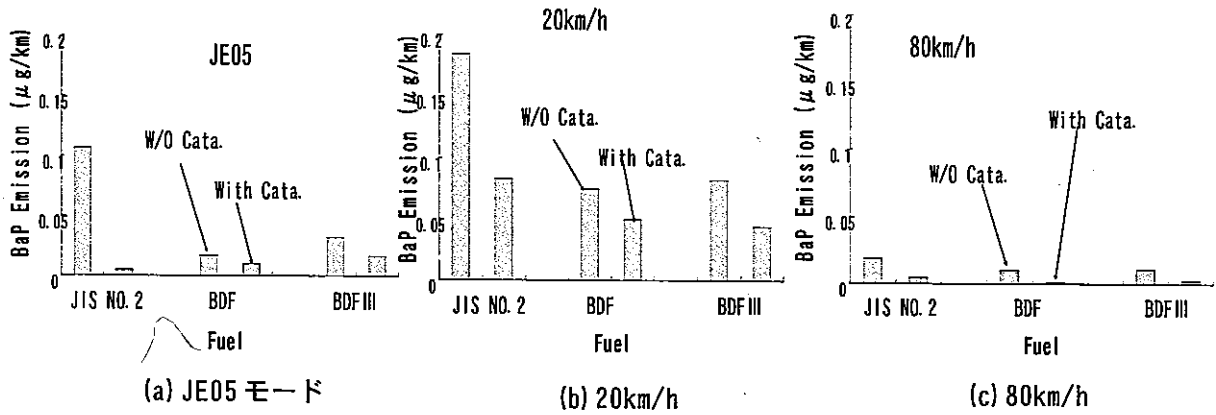


図8 各種走行条件におけるBaP排出特性

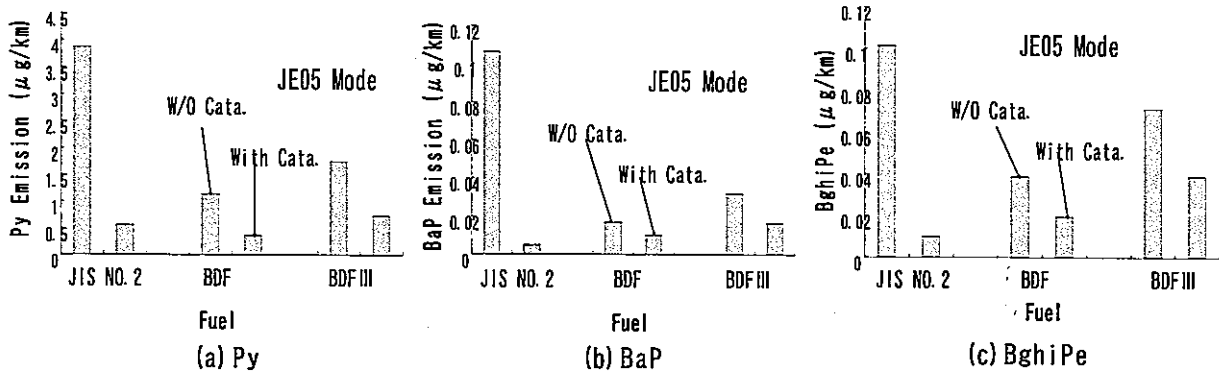


図9 JE05走行条件における各PAH排出特性

20km/h定速では、80km/h定速走行と比較して燃焼温度が低いいため気筒内で未燃状態でバイオ燃料が排出されてSOFに寄与したと考えられる。そのことを確認するため、SOF排出の多い20km/h定速走行時の触媒未装着時のSOFの組成分析をGC-FIDで測定し、比較した。結果を図5に示す。軽油およびバイオ燃料(BDF III)の分析結果を比較のため図の上部に示す。図から、軽油使用時のSOFは主として炭素数が18以上のノーマルパラフィンの沸点以上の軽油成分中の高沸点成分から構成されることがわかる。一方、バイオ燃料使用時は、バイオ燃料の構成成分の沸点が高いため、SOFを構成する成分は主として未燃のバイオ燃料そのものであり、軽油使用時のSOFと比較して量的に多い。したがって、ヤシ油メチルエステルのようにバイオ燃料が沸点の低い成分から構成されている場合には、SOF排出は低減すると考えられる。(1)

3. 1. 2. バイオ燃料混合率がPM排出に与える影響

図6に、軽油に各バイオ燃料を一定の割合で混合した時の混合率がPM排出に与える影響について示した。

いずれのバイオ燃料を混合した場合も同様の傾

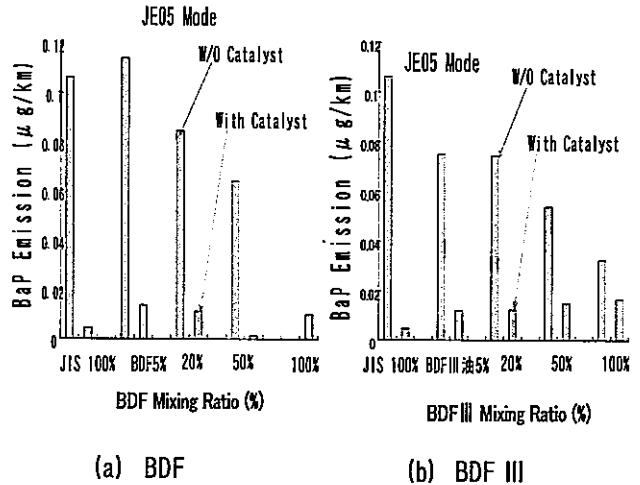


図10 バイオ燃料混合率がBaP排出に与える影響

向を示し、バイオ燃料が増加するに従って、SOF排出は混合率の増加に従って増大し、逆にISOF排出は減少する。一方、触媒の装着によりSOFは混合率によらず大幅に低減し、混合率20%以上でISOFの減少効果によりPM排出量は低減傾向を示す。したがって、100%バイオ燃料でPM排出量は最も低い値である。バイオ燃料によるISOF生成の抑制効果はバイオ燃料の増加と比例関係にあることが特徴的である。一方、図7は軽油にBDF IIIを20%混合したときの触媒装着時と未装着での

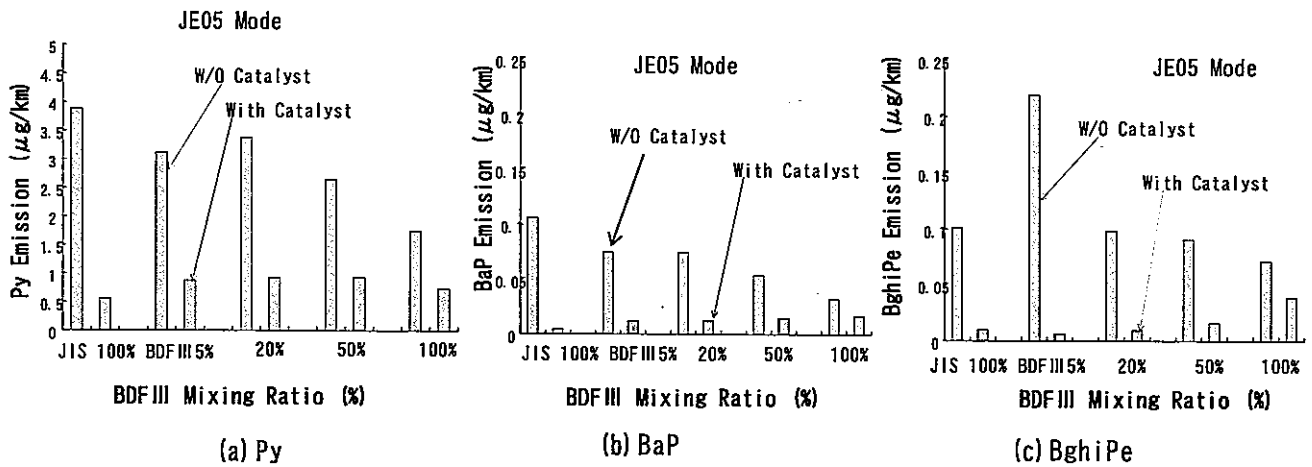


図 1 1 バイオ燃料混合率が各 PAH 排出に与える影響

SOF のガスクロマトグラフパターンを比較した結果である。触媒装着と未装着で SOF 量は大幅に異なるが、パターンを比較すると、触媒未装着時と比較して触媒装着時にノーマルパラフィンの各成分のピークがバイオ燃料成分と比較して小さい傾向を示している。このことは軽油の高沸点成分がバイオ燃料成分と比較して本触媒により浄化されやすいと考えられる。

3. 2. PAH 排出特性

3. 2. 1. 各種運転条件による PAH 排出特性

図 8 に各種走行条件において触媒装着、未装着時における各種燃料使用時の BaP 排出を比較した結果を示す。

触媒未装着時の BaP 排出量の比較から、いずれの燃料においても $20\text{km/h} \setminus \text{JE05} \setminus 80\text{km/h}$ の順に排出量が多い。また、いずれの走行条件においても軽油と比較して、バイオ燃料で排出量が低減し、BDF と BDF III を比較すると、BDF III がやや排出量が多い傾向を示す。一方、触媒による BaP 浄化特性については、触媒の温度が低い 20km/h 条件では、いずれの燃料においても浄化率が 55% 以下と低いが触媒温度が高い 80km/h 条件では、浄化率は 70% 以上となる。また、JE05 モードにみられるように、軽油と比較して、バイオ燃料使用時に浄化率が低くなる傾向が見られる。図 9 に JE05 走行条件における各 PAH 排出量を比較した結果を示す。いずれの PAH についても、触媒未装着時では、バイオ燃料使用時に軽油使用時と比較して排出量が少ない。また、BDF III が BDF より高い排出傾向を示す。一方、触媒装着により軽油の場合大幅に浄化されるが、バイオ燃料では浄化率が低いいため触媒未装着時

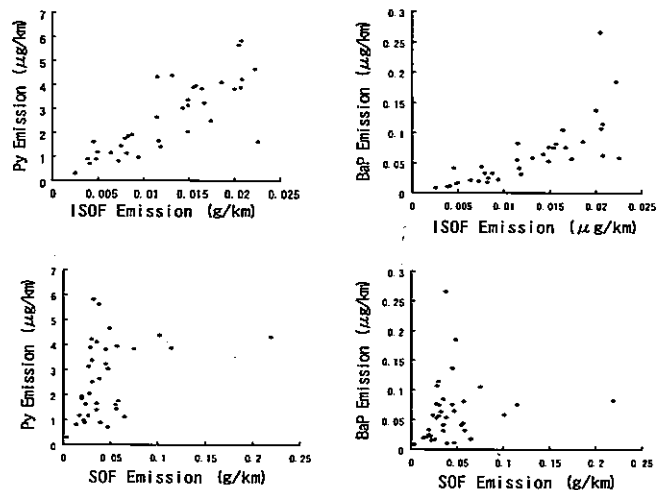


図 1 2 ISOF および SOF 排出量と PAH 排出量との相関

の排出量が反映して BDF III で排出量が多い傾向を示す結果となっている。

3. 2. 2. バイオ燃料混合率が PAH 排出に与える影響

図 10, 11 に JE05 走行モード時において軽油にバイオ燃料を混合した場合の混合率が各 PAH 排出に与える影響について検討した結果を示す。図 1 0 に示すように、触媒未装着時の BaP 排出量は混合率が 20% 以上では、混合率の増加とともに減少傾向を示す。このことは、気筒内燃焼において軽油からよりもバイオ燃料では PAH 生成がされにくいことを示している。その理由はバイオ燃料の組成中に酸素が含まれることによるとと思われる。以上のことは、図 11 に示すように Py および BghiP についても同様である。SOOT 生成の先駆物質とされる PAH の生成がバイオ燃料の混合率とともに減少傾向を示すことは図 6 に示したバイオ燃料混合率が ISOF 排出に与

える影響と同様の傾向であり、SOOT生成との関連で興味深い。一方、触媒装着により各PAHは大幅に浄化されるが、バイオ燃料の混合率とともに浄化率は減少する傾向を示す。このことは、バイオ燃料使用時に触媒のPAH浄化能が低下することを示しているが、その理由は明らかでない。

3. 3. PAH排出とSOF, ISOF排出の相関

軽油にバイオ燃料を混合した実験により、触媒未装着時にISOFとともにPAHのいずれも排出の低減傾向がみられた。そこで、PAH排出とPM排出の相関について検討した。図12はISOFおよびSOFの各排出量とPAH排出量の相関を、PyおよびBaPについて調べた結果である。各ポイントは、燃料、走行条件の異なる触媒未装着における実験による結果である。図に示すように、PyおよびBaP排出はいずれもSOF排出との相関はほとんどみられないが、ISOF排出とはやや相関が見られる結果が得られた。SOF排出とPAH排出にほとんど相関がみられないのは、SOF排出が主として燃料の高沸点成分が未燃のまま排出されることに起因しており、表2に示すようにバイオ燃料中のPAH含有量が極めてわずかであることによると考える。一方、ISOF排出とPAH排出にやや相関がみられたのは、SOOTとPAHがともに気筒内の空燃比のリッチ領域で生成するなどの生成メカニズムに共通する部分があることを示唆していると考えられる。^(4, 5) 今後、バイオ燃料中の酸素のSOOT生成、排出に与える影響やバイオ燃料と軽油の芳香族成分の含有量の相違がSOOTおよびPAH生成に与える影響などについて検討、考察する必要があると考える。

4. まとめ

新短期規制の貨物トラック車両を対象にして、バイオ燃料使用時の軽油と比較したPMおよびPAH排出特性について検討した結果以下の結論を得た。

(1) バイオ燃料では、軽油と比較してISOF排出は低減するが触媒未装着時にSOF排出が増加するためPM排出増をもたらす。しかし、酸化触媒を用いることにより効果的にSOFを浄化することができ、ISOFの低減効果によりさらにPM排出を低減できる。

(2) バイオ燃料使用によるSOF排出増は高沸点のバイオ燃料成分そのものが未燃のまま排出されることによる。したがって、炭素数がほぼ18以下のより低沸点成分から構成されるバイオ燃料では、SOF排出増が抑制されると予想される。

(3) PAH排出については、触媒未装着でバイオ燃料では軽油と比較して排出量は低減する。排出レベルは走行条件で異なるが、低速走行条件で高い排出傾向を示した。また、触媒によりPAHは大幅に浄化されるが、軽油と比較してバイオ燃料では、浄化率がやや低い傾向を示した。

(4) 軽油およびバイオ燃料使用時の各走行条件でのPAH排出量とPM排出量の相関について検討した結果、ISOF排出量とPAH排出量にやや相関が見られた。このことは、SOOTとPAHがともに気筒内の空燃比のリッチ領域で生成するなどの生成メカニズムに共通する部分があることを示唆していると考えられる。

参考文献

- (1) 渋谷他、「ディーゼル排出ガスに及ぼす植物油メチルエステルの影響」、JSAE Paper NO. 20035187
- (2) 財団法人 政策科学研究所 平成8年度廃食用油需要開拓緊急推進事業研究成果報告 平成9年3月
- (3) 社団法人自動車技術会 平成14年度「新燃料使用時の排出ガス等実態調査」に関わる調査研究 平成15年3月
- (4) 登坂他、「ディーゼル燃料の化学反応特性の調査」、JSAE Paper NO. 9941773
- (5) 草鹿他、「微粒子生成過程に関する化学反応速度論的検討」、JSAE Symposium, NO. 20014429 (2001)