

# 直噴ガソリン車から排出される PM および PAH 排出挙動について

On the Behavior of PM and PAH exhaust emissions from Gasoline Direct Injection Vehicles

環境研究領域 堀 重雄

Key Words: Gasoline Engine, Pollution, Particulate/ PAH Emission, Oxigenated fuel

## 1. はじめに

近年ディーゼル車のみではなく、直噴ガソリン車から排出される粒子状物質(Particulate Matter,以下 PM)排出量が無視できないことから注目されている<sup>1) 5)</sup>。また、直噴ガソリン車から排出される未規制物質であり、発ガンなどの人体影響が懸念されている多環芳香族炭化水素(以下 PAH)については、その排出実態は近年ほとんど報告例がない。

そこで、冷始動(以下 Cold)を含む各種走行モードにおける、NO<sub>x</sub> 吸蔵還元システムを採用したリーンバーン直噴ガソリン車およびストイキ直噴ガソリン車から排出される PM および 4 環から 6 環の PAH 測定を実施した。また、近年地球温暖化および燃料多様化の観点から導入が検討されているエチルターシャリアブチレート(以下 ETBE)をガソリン燃料に混合した時の、PM および PAH 排出量に与える影響について実験、解析した。

## 2. 実験方法

図 1 に実験装置の概略、表 1 に供試リーンバーン直噴ガソリン車両 A およびストイキ直噴ガソリン車両 B の諸元を示す。車両 A は、プレミアムガソリン仕様の平成 12 年規制適合(一つ星)の車両で走行距離は約 13000km であり、車両 B は平成 17 年規制適合(二つ星)の車両である。実験は原則として排ガス試験法の手順に準じて行い、主として車両 A を対象としてシャシーダイナモ上で、JC08 モード、11 モードおよび 10・15 モードの各種走行モード実験を行い、排出ガスを希釈トンネルに導入しその一部を温度制御したテフロンコーティングフィルタに捕集して行った。図 2 に捕集した PM の測定手順を示す。捕集した PM は重量測定を行うとともに、高速溶媒抽出法により有機可溶成分(以下 SOF)を抽出し、抽出前後の重量差から SOF 量を求め、残りを有機不溶成分 (ISOF) とした。

ISOOF の大部分は煤(SOOF)と考えられる。また、PAH の測定は、抽出した SOF を対象として蛍光検出器付の高速液体クロマトグラフにより行った。

表 2 に供試燃料性状を示す。また、レギュラーガソリンに ETBE を 7%(エタノール 3%混合相当)、22%(エタノール 10%混合相当)混合し、ETBE 混合率が PM および PAH 排出量に及ぼす影響について車両 A と車両 B で比較・検討した。一方、ディーゼル直噴車との比較実験では、硫黄分 7ppm の JIS2 号軽油を使用した。

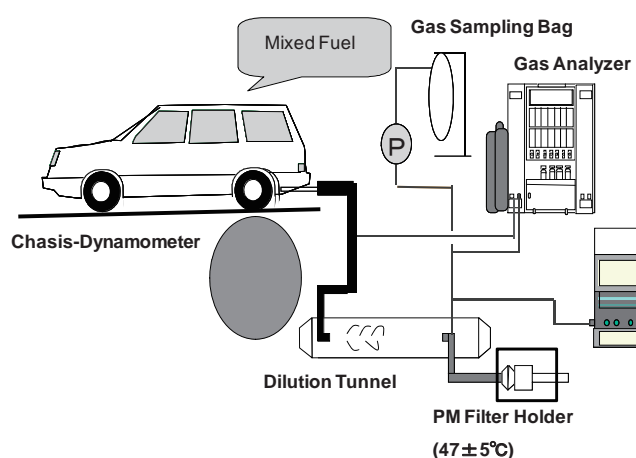


Fig.1 Schematic drawing of the test equipments.

Table 1 Test vehicle specifications.

	Vehicle A	Vehicle B
Vehicle Weight (kg)	1580	1510
Engine Type	L6	L4
Displacement (cc)	2997	1998
Compression Ratio	11.3	10.5
Fuel Supply System	Direct Injection	Direct Injection
Max Power (kw/rpm)	162/5600	114/6000
Max Torque (Nm/rpm)	294/3600	192/4000
Exhaust Emission Reduction	TWC+Nox storage	TWC
Fuel Grade	Plemium	Regular
Regulation Year	2000	2005
Running Distance (km)	13000	10000

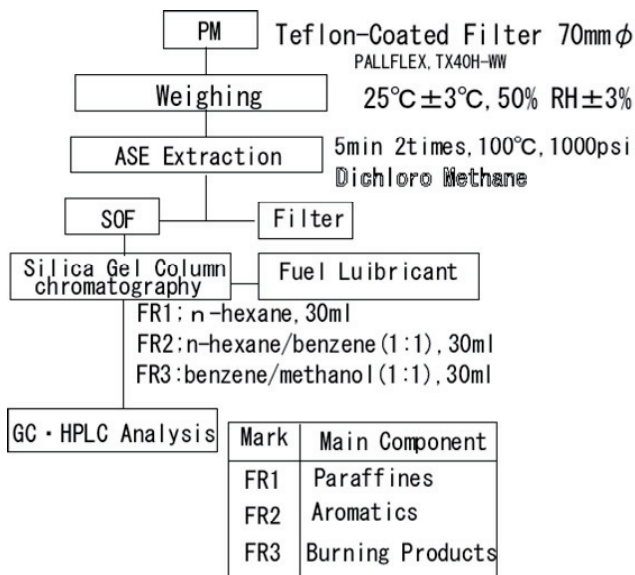


Fig.2 Flow chart of the chemical analysis procedure.

Table 2 Properties of Test Fuels

	Regular	Premium	JIS2
Density g/cm <sup>3</sup>	0.721	0.7402	0.8285
Distillation °C			
T10 °C	50	48	214.5
T50	90	94	287
T90	159.5	122	336.5
RVP kPa	67	80	
Octane Number (RON)	90.1	99.7	
Sulfur ppm	27	3	7
PAH ppm			
Phe	19.3	18	5
Py	1.4	5.11	4.3
BkF	0.09	0.072	
BaP	0.75	0.89	0.03
BghiP	0.69	1.08	0.01

### 3.実験結果および考察

#### 3.1. 各種走行時の PM および PAH 排出特性

図 3 に車両 A を対象とし、プレミアム燃料使用時の PM および各 PAH 排出量に与える走行条件の影響について検討した結果を示す。Cold, 暖気後 (以下 Hot) いずれの走行実験においても、ガソリン車としては、PM 排出量が多い。これは、ガソリン直噴により SOOT が生成し、生成された SOOT は、触媒ではほとんど浄化されずに排出されるからである。また、JC08 モード走行において、SOOT 排出量は Hot と比較して Cold で多い。冷始動時には燃焼室内温度が低いため燃焼室壁面およびピストンヘッド周辺の混合気に燃料過濃領域が生じ PM 生成が促進されたためと考えられる。図 4 に JC08、hot 走行時に排気管直後でエレクトロカル

ロープレッシャーインパクト (ELPI) により測定した排出粒子個数分布を示す。214nm の粒子が全域に渡って最も多く発生するが、加速時には 84~136nm の粒子が、減速時には 45nm の粒子が最も多く発生している。また、矢印に示すように、NO<sub>x</sub> 吸蔵還元触媒用のリッチスパイクによる 40~80nm ピークの粒子排出が観察される<sup>1)</sup>。

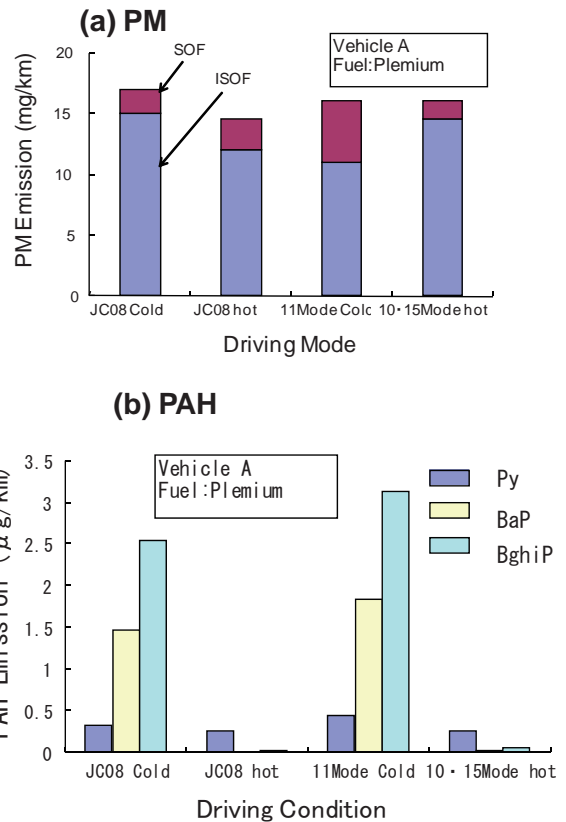


Fig.3 Influence of driving condition on PM and PAH emission for Vehicle A. (a)PM, (b)PAH.

一方、PAH 排出については、JC08 モード Cold および 11 モード Cold では、ベンゾ(a)ピレン(BaP), ベンゾ(ghi)ペリレン(BghiP)の排出量が大幅に多い。また、JC08 モードの Hot および 10.15 モードでは触媒により浄化されるため、BaP, BghiP 排出量は大幅に低減する。このことは、Cold 走行での BaP,BghiP 排出は、生成・排出した PAH が、触媒が活性化しない間に浄化されずに排出されたことを示している。PAH 排出の由来については、燃料中の PAH が未燃のまま排出される、燃焼室内の混合気過濃領域において生成する、あるいは燃焼室内のオイルの燃焼により生成・排出されるなどの報告がなされている<sup>6)</sup>が十分明らかにされておらず、排出要因の検討が必要である。

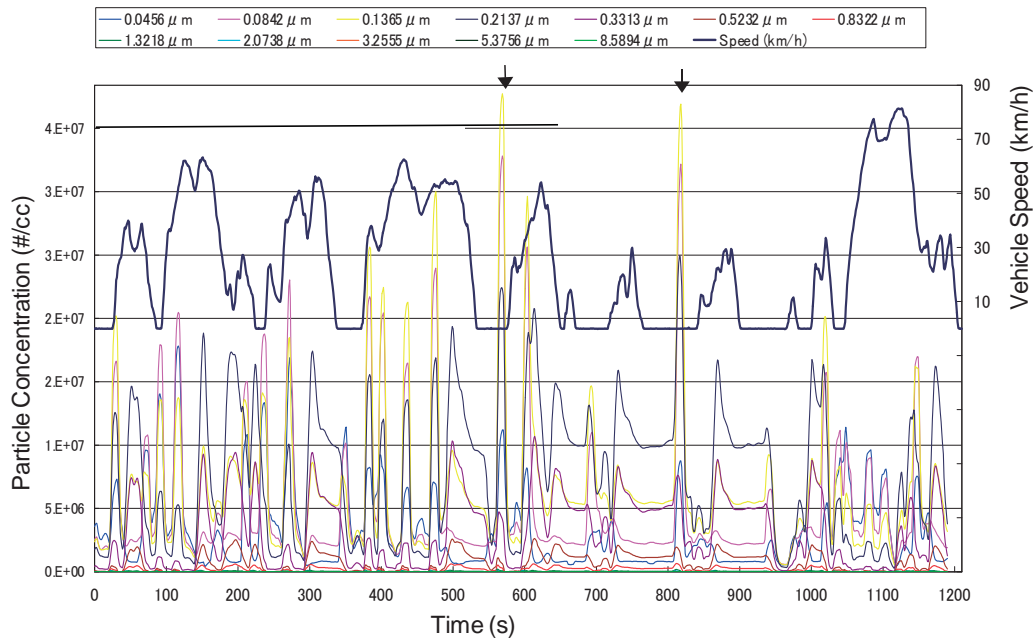


Fig.4 Behavior of PM number concentrations distribution under JC08 Mode (Hot) measured by ELPI for Vehicle A.

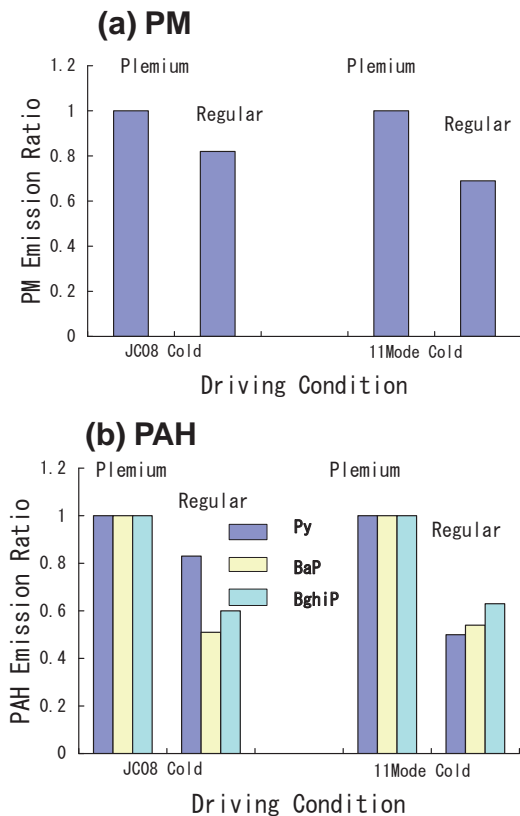


Fig.5 Influence of gasoline properties on PM and PAH emission for vehicle A. (a)PM, (b)PAH.

### 3.2. ガソリン性状が PM および PAH 排出量に与える影響

図 5 に車両 A を対象とし、プレミアムガソリンとレギュラーガソリン使用時の PM および PAH 排出量を JC08 モード Cold および 11 モード Cold 実験において比較した結果を示す。プレミアムガソリンの排出量を 1 として示した。レギュラーガソリンと比較してプレミアムガソリン使用時には PM および PAH 排出量はいずれも増加する。図 6 に使用したプレミアムガソリンとレギュラーガソリンの主要な成分を GC-MS により測定し比較した結果を示す。プレミアムガソリンはレギュラーガソリンと比較してエチルベンゼンやキシレンはやや少ないが、トルエンが大幅に多い。燃料中のアルキルベンゼンの増加によりガソリン車からの PAH 排出量が増加することが報告されており<sup>5)</sup>、プレミアムガソリンがトルエン成分をより多く含むためトータルのアルキルベンゼン含有量を増加させることにより、レギュラーガソリンと比較して PAH 排出量が増加したものと推察される。PM 排出増についてもトルエンによる影響が考えられる。また、表 2 に示すように、両ガソリン中の Py、BaP、BghiP 濃度は大きな相違がなく、未燃の燃料中の PAH の排出 PAH 増への寄与は小さいと推察される。図 7 は、車両 A のオイル交換前後、および実験終了後

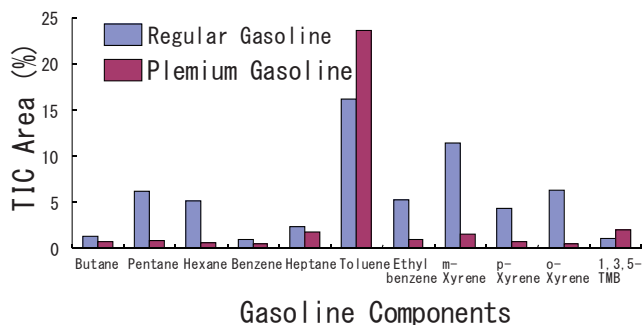


Fig.6 Comparison of major components between regular gasoline and premium gasoline.

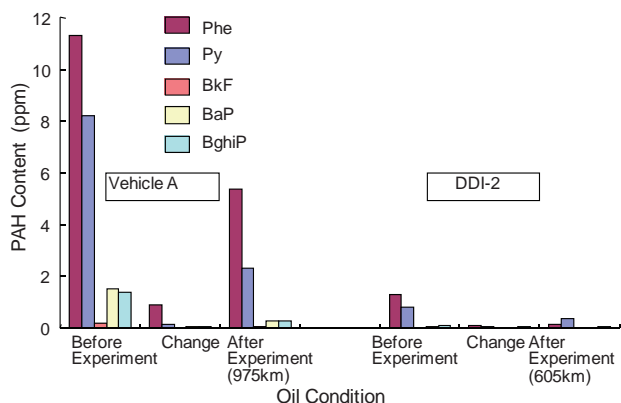


Fig.7 PAH Contents in oil before and after oil exchange.

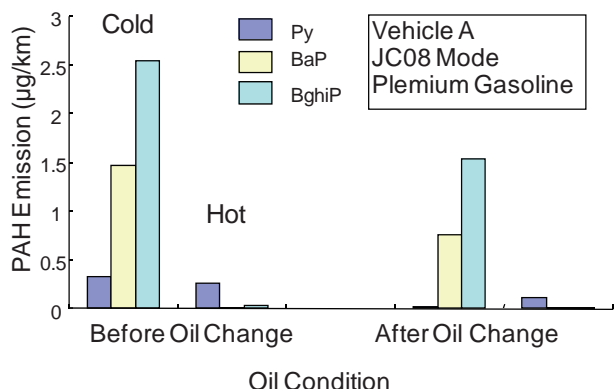


Fig.8 Comparison of PAH emission between the experiment before and after oil exchange.

のオイル中の PAH 含有量を測定した結果である。比較のためディーゼルトラック(DDI-2)についても示している。潤滑油中の PAH 濃度から潤滑油中に気筒内で生成した PAH が濃縮して溶け込んでおり、ディーゼル車と比較して多いことがわかるが、これらの潤滑油中の PAH の排出 PAH への寄与については不明な点が多い。図 8 はオイル交換前後に実

施した PAH 排出量測定結果を比較して示した。オイル交換後に PAH 排出量は低減しており、オイル中の蓄積した PAH の影響と考えられる<sup>7)</sup>。

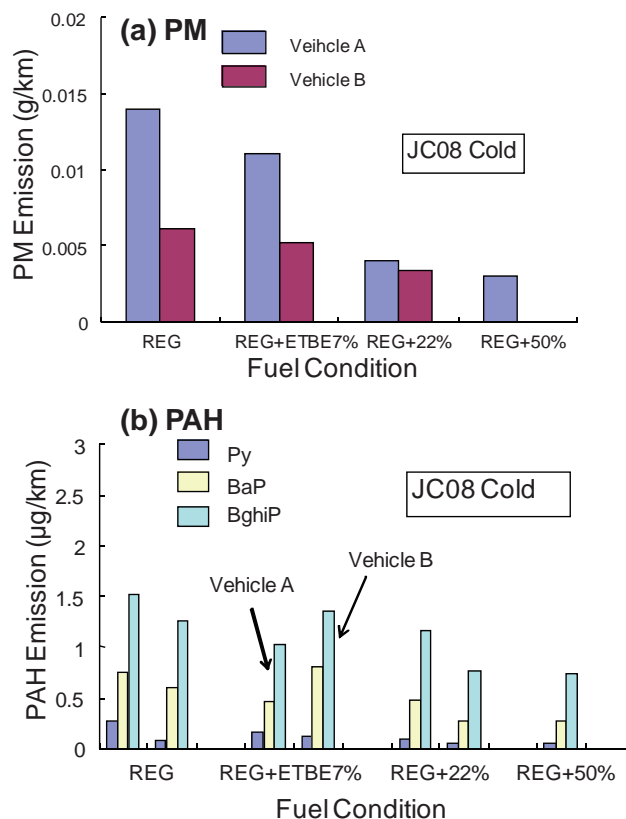


Fig.9 Influence of ETBE mixing ratio on PM and PAH emission for Vehicle A and Vehicle B (JC08 Cold). (a)PM, (b) PAH.

### 3.3. PM および PAH 排出量に与える ETBE 混合率の影響

図 9 にレギュラーガソリンに ETBE を混合したときの PM および PAH 排出量に与える影響について車両 A, 車両 B を対象として JC08 Cold 走行において比較、検討した結果を示す。ETBE の体積混合率の増加とともに車両 A, 車両 B ともに PM 排出量は低減する傾向がみられるがこの傾向は車両 A で明瞭である。また、各 PAH 成分についても低減する傾向があり、含酸素燃料である ETBE 混合による PM, PAH 低減効果は大きいといえる。一般に、含酸素化合物は分子構造により違いがあるものの、軽油に混合した場合の直噴ディーゼル車からの PM 排出低減効果は高く、セタン価やアロマ分含有量の変化と比較してその影響は大きいことが知られている<sup>8)</sup>。今回の実験結果はディーゼル車と同様の傾向を示していることからコールド時のガソリ

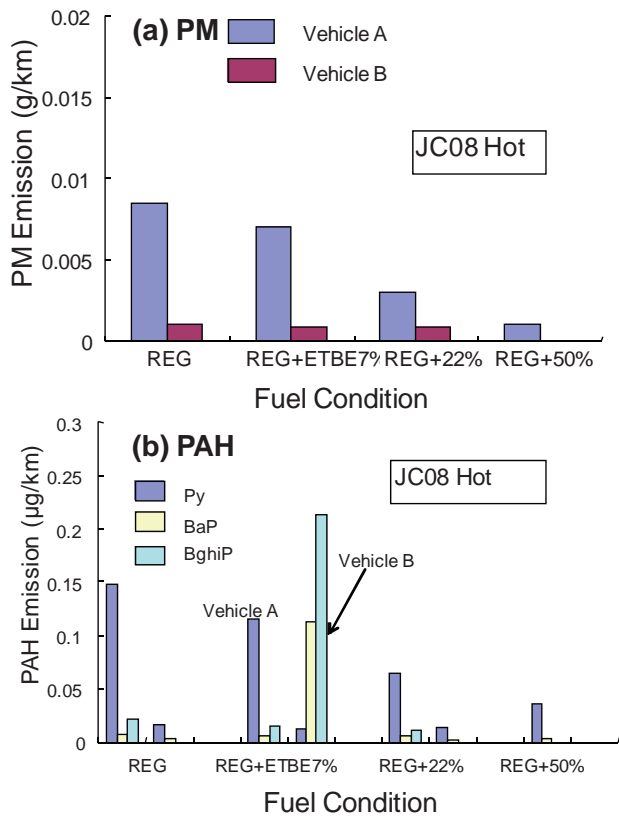


Fig.10 Influence of ETBE mixing ratio on PM and PAH emission for Vehicle A and Vehicle B (JC08 Hot). (a)PM, (b)PAH.

ン直噴車の PM 生成および抑制メカニズムにディーゼル車と同様のメカニズムが寄与していると考えられる。

図 10 は JC08 Hot スタートにおける結果を示した。Cold スタートと比較して PAH 排出レベルは大幅に低減し、ETBE 混合率の PAH 排出に与える影響はみられない。一方、PM 排出量については、車両 A では、ETBE 混合率の増加とともに PM 排出量は低減する傾向を示すが、車両 B では、ETBE 混合率によらず、車両 A と比較して大幅に低い排出量である。これは、車両 A では、暖気後においてもリッチスパイクにより PM が生成するが、車両 B では暖気後については、PM 生成はわずかであることを示していると考えられる。

図 11 に図 9、図 10 に示した結果およびプレミアム燃料を用いた車両 A の実験結果について、PM 排出量と BaP 排出量の相関について検討した結果を示す。図 2 に示すように PM の大部分は ISOOF であり、燃料中の硫黄分が微量であるので量的には ISOOF はほぼ SOOT と考えてよい。特徴的なことは、ホットスタート実験では BaP が触媒でほとん

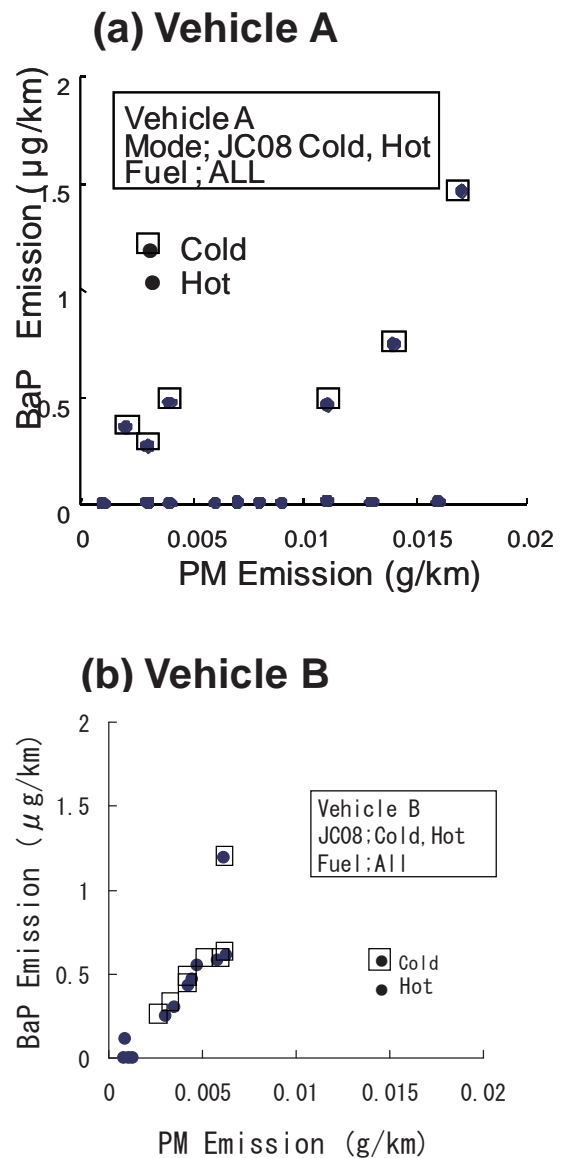


Fig.11 Figure of correlation between PM emission and BaP emission. (a)Vehicle A, (b)Vehicle B.

ど浄化されて排出されないため BaP 排出量と SOOT 排出量の相関は全くない。一方、コールドスタート時には BaP と SOOT との相関はややあると言える。PAH はディーゼル燃焼における SOOT 生成の前駆体と考えられており、直噴ガソリン車における SOOT 生成と PAH 生成との関連について今後さらに検討が必要である。

### 3.4. ディーゼル車との比較

図 12 に異なる方式の直噴ガソリン車である車両 A, 車両 B とディーゼル DI 小型トラック車(DDI)の PM および PAH 排出量を比較した<sup>9)</sup>。DDI-1 は長

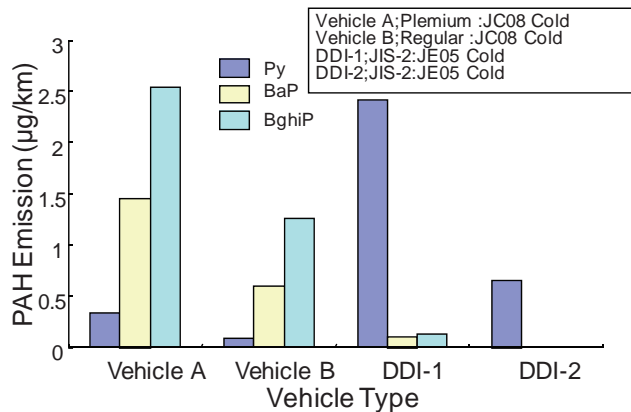
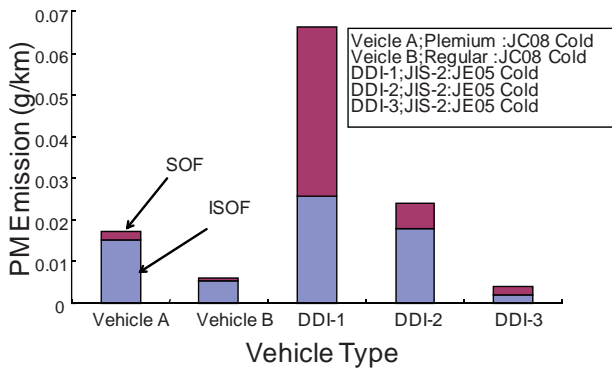


Fig.12 Comparison of PM and PAH emission between GDI vehicles and DDI vehicles. (a)PM, (b)PAH.

Table 3 Determination limit of PAHs.

	Py	BaP	BghiP
ng/フィルタ	0.15	0.02	0.2
絶対量 pg	31	4	39
µg/km ※	0.007	0.001	0.01

※JC08 Mode

期規制適合車,DDI-2 は新短期規制適合車で酸化触媒を装着しており、DDI-3 は DPF 装着車である。DDI 車の走行モードはいずれも JE05 モード Cold であり、燃料は表 2 に示す市販の硫黄分 10ppm レベルの JIS2 号軽油を使用した。表 3 に各 PAH の定量限界値を示した。

車両 A の PM 排出量は DDI-2 車とほぼ同程度であるが、新長期規制レベルの DDI-3 と比較すると大幅に排出量が多い。また、車両 B も DDI-3 車より排出量が多い。一方、PAH 排出量についても車両 A,車両 B から排出される BaP,BghiP の排出量は DDI 車と比較して大幅に高い。このことは、ガソ

リン直噴車におけるコールドスタート時の PAH 排出要因の解明と低減対策の検討が必要であると考ええる。

#### 4. まとめ

コールドスタートを含む各種走行モードにおけるガソリン直噴車から排出される PM および PAH 排出特性について検討した。また、ETBE をガソリン燃料に混合した時の PM および PAH 排出量に与える影響について検討し、以下の結論を得た。

(1) 供試リーンバーンガソリン直噴車からの PM 排出量は新短期規制のディーゼル直噴車と比較して同程度か低かったが、DPF を装着したディーゼル直噴車と比較して高いレベルにある。

(2) コールドスタート時における BaP,BghiP の排出量がディーゼル直噴車と比較してガソリン直噴車は大幅に高い結果を示した。排出要因の検討が必要である。

(3) ストイキ直噴車はリーンバーン直噴車と比較して PM 排出量は低く、主としてコールド時に排出される。

(4) ガソリンへの ETBE の混合は PM および PAH の排出抑制に効果がみられた。

#### 参考文献

- (1)後藤雄一他；直接噴射式ガソリン車から排出される粒子状物質に関する研究,自動車技術会講演会前刷集 NO.93-04(2003)
- (2)鈴木央一；最新ガソリンおよびディーゼル乗用車における排出ガス挙動の比較解析,交通安全環境研究所平成 16 年度研究発表会講演概要集
- (3)飯塚他；燃料性状がガソリン直噴車からの PM 排出に与える影響検討,自動車技術会学術講演会前刷集、NO.119-06(2006)
- (4)廣瀬敏之他、含酸素基材配合が直噴ガソリンエンジン車の PM 排出に及ぼす影響、自動車技術会学術講演会前刷集、NO.92-07(2007)
- (5)Philip Price et,al; Cold Start Particulate Emissions from a Second Generation DI Gasoline Engine SAE Paper 2007-01-1931
- (6)N,Zaghini,et.al:Polynuclear Aromatic Hydrocarbons in Vehicle Exhaust Gas, SAE Paper 730836
- (7)H.K.Newhall, et.al, The Effect of Unleaded Fuel Composition on Polynuclear Aromatic Hydrocarbon Emissions, SAE Paper 730834
- (8)鶴谷和司；含酸素燃料と燃焼システム、日本機

会学会講習会「新ミレニアムにおけるエンジン技術  
と燃料技術」、2000.5.30

(9)堀重雄他、直噴ディーゼル車から排出される粒  
子状物質および多環芳香族炭化水素に及ぼす新燃  
料の影響に関する研究、交通安全環境研究所報告、  
第10号(2006)