

エンジン排気管内におけるナノ粒子の挙動に関する研究

河合 英直*, Rahaman Montajir*, 後藤 雄一*, 小高 松男*

Study of Nano-Particle Behaviors in Engine Exhaust Pipe

by

Terunao KAWAI*, Rahaman Montajir*, Yuiichi GOTO*, Matsuo ODAKA*

Abstract

Recently particulate matter (PM) emission from internal combustion engines especially from the diesel engines is becoming severe problem. Specially, particles having a diameter of less than 100 nm are usually called as Nano-particle are considered to be seriously hazardous for human health. Due to very smaller in the size these nano-particles are very difficult to measure by the conventional gravimetric measurement system with sampling in a filter paper. Moreover it is assumed that more attention should be given to the effect of number and surface area of nano-particles to human health rather than to the effect of total mass of PM. However, emission behavior of nano-particles, especially the Nuclei-mode of nano-particles having the diameter less than 30 nm is very sensitive to the engine operating condition, measurement conditions and others. Therefore motivation of this research is to confirm the behavior of nano-particles emitted from engines and to propose a precise measuring method for nano-particles.

原稿受付：平成 17 年 1 月 20 日

* 環境研究領域

はじめに

ナノ粒子はその粒径が非常に小さいが故に現状のPM測定法で規定されているフィルタで捕集しその重量を測定する手法では計測限界に近づきつつあり、誤差が大きく正確な測定が非常に困難である。最近、今後のPM計測法の高度化が議論されており⁽¹⁾、さらにPM粒径の大小により人体への健康影響の度合いやその機構が異なる可能性も示唆されている。正確な現象の理解には粒子全体での重量等による濃度計測のみではなく粒子個数、濃度、表面積を含めた粒径分布計測も必要であり、近年のナノ粒子に関する研究では、米国ミシガン工科大学の Johan H. Johnson らが行った大型ディーゼル車両の過渡試験モードでの排出粒子変動の調査⁽²⁾や同じく米国ミネソタ大学の David Kittelson らによる排気ガス希釈過程が粒径分布に与える影響を調べたもの⁽³⁾、大型トレーラーの後ろを追跡して計測器を積んだ車で追跡し排気微粒子を計測したもの⁽⁴⁾、全量希釈トンネルを用いた場合の影響を調べたもの⁽⁵⁾、ギリシャ国アリストテレ大学 Zissie Samaras らの道路上の実際の通行車両による粒子排出特性を調査した研究⁽⁶⁾、などがある。これらの研究より、自動車排気ガスに含まれるナノ粒子はその挙動が非常に不安定であり、運転状態や計測方法、計測状態さらには計測時の気温や湿度といった諸条件に大きく影響されることが明らかになりつつあるが、早急にこれらナノ粒子の生成、希釈メカニズムを明らかにし、安定して再現性のある計測手法を見いだすことが将来のPM規制動向を決定する観点からも要求されている。

本報告では、これらPM計測に対する現状の問題点を明らかにし、その解決策を見いだすために我々が行った研究成果の一部を紹介する。

1. ナノ粒子に対する計測手法の影響

1.1 緒言

ナノ粒子計測時に、試料ガス中に含まれる揮発成分による計測変動を抑制するために、サーモデニューダの使用が提案されている⁽¹⁾。サーモデニューダは、ナノ粒子を含む試料ガスを加熱し、蒸発した揮発成分のみを流路に設置した吸着剤により除去することにより揮発性を持つナノ粒子に起因する計測変動を抑える装置であるが、ナノ粒子は分子拡散や分子間力、静電力、熱泳動等に強く影響を受け、その挙動は明らかでない点も多い。また温度条件を変化させることは揮発成分の相変化を招き、ナノ粒子自

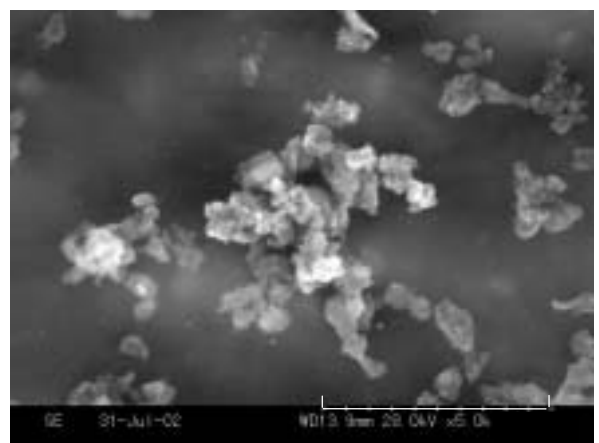
体の粒径分布を変えてしまう可能性もある。サーモデニューダの使用は揮発成分のみを取り除いて計測変動を抑制するのみならず測定対象である固体ナノ粒子そのものにも大きく影響することが考えられる。

本研究では固体粒子のみを発生させることのできる模擬粒子発生装置を用いて、サーモデニューダの固体ナノ粒子計測への影響について検討しその問題点を明らかにし解決策を見いだすことを目的とする。

1.2 実験装置、方法

1.2.1 模擬粒子発生装置について

本研究では固体粒子成分に対するサーモデニューダ(TD)による影響を調べるために、揮発成分を含まない固体炭素成分のみによるナノ粒子を発生させることのできる炭素粒子発生装置(PALAS Aerosol generator GFG-1000)を試料粒子発生装置として用いた。本炭素粒子発生装置は、装置内のアルゴンガス流路部に設けた2本の黒鉛電極間に高電圧を印可しスパークを発生させ、アルゴンガスを搬送ガスとして炭素のみからなるナノ粒子を生成する。印可電圧の放電周波数を変化させることにより発生させるナノ粒子の質量濃度を調節できる。本研究では、放電周波数を500 Hz一定とし約12mg/hのナノ粒子を発生させた。生成したナノ粒子の粒径は10nm~300nm程度の範囲に分布する。図1-1に本装置により発生させた粒子をクリーンエアにより希釈した後ディーゼル排気微粒子測定用フィルタ(Pallflex TX-40HI20)で捕集したものを電子顕微鏡SEM(日立製作所 S-3000N)で観察した写真を示す。図1-1より、多数の粒子が凝集し塊を形成していることが



Collected on ELPI's 7th Impactor ×5000

Fig.1-1 Photographs of nano-particles produced in this study

確認でき、図.1-2 に示したディーゼル排気粒子模式図と類似した形態の模擬ナノ粒子が生成できていると考える。

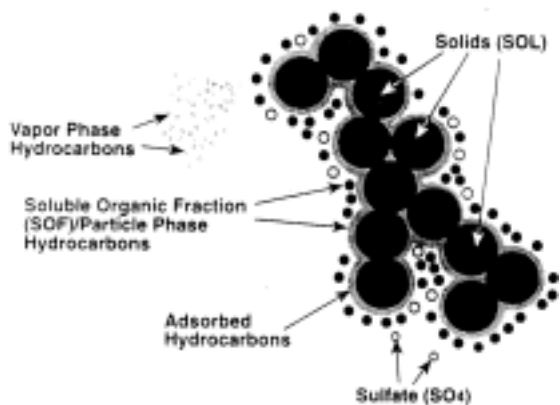


Fig.1-2. Schematic of Diesel Particles and Vapor Phase Compound⁽¹¹⁾

1.2.2 実験装置

本研究では、異なる2条件のナノ粒子の粒径分布を同時に計測するために電子式低圧インパクト Electrical Low Pressure Impactor(以降 ELPI と称する)(DEKATI 社製) 2 台を用いた。

図.1-3 に本研究で用いた実験装置の概略図を示す。内容量約 420L のアクリル製希釈容器に炭素粒子発生器からのナノ粒子を一定量供給しサンプルガスを生成する。同一サンプルガスを用いて同時に2系統の実験を行うために、サブチャンバーにより流路を2系統に分け、その後、任意の TD および ELPI から成るシステムに導き粒子粒径分布の計測を行った。

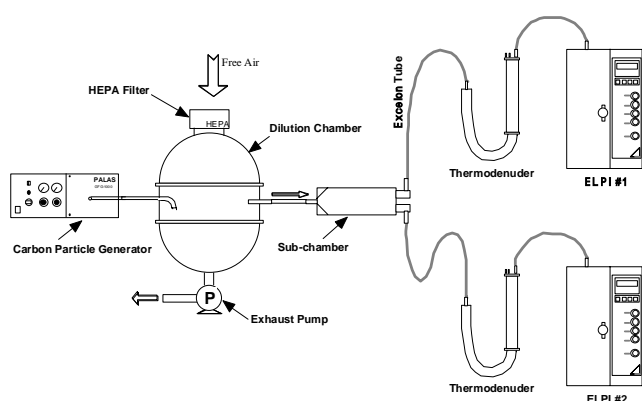


Fig.1-3 Schematic diagram of experimental system

サンプルガスはそれぞれの ELPI に内蔵のサンプルポンプにより一定流量 (10L/min) で吸引、計測

される。2系統に分割した後の配管には内径 6mm のエクセロンチューブを用い、継ぎ手部分を含めすべて同一形状、同一長さとなるように設定した。サンプルガスおよび装置全体は室温とし、TD 加熱部以外は特別な加熱や保温は行っていない。

アクリル製希釈容器内の空気を排気ポンプによって排出し、HEPA(High Efficiency Particulate Air) フィルタによって濾過された空気を吸入、容器内を清浄化した後、排気ポンプを停止し、希釈容器内に炭素粒子発生装置によりナノ粒子を供給する。所定の実験条件に合致するように2系統の粒子計測システムを設定し、ELPIで粒子の粒径分布を計測する。

1.3 実験条件

本研究では、TD の形状の違いによるナノ粒子計測に対する影響を調べるために吸着部形状が異なる2種類の TD (それぞれ TD-A type, TD-B type と称する) を用いて、それらのナノ粒子計測に対する影響を確認した後に、静電力、分子間力による粒子付着の影響が強いと考えられるサンプルガス流入衝突部形状を変更したもの、さらに、吸着剤による固体粒子補足と熱泳動の影響を調べるために吸着部チャコールフィルタを取り外した TD を用いて実験を行った。

TD の内部構造の概略を図.1-4 に、2種類の TD の写真を図.1-5 に、吸着部形状の詳細を図.1-6 に示す。

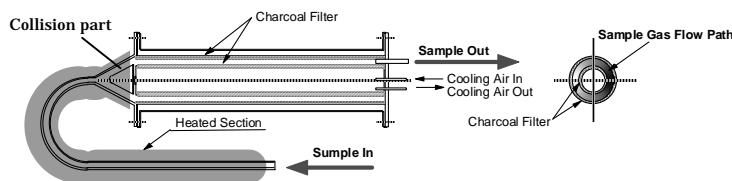


Fig.1-4 Schematic diagram of internal construction of TD



Fig.1-5 Photographs of two types of TD

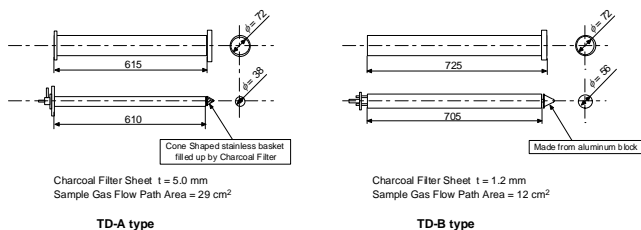


Fig.1-6 Details of absorption parts of two types of TD

2種類のTDは、加熱部分はほぼ同一形状であるが吸着部形状が異なり、吸着部長さはTD-A typeが615mm、TD-B Typeが725mmであり、さらにTD-A typeは、厚さ5.0mmと比較的厚いチャコールフィルタを装備しチャコールフィルタ部以外のサンプルガス流路面積は約12mm²と狭いのにに対して、TD-B typeは、チャコールフィルタ厚さが1.2mmと薄く、サンプルガス流路断面積も29mm²と比較的広い。さらに、流入ガス衝突部もTD-Aは、ステンレスメッシュで形成された円錐形状の籠内部にチャコールフィルタを充填した構造であるのに対して、TD-Bはアルミソリッドの円錐形とその構造、材質が大きく異なる。2種類の流入ガス衝突部を図.1-7に示す。

TD加熱部温度は250°C一定とし、実験を行った。

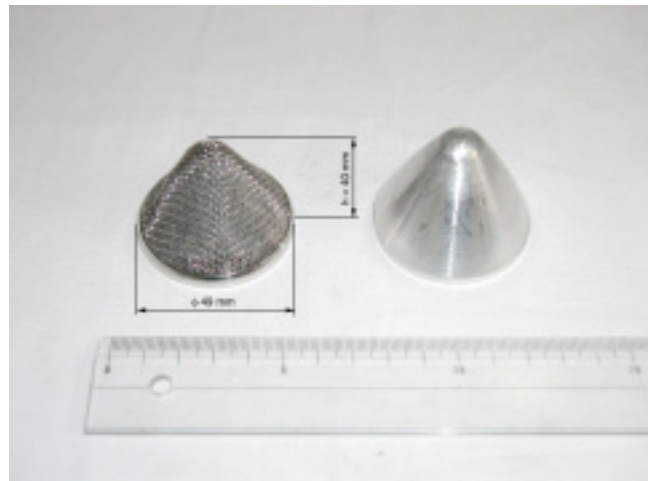


Fig.1-7 Photograph of two types of sample gas flow impactor

1.4 実験結果および考察

1.4.1 形状の異なる2種類のTDによる計測

最初に、吸着部形状が異なるTD-A、TD-B typeを用いた場合の粒子数濃度分布とTDを用いない場合の粒子数濃度分布を図.1-8に示す。

TD-A、Bどちらを用いた場合も、粒子計測範囲全域で粒子損失が見受けられ、特にTD-Bの場合は1stから4thステージの粒径範囲で粒子数濃度がほぼ一定値を示し、ELPIのみで観測した供給サンプルガスの粒径分布とは異なった粒径分布形状となっている。TD-Aを用いた場合は59nmをピークとする粒径分布形状はほぼ保たれている。

以上より、TDを用いることにより固体粒子成分の損失が発生し、特にTD-Bを用いた場合、粒径の大きい粒子より小さい粒径の損失が大きく、粒子分布も正確に計測できていない。TD-Aを用いた場合は、その粒径分布は比較的良好に計測することが出来ている。

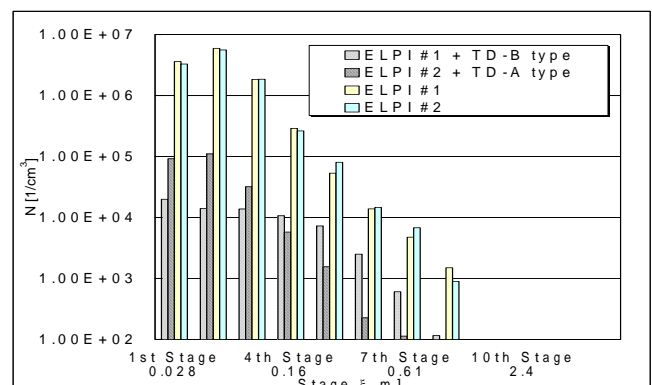


Fig.1-8 Influence of type of TD

この TD-A と B の計測結果に対する影響の違いは、内部構造の違いから以下の 2 点が原因であると考えられる。

円錐形状流入ガス衝突部構造の違い。

図.1-7 に示したように、TD-A と B では円錐形状の流入ガス衝突部の形状以外にその材質、構造が大きく異なる。TD-A は、ステンレスメッシュで形成された籠の内側にチャコールフィルタが詰められており、TD-B ではアルミ材削り出しの円錐形の部品である。

チャコールフィルタ厚さの違い。

図.1-6 の TD 詳細図に示したように、揮発成分吸着を目的に内部に装着されているチャコールフィルタの厚さが TD-A では 5.0mm、TD-B では 1.2mm と大きく異なり、吸着性能以外に、熱伝導や温度勾配に影響があると考えられる。

1.4.2 TD 入口、試料ガス衝突部構造の違いによる影響

2 台の TD-A type のうち 1 台の流入ガス衝突部を、形状は TD-A type に装着されていたものと同様で、素材のみアルミ削り出しで製作したものに変更し、比較試験を行った。その結果を図.1-9 に示す。

流入ガス衝突部をアルミに変更した TD の方が、わずかに粒子損失が大きくなっているが、今回の実験範囲では、微小粒子ほど粒子損失が大きくなったり、粒子分布形状に影響をおよぼすほど大きな差は現れておらず、この流入ガス衝突部の相違だけが前項で示した TD-A と TD-B の計測結果の違いを導いているとはいえない。なお、本グラフの Stage5~8 において条件の違いによるデータの差が大きいうように表されている。本研究で使用した模擬粒子発生装置は約 10~300nm の粒径範囲の粒子しか発生しておらず Stage5 以降の粒径範囲に含まれる粒子の発生は非常に少ない。このことから、この粒径範囲に現れている粒子は模擬粒子以外のダストを検出しているものと考えられ、さらに縦軸を対数表示としているために見かけ上差が大きく表示されているに過ぎず有意なデータとは言えない。これは本研究の全ての実験結果にあてはまる。

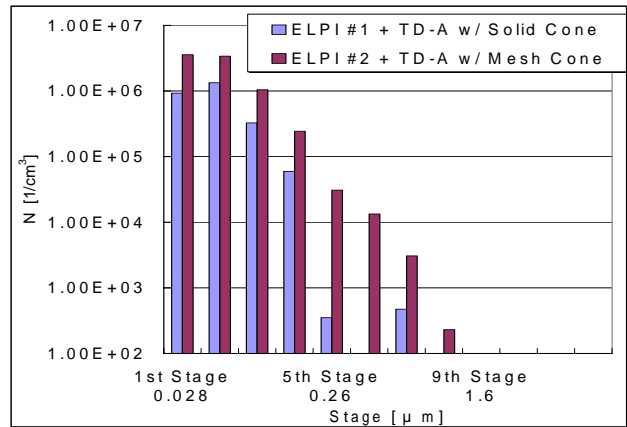


Fig.1-9 Effect of sample gas flow impactor

1.4.3 TD 吸着部活性炭フィルタの影響

TD-A type のチャコールフィルタを取り外し、内部が空の TD (Empty TD と称する) を用いた場合と TD を使用せずに ELPI のみで計測した場合の粒子粒径分布を図.1-10 に示す。

TD-A type から内部のチャコールフィルタを取り外したことにより、サンプルガス流路断面積は約 2.5 倍に拡大し、TD 内部のほとんどの部分で金属表面が露出した。図 1-10 から明らかなように、内部のチャコールフィルタを取り外した Empty TD による粒子損失は大きく、特に Stage1 (中心粒径 29nm) の測定結果に顕著に現れているように、小さい粒径の粒子に対する粒子損失が大きい。

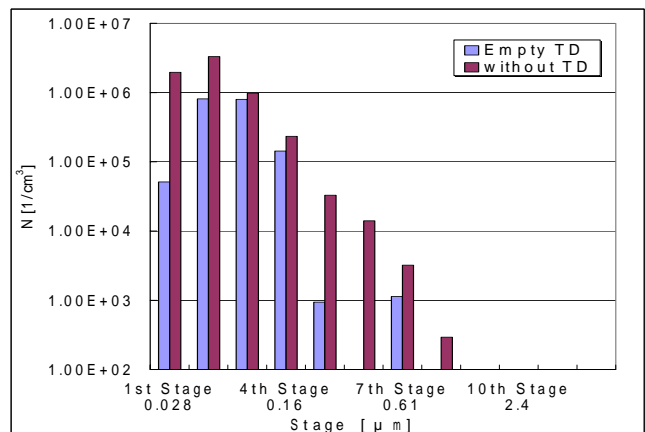


Fig.1-10 Comparison between measurement of ELPIs with empty TD and without TD

次に、2 台の同形状の TD (TD-A type) を用意し、Empty TD と通常のチャコールフィルタを装着した TD との比較試験を行った。その結果を図.1-11 に示す。

チャコールフィルタを取り除いた Empty TD によ

る計測結果では Stage1 (中心粒径 29nm) の小さい粒径の粒子に対する粒子損失が大きく、粒径分布のピーク粒径も 56nm とチャコールフィルタを装着した通常の TD を用いた場合のピーク直径 29nm とは異なった値を示している。

この結果は、TD による粒子損失、特に粒径 100nm 以下の微小粒子の損失は、チャコールフィルタにより微小粒子が捕捉されて損失しているのではないことを示している。

TD では前段の加熱部において 250 °C に加熱されたナノ粒子を含んだサンプルガスが室温の吸着部に流入する。この際、高温のサンプルガスと低温の吸着部壁面との間の温度勾配が急激であればあるほどナノ粒子に対する熱泳動の影響が大きくなり低温の壁面にナノ粒子が付着することが考えられる。つまり、チャコールフィルタを取り除いた TD による微小粒子の損失は、熱泳動の影響によりナノ粒子が TD 内部の露出金属表面に付着することが原因であると考えられる。

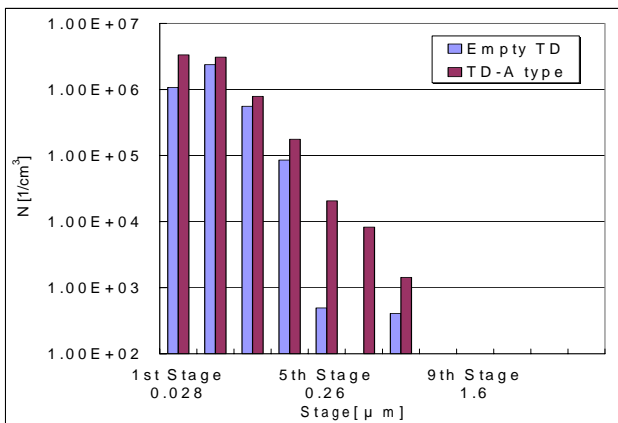


Fig.1-11 Comparison between measurements of ELPIs with empty TD and normal TD

以上の考察より、TD-B type は、TD 吸着部内部の金属表面露出面積の大きな流入ガス衝突部構造と薄いチャコールフィルタの使用により、粒子損失が大きく現れたものと言える。

さらに、TD 内部に設けられているチャコールフィルタには、蒸発した揮発成分を吸着する作用以外に、TD 壁面とサンプルガス流の間の温度勾配を緩やかにする熱緩衝材としての働きも要求されることが明らかになった。

1.5 まとめ

1)揮発成分を含まない固体ナノ粒子に対しても、TD

は強い影響を与える。TD の内部構造によっては、ナノ粒子の個数のみならず、その個数分布プロフィールまで影響を受ける。

2)試料ガス温度より TD 壁面の温度が低く、その温度勾配が急峻な場合、熱泳動の影響によりナノ粒子が壁面に捕捉され、パーティクルロスが大きくなる。特に、粒径の小さいナノ粒子ほどこの影響による粒子損失は多くなる。

3)TD 吸着部のチャコールフィルタは、本来の揮発成分を吸着し除去する働き以外に TD 壁と試料ガス間の温度勾配を緩やかにし、熱泳動による粒子損失を少なくする効果がある。

4)ナノ粒子計測を行う際には、TD 部分に限らず、試料採取部から計測器に至るまでの配管等において試料ガスとの温度差に十分配慮する必要がある。特に、試料ガスと比較して温度の低い金属部分を露出させ急峻な温度勾配部分を作ると、粒径の小さなナノパーティクルが捕捉されてしまい計測結果に大きな誤差を生じる。

本研究では、TD の形状は固体ナノ粒子計測に対して強く影響し、使用の際にはその内部構造に起因する温度分布に注意する必要があることを明らかにした。今後さらに、揮発成分、半揮発成分に対する TD の影響を明らかにする予定である。特に、半揮発成分を多く含む、または半揮発成分から生成される割合が多いと予測される、粒径 100nm 以下の nuclei mode と呼ばれる粒径領域の粒子に対する TD の使用による影響は、粒子損失のみならずナノ粒子自体の生成過程にも大きく影響していることが予想できる。

2. ナノ粒子測定に対する温度の影響

ディーゼルエンジンから排出された排気微粒子が排気の冷却、希釈過程においてどのように変化するかを調べ、排気微粒子の生成および成長のメカニズムを明らかにし、正しい計測法を確立する一助となることを目的に研究を行った。

2.1 実験装置

実験装置の概略図を図 2-1 に、供試機関の主要諸元を表 2-1 に示す。コモンレール式直接噴射 8 リットルディーゼルエンジンからの排出ガスは排気管を通り全量希釈トンネル(フルトンネル)に導かれる。排出されるナノ粒子の粒径別個数分布を、排気管上

流からフルトンネル出口にいたる4点において走査型モビリティ粒径分析器 (SMPS: Scanning Mobility Particle Sizer, TSI社 model 3936)により計測した。

本研究では、それぞれ過給器タービン出口から、1.1mのサイレンサー手前、2.6mのサイレンサー出口直後、9m後流のフルトンネル入口、13m後流のフルトンネル出口の4箇所に計測点を設定した。排気ガス濃度が高い上部3箇所の計測点では、ロータリーディスク型希釈装置 (Matter Engineering, MD-19⁽¹⁰⁾) と SMPS を使用し、最も下流のフルダイルューショントンネル出口の測定点ではSMPSのみで測定した。図2-2に使用したエンジンとガスサンプリング部の写真を示す。



Fig.2-2 Photograph of Sampling Point

Table 2- 1 Engine specification

J08C ('98 Japan Emission Regulation satisfied)

Engine Type	Common Rail Turbo Charged with Intercooler
Bore × Stroke	114 × 130 mm
Total Displacement	7.961 liter
Max Power	191 kW (260ps) / 2700 rpm
Max Torque	745 Nm (76.0kgm)
Max Speed at Full Load	3100 rpm
Idling Speed	550rpm

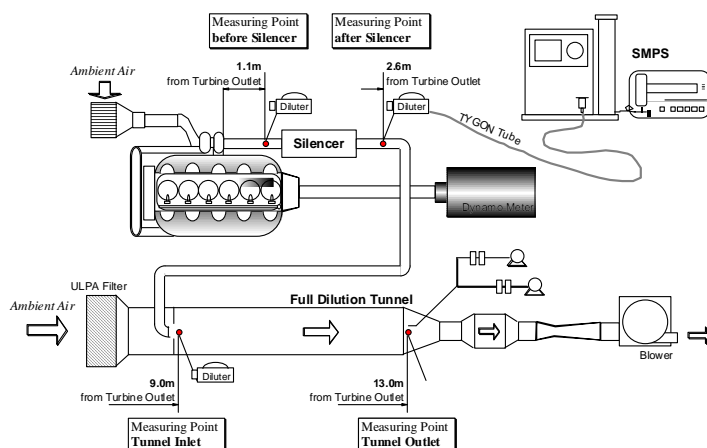


Fig.2-1 Schematic diagram of experimental apparatus

表2-2に供試験燃料の標準試験成績を示す。燃料中の硫黄分のナノ粒子生成が問題であるが、今後の自動車用燃料規制により軽油中の硫黄含有量は低減されることから、本研究では硫黄含有量31ppmの低硫黄軽油を供試燃料とした。

Table 2-2 Main properties of fuel

密度 (15) g/cm ³	(JIS K2249)	0.8336
反応	(JIS K2252)	中性
引火点	(JIS K2265)	66.0
動粘度 (30) mm ² /s	(JIS K2283)	3.736
流動点	(JIS K2269)	-7.5
10%残油残留炭素 %	(JIS K2270)	0.01
硫黄分 wt.ppm	(JIS K2241)	31
目詰り点	(JIS K2288)	-10.0
セタン指数	(JIS K2204 4.7)	55.1
分留性状 90%留出温度	(JIS K2254)	345.0

2.2 実験方法

様々な排気ガス温度条件でナノ粒子粒径分布を計測するために以下のような手順で実験をおこなった。図 2-3 にエンジン運転状態と排気ガス温度の関係を模式的に示す。まず始めに比較的高い負荷で一定期間エンジンを運転し排気ガスが所定の温度に達した時点で、エンジン運転を瞬時にアイドリング状態に切り替える。エンジンから排出される排気ガスはアイドリング時の排気組成となるが、エンジン本体および排気管、サイレンサー等の熱容量により、排気ガス温度は急激には低下せず、徐々に低下する。この現象を利用して、エンジン運転条件はアイドリング一定で、排気ガス温度のみが変化していく条件を作り実験を行った。

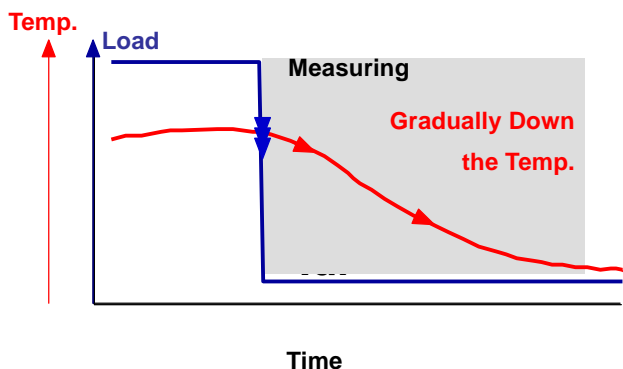


Fig.2-3 Schematic diagram of exhaust temperature control by engine operation

図 2-4 に計測期間中の各測定点における排気ガス温度変化を示す。SMPS では 1 点の測定に 2 分間を要するため、計測期間中にも排気ガス温度は変化する。本研究では、測定期間中にこのような温度変化があることを考慮した上で解析をすすめた。

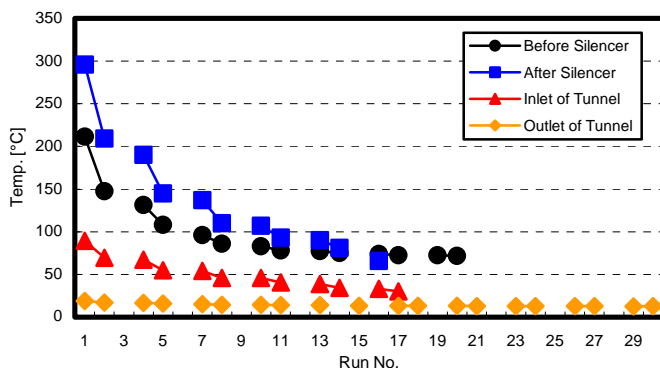


Fig.2-4 Temperature changing at each measuring Point

エンジン運転条件は、アイドリング条件 (550rpm, 0Nm)、低負荷条件 (1200rpm, 98Nm)、中負荷条件 (1620rpm, 450Nm) そして条件によっては高負荷条件 (2160rpm, 588Nm) の 4 条件で実験を行った。なお、ロータリーディスク型ダイリュータの希釈比は 50 倍に設定した。

2.3 実験結果

2.3.1 排気温度の影響

測定部の温度条件を変化させ、微粒子に対する排気温度の影響を調べた。

温度条件を変化させるためにエンジン本体および排気管が持つ熱容量によって排気ガス温度が緩やかに低下することを利用し、一定のエンジン運転条件で、排気ガス温度のみを変化させた。

図 2-5 にエンジンアイドリング運転条件において排気温度を変化させた場合のサイレンサー前測定部 (ターボチャージャ出口から約 1.1m 後流) での粒径分布を示す。粒子数密度は全て希釈前の密度に換算して表示している。グラフの一番手前に示した排気温度が 211 と高い場合は、粒径分布は Accumulation モード⁽⁵⁾のみからなるモノモーダルな分布を示すが、排気温度の低下に伴い 10nm をピークとする Nuclei モード⁽⁵⁾粒子の個数濃度が増大し、粒径分布は Nuclei モードと Accumulation モードの二つからなるバイモーダル分布へと変化する。なお、本来ならば、10nm 以下の粒径分布も測定すべきであるが、今回は実験装置の都合により 10nm 以下の粒径については測定できていない。

Fig.2-5 Influence of exhaust gas temperature at sampling point before silencer

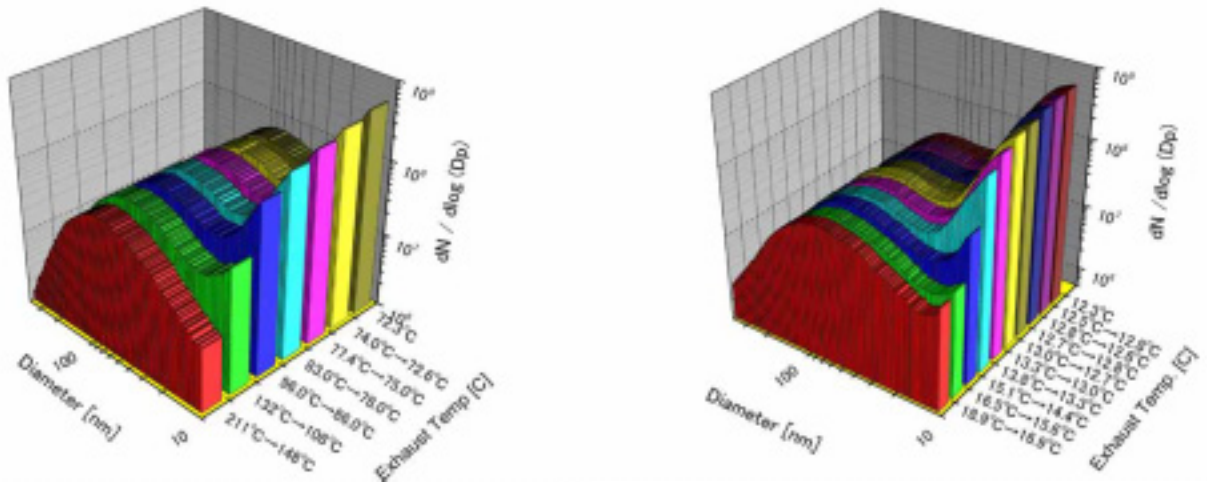


Fig.2-6 Influence of exhaust gas temperature at outlet of dilution tunnel

図 2-6 に全量希釈トンネル出口測定部（ターボチャージャー出口から約 13m 後流）での測定結果を示す。この測定位置においては、エンジンからの排気ガスはフルダイリュージョントンネルによって希釈されているため、サンプルガスはロータリーディスク型ダイリユータを用いることなく直接 SMPS に導入して計測した。本実験条件における全量希釈トンネルの希釈比は約 28 である。

測定結果は他の計測位置の場合と定性的にはほぼ同様の傾向を示している。これは、トンネル出口でガス温度は 20 度以下と室温程度に低下しているにも係わらず、エンジン排気弁近くの排気管上流で生成された粒子は、ほぼそのままの粒径分布を保ったままトンネル出口に達していることを示す。しかしながら、トンネル出口の計測結果では、図 2-5 に示したサイレンサー前における粒径分布と異なり、排気温度が高い条件でも 10nm 付近の粒径分布に小さいピークが観測できる。これは、希釈トンネルを用いた希釈とロータリーディスク型ダイリユータを用いた場合の希釈方法の違いに起因していると考えられる。ロータリーディスク型ダイリユータは内部での水分等の凝縮を防ぐために希釈器内部を 150 に加熱保温し希釈空気も昇温されているが、それに対して全量希釈トンネルの希釈空気は室温であり、トンネル入口で高温の排気ガスが室温空気により一気に冷却、希釈されることにより Nuclei モード粒子が生成されと考えることができる。

2.3.2 測定点温度の影響

図 2-7 に各測定点における排気ガス温度と粒子個数濃度の関係を Nuclei モードと Accumulation モードそれぞれの代表直径を用いて示す。本研究では、それぞれのモードを表す個数濃度分布カーブのピーク粒径（Nuclei モード：10nm、Accumulation モード：80nm）をそれぞれの代表直径とした。

測定点を移動しても Accumulation モード粒子代表直径は排気ガス温度、すなわち雰囲気温度によらずほぼ一定の値を示すが、Nuclei モード粒子は雰囲気温度が高くなるにしたがって個数濃度が減少し、特に排気管上流部の温度が低い場合ほど多数のナノ粒子が生成され、いったん生成されたナノ粒子は、低温の排気管下流へ移動しても大きくは減少しないことがわかる。このことから、Nuclei モード粒子はエンジン排気弁から排出された後の排気ガスの冷却履歴によりその生成が大きく影響を受け、エンジン排気弁から放出された排気ガスが急激に素早く冷却される方が、比較的高温（200 以上）で時間をかけて緩やかに冷却される場合よりも生成される Nuclei モード粒子は多くなり、さらに、一旦エンジン排気弁直後で急激に冷却され生成した Nuclei モード粒子は、その後比較的長い時間、広い温度範囲において存在し続けると考えられる。

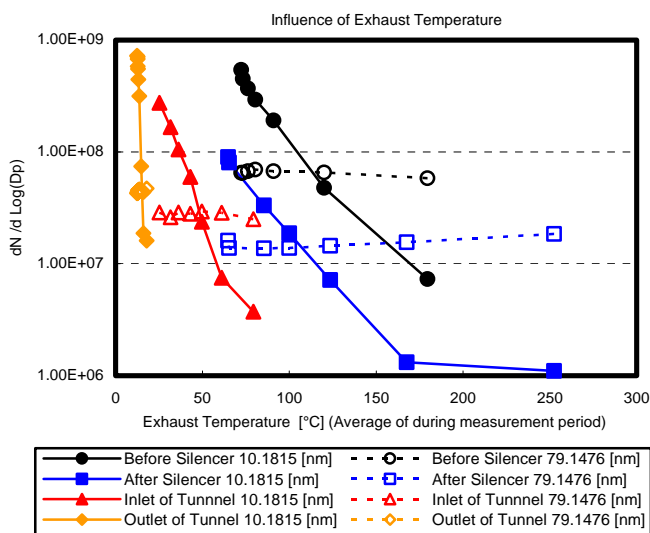


Fig.2-7 Influence of exhaust gas temperature

2.3.3 エンジン運転状態の影響

次にエンジンの運転条件が排出微粒子の粒径分布に与える影響について調べるために、エンジン運転条件をアイドリング運転、低負荷、中負荷および計測条件によっては高負荷と変化させた場合のサイレンサー後およびダイリュシオントンネル出口測定位置における粒径分布をそれぞれ図 2-8、2-9 に示す。

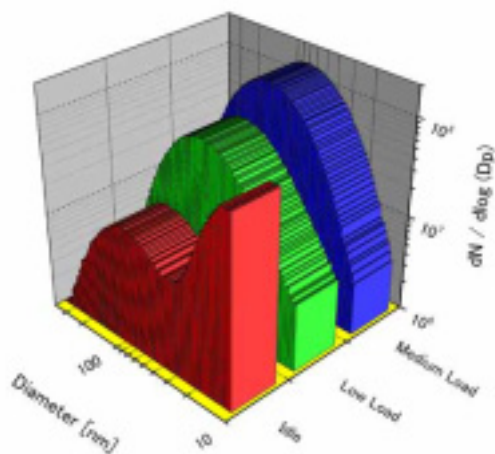


Fig.2-8 Influence of engine load at sampling point after silencer

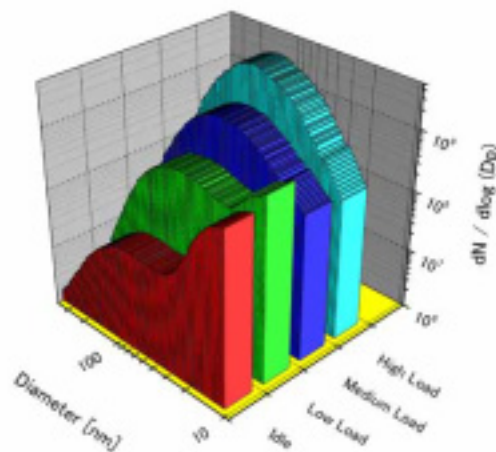


Fig.2-9 Influence of engine load at sampling point outlet of tunnel

双方のグラフを比較した場合、低負荷条件での粒径分布に差が見られるが、これは前述のロータリーディスク型ダイリュータ使用の有無による差と考えられる。

どちらの測定位置においても、エンジン負荷の上昇に従い 粒径 80nm をピークとする Accumulation モード粒子は増加しているのに対して、粒径 10nm をピークとする Nuclei モード粒子はそのピークが消失し Accumulation モード粒子の粒径分布曲線の裾野に埋もれてしまっている。このような場合、10nm 付近の粒径粒子が Nuclei モードにより生成された粒子なのか、そうでないのかを粒径分布データのみから判断することは難しい。

図 2-10 にエンジン負荷の違いによる排気微粒子個数濃度の変化を、それぞれのモードの代表径を用いて表した。点線で示した Accumulation モード粒子が負荷の上昇と共に大きな値を示し、図 3-8,3-9 に示した Accumulation モード粒子の挙動を正しく表現できているが、実線で示した粒子径 10nm の個数濃度の値は、Nuclei モード粒子の動向を正しく表しているかどうかは現時点では明らかでない。

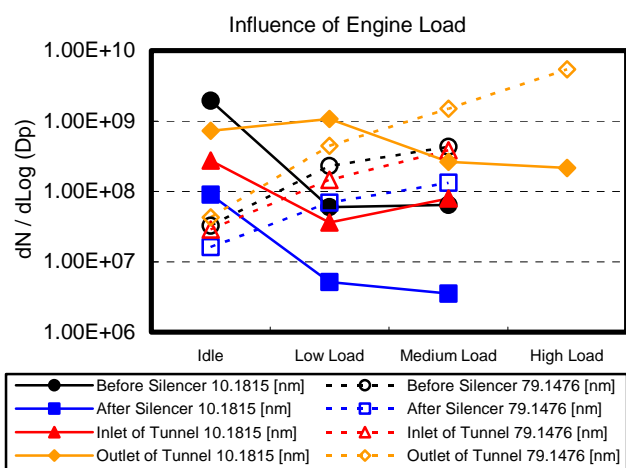


Fig. 2-10 Influence of engine load

2.4 まとめ

以上の研究より、Nuclei モード粒子はエンジン排気弁から排出された後の粒子の冷却履歴によりその生成が大きく影響され、エンジン排気弁から放出された排気ガスが急激に素早く冷却される方が、比較的高温(200 以上)で時間をかけて緩やかに冷却される場合よりも多量の Nuclei モード粒子が生成されることが明らかになった。さらに、Nuclei モードと Accumulation モード、それぞれのモードを代表する粒子径が存在し、それぞれの代表径の排出粒子濃度を用いることで、エンジンからの粒子排出状況を評価できる可能性が高いと考えられる。

3. ナノ粒子計測に対する希釈方法の影響

自動車のテールパイプから大気中に放出されたナノ粒子は、大気中で希釈され人体に取り込まれる。その希釈過程において、ナノ粒子が生成、成長する可能性も考えられることから、自動車排気ガス中のナノ粒子を計測する際に必要となる試料ガスの希釈は慎重に行なわねばならない。

エンジンから排出されたナノ粒子が希釈により受ける影響を明らかにし、ナノ粒子を安定的に計測する手法を見いだすことを目的とした実験をおこなった。

3.1 実験装置、方法および実験条件

実験装置は前章図 2-1 に示したものと同一システムを用い、低負荷条件(1200 rpm, 98 N-m)一定でエンジンを運転した際に、全量希釈トンネル(フルダイリュージョントンネル:フルトンネル)による冷希釈(コールドダイリュージョン)と、ローター

リーディスクタイプ希釈器を用いた熱希釈(ホットダイリュージョン)による測定結果を比較した。それぞれの条件における、試料ガス採取場所は、フルトンネル出口と、入り口部とした。

3.2 実験結果

図 3-1 に希釈方法の違いによるナノ粒子計測結果の違いを示す。

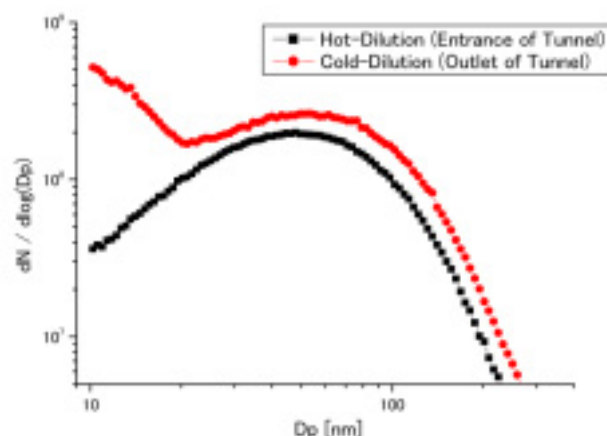


Fig. 3-1 Influence of dilution method

ローターリーディスク型希釈器を用いた実験では、希釈器本体と希釈空気の温度を 150 に設定し、試料ガスの温度よりも高温の希釈空気により希釈する、いわゆるホットダイリュージョンを施した。なお、希釈率は 50 倍とした。それに対し、フルトンネルによる希釈では、希釈空気は約 15 と試料ガス温度よりも低くコールドダイリュージョンを行った。フルトンネルの制約によりこの際の試料ガスの希釈比は約 14 である。

トンネル入り口部でホットダイリュージョン後に計測した結果は、80nm 付近に粒径分布のピークを示すアキュムレーションモードのみからなるモノモーダルな粒子粒径分布を示しているのに対し、フルトンネルによりコールドダイリュージョンを施した後に計測した結果では、まったく同じ排出ガスを計測しているにもかかわらず、その計測結果は、10nm と 80nm に 2 つの粒径分布のピークを示すバイモーダルな粒子粒径分布形状を示す。この結果は、フルトンネルに導かれた比較的高温の排出ガスが、トンネル内の低温の希釈空気中で急激に冷却されることにより、10nm にピークを示すニュークレイモードと呼ばれる非常に粒径の小さい粒子が生成されたこと

を示す。このことから、計測手段が排気ガス中の粒子に与える影響を少なくして計測するためには、希釈空気の温度は試料ガスと同等か、それよりも高温であることが望ましいといえる。

一方、他のエンジン運転条件（アイドリング、中負荷、高負荷）でも、同等の比較を行ったが、低負荷の場合のように、ホットダイリューションとコールドダイリューションで明確な測定結果の差は現れなかった。これは、コールドダイリューションの際の試料ガスの急激な冷却によってニュークリエーションモード粒子が生成されるためには、試料ガスが特定の条件を満たす必要があり、それは、温度変化により気体から液滴、または固体粒子へと相変化を起こし得るだけのニュークリエーションモード前駆物質ガスの濃度が必要なためと考えられる。すなわち、本実験の範囲では、低負荷運転のときのみこのような濃度条件を満たすガスがエンジンから排出されたと考えられる。

図 3-1 において、アキュムレーションモード粒子の粒子数濃度が希釈方法の違いにより異なる値を示しているが、この理由について現時点では明らかではない。しかしながら、フルトンネル入り口部で採取したホットダイリューション条件の場合、サンプリング部がフルトンネルの希釈空気流入部に隣接していたために、フルトンネルの希釈空気によってガスがわずかに希釈されていたか、もしくは、それぞれの希釈比を用いて希釈前の濃度に変換する際に正確に計算できていない可能性が考えられる。

3.3 まとめ

以上より、排気ガス中のナノ粒子を計測する際に計測手法それ自体の影響によりナノ粒子を生成してしまう可能性は、試料ガスよりも高温の希釈空気希釈するホットダイリューションのほうが、低温の空気希釈するコールドダイリューションよりも少ないことが明らかになった。

4. サーマコンディショナの影響

排気ガス中のナノ粒子は計測条件によって大きく影響を受ける。計測の再現性を確保するためにサーモコンディショナと呼ばれる装置により試料ガスを加熱し、計測不安定性の原因と考えられる揮発成分の凝縮を防止しナノ粒子計測を安定させる手法が提案されているが、その効果、最適条件等明らかでな

い点も多い。本研究では、サーモコンディショナがナノ粒子計測に与える影響を明らかにするとともに、温度変化に伴うナノ粒子粒径分布の変化から排気ガス中のナノ粒子の特性を明らかにすることを目的とした。

4.1 実験装置および手法

4.1.1 サーマコンディショナについて

図 4-1 に本研究で使用したサーモコンディショナ (Matter Engineering AG 社製 Thc-1) の外観を示す。加熱管に導かれた試料ガスは所定の温度で加熱された後、放熱版と冷却ファンからなる冷却部において室温まで冷却され計測装置に送られる。この温度操作により希釈過程での排気ガス中揮発成分の凝縮を防止することを目的としている。



Fig.4-1 Photograph of thermo conditioner

4.1.2 実験装置

図 4-2 に実験装置概略を、表 1 に供試エンジンの主要緒元を示す。直列 6 気筒コモンレール式ディーゼルエンジンから排出されたガスは、排気流路に設けた 3 カ所の測定点で、ロータリーディスク型ダイリュータ (Matter Engineering AG 社製, MD-19) または全量希釈トンネルによって希釈された後、サーモコンディショナを通過し、走査型モビリティ粒径分析器 (TSI 社製 model3034) にて測定した

Table 4-1 Specifications of test engine

Engine Type	Six Cylinder DI-Diesel
Injection System	High-press. Common-rail
Bore x Stroke	114 mm x 130 mm
Swept Volume	7.96 Liter
Emission Standard	Japan 1998

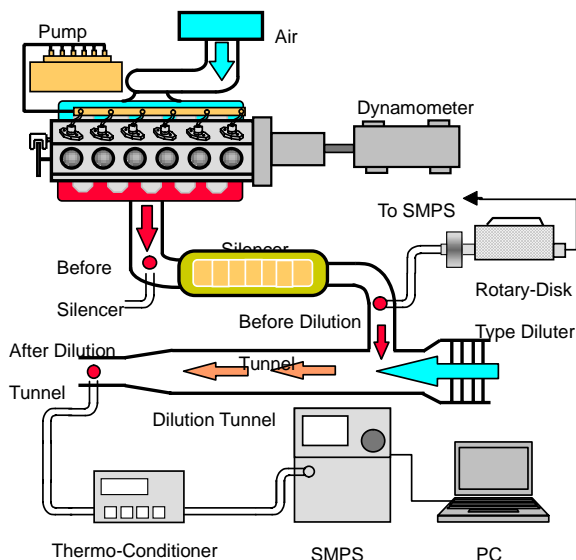


Fig.4-2 Schematic of experimental system

4.2 実験結果および考察

4.2.1 希釈温度の影響

図 4-3 にサイレンサ前測定部においてロータリーディスク型希釈器による希釈温度を変化させた場合の粒子粒径分布測定結果を示す。機関運転条件はニュークリエーションモード、アキュムレーションモード粒子(1)双方を生成できるアイドル条件(550 rpm, 0 N-m)である。希釈温度を変更することは、希釈過程での温度条件を変更することであり、揮発成分の凝縮条件を変化させることとなる。サーモコンディショナを使用しない場合、希釈温度を上げるに依り、ニュークリエーションモード粒子のうち 20~30nm 付近の粒子が少なくなる。サーモコンディショナ温度を 300 に設定した場合、全ての希釈温度において 20~30nm 付近の粒子数濃度はサーモコンディショナを使用しない条件より減少し、希釈温度の違いによる影響を受けにくくなる。100nm 付近にピークを示すアキュムレーションモード粒子はいずれの温度条件においても影響を受けない。

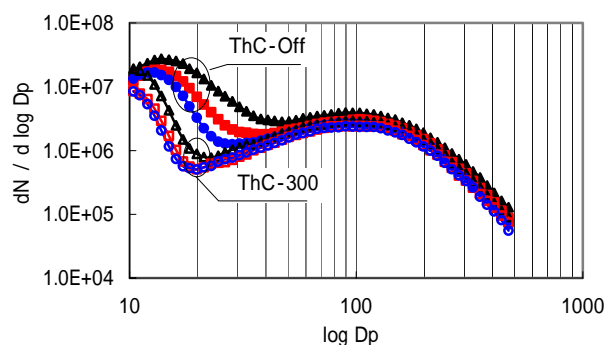


Fig.4-3 Effect of dilution temperature on nano-particle number distribution (Idling: 550 rpm, 0 N-m), MD: Rotary-Type Diluter Temperature

4.2.2 サーモコンディショナの効果

サーモコンディショナは、希釈、冷却過程に揮発成分から生成されたニュークリエーションモード粒子を再度揮発させ、周囲気体中に拡散させることにより揮発成分濃度を低下させ、粒子生成を抑制する。この温度を変化させることは、一旦生成された粒子の蒸発温度条件を変化させることとなる。図 4-4 に機関アイドル状態で全量希釈トンネル後流でサーモコンディショナの設定温度を変化させた場合の粒径分布測定結果を示す。サーモコンディショナ設定温度の上昇に従って 20~30nm 付近の粒子が抑制されるが、その温度が室温から 100 までの範囲では顕著な効果は現れず、また、300 以上にしてもその効果は殆ど変わらない。さらに、10nm 付近の粒子数濃度はどの条件でも殆ど変化しておらず、この粒径の粒子は温度変化に影響を受けていない。

機関運転条件を低負荷条件(1200 rpm, 98 N-m)で同様の測定を行った結果を図 4-5 に示す。サーモコンディショナのヒータ切の場合、15nm 付近にピークを持つニュークリエーションモード粒子が観測されるが、サーモコンディショナ設定温度を 100 以上にするとその粒子数濃度ピークは大幅に低減される。設定温度が 300 以上となると、さらに 15nm 付近の数濃度は低減するが、10nm 付近の粒子数濃度は減少せず、10nm 以下の領域に新たな分布ピークがあることが予想される。この条件の場合も、100nm 付近にピークを示すアキュムレーションモード粒子はいずれの温度条件においても影響を受けない。

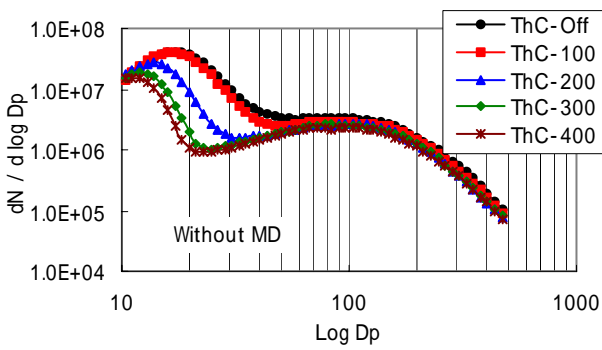


Fig.4-4 Effect of Thermo-Conditioner on nano-particle number distribution at a point after full dilution tunnel

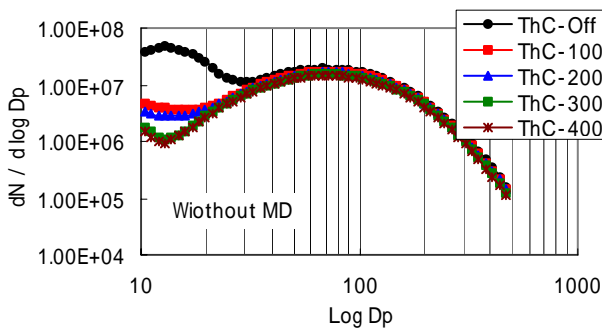


Fig.4-5 Effect of Thermo-Conditioner on nano-particle number distribution at a point after full dilution tunnel without hot dilution (Low load: 1200 rpm, 98 N-m)

4.2.3 ナノ粒子の特性について

以上の実験結果からナノ粒子の特性を考察する。100nm 付近に粒径分布のピークを示すアキュムレーションモード粒子は、希釈、冷却過程の温度条件変化の影響を殆ど受けないことから、揮発成分がその粒径に殆ど影響を及ぼさない固体粒子が主であると考えられる。ニュークリエーションモード粒子はその温度変化に伴う挙動の違いから以下の3種類の粒子からなると考えられる。

- 1) 100 程度の温度で消失する揮発成分のみからなる粒子
- 2) 100~300 程度の温度で消失または粒径が小さくなる半揮発性粒子
- 3) 400 でも消失しない粒径ピークが 10nm 以下にある粒子。

詳細な化学成分や構造を今後他の方法で明らかにしていく必要があるが、3)で示した 10nm 以下の粒径粒子を核としてニュークリエーションモード粒子

が構成されており、揮発性成分の温度に対する挙動は温度域の違いから大きく分けて2種類存在すると考えることができる。

以上から、図 4-6 に示すナノ粒子モデルを提案する。

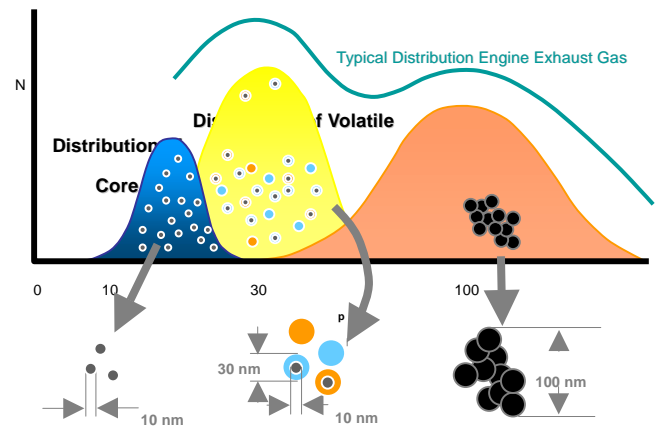


Fig.4-6 Model of Nano-particles

4.3 まとめ

- (1)サーモコンディショナの使用によりニュークリエーションモード粒子測定結果に対する希釈温度の影響を抑制することが出来る。
- (2)アキュムレーションモード粒子の粒子数濃度は希釈、冷却過程の温度条件に殆ど影響を受けない。
- (3)ニュークリエーションモード粒子は温度に対する挙動の違いから3種類の粒子からなると考えられる。

5. ニュークリエーションモード粒子について

本実験の供試機関の場合、機関アイドル回転で排気管温度が十分に低い場合に、定常的に 10nm 付近と 100nm 付近とに2つのピークを持つナノ粒子粒径分布形状を示す。

図 5-1 に、アイドル回転時の粒子粒径分布と燃料供給を停止しアイドル回転数で動力計により外部駆動した状態(モータリング状態)での粒子粒径分布を比較した結果を示す。

図から明らかなように、燃料供給を停止し、モータリング運転した場合には、100nm 付近にピークを示すアキュムレーションモード粒子は一切観測されないが、ニュークリエーションモード粒子はその個数濃度こそ 1/10 程度になるが、アイドル回転の

場合とほぼ同様の分布形状を示している。

この結果は、本運転条件の場合ニュークリエーションモード粒子が、水蒸気も含んだ、燃料の燃焼に起因して生成されている割合よりも、潤滑油の燃焼室への混入により生成されている割合が多いことを示唆する。

ニュークリエーションモード粒子が何に由来し、どのような化学成分から成っているのかは、このような物理的実験データとともに化学分析等による結果で明らかにすべく、現在研究を進めている。

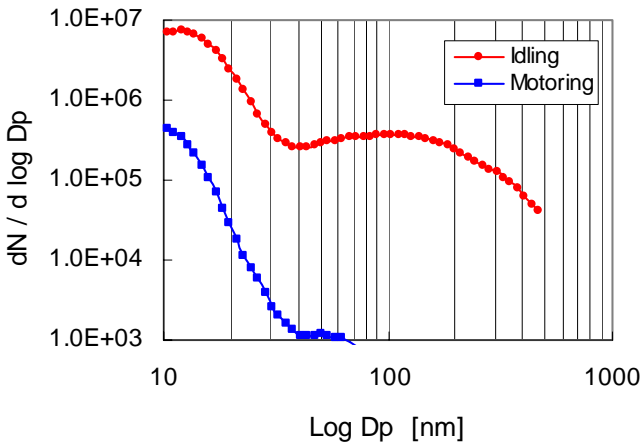


Fig.5-1 Comparison between idling and motoring operation

6. おわりに

以上、最近我々が行った研究結果をもとに、自動車排出ガスに含まれるナノ粒子計測の問題点の一部を明らかにした。この他にも、ナノ粒子の小ささや、排出量が微量であること、さらに周囲状況に極めて敏感であることなどから、その計測には多くの解決しなければならない問題があるが、近年のディーゼル排気微粒子、特にナノ粒子と呼ばれる微小粒子の健康影響に対する危惧から、この分野への世界的な感心は非常に高く、また、規制成立までも視野に入れた欧州諸国等の動きは極めて速いスピードで進捗しつつある。このような状況で、ナノ粒子を正確に計測するために、我々は早急に現象の正しい理解と、それに基づく計測法の研究、開発を行い、正しい計測結果に基づく評価が必要であると考えている。

謝辞

実験装置の作成や計測に関して東京ダイレック株式会社の御協力を頂いた、また、電子顕微鏡写真撮

影は滋賀県立大学工学部三好 良夫教授、田邊 裕貴助手に御協力頂いた。種々の実験に御協力いただいた当研究所の堀 重雄氏、川野 大輔氏、内藤 浩由氏に謝意を表す。なお、本実験の一部は、独立行政法人 鉄道建設・運輸施設整備支援機構「運輸分野における基礎的研究推進制度」により実施された。

参考文献

- (1) Particle Measurement Program (GRPE/PMP): Health Effects, Measurement and Filtration of Solid Particles emitted from Diesel Engines, 2001
- (2) David B. Kittelson, John H. Johnson: Variability in Particle Emission measurements in the Heavy Duty Transient Test, SAE Paper, No.910738, 1991
- (3) Imad Abdul-Khalek, David Kittelson, Fred Brear: The Influence of Dilution Conditions on Diesel Exhaust Particle Size Distribution measurement, SAE Paper, 1999-01-1142, 1999
- (4) David Kittelson, Jason Johnson, Winthrop Watts, Qiang Wei, Marcus Drayton, Dwane Paulsen, Nicolas Bukowiecki: Diesel Aerosol Sampling in the Atmosphere, SAE Paper, 2000-01-2212, 2000
- (5) Qing Wei, David B. Kittelson, Winthrop F. Watts: Single-Stage Dilution Tunnel Performance, SAE Paper, 2001-01-0201, 2001
- (6) Samaras, Zissis: CHARACTERISTION OF EXHAUST PAERTICULATE EMISSIONS FROM ROAD VEHICLES, FISITA 2002, Paper Code: F02E331, 2002
- (7) 小川忠雄：ディーゼル排出ガスに及ぼす軽油性状の影響(第2報)軽油特性とパティキュレート量の関係解析, 豊田中央研究所 R&D レビュー, Vol. 32, No. 2, p. 87-98, (1997).
- (8) Heywood, J. B.: Internal Combustion Engine Fundamentals, McGraw-Hill, New York, pp.626-631, (1988).
- (9) Smallwood, G. J., et al.: Concurrent Quantitative Laser-Induced Incandescence and SMPS Measurements of EGR Effects on Particulate Emissions from a TDI Diesel Engine, SAE Paper 2002-01-2715, (2002).
- (10) M. Kasper, U. Matter, H. Burtscher, N. Bukowiecki, A. Mayer: NanoMet, a New Instrument for On-line Size- and Substance- Specific Particle Emission Analysis, SAE Paper, 2001-01-0216, 2001

11) J.H. Johnson, S.T. Bagley, L.D. Gratz and D.G. Leddy, A Review of Diesel Particulate Control Technology and Emissions Effects – 1992 Horning Memorial Award Lecture, SAE paper No. 940233, 1994.