

DIディーゼルエンジンにおけるPAH排出に 及ぼすエンジン負荷と排気温度の影響

環境エネルギー部

堀 重雄 成澤 和幸

1. はじめに

ディーゼル車から排出される多環芳香族炭化水素 (PAH) については、人体影響の観点から先に環境庁の優先未規制有害物質 22 物質中にベンゾaピレンが指定され、また、EC 諸国では、PAHの大気環境規制の動きにともなって、大気環境に寄与する自動車排ガス中のPAHに関するプロジェクト研究が実施されるなど、その排出実態と低減対策が課題となっている。

一方、ディーゼル車からのPAHの測定例に関する報告は多くあるが、蒸気圧が高いためフィルタのみでは捕集できない3環、4環のPAHを含む、トータルのPAH排出量についての測定例は少ない。また、各種モードサイクル運転による結果から、PAH排出にエンジン運転条件が大きく影響を与えることが知られているが、それらの排出に及ぼす負荷条件の影響について検討した例は少ない。そこで、平成元年規制に適合した重量車用DIディーゼルエンジンの定常運転条件下において、3環から6環の代表的な多環芳香族炭化水素 (PAH) の排出に及ぼすエンジン負荷の影響について検討した。また、その排出傾向と排気温度との関係について考察した。

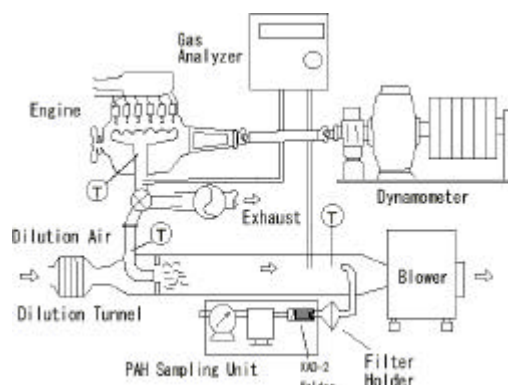


図1 実験装置の概略

表1 試験エンジンの諸元

Type	4 Cycle, 6 Cylinder
Combustion System	Direct Injection
Inline Fuel Injection Pump	NL Type(DENSO J-1)
Injection Nozzle	0.24 × 6
Valve System	4 Valve
Bore (mm)	114
Stroke (mm)	130
Displacement (L)	7.961
Aspiration	Natural Aspiration
Compression Ratio	19.2
Maximum Power (kw/rpm)	147 / 2900
Peak Torque (N・m/rpm)	530 / 1700

2. 実験方法

図1に実験装置の概略を、表1に試験エンジンの諸元を示す。実験は、エンジン回転数1000rpm一定で、負荷を変化させて実施した。PM捕集の安定性に留意し、エンジンおよび捕集系のプリコンディショニングとして、暖機運転を十分実施し、30分捕集条件で運転した後30分間捕集した。フィルタを通過するガス状PAHの捕集については、捕集効率実験の結果から、⁽¹⁾ テフロンコーティングフィルタ (PALLFLEX TX40H120-WW) の後に、吸着捕集材 (アン

表2 使用潤滑油の性状

		Synthetic Oil
Density (15 °C)		0.8448
Kinematic Viscosity	cst 40	77.62
	100	11.44
Pour Point		-55
Total Acid Number	mg KOH/g	0.85
Total Base Number	mg KOH/g	1.53
Sulfated Ash Content	wt%	0.27
Sulfur	wt%	0.19
PAH Concentration	ppm	
	Phe	ND
	Py	ND
	BaP	ND
	BghiP	ND

ND; Phe 0.14 Py 0.056 BaP 0.0018 BghiP 0.0046

パーライト XAD-2)ホルダ (30mm 径、XAD-2 50ml)一連を用いた。また、希釈トンネル内の PM 捕集位置の温度をできるだけ一定に保持するように、希釈比を調節して実験を行った。試験エンジンは、平成6年規制適合の排気量 8 L の 6 気筒 DI ディーゼルエンジンである。表 2 に実験に用いた潤滑油の諸元を示す。潤滑油は、気筒内で生成した PAH のシンクとなり、高濃度に PAH を含有した潤滑油が未燃のまま排出されることや、気筒内で潤滑油から PAH が生成されることにより PAH 排出に影響を及ぼすと考えられるため、⁽²⁾芳香族成分をほとんど含まない、主として、ポリ オレフィンから構成される合成潤滑油を用いた。

捕集した PM フィルタおよび XAD-2 樹脂の分析操作手順を図 2 に示す。今回、フィルタに捕集された PM から有機可溶成分を抽出する方法として、高速溶媒抽出法 (Accelerated-Solvent -Extractor ASE 法) の適用性について検討した。従来法であるソックスレ法による抽出操作は、図 2 に示すように、抽出時間が長く (約 16 時間) 使用する抽出溶媒量も 100ml から 200ml を必要とする。また、抽出が密閉空間でなされないため、溶媒の室内汚染の問題がある。ASE 法はこうしたソックスレ法の欠点をもたず、抽出時間が短く、使用溶媒量を減少した新しい抽出法であり、土壌や污泥等の環境資料からの有害物質に適用されて、よい結果が報告されている。⁽³⁾

エンジン定常運転条件 (エンジン回転数 1000rpm で 25% 負荷および 75% 負荷) で PM を捕集したテフロンコーティングフィルタを 2 等分にカットし、それぞれをソックスレ法と ASE 法により抽出

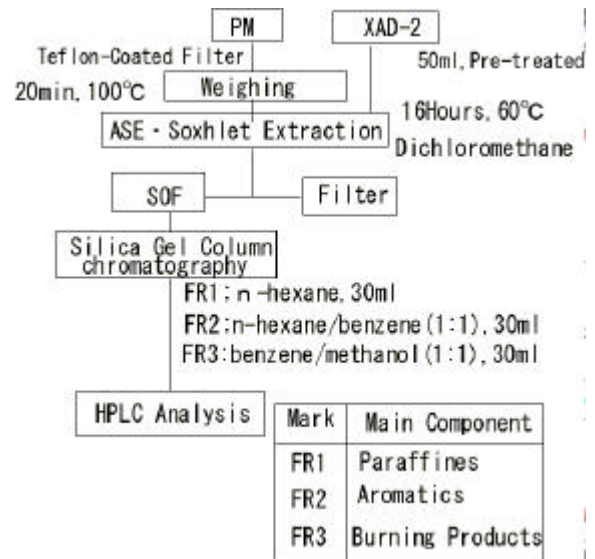


図 2 PM および XAD-2 樹脂の分析操作手順

表 3 試験燃料の性状

	FUEL A Specific Fuel	FUEL B JIS-2
Density (15)g/m ³	0.77	0.828 5
Sulfur (wt%)	0	0.05 7
Viscosity cst(30)	2.77	3.46 1
Flash Poin t	122	65
Distillation		
IBP	250	160
T10	253	198
T50	255	284
T90	260	332.
Cetane Index(JIS)	82	57.6
C/H Ratio	0.47	
Composition (wt%)		
Paraffins	100	77.5
Olef	0	0
Aromatics	0	22.5
PAH Conc. (ppm)		
Phe	0.5	142
Py	6.2	9.4
BaP	ND	
BghiP	ND	

Estimated Value

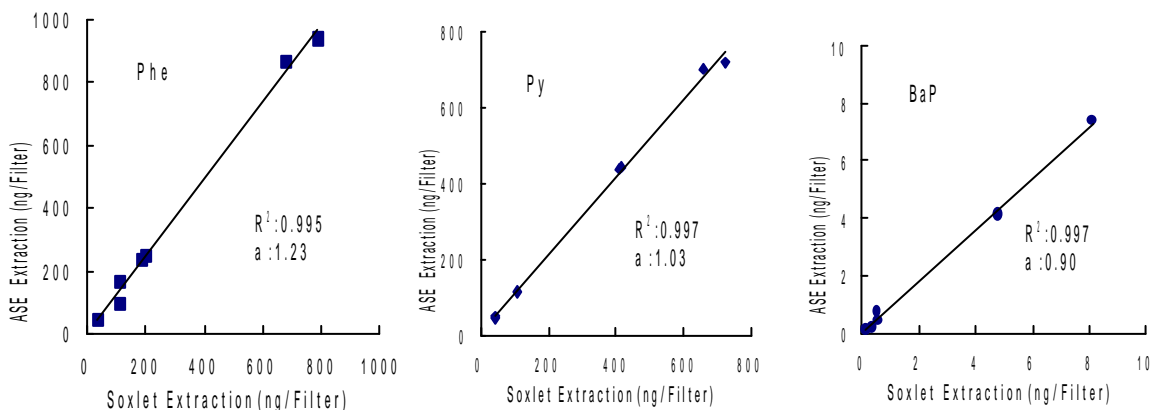
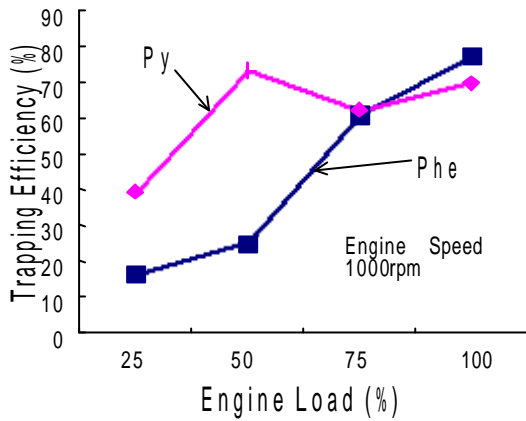


図 3 ソックスレ抽出と ASE 抽出による各 PAH 測定値の比較結果



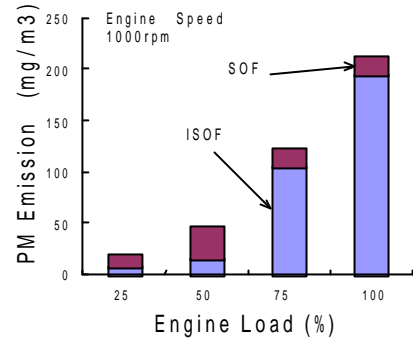
Limit of determination Filter; Phe:11.75ng , Py:4.74ng
 Limit of determination XAD-2; Phe:53ng , Py:18.7ng
 Filter Ø0mm)+ XAD-2(1)+XAD-2(2)
 43l/min, SV=0.52x10⁵h⁻¹

図5 Phe,Pyのフィルタ捕集効率に与えるエンジン負荷の影響

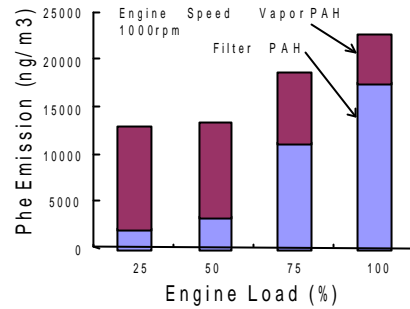
し、各PAHの定量を行った。燃料はPAH含有量の少ない特殊燃料 (Fuel A)および市販のJIS 2号軽油 (Fuel B)とそれにピレンおよび硫黄試薬を添加したものも用いた。表3にそれぞれの燃料性状を示す。ASE法とソックスレ法による測定値の比較結果を図3に示す。Phe,Py,BaPともに、いずれも相関係数は高い値を示しており、両者の相関はよいことがわかる。一方、一次直線の傾きはPheの場合に約1.2とASE法の値がソックスレ法の値よりやや高く、BaPの場合は逆に約0.9と低くなる傾向を示したが、Pyは傾きが約1と両者の値はほぼ等しい。一般にディーゼルエンジンから排出されるPAHの測定では、含有量が微量で、干渉成分が多いため、PAH分析手法によるデータのばらつきが問題となることを考慮すれば、この結果は、ASE法がディーゼルPM中のPAH測定にも十分適用可能であることを示していると考えられる。しかしながら、ASE法は、抽出時の温度と圧力を高くするため、XAD-2樹脂に適用することはできない。以下、フィルタについては、ASE法を、XAD-2については、ソックスレ法を用いて、図2の操作手順によりPAHの定量分析を行った。

3. 実験結果および考察

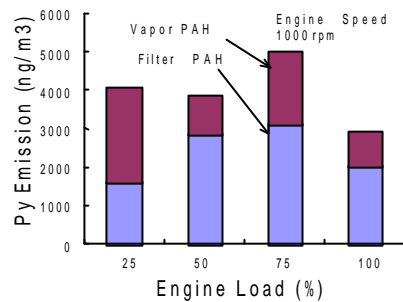
図4(a)~(e)に、エンジン回転数1000rpm一定で、負荷を低負荷から高負荷に変化したときのPMおよび各PAHの排出濃度を比較して示した。実験はそれぞれ2回行い、その平均値で示した。また、蒸気圧が高いためフィルタのみでは完全に捕集できないPheおよびPyについては捕集効率を確認した。各



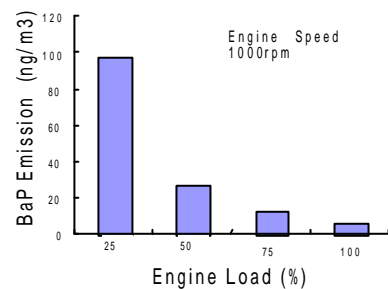
(a) PM



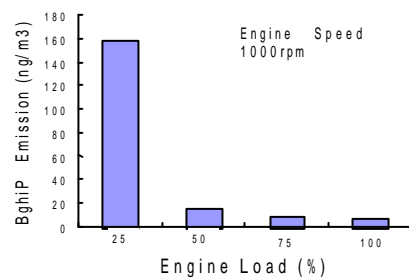
(b) Phe



(c) Py



(d) BaP



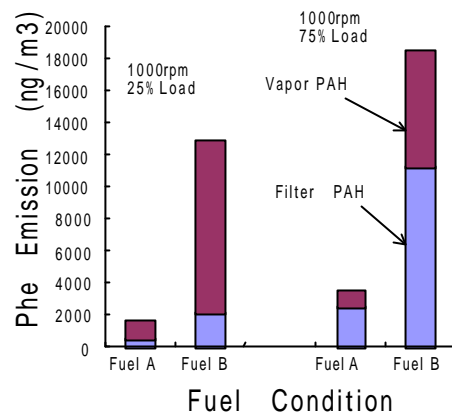
(e) BghiP

図4 各種定常運転時におけるPMおよび各PAHエミッションに与えるエンジン負荷の影響

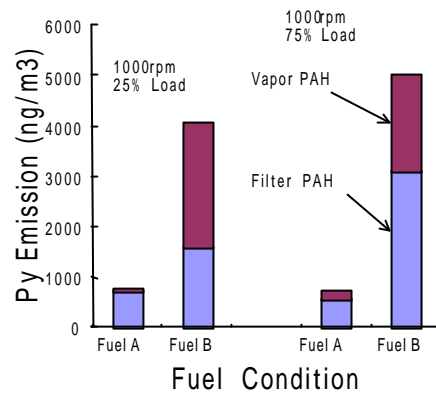
エンジン負荷条件でのフィルタ捕集効率を図4の結果から算出したのが図5である。図5に示すように、捕集効率は低負荷で低く、高負荷で高い傾向があり、Pheで顕著である。これは、図4(a)に示すように高負荷になるほど、PM排出量が増加し、PAH類を吸着捕集する能力を有するISOF(Dry-Soot)がフィルタ上に多く蓄積するためと考えられる。

図4に示すように、各PAHの排出濃度レベルは、各負荷を通じて全体として、Phe > Py > BaP ~ BghiPの順序であり、この傾向は、各種のDIディーゼルエンジンの過渡運転を含む走行条件においても同様である。⁽⁴⁾ DIディーゼルエンジンから排出されるPAHの由来については、未燃燃料由来分、オイル由来分、および燃焼生成由来分からなると考えられ、実験、検討が行われている。⁽⁵⁾ 今回の実験では、新品の合成オイルを用いているため、オイル由来分は無視できると考えられる。したがって、上記の各PAHの排出レベルの傾向は燃料中の各PAHの含有量の影響か、あるいは、各PAHの燃焼生成のしやすさに起因するのかが問題となる。図6は燃料の相違によるPheおよびPy排出について比較した結果である。Fuel Aは主として炭素数が14および15のノーマルパラフィンからなる組成の単純な燃料である。燃料組成の単純なFuel Aでは、JIS2号軽油と比較して大幅に排出は低い。⁽⁶⁾ 表3の燃料性状に示すように、Fuel BとFuel AのPy含有量の比率は約1.5に対して、Phe含有量は約300と大きい。しかしながら、Fuel BとFuel Aの場合のPheおよびPyの排出比は燃料中の含有比の相違にかかわらずいずれの運転条件においてもほぼ同じオーダーである。このことから、PheおよびPy排出に対して燃料中の含有量よりも、燃焼生成要因のほうが排出レベルに与える影響は大きいと考えることができるが、さらに定量的な検討が必要である。

一方、図4によれば、負荷を変化させたときのPMおよび各PAH排出の傾向はそれぞれについて、特徴的な傾向を示した。PM排出濃度は負荷の増加と共に、主としてISOFの増加により大幅に増加する傾向を示した。Phe排出は高負荷になるに従い増加傾向を示す。Pyは負荷に対する明確な傾向が認められない。BaPおよびBghiPはPheと逆に高負荷になるに従って減少する。特に、25%負荷で排出量が多いことが特徴的である。ディーゼル気筒内にお



(a)Phe



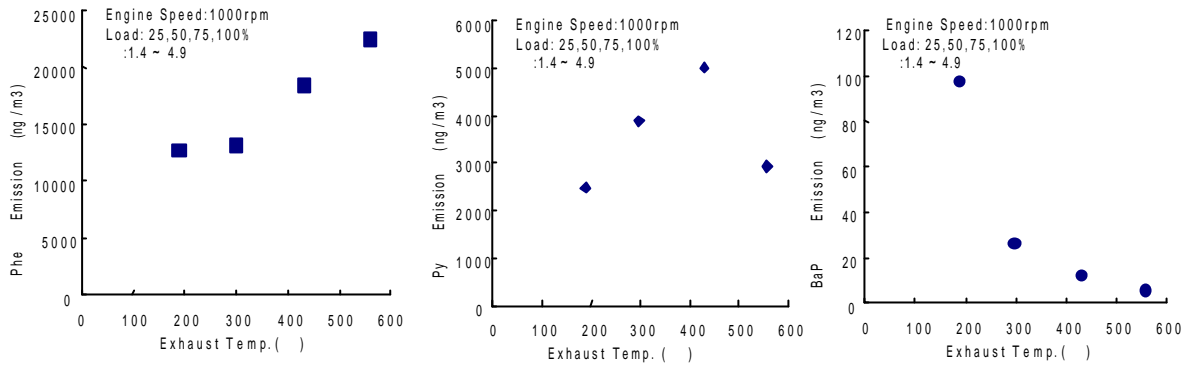
(b)Py

図6 PAH エミッションに与える燃料組成の影響

ける微粒子生成の主要経路としては、局所的な過濃混合気領域でPAHを経て生成すると考えられているが、⁽⁷⁾ その詳細については不明な点が多い。今回の実験では、Pheの排出傾向は、ISOF排出の傾向と矛盾しないが、BaP,BghiPについては、ISOFの排出傾向と逆の傾向を示した。

一方、気筒内のディーゼル燃焼によるPAH生成には、最適な燃焼温度領域があることが指摘されている。⁽⁸⁾ そこで、PAHエミッションと排気温度の関係について検討した。Phe,PyとBaPの結果について、図7に示す。

Phe,Py,BaPともに、排出濃度と排気温度との関係は異なる傾向を示す。Pheは、排気温度の増加とともに増加し、BaPは逆に低減する。また、Pyは、排気濃度が最大となるピークの排気温度が存在する。1環から4環のPAHの筒内における生成は過濃混合気領域の空気過剰率の程度と燃焼最高温度に依存し、生成に最適な燃焼温度範囲が存在すること



(a)Phe

(b)Py

(c)BaP

図7 PAH エミッションと排気温度の関係

が示されている。⁽⁸⁾ 図7の結果からは、本エンジンの場合、Phe,Py,BaPそれぞれについて、気筒内での生成最適燃焼温度はPh Py BaPの順に高いことが予想される。しかしながら、気筒内における各PAHの生成過程は気筒内での空気過剰率および燃焼温度の空間分布および時間履歴の変化に大きく影響される複雑な過程を経ると考えられるので、今後さらさら実験、検討が必要であると考えられる。

4. まとめ

平成元年規制に適合した重量車用DIディーゼルエンジンの定常運転条件下において、3環から6環の代表的な多環芳香族炭化水素(PAH)の排出に及ぼすエンジン負荷の影響について検討した。また、その排出傾向と排気温度との関係について考察した。

その結果をまとめると、以下のようである。

- (1) 定常運転時における各PAHの排出レベルは、Phe Py》BaP ~ BghiP の順であり、この傾向は筒内における各PAH燃焼生成要因の影響が大きいと考えられる。
- (2) 各PAHの排出濃度に与えるエンジン負荷の影響は大きい。Pheは負荷の増加と共に増加し、一方、BaP,BghiPは、逆に低減する傾向を示した。
- (3) 各PAHの排出濃度と排気温度の関係はそれぞれのPAHで異なる傾向を示した。

参考文献

- (1) 堀他、「ディーゼル燃料組成がPAH排出に与える影響について(第2報)ー燃料中のピレン成分および硫黄分の影響ー」,JSAE Paper NO.20005561(2000)
- (2) Schramm.J et,al. "The Emission of PAH from DI diesel Engine operating on Fuels and Lubricants with known PAH Content",SAE Paper No.940342(1994)
- (3) ダイオネクス アプリケーションレポート「高速溶媒抽出(ASE)法を用いた環境試料中多環芳香族炭化水素の抽出、AR012GE-0035
- (4) 堀他、「DIディーゼルエンジンの各種走行条件におけるPAH排出特性について」,JSAE Paper NO.20015501(2001)
- (5) K.Mitchell,et.al,"Impact of Diesel Fuel Aromatics on Particulate,PAH and Nitro-PAH Emissions",SAE Paper NO.942053(1994)
- (6) 堀他、「ディーゼル燃料組成がPAH排出に与える影響について(第1報)ーDIディーゼルエンジンから排出される3環から6環のPAHの排出傾向」,JSAE Paper NO.20005041(2000)
- (7) 登坂他、「ディーゼル燃料の化学反応特性調査」,JSAE Paper NO.9941791(1999)
- (8) 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,20014429(2001)