

Feature Article

特集論文

連続固体粒子数測定装置 MEXA-1000SPCS

日下 竹史, 浅野 一郎

MEXA-1000SPCSは、エンジン排ガスに含まれる固体粒子のうち一定の粒径範囲の粒子数をリアルタイムに計測する装置である。システムは国連欧州経済委員会(UN/ECE)傘下の排出ガス/エネルギー部会(GRPE-PMP)が推奨している粒子数計測法に準拠しており、サイクロン、揮発性粒子除去部(一次希釈器・気化器・二次希釈器)、凝縮粒子カウンタ(CPC)などで構成される。揮発性粒子除去部には独自のワイドレンジの連続希釈器を採用し、ガソリンエンジン・ディーゼルエンジン排ガス中の粒子を安定して計測できる。トンネル-CVS(Constant Volume Sampler)で希釈されたガスの計測、およびプレダイリュータと組み合わせた排気管からの直接計測の両方が可能で、規制対応から研究開発用途まで広く応用可能となっている。

はじめに

自動車エンジンから排出される粒子状物質(PM)は、現在“排出重量”で規制されている。ところが最近、欧州を中心に“排出粒子数”も規制が必要という考え方が出てきた。排出粒子を粒子数で見た場合、大多数を占めるのは粒径100 nm以下の超微小粒子である。これら微小粒子は、気管支や肺など人体内に侵入しやすいとされ、健康影響が懸念されている。そのため比較的大型の粒子に左右される排出重量ではなく、排出数で粒子を規制することに関心が集まっている。このような状況を受け、2001年、国連欧州経済委員会(UN/ECE)傘下の排出ガス/エネルギー部会(GRPE: Groupe des Rapporteurs pour Pollution et Energie)のもとPMP(Particle Measurement Program)が組織された。このPMPには日本を含む世界各国が参加し、具体的な粒子数測定方法の提案とその妥当性の評価試験などを進めている。さらに欧州連合(EU)では、2011年に導入することを目標とした暫定の粒子数規制値を既に公表している。

固体粒子数測定装置MEXA-1000SPCSは、PMPが発表した粒子数測定システムの推奨仕様^[1]に基づいて開発された。本稿ではMEXA-1000SPCSの構成と基本性能について述べる^[2]。さらに、各種の後処理装置を装着した車

両からの排出粒子数を測定した例を紹介する^[2, 3]。

MEXA-1000SPCSの概要

PMPの推奨仕様

エンジン排ガス中の微粒子のうち、可溶性有機成分(SOF: Soluble Organic Fraction)やサルフェート(Sulfate)など揮発性成分の凝縮による粒子は、排出された後の希釈条件に発生数が大きく依存するとされている。そのため、PMPではこれらの揮発性粒子をサンプルから除去し、残った固体粒子の数を測定することを推奨している。

図1にPMPが提案している粒子数計測システムの概要を示す。まず、全流希釈トンネルで希釈されたエンジン排ガスの一部を採取し、50%カットオフ粒径が2.5 μmの分級器を通してサンプリング部より発生していると考えられる粗大粒子を除去する。次にサンプルガスを加熱希釈器(PND1: Particle Number Diluter 1)によって希釈する。サルフェートやSOFの揮発性粒子が新たに形成されないよう、PND1の希釈空気は150℃以上に加熱されている。その後段の蒸発管(ET: Evaporation Tube, 300~400℃)では、希釈トンネルにおいて既に形成されていた

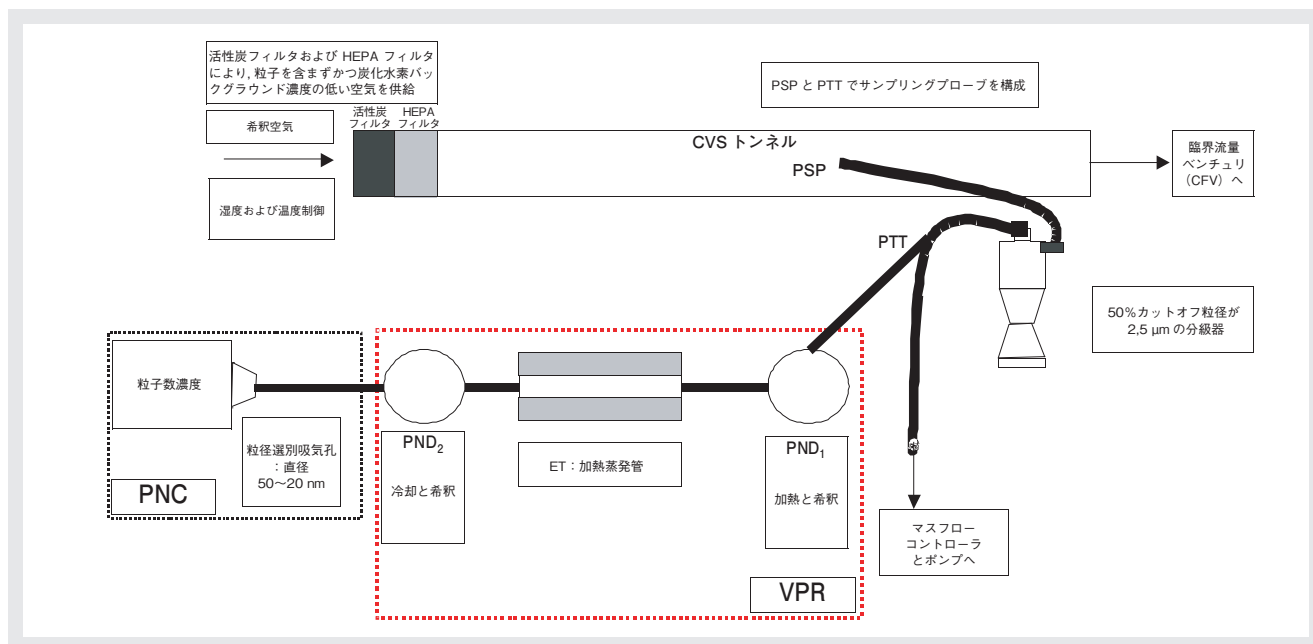


図1 PMPの推奨する粒子数計測システム^[1]
 PSP：粒子サンプリングプローブ(Particulate Sampling Probe)
 PNC：粒子数カウンタ(Particle Number Counter)
 PND1：加熱希釈器(Particle Number Diluter)
 PTT：粒子移送管(Particulate Transfer Tube)
 VPR：揮発性粒子除去部(Volatile Particle Remover)
 PND2：冷却希釈器(Particle Number Diluter)

揮発性粒子が気化する。その後、冷却希釈器(PND2)で再度希釈し、再凝縮による粒子生成と熱泳動による粒子損失を防止する。このPND1～PND2の部分は揮発性粒子除去部(VPR: Volatile Particle Remover)と呼ばれる。検出器となる粒子数カウンタには、検出下限23 nmの凝縮粒子カウンタ(CPC: Condensation Particle Counter)を使用する。検出する粒径の下限が決めているのは、装置による測定のはらつきを抑えるためである。

MEXA-1000SPCSの構成

図2に固体粒子数測定装置MEXA-1000SPCSの外観を、表1に仕様概要を示す。装置構成は図1で説明した

表1 MEXA-1000SPCSの仕様概要

型式	MEXA-1000SPCS
測定項目	固体粒子状物質の粒子数 0 - 10000 ~ 0 - 50000個/cm ³ (装置内希釈後)
装置構成 (標準ユニット)	本体架台: 揮発性粒子除去部(VPR)、 粒子数カウンタ部(PNC)、 電磁弁ユニット、フィルタ・ポンプユニット 制御部: 制御PC・LCD・キーボード・マウス
VPR仕様	分級器: サイクロン: 50%カットオフ粒径25~10 μm、 希釈器(WRCD): PND1: DR 10~700 PND2: DR 10~50 サンプル流量: 10~15 L/min
PNC仕様	検出器: レーザ散乱式凝縮粒子カウンティング(CPC)

WRCD: Wide Range Continuous Diluter
 DR: Dilution Ratio



図2 MEXA-1000SPCSの外観

PMP推奨フローに準じており、VPR: Volatile Particle Remover (PND1, 2およびET), CPCといった主要部品は架台内に納められている。また、装置は専用のコンピュータによって制御され、PMPの提案において要求されている各種チェック機能も備えている。

連続希釈装置

PMPの提案ではPND1は最大500倍まで広範囲に希釈できることが推奨されている。MEXA-1000SPCSでは、広範囲の希釈係数が設定できる連続希釈装置(WRCD: Wide Range Continuous Diluter)を使用している。図3にWRCDの概略を示す。WRCDはMEXA-1000SPCSのために新たに開発されたもので、マスフローコントローラ(MFC)、ピエゾバルブ(PV)、圧力変換器、熱電対、オリフィス流量計、臨界流オリフィスなどで構成される。

WRCDにおける各流量の関係および希釈係数(DF: Dilution Factor)は式(1)、式(2)で表される。

$$Q_s = Q_{total} + Q_{instrument} - Q_{air} - Q_{make-up} \quad \dots\dots\dots (1)$$

$$DF = \frac{Q_{air} + Q_s}{Q_s} = 1 + \frac{Q_{air}}{Q_s} \quad \dots\dots\dots (2)$$

WRCDにおいて希釈空気流量 (Q_{air}) は、MFCによって正確に制御されている。サンプル流量 (Q_s) はオリフィス流量計によって常時監視されている。さらにメイクアップ(補償)流量 ($Q_{make-up}$) は、 Q_s が一定になるようフィードバック制御される。これにより総流量 (Q_{total}) や装置流量 ($Q_{instrument}$) が多少変動しても、一定の希釈係数を維持することができる。

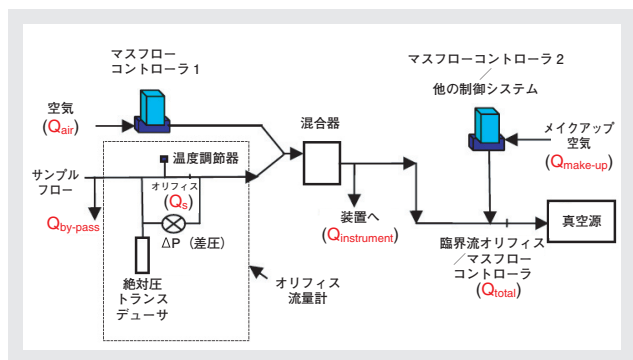


図3 連続希釈装置(WRCD)の概念図

基本性能の評価

粒子通過率

微小粒子は、熱泳動や拡散によって配管の壁面などに沈着し失われる。このため、粒子数測定装置では粒子通過

率が重要なファクタとなる。図4に粒子通過率の評価方法を示す。NaCl溶液をアトマイザで噴霧し、液滴中の水分をドライヤで除去して結晶化したNaClを固体粒子として使用する。

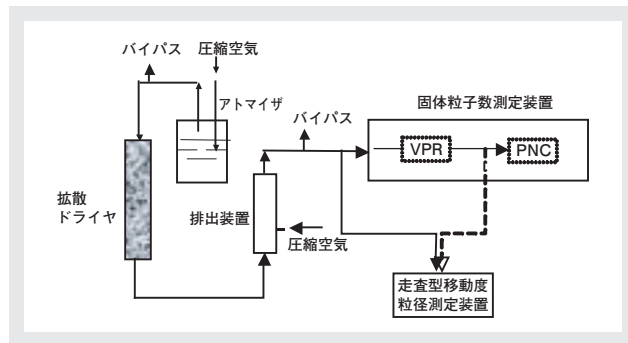


図4 粒子通過率試験のガスフロー

図5に、走査型移動度粒径測定装置 (SMPS: Scanning Mobility Particle Sizer) を用いて装置入口と検出器 (CPC) 入口での粒子径分布を測定した結果を示す。図中、Rawは装置入口における希釈前の粒子径分布、DR500, DR750, DR1000は希釈係数500, 750, 1000の条件におけるCPC入口での粒子径分布である。希釈後の粒子濃度は各々の希釈係数を乗じて補正されている。なお、熱泳動による粒子の損失も含めて通過率を評価するため、装置各部の温度は通常の測定状態と同一設定とした。

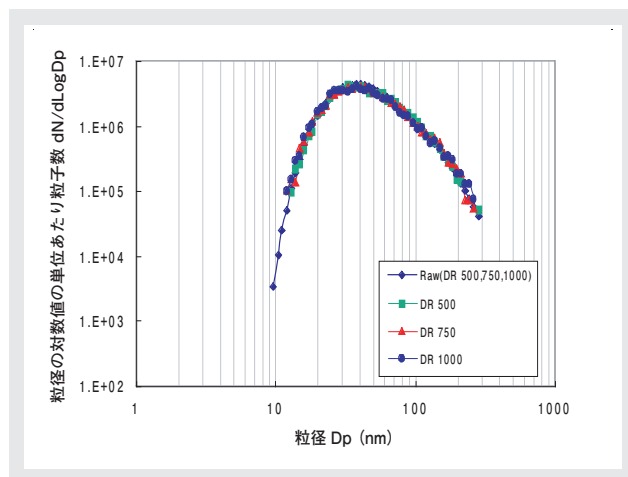


図5 希釈係数と粒子径分布

図6に全粒子径での粒子通過率を示す。希釈係数(DR total)が大きくなるほど粒子通過率が減少するのは、拡散による損失が増えるためである。にもかかわらず、1000倍の希釈係数でも95%以上の通過率を確保できている。

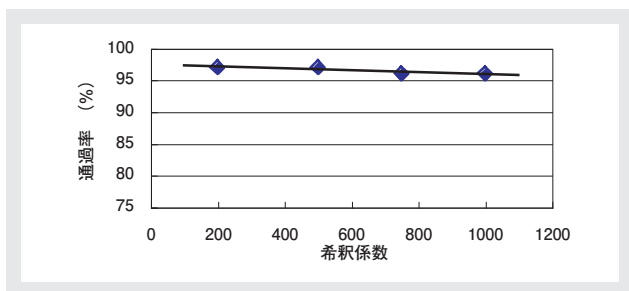


図6 希釈係数と粒子通過率の関係

直線性

MEXA-1000SPCSでは、粒子希釈器を利用した直線性チェックシーケンスが使用可能である。図7にこの機能によりCPCの直線性をチェックした結果を示す。横軸は粒子発生器の粒子を直接測定した濃度を粒子希釈器の希釈係数で除したもので、縦軸はCPCの出力である。

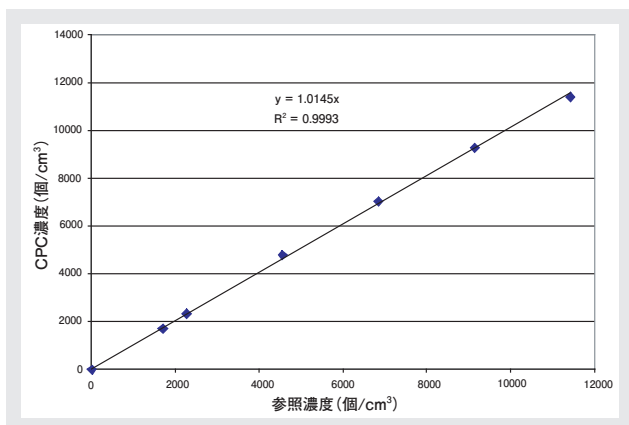


図7 CPCの直線性チェック

揮発性粒子捕集率

MEXA-1000SPCSでは固体粒子だけを測定するため、VPRでSOFやサルフェートから成る揮発性粒子を除去している。PMPでは、VPRの条件として30 nmのC40(炭素40個の炭化水素)粒子での粒子捕集率が99%以上であることを推奨している。図8に揮発性粒子捕集率の試験方法を示す。C40粒子は固体のテトラコンタンを蒸発させ、希釈・冷却することで発生させる。発生させた粒子から、微分型移動度分析装置(DMA : Differential Mobility Analyzer)によって必要な径の粒子を選択する。

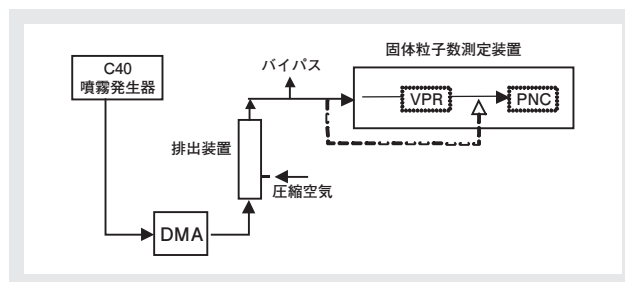


図8 揮発性粒子捕集率の試験

図9に、30, 50, 100 nmのC40粒子を99%以上除去するためのET (加熱蒸発管)の最低温度を調査した結果を示す。粒子数濃度は約104個/cm³、PND2の希釈係数は24.5としている。粒子径が小さいほど最低温度が低いことがわかる。MEXA-1000SPCSのETの設定温度(320℃)では、30, 50, 100 nmのC40粒子に対する粒子捕集率はいずれも99.9%以上であった。

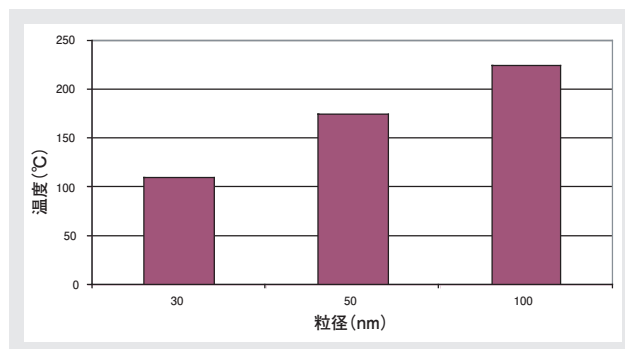


図9 C40粒子除去のための最低温度

希釈係数の精度

図10に、希釈係数の設定値とガス分析計で求めた値との差(%)を示す。試験では、ガス分析計として直線性のよい水素炎イオン化検出(FID)方式のTHC計、試験ガスとしてプロパンを用いた。この場合、高希釈時には希釈後のプロパンガス濃度が大気レベルに近づくためバックグラウンド補正が必要となる。この場合の希釈係数(DF)の計算式を次の式(3)に示す。

$$DF = \frac{C_{in} - C_{air}}{C_{out} - C_{air}} \dots (3)$$

C_{in}は装置入口でのガス濃度、C_{out}はPND2の出口でのガス濃度、C_{air}は希釈空気バックグラウンド濃度である。図10より、200~1000という広範囲の希釈係数において誤差は2%以内であったことがわかる。なお、PMPの推奨仕様における誤差許容範囲は±10%となっている。

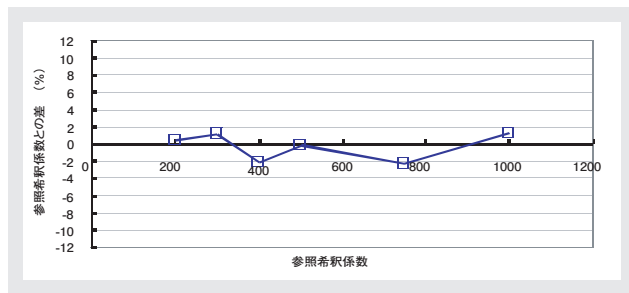


図10 プロパンガスによる希釈係数の精度確認

PMPのシステムとの比較

PMPでは、DPF(Diesel Particulate Filter, ディーゼルエンジンの排気ガスに含まれる粒子状物質を軽減させるフィルタ)装着のディーゼル乗用車をGolden Vehicle (GV), 推奨仕様に近い粒子数測定システムをGolden Particle Measurement System (GPMS) と名付け、これらを持ちまわって世界各国のラボの相関を調べるといふインターラボ試験 (ILCE: Inter-Laboratory Correlation Exercise) を行った。そのうち、交通安全環境研究所で行われたILCEにMEXA-1000SPCSも粒子数測定システムとして参加し、GPMSと並行して試験を行った^[2]。表2に試験に用いられた車両の概要を示す。

表2 試験車両の諸元

車両名	排気量	エンジンタイプ	後処理システム
GV	2.0 L	コモンレール直噴ディーゼル (ターボチャージャー付き)	SiC DPF
JV-1	3.0 L	直噴式ガソリン	三元触媒+ de NOx 触媒
JV-2	2.0 L	コモンレール直噴ディーゼル (ターボチャージャー付き)	DPF + 酸化触媒

図11にMEXA-1000SPCSによる測定結果を示す。上段はNEDC(New European Driving Cycle)サイクル試験時の固体粒子の瞬時排出濃度, 下段はそのうちコールドスタートから400秒までの拡大図である。7回の測定結果が同じ線上でほぼ重なり、再現性に優れていることがわかる。なおDPF装着車両では、DPFの再生直後は粒子の排出量が増加するため、再生の直後は2回以上のダミー運転を行った後に試験を実施した。

図12に試験車両の粒子排出量をGPMSとMEXA-1000SPCSで測定した結果を示す。両システムともほぼ同じ測定結果が得られている。なお従来の重量法で測定したPM排出量は、GVの場合で約0.37 mg/kmである。

図13に、繰り返し試験の再現性を変動係数として示す。MEXA-1000SPCSの再現性は、全体的にGPMSを上回っていることがわかる。なおJV-2の測定結果の再現性が他と比較して悪いのは、DPFの再生処理頻度が高いことが影響していると考えられる。

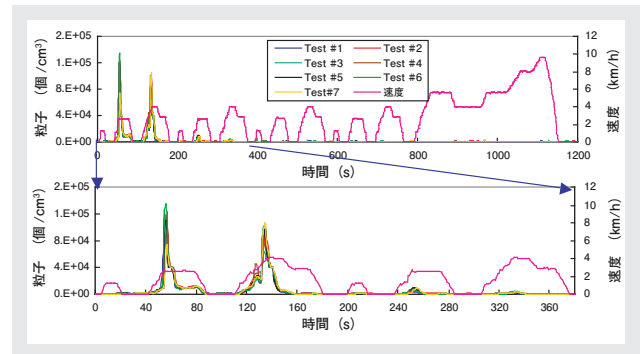


図11 GVからの固体粒子排出数

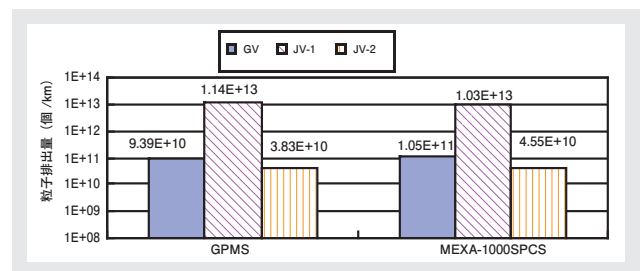


図12 車両による固体粒子排出数の違い

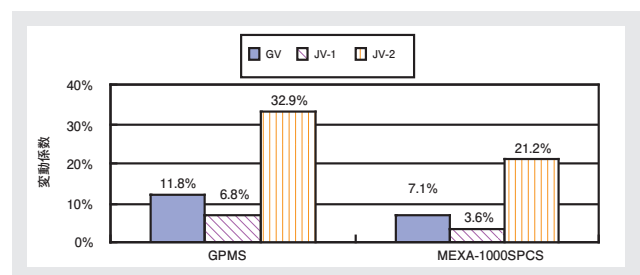


図13 粒子数計測システムの再現性(GPMS・SPCS)

各種車両からの固体粒子排出挙動

次に、MEXA-1000SPCSを用いて各種の後処理装置を装着した車両から排出される固体粒子の挙動を調査した結果を紹介する^[3]。

表3に供試車両の諸元の概略を示す。試験対象は、DPF非装着DI(Direct Ignition)ディーゼル車 (Non-DPF), DPF装着DIディーゼル車 (DDPF-1~DDPF-3), DIガソリン車 (DIG) である。試験は数箇所の試験施設にて実

表3 試験車両の諸元

項目	車 両				
	Non-DPF	DDPF-1	DDPF-2	DDPF-3	DIG
エンジン	DI Diesel	DI Diesel	DI Diesel	DI Diesel	DI Gasoline
燃料噴射システム	Common Rail	Common Rail	Common Rail	Common Rail	DI-EFI
排気量 (L)	2.2	2.0	2.2	2.0	3.0
最高出力 (kW/rpm)	105/4000	不明	105/4000	86/3500	188/6200
最高トルク (N-m/rpm)	340/2000	不明	340/2000	178/2000	314/3600
トランスミッション	6-Manual	6-Manual	6-Manual	5-Manual	Automatic
車重 (kg)	1637	1590	1637	1430	1855
燃費 (km/L)	14.5	不明	14.5	15.4	11.8
後処理	不明	DPF (SiC)+ FBC	DPF + DOC	DPF + DOC	TWC + NRC
空気吸入の方式	TCIC	TCIC	TCIC	TCIC	自然吸気
エミッションレベル	不明	EURO-IV	EURO-IV	JP (2000)	JP (2000)

Common Rail: 高圧に圧縮した燃料をコモンレールと呼ばれるパイプに蓄積して、燃料噴射のタイミングを最適化したシステム
 EFI: 電子制御燃料噴射(Electronic Fuel Injection)
 FBC: 燃料添加触媒(Fuel Borne Catalyst)
 DOC: ディーゼル用酸化触媒(Diesel Oxidation Catalyst)
 TWC: 三元触媒(Three way catalyst)
 NRC: NOx低減触媒(NOx Reduction Catalyst)
 TCIC: ターボチャージャーインタークーラ(Turbo Charger Inter Cooler)
 EURO-IV, JP(2000) 欧州および日本の、排ガス規制の年度基準

施したため、プレコンディショニングを十分に実施した。また、コールドスタート試験の際はその前に5時間以上ソーク(エンジン停止)した。排ガスは全流希釈トンネルを用いて希釈した。

DPF装着の有無による比較

図14にDPF非装着DIディーゼル車(Non-DPF)とDPF装着DIディーゼル車(DDPF-2)との比較を示す。

試験では同じ設備・希釈条件を用いNEDC(ホットスタート)を運転した。

図14(a)は、Non-DPFから排出されたリアルタイムの固体粒子数濃度(希釈後)である。加速時に粒子数のピークがみられる。特に高速になるEUDC (European Union Driving Cycle)部分(後半800秒以降)では、瞬時値として約 3.0×10^8 個/cm³という粒子数濃度が得られている。

図14(b)は、DDPF-2での粒子数濃度(希釈後)である。ほぼ全区間にわたり 1.0×10^4 個/cm³以下と、排出粒子数は全体的に非常に少ない。明らかな排出ピークがみられるのは、最初の200秒間および高速運転の1100秒付近のみである。

図14(c)に、ある時点までの累積排出粒子数と全排出粒子数との比(累積粒子排出率)を示した。DDPF-2では累積粒子排出率は直線的に増加しており、排出粒子数が試験サイクル全体にわたってほぼ一定であったことがわかる。このような挙動は、テールパイプ内の断続的な圧力変

動により、ごくわずかな量の粒子がDPFを通り抜けている⁴⁾ことを示すと考えられる。一方Non-DPFの累積粒子排出率は、ECE^{*1}部分(0~800秒)ではDDPF-2の約1/2で推移し、EUDC後半の高速加速部分で急増する。このようにNon-DPFでは、エンジン運転条件が累積粒子排出率に直接的に関係しており、高負荷・高速条件で多数の粒子が排出されることがわかる。

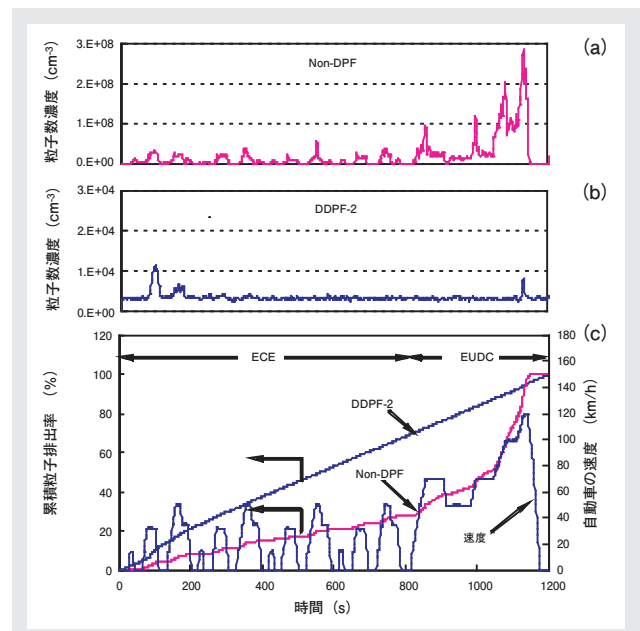


図14 DPFの有無による固体粒子排出数の比較

*1: 欧州経済委員会の略語であるが、ここではドライブサイクルのあるパターンをいう。

DPFのタイプによる比較

図15にDPF装着DIディーゼル車（DDPF-1～DDPF-3）の固体粒子排出特性の比較を示す。NEDC（コールドスタート）の全サイクル運転のうち顕著な差のみられる前半600秒のみを図示した。なお、これらの試験はそれぞれ異なる試験施設で実施した。

図15(a)～(c)は各車両の瞬時固体粒子排出数である。DDPF-1の最初の200秒間に固体粒子排出が集中する傾向がある。一方DDPF-2およびDDPF-3では、最初の200秒間の排出数はDDPF-1より少ないものの、それ以降もある程度の排出が続く。その結果、試験サイクル全体での排出粒子数は各車両ほぼ同等であった。図15(d)に各車両の累積粒子排出率を示す。DDPF-1では最初の200秒までに全排出粒子数の約80%を排出している。これに対しDDPF-2およびDDPF-3では、200秒までの寄与は30～50%と明らかな差がみられる。

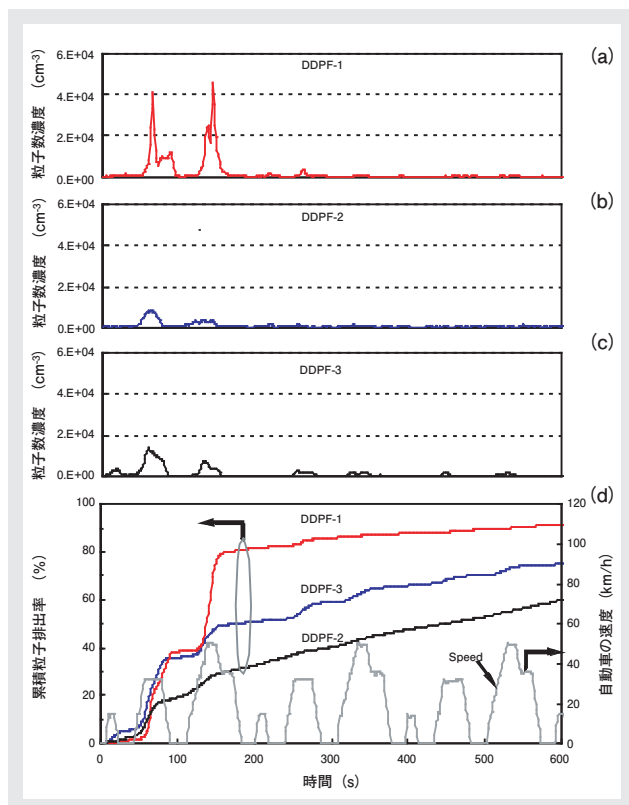


図15 DPF装着車同士の比較

DPF再生の影響調査

試験中にDPFの再生機構を作動させDPF再生中およびその後の粒子排出挙動を連続評価した。供試車両はDDPF-2で、NEDCをホットスタートで運転した。DPF再生の前にまず1回試験を行い、続いて2回目のEUDC部分で強制的に再生を開始させ、その後さらに連続4回の試験を行った。

図16にリアルタイムの粒子排出パターンを示す。図16(a)は、EUDC部分でDPF再生を開始させたときの粒子排出挙動で、DPF再生中に非常に多くの粒子が排出されることがわかる。図16(b)はDPF再生直後の結果である。再生後1回目の試験では、通常のDPFを装着した場合よりおよそ2桁高いレベルの粒子排出が観察された。図16(c)には再生後2回目の試験および再生前の試験を示す。再生後2回目では粒子数はかなり減少しているが、再生前のレベルまでは戻りきっていないことがわかる。

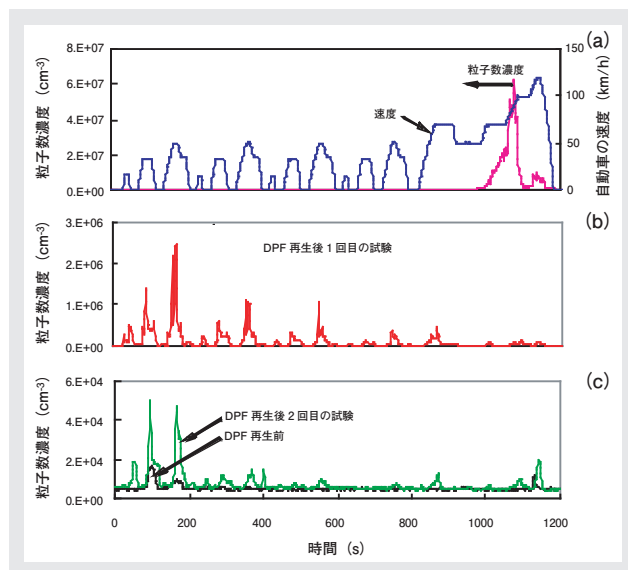


図16 DPF再生前後の排出粒子数の違い

図17に、同じ試験における全試験サイクルでの平均粒子数濃度とDPFの推定捕集率を示す。DPFの捕集率は、Non-DPFの排出粒子数(実測値)とDDPF-2のDPF入口での粒子数とが等しいと仮定して算出した。平均粒子数濃度はDPF再生により約200倍に増加するが、試験を繰り返すことにより急激に減少する。4回目の試験では、平均粒子数濃度、捕集率とも元のレベルに戻っている。このような挙動を示す理由として次のことが考えられる。DPFでは一般に、壁面の細孔に粒子状物質がまず堆積し

た後、移行段階を経由して粒子状物質が層状に堆積した“ストケーキ”を細孔の上に形成するとされる^[5]。DPFでのPM捕集にはこのPM層の有無が大きく影響するため、DPF再生によりこれが浄化されると捕集効率が悪化するものと推測できる。

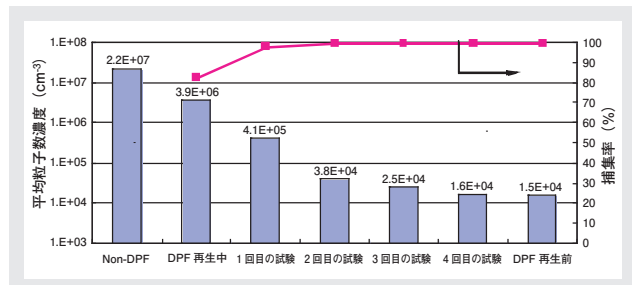


図17 DPF再生後の平均粒子数濃度と推定捕集率

直接噴射式ガソリン車の評価

図18にDPF装着DIディーゼル車 (DDPF-1) とDIガソリン車 (DIG) との粒子排出挙動の比較を示す。試験は同じ設備を用いてNEDC (コールドスタート) を運転した。図18(a)に示すDDPF-1の排出粒子数濃度は、試験サイクルの初めは非常に高くその後急激に低下する。一方、図18(b)のDIGの粒子数濃度は試験サイクル全般で一貫して高い。図18(c)には両車両の累積粒子排出率を示した。DDPF-1が試験サイクルの最初の200秒間で全体の約80%を排出してしまうのに対し、DIGでは直線に近い排出率カーブを示しコンスタントに排出が続く。このように、粒子排出特性を改善する場合、DDPF-1では最初の200秒間に対処するだけで大きな効果があるが、DIGでは試験サイクル全体を考慮する必要があることがわかる。

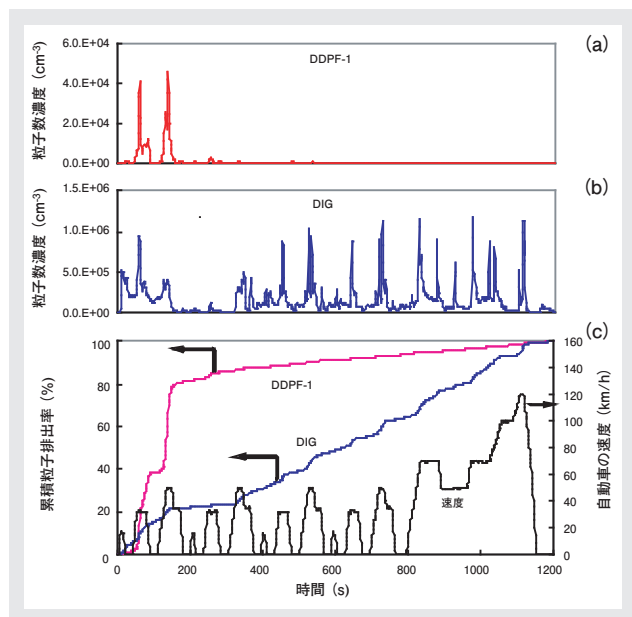


図18 DPF装着ディーゼル車とDIガソリン車の比較

全供試車両の比較

図19に、使用した全車両のkm当たりの排出粒子数を示す。DDPF-1~DDPF-3の排出粒子数は10¹¹ 個/km 未満でほぼ同レベルであった。一方、使用したDIGではそれより2桁高い排出数となっている。Non-DPFではさらに多くの粒子が排出されている。

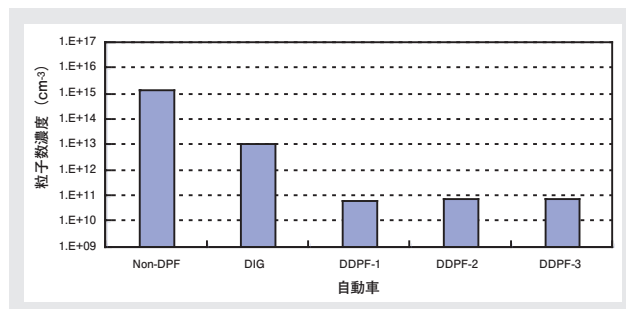


図19 全車両のkm当たりの排出粒子数

まとめ

固体粒子数測定装置MEXA-1000SPCSは、従来のフィルタ重量法によるPM計測とはまったくコンセプトの異なる装置である。サイクロン、VPR (PND1, ET, PND2)、CPCといった基本構成がGRPE-PMPの推奨仕様に準じているのはもちろん、性能面についてもPMPの要求を十分満たしている。これより、近い将来導入が予想される粒子数規制対応に対して非常に有効なツールとなると期待される。またMEXA-1000SPCSは、本来の使用法であるCVSトンネル接続による希釈サンプルに加え、専用プレダイリュータとの組み合わせによる直接測定も可能である。エンジンおよび後処理装置の研究開発分野における低濃度粒子計測にMEXA-1000SPCSが貢献できれば幸いである。

参考文献

- [1] ECE/TRANS/WP.29/2008/62
- [2] 浅野一朗他, エンジン排出固体粒子数測定システムの開発, 自動車技術会論文集, Vol.30, No.3, 43-48 (2007).
- [3] 浅野一朗他, 固体粒子数測定システムによるスート粒子排出挙動の調査, 自動車技術会学術講演会前刷集, No.155-07, 13-16 (2007).
- [4] Johnson, J. H. et al., A Review of Diesel Particulate Control Technology and Emissions Effects - 1992 Horning Memorial Award Lecture, SAE Technical Paper 940233 (1994).
- [5] Konstandopoulos, A.G et. Al., Wall-Flow Diesel Particulate Filters-Their Pressure Drop and Collection Efficiency, SAE Technical Paper 890405 (1989).



日下 竹史

Takeshi Kusaka

株式会社堀場製作所
自動車計測システム統括部
自動車計測開発部
チームリーダー



浅野 一郎

Ichiro Asano

株式会社堀場製作所
自動車計測システム統括部