大量 EGR・低温ディーゼル燃焼排気中の微粒子粒径分布*

李 鉄^{*1}, 鈴木 勝^{*2}
首藤 登志夫^{*1}, 小川 英之^{*1}Characteristics of Nano-Particulate Matter
from Ultra-High EGR Low Temperature Diesel CombustionTie LI^{*3}, Masaru SUZUKI,
Toshio SHUDO and Hideyuki OGAWA^{*3} Division of Energy and Environmental Systems, Hokkaido University,
N 13 W 8, Kita-ku, Sapporo-shi, Hokkaido, 060-8628 Japan

Particle size distribution, mean diameter, and number density of nano-PM (Particulate Matter) in the exhaust gas from a single cylinder DI diesel engine with high rates of cooled EGR (Exhaust Gas Recirculation) were studied using SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer), and the effects of the exhaust catalyst and fuel injection quantity (engine load) on these characteristics were investigated. With increasing EGR, the peak of the particle size distribution shifts to larger diameters, and the mean diameter and number density increase till the smoke concentration reaches a peak value, and then these values decrease as smoke decreases with further increases in EGR. In the ultra-high EGR smokeless low temperature combustion regime, the nuclei mode particles are dominant and show a peak around 35 nm, the mean diameter and the number density of the particles reach levels lower than those without EGR. Exhaust oxidation catalysts are effective to reduce to some degree the particle number density in a wide EGR range but the effect on the mean diameter is small. More fuel injected into the cylinder causes a larger mean diameter when smoke concentration is high due to EGR, but in the smokeless combustion regime the mean diameter does not change significantly with fuel injection quantity. The reduction in the number density by the catalyst is less significant with a greater fuel injection quantity.

Key Words: Diesel Engine, Combustion, Combustion Products, Catalyzer/Exhaust Gas Recirculation, Nitrogen Oxides, Particulate Matter (PM), Nano-PM

1. 結 論

ディーゼル機関から排出される微粒子状物質 (PM) は、発ガン性の懸念など人体に悪影響を与えることが指摘されている。それに対してその排出重量が規制されるとともに、コモンレール高圧燃料噴射装置や微粒子捕集装置 (DPF) などが普及した結果、PM は従来に比べると飛躍的に低下している。しかし、この PM 中に含まれるナノ PM と呼ばれる粒径 100 nm 以下の超微小粒子は、全 PM に占める重量割合が 1~20% と低いものの、その個数割合は非常に高く、機関運転条件によっては 90% 以上に及ぶことが報告されている⁽¹⁾。このナノ PM は、粒径の大きな粒子に比べて肺の深部まで到達しやすく、細胞壁に通過し他の臓器にまで浸

入・蓄積される危険性が指摘されている^{(2)~(4)}。ナノ PM についての規制はまだ確立されていないが、人健康への悪影響が顕在化する前にこのナノ PM の粒径分布や数濃度などの特性を把握することが非常に重要であると考えられる。そのため、ナノ PM 計測法の開発や、機関運転条件および燃料性状などがナノ PM に及ぼす影響についての研究が盛んに行われている^{(5)~(8)}。

一方、機関排気のさらなる清浄化や排気後処理装置負荷低減などの見地から、予混合化ディーゼル燃焼 (PCCI)⁽⁹⁾ や無煙低温ディーゼル燃焼^{(10)~(12)} などによる気筒内排ガス低減についての研究が進められている。著者らも無煙低温ディーゼル燃焼法について検討したところ、排気再循環 (EGR) を極端に増加することで無煙・超低 NOx 燃焼を実現できるが、その際に THC および CO が顕著に増加し、特にこの THC の中でアルデヒド類や芳香族などの未規制有害物質が高濃度で含まれていることが明らかになった^{(13)~(16)}。また、Merritt らも同様の燃焼を行った際に THC の増加とともに多環芳香族

* 原稿受付 2007 年 11 月 12 日。

^{*1} 正員、北海道大学大学院工学研究科 (〒060-8628 札幌市北区北 13 条西 8)。^{*2} 北海道大学大学院工学研究科。

E-mail: litie@eng.hokudai.ac.jp

Fig. 1 Experimental setup

(PAHs) などの有害物質も多量に含まれていることを報告している⁽¹⁷⁾。PAHs は機関から排出されるとともに冷却・凝縮してナノ PM になる可能性が非常に高いとされている。したがって、大量 EGR 低温燃焼を行なう際にナノ PM の排出特性を把握することが極めて重要であると考えられる。

本研究では、大量 EGR 低温ディーゼル燃焼排気中の微粒子粒径分布特性および酸化触媒の浄化特性を検討した。以下、その詳細を記述する。

2. 実験装置および方法

図 1 に実験装置の概略を示す。供試機関にはコモンレール噴射装置を有する単気筒・無過給・直噴式ディーゼル機関（行程体積 1007 cm³，圧縮比 16，スワール比 2.2）を使用した。運転条件は、回転速度を 1320 rpm，噴射圧力 P_{inj} を 120 MPa，冷却水温度を 80 °C とした。燃料は JIS 2 号軽油に相当する硫黄分が 4 ppm，芳香族分が 21.6% のものを用いた。燃料噴射量 Q_f は基本的に 50% 負荷相当の 32 mm³/stroke とし、燃料噴射量の影響を調べる際には 27 および 37 mm³/stroke にも設定した。燃料噴射時期は、EGR 率によって着火遅れが大きく変化するため、着火が上死点で生じるように各条件で変更・設定した。酸化触媒は、金属担体に白金 (Pt) およびゼオライト (zeolite) を担持したセル密度が 400 cpsi の量産ディーゼル乗用車に搭載されているものであり、機関排気口から約 600 mm の位置に設置した。EGR は、排気管から分流した実排気を冷却して吸気に還流することにより行った。この際、吸気温度は 30 °C になるようにした。EGR 率は全吸入ガス中に占める再循環排気の体積割合（標準状態）で定義した。

各濃度の測定には、一酸化炭素 (CO) は非分散型赤外分析計 (NDIR) を、窒素酸化物 (NO_x) は化学発光法 (CLD) を、未燃炭化水素 (THC) は加熱型水素炎検出器 (HFID) を、黒煙 (Smoke) はボッシュ式スモークメータを、酸素 (O₂) は磁気式酸素計をそれぞれ用いた。微粒子 (PM) は、分流型希釈トンネル（内径 310 mm，有効長さ 3100 mm）により排ガスを分流・希釈した後、テフロン皮膜石英フィルター（203 × 250 mm）により捕集し、フィルターソーク法により不溶成分 (ISF) と可溶有機成分 (SOF) を分離・計量した。希釈トンネル内の温度は 57 °C 以下になるようにし、その際の希釈率はバルブ開度により 10 程度となるように設定した。希釈率は排気管および希釈トンネル内の CO₂ 濃度を測定することで求めた。ナノ PM は、希釈トンネルからのサンプルガスをロータリーディスク式希釈器によりさらに約 35 倍に希釈してトータル希釈率 (DR) が約 350 になるようにし、希釈ガスの条件による影響を最小限に抑えるために 150 °C まで加熱してから、走査型パーティクルサイザー (SMPS, TSI-Model 3936) により測定した。平均粒径については算術平均粒径 D_{10} およびザウター平均粒径 D_{32} を用いて評価した。

3. 実験結果および考察

3・1 大量 EGR・低温ディーゼル燃焼の特徴 図 2 および 3 は、著者らが前報⁽¹⁶⁾ で報告した結果であり、大量 EGR を行なう際に機関の図示熱効率 η_b ，各規制物質の排出特性，触媒出入口温度，および触媒による浄化効果を示したものである。図 2 に示す通り，NO_x は、EGR により吸気酸素濃度を 14% 以下まで低下させるとほとんど排出されなくなる。黒煙は、逆に EGR により吸気酸素濃度が 14% 以下になると増加して 12%

Fig. 2 Effects of the catalysts on regulated emissions and indicated thermal efficiency with large rates of cooled EGR ($Q_f = 32 \text{ mm}^3/\text{stroke}$)

Fig. 3 Effects of the catalysts on characteristics of PM (particulate matter) emissions with large rates of cooled EGR ($Q_f = 32 \text{ mm}^3/\text{stroke}$)

付近でピークを呈したのち再び減少する。特に吸気酸素濃度を8%まで低下させると無煙・超低NOx燃焼が実現できるとともに、燃焼温度の低下にともなう冷却損失の低減により熱効率は比較的高いレベルを維持している。その際、エンジンアウトのTHCおよびCOが

Fig. 4 Effects of large rates of cooled EGR and the catalysts on distribution characteristics of the exhaust particle emissions ($Q_f = 32 \text{ mm}^3/\text{stroke}$, DR = 450, $T = 150^\circ\text{C}$)

顕著に増加するが、両者とも触媒により浄化することができる。一方、図3に示す通り、PMは超高EGRにより吸気酸素濃度を8%まで低下させると、不可溶成分 (ISF) が顕著に減少するとともに可溶成分 (SOF) が触媒により大幅に除去され、90%以上のPM浄化率が得られる。以上の結果から、大量EGRと酸化触媒を併用することで比較的高い熱効率を維持しながら規制物質のいずれも非常に低いレベルに抑え得ることが明らかである。しかし、この大量EGR・低温燃焼において未規制有害物質であるベンゼンやPAHsなどが触媒を用いても比較的高濃度であることが懸念される。特に、これらの物質はナノPMと関連性があることから、大量EGR・低温燃焼におけるナノPMの排出特性を把握することが非常に重要であると考えられる。以上の結果を踏まえ本報ではナノPMの排出特性を検討した。

3・2 大量EGR・低温ディーゼル燃焼排気中の微粒子粒径分布 図4に、燃料噴射量を $32 \text{ mm}^3/\text{stroke}$ (50%負荷) に設定した際について、大量EGRおよび排気触媒が微粒子の粒径分布特性に及ぼす影響を示す。図上段の排気触媒を使用しない場合に注目すると、EGRを行わない際に粒径分布は35および80 nmの付近に二つのピーク値を呈していることがわかる。Kittelson⁽¹⁾により、粒径が5~50 nmの粒子は核生成モード粒子と呼ばれ、主に揮発性有機物質や硫酸化合物からなり、未燃燃料や気化した潤滑油が排気の希釈・冷却により生成されたものとされている。一方、粒径

Fig. 5 Effects of large rates of cooled EGR and the catalysts on D_{10} , D_{32} and number density of the exhaust particle emissions ($Q_f = 32 \text{ mm}^3/\text{stroke}$, $DR = 450$, $T = 150^\circ\text{C}$)

が 50~300 nm の粒子は集積モード粒子と呼ばれ、すすの集積物およびその表面に有機物質やサルフェートなどが吸着したものとされている。黒煙が最大となる 52%EGR では粒径分布は 100 nm 付近に一つのピークを呈し、大部分が集積モード粒子となっている。無煙運転となる 60%EGR では、粒径分布のピークは一つであるが、ピーク値が大幅に減少するとともにピークを示す粒径が核生成モードの 35 nm 付近になっている。一方、図下段の排気触媒を用いた場合に注目すると、触媒による粒子個数濃度の低減効果は、0%および 50%EGR の際にさほど大きくないのに対し、60%EGR の無煙低温燃焼の場合には 90%以上の低減が得られている。これは、図 3 に示した PM の酸化触媒による低減特性と一致しており、無煙低温燃焼の際に PM の主成分が酸化触媒で比較的容易に除去できる有機成分であるためと考えられる。以上の結果から、大量 EGR・無煙低温燃焼と酸化触媒を併用することで規制物質のほか、ナノ PM も非常に低いレベルまで浄化できることが明らかとなった。

図 5 に、大量 EGR および排気触媒が微粒子の平均粒径および個数濃度に及ぼす影響を示す。平均粒径と個数濃度の両者とも EGR 率の増加にともなって増加し、吸気酸素濃度が 12% の付近にピークを呈したのち再び減少に転じる。これは、図 2 に示した黒煙の排出と傾向的に一致している。一方、酸化触媒により粒子の個

数濃度を低減できるのに対し、平均粒径に対する触媒の影響は比較的小さい。

3・3 燃料噴射量の影響 図 6 および図 7 に、二通りの燃料噴射量について大量 EGR および排気触媒が微粒子の粒径分布に及ぼす影響を示す。図 4 も加えていずれの噴射量でも粒径分布は、酸化触媒を用いない場合には EGR を行わない際に核生成モード粒子および集積モード粒子の二つのピークを示しているが、噴射量が少ないほうが核生成モード粒子の個数濃度が明かに高い。これは、噴射量が少ない低負荷では HC が比較的高く、さらに排気温度が低いため、核生成モード粒子が生成されやすいものと考えられる。EGR を 52% にすると、粒径分布は単一ピークになっており、燃料噴射量が多いほどピークを示す粒径が大きいほうにシフトしている。さらに無煙燃焼となる 60%EGR では、いずれの燃料噴射量でも粒径分布は 35 nm 付近にピークを示す核生成モード粒子が支配的になっている。一方、触媒を用いると、燃料噴射量が少ないほど排気触媒の浄化率が高い。特に、無煙燃焼となる 60%EGR では、噴射量が 27 および 32 $\text{mm}^3/\text{stroke}$ の場合には 90% 以上の浄化率が得られるのに対し、37 $\text{mm}^3/\text{stroke}$ の場合には触媒による浄化率が非常に低い。これは、噴射量が 37 $\text{mm}^3/\text{stroke}$ の高負荷の場合には排気温度が高いものの、大量 EGR を行なう際に排気中の酸素濃度が 1.5% 程度と非常に低いこと、またこの少ない酸素が CO などのより酸化されやすい物質により早期に消費されてしまうことが原因と考えられる。

Fig. 6 Effects of large rates of cooled EGR on distribution characteristics of the exhaust particle emissions with and without the catalysts for a smaller fuel quantity ($Q_f = 27 \text{ mm}^3/\text{stroke}$, $DR = 450$, $T = 150^\circ\text{C}$)

Fig. 7 Effects of large rates of cooled EGR on distribution characteristics of the exhaust particle emissions with and without the catalysts for a larger fuel quantity ($Q_f = 37 \text{ mm}^3/\text{stroke}$, $\text{DR} = 450$, $T = 150^\circ\text{C}$)

Fig. 8 Effect of large rates of cooled EGR on D_{10} and D_{32} of the exhaust particle emissions for three injection quantities ($\text{DR} = 450$, $T = 150^\circ\text{C}$)

図 8 に、三通りの燃料噴射量について大量 EGR による吸気酸素濃度の低下が粒子の平均粒径に及ぼす影響を、図 9 に、三通りの EGR 率について燃料噴射量が粒子の平均粒径に及ぼす影響をそれぞれ示す。図 8 に示す通り、いずれの燃料噴射量でも図 2 に示した黒煙の排出傾向と同様に平均粒径は、EGR による吸気酸素濃度の低下にともなって最初に増加し、ピークを呈してから減少する。一方、図 9 に示すように、EGR 率が 52% の場合には燃料噴射量の増加にともなって平均粒径が顕著に増加するのに対し、EGR 率が 0% および 60% の場合には燃料噴射量による影響が比較的小さい。このことから、核生成モード粒子に比べて集積モード粒子

Fig. 9 Effect of fuel injection quantity on D_{10} and D_{32} of the exhaust particle emissions for three EGR rates ($\text{DR} = 450$, $T = 150^\circ\text{C}$)

Fig. 10 Effects of large rates of cooled EGR and the catalysts on number density of the exhaust particle emissions for three injection quantities ($\text{DR} = 450$, $T = 150^\circ\text{C}$)

の粒径は、燃料噴射量、すなわちエンジン負荷の影響を受けやすいことが明らかである。

図 10 に、三通りの燃料噴射量について大量 EGR および酸化触媒が排気中の微粒子個数濃度に及ぼす影響を示す。基本的に三通りの噴射量とも EGR による酸素濃度の低下にともなって粒子個数濃度が増加して酸素濃度が 12% 付近でピーク呈して再び減少する特性を有する。一方、触媒を用いると、幅広い EGR 率においてナノ PM を浄化できるが、その浄化率は噴射量が増加するとともに低下する。特に無煙となる 60% EGR で噴射量が $37 \text{ mm}^3/\text{stroke}$ の場合には触媒の浄化効果がほとんどない。これは前述した通り排気中の酸素が不足

することに起因すると思われ、例えば排気触媒の上流から二次空気を導入するなどで低減できるものと考えられる。

4. 結 論

本研究では、大量 EGR による無煙低温ディーゼル燃焼における微粒子粒径分布特性、および排気触媒の粒径別浄化特性を検討した。得られた結果を要約すると、以下の通りである。

1. 大量 EGR・無煙低温燃焼において、微粒子分布は核生成モード粒子が支配的になる。
2. 平均粒径および個数濃度は、黒煙と同様に低 EGR 率にはその増加にともなって増加し、高 EGR 率になるとピークを呈してから減少する。個数濃度は排気触媒により低減できるが、平均粒径に対する触媒の影響は比較的小さい。
3. 微粒子の平均粒径は、黒煙が高濃度となる EGR が 52% の場合には燃料噴射量の増加にともなって顕著に増大するが、無煙となる EGR 率がゼロおよび 60% の場合には噴射量の影響が小さい。
4. 大量 EGR・低温ディーゼル燃焼と排気触媒を併用することで、中・低負荷においては規制物質を極めて低いレベルに抑えながらナノ微粒子も大幅に低減できるが、高負荷において大量 EGR 無煙燃焼を行うと排気酸素が不足するため、酸化触媒によるナノ微粒子の浄化率が低下する。

本研究において東京ダイレック (株) から SMPS を貸与頂いたことを特記し、ここに謝意を表する次第である。

文 献

- (1) Kittelson, D. B., Engines and Nano-Particles: A Review, *Journal of Aerosol Science*, Vol. 29, No.5-6 (1998), pp. 575-588.
- (2) Murr, L. E., et al., Combustion-Generated Nanoparticles in The El Paso, TX, USA / Juarez, Mexico Metroplex, Their Comparative Characterization and Potential for Adverse Human Health Effects, *International Journal of Environmental Research and Public Health*, Vol. 3, No. 1 (2006), pp. 48-66.
- (3) Ishihara, Y., Health Effects of Ambient Particles Including Diesel Particles, Workshop on Diesel DPF, (2003), Tokyo.
- (4) Arai, M., Risk Management for Nano-Size Particulate Problem (in Japanese), *Engine Technology*, Vol. 7, No. 1 (2005), pp. 4-5.
- (5) Burtscher, H., Physical Characterization of Particulate Emissions from Diesel Engines: A Review, *Journal of Aerosol Science*, Vol. 39 (2005), pp. 896-936.
- (6) Sakurai, H., et al., On-line Measurements of Diesel Nanoparticle Composition and Volatility, *Atmospheric Environment*, Vol. 37, No.9/10 (2003), pp. 1199-1210.
- (7) Montajir, R. M., Kawai, T., Goto, Y. and Odaka M., Thermal Conditionings of Exhaust Gas: Potentials for Stabilizing Diesel Nano-Particles, *SAE Paper*, No.2005-01-0187 (2005).
- (8) Arai, M., Amagai, K., Nakaji, T. and Hayashi, S., Primary and Aggregate Size Distributions of PM in Tile Pipe Emissions from Diesel Engines, *JSME International Journal*, Series B, Vol. 48, No. 4 (2005), pp. 639-646.
- (9) Zhao, F., et al., ed., Homogeneous Charge Compression Ignition (HCCI) Engines: Key Research and Development Issues, (2003), SAE International.
- (10) Sasaki, S., et al., Smokeless Low-Temperature Diesel Combustion Concept (First Report) - Soot-less Combustion at a Near Stoichiometry and Rich Air Fuel Ratios by a Large Amount of Cooled EGR (in Japanese), *Transactions of Society of Automotive Engineers of Japan*, Vol. 34, No. 1 (2003), pp. 65-71.
- (11) Inagaki, K., et al., Smokeless Low-Temperature Diesel Combustion Concept (Second Report) - Analysis of Smoke Suppression Mechanism Using Numerical Simulation (in Japanese), *Transactions of Society of Automotive Engineers of Japan*, Vol. 34, No. 1 (2003), pp. 71-76.
- (12) Sasaki, S., et al., Smokeless Low-Temperature Diesel Combustion Concept (Third Report) - Application of NOx Storage Reduction Catalyst to Diesel Engines (in Japanese), *Transactions of Society of Automotive Engineers of Japan*, Vol. 34, No. 1 (2003), pp. 77-81.
- (13) Ogawa, H., Shimizu, H., Kido, S. and Miyamoto, N., Characteristics of Ultra-High EGR and Low Oxygen Diesel Combustion and Its Dependence on Injected Fuel Quantity (in Japanese), *Transactions of The Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol. 71, No. 710 (2005), pp. 217-224.
- (14) Ogawa, H., Li, T., Kido, S., Shimizu, H. and Miyamoto, N., The Dependence of Ultra-High EGR and Low Oxygen Diesel Combustion on Fuel Injection and Compression Ratio (in Japanese), *Transactions of The Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol. 72, No. 714 (2006), pp. 543-549.
- (15) Li, T., Kido, S. and Ogawa, H., The Dependence of Ultra-High EGR and Low Oxygen Diesel Combustion on Fuel Properties (in Japanese), *Transactions of The Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol. 72, No. 719 (2006), pp. 213-218.
- (16) Li, T., Izumi, H., Shudo, T. and Ogawa, H., Characteristics of Unregulated Toxic Emissions from Ultra-High EGR Low Temperature Diesel Combustion and Effects of Exhaust Catalysts (in Japanese), *Transactions of The Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol.73, No.7 (2007), pp. 221-226.
- (17) Merritt, P., et al., Unregulated Exhaust Emissions from Alternative Diesel Combustion Modes, *SAE Paper*, No. 2006-01-3307 (2006).