

固体粒子数計測法^{*1}

Automobile Solid Particle Number Measurement Method

利根川 義男^{*2}

Yoshio TONEGAWA

1. はじめに

現在、国連欧州委員会（United Nations Economic Commission for Europe）が中心となり、Euro5,6規制に向けた検討が行われている。このなかで新たな自動車排出ガスに関する規制として、自動車から排出される粒子数の計測法に関する検討が行われている。この検討は、国連欧州委員会のWP29/GRPE（Working Party on Pollution and Energy）に所属するPMPインフォーマル会議（Informal Group on the Particle Measurement Programme）において、小型車両および大型エンジンの新たな計測法として、2001年から開始された。PMPインフォーマル会議では、新たな粒子計測法の検討にあたり、3段階に分けた各種検討を実施してきた。検討の第1段階であるPhase1においては、希釈方法を含めた粒子の計測法（重量、数、表面積、化学的性質）に関する調査検討が行われた。その後、検討の第2段階であるPhase2において、新たな粒子の計測法として、改良された重量法（US2007 対応計測法）、および粒子数計測法が新たな計測法として決定された。その後、検討の第3段階であるPhase3については、装置の安定性や再現性確認のための実証試験として、2004～2006年に軽量乗用車（LDV）を使用したインターラボ試験が行われた¹⁾。重量エンジンに関するインターラボ/ラウンドロビン試験も、2007年から開始され、現在もその検討が継続されているところである。本報では、これらの中で検討されている粒子数計測法に関する情報と、現状の課題について解説する。

2. 粒子数計測法

2.1 新たな粒子計測法の作成

PMPの活動による検討の結果が、欧州におけるEuro規制への反映が行われており、Euro5b,6において、粒子数規制の導入が決定している。粒子数を含めた新たな粒子の測定法は、UN ECE Regulation 83（Reg 83）のAnnex4aとして、新たに記載されている²⁾。粒子数の規制開始時期は、ディーゼル車についてはEuro5b（2011年）より、ガソリン直噴車については、Euro6（2013年）より、開始される予定である。この文書における粒子数測定方法についての必要要件等を次節に述べる。

2.2 粒子数計測法の概要

粒子数計測システムの概要をFig. 1に示す。推奨される粒子数計測システムは、希釈トンネル、サンプリングプローブ、揮発性粒子除去装置（Volatile Particle Remover, VPR）、粒子個数カウンタ（Particle Number Counter, PNC）から構成されている。さらに、VPRの前段に、サイクロンやインパクトなどの分級装置あるいは分級装置に相当する装置を設置し、粒子径 $2.5\mu\text{m}$ 以上の粗大な粒子を除去することが推奨されている。

*1 原稿受理 2008年11月28日

*2 (財)日本自動車研究所 エネルギー・環境研究部 博士(学術)

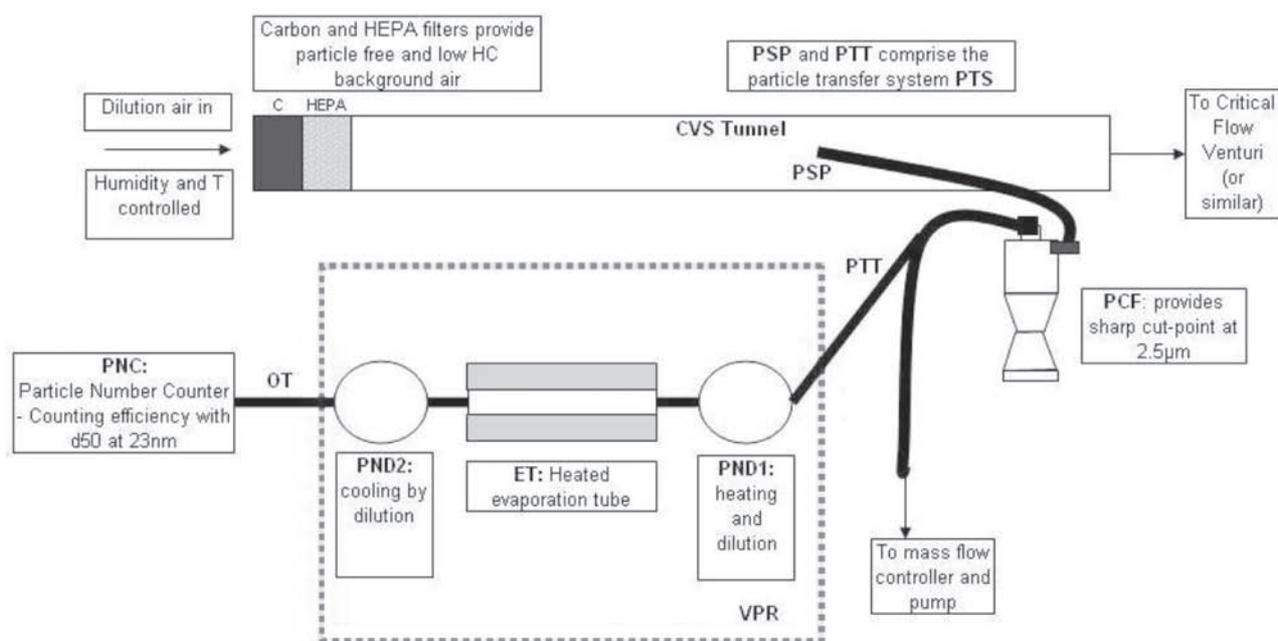


Fig. 1 Schematic of particle sampling system

2.3 粒子数計測装置の構成要素

粒子数計測装置の主たる構成要素については、2.2節に示したとおりであるが、粒子の前処理装置であるVPRは、さらに細かい装置により構成されている。VPRとはサンプルの希釈と揮発性粒子の除去を行う装置であり、1段あるいは2段の希釈装置と、加熱管から構成される。1次希釈装置 (Particle Number Dilutor, PND1) は、粒子を過熱、希釈する装置であり、装置内における粒子の凝集・凝縮を抑制するために用いられる。蒸発管 (Evaporation Tube, ET) については、粒子中の揮発成分を加熱により気化するための装置である。揮発性物質は、冷却などの過程において、凝縮という現象を引き起こし粒子化される。粒子化の頻度は、排ガス中に含まれる揮発性成分の濃度により増減するため、PMPでは測定に不安定性を与えるこれらの粒子を測定対象からはずしている。そのため、蒸発管を用いこれらの成分を気化している。さらに2次希釈装置 (PND2) は、過熱後のサンプルガスを再希釈することにより、蒸発した揮発性成分の再凝縮による粒子生成を抑制するために装置に組み込まれている。これらの装置により、粒子測定における不安定な揮発性粒子を取り除いている。

粒子数計測法の心臓部である粒子カウンタ (Particle Number Counter, PNC) は、前処理装置であるVPRにより処理された固体粒子のみを計数する装置であるが、本装置についてもPMPの考慮が反映されている。具体的には、測定に関して不安定性を与える要素として、20nm以下の粒子があげられる。揮発性粒子については、Nucleiモード粒子に多く含まれておりこれは主に20nmに分布のピークをもっている。VPRにおいて揮発性粒子の測定の必要はないとの観点から、PNCについては20nm以下の粒子を原則的に計数しない設計となっている。

これらの装置の組み合わせにより、測定の対象とされる粒子は、主に粒径が20nm~2.5µmの固体粒子ということとなる。

2.4 粒子数計測装置の必要事項と推奨事項

粒子数計測装置の装置要件として、必ず要件を満たす必要のある要求事項と、必ず必要ではないが推奨する要件である推奨事項が定められている (Table 1)。粒子数計測装置は、現在、数社より市販されているが、すべての装置が推奨事項を満たしている。

Table 1 Requirements and recommend system for particle number emissions measurement equipment

項目	要求事項	推奨事項
サンプルプローブ	内径 8mmφ 以上 Re<1700 滞留時間≤3 秒	←
Pre-Classifier	取付を推奨	50%カットオフ点 が 2.5~10μm にあり、 1μm の透過率が 99% 以上
揮発性粒子除去装置 (VPR)	1 つ以上の希釈器を有し、PNC 入口のガス温度を 35°C 以下に制御	1 次希釈器、蒸発管、 2 次希釈器を一連で有すること
1 次希釈器 (PND1)	温度制御: 150~400°C 希釈率: 10 倍以上	温度制御: 150~400°C 希釈率: 10~200 倍
蒸発管 (ET)	規定なし	壁面温度: 300~400°C
2 次希釈器 (PND2)	規定なし	希釈率: 10~30 倍 (設定: 10~15 倍) PNC 入口ガス温度: 35°C 以下
粒子カウンタ (PNC)	計数効率: 23nm にて 50±12% 41nm にて 90% 以上 取込周期: 0.5Hz 以上 応答: T90 が 5 秒以内	←

2.5 粒子数計測装置の校正方法

粒子数計測装置に関する校正の規定については、VPRおよびPNCに対して、試験の12カ月前までに実施していることが義務付けられている。各装置の校正規定を次項に述べる。

2.5.1 VPRの校正/確認規定

VPRの校正は、装置の改造時に希釈設定範囲すべてにおいて実施する必要がある。粒子数計測装置の校正係数は、粒子濃度減少係数 (Particle Number Reduction Factor, 以下、「Fr」という) であり、粒子数の損失を考慮した希釈率として定義されている。12カ月に1回実施する確認については、使用する希釈条件についてのみ、Frが初期の係数に対して、±10%であることを確認すればよい。

VPRの校正/確認には、微分型粒径分級器 (Differential Mobility Analyzer, DMA) などにより、電気力学的に分級された30, 50, 100nmの固体粒子を用いることとされている。ただし固体粒子の種類 (成分) については、何も規定がされていない。したがって、現在市販されている装置については、各製造元の考えに基づく、粒子種が用いられている。

Frの算出方法としては、5,000個/cm³以上の各粒径に分級した固体粒子を発生させ、VPR上流における粒子濃度と、VPR下流における粒子濃度を測定し、その比率から粒子の損失を含んだ希釈率 (Fr) を算出する。Fr算出のための計算式を以下に示す。

$$f_r(d_i) = \frac{N_{in}(d_i)}{N_{out}(d_i)} \quad (1)$$

ここで、 $N_{in}(d_i)$ はVPR上流における粒径 d_i の粒子濃度、 $N_{out}(d_i)$ はVPR下流における粒径 d_i の粒子濃度、 d_i は電気力学的粒径 (30, 50, 100nm) を示している。

実験的に (1) 式より得られた各粒径のFrより、装置全体のFrは以下のように示される。

$$\bar{f}_r = \frac{f_r(30nm) + f_r(50nm) + f_r(100nm)}{3} \quad (2)$$

本規定では、Frとして、各粒径 (30,50,100nm) のFrの平均値を用いているが、排出粒子の粒径分布は、車両やエンジンシステムごとに異なるため³⁾、粒子数計測装置による測定結果が、必ずしも真の粒子個数と一致するとは限らない。

また各粒径のFrの測定値は、以下の (3), (4) 式の条件を満足する必要もある。

$$f_r(30nm)/f_r(100nm) < 1.3 \quad (3)$$

$$f_r(50nm)/f_r(100nm) < 1.2 \quad (4)$$

本規定があることから、粒子損失が粒径に大きく依存しFrが異なる装置は、要件を満たさないこととなる。

またVPRは希釈機能に加え、揮発性粒子の除去性能を有している必要があるため、その確認も実施する必要がある。揮発性粒子の除去性能の確認としては、30nmのTetracontane (以下、「C40」という) 粒子を発生させ、除去性能が99.0%以上であることを確認する必要がある。この確認のために、30nmに分級したC40を10,000個/cm³以上発生させ、最も希釈率の低い条件にて、装置の上流および下流における粒子濃度の比率より、除去効率を算出する。

これらのVPRの校正に関する詳細は、UN-ECEのホームページに公開されている⁴⁾。

2.5.2 PNCの校正規定

粒子数カウンタの校正は、トレーサブルである必要がある。そのため装置の校正には、トレーサブルなエアロゾルエレクトロメータ（以下、「AE」という）と、校正されるPNCの同時計測により、応答の比較をする方法と、上述した手段により校正されたPNCを用と、校正されるPNCの同時計測による応答の比較の2種の方法がある。

いずれの方法も、PNCの測定範囲において、6点以上の濃度条件において、AEもしくは校正済みのPNCとの同時計測を行い、その応答値に関するピアソンの積率相関係数 (R^2) が0.97であり、また各測定濃度における基準器との濃度差が±10%の範囲内にある必要がある。

また粒子数計測装置用のPNCは、2.4に記載したように、23nmにおける計数効率が $50 \pm 12\%$ 、41nmであるため、これらの効率についても確認する必要がある。しかし、Reg 83には23nmにおける確認については要求しているが、41nmについては要求はしていない。

PNCに関する校正手順についても、VPRと同様にUN ECEのホームページに記載されている⁹⁾。

3. 粒子数計測法の課題

粒子数校正装置の要件や校正方法は、先に述べたとおりであるが、一部の問題や改善すべき課題が残っている。問題と考えられる課題を以下に示す。

・装置要件

装置要件に関しては厳密に規定されておらず、原理の異なる希釈方法を用いた装置が数社より販売されている。その影響について、現状では十分な把握がなされている状況ではない。

・粒子損失率の粒径依存性

粒子濃度減少係数を用い、粒子の損失を考慮した希釈率を採用することで、装置の原理の違いによる影響が少くなるよう考慮している。しかし、エミッション算出に用いるFrが、各粒子径のFrの平均値を用いているため、エンジンや後処理装置の違いなどによって、粒径分布が異なるような場合、測定結果が真の値と異なる可能性がある。具体的には大きな粒子が主に排出されるエンジンについては粒子排出量を過大評

価し、小さな粒子が主に排出されるエンジンでは過小評価する可能性がある。

・校正粒子の種類、発生方法の厳密な規定

現在の規定では、校正において用いる粒子の種類や、その発生方法について、厳密な規定がなされていない。現状では、各製造元の考えに基づく粒子種が、校正に用いられており、それらの影響が校正結果に大きな影響を与えている可能性がある。

・大気環境基準等との不整合

本規制は大気環境改善を目的とした、単体規制のための測定法として、検討されていない状況である。したがって、本規制を導入することが大気環境の改善に貢献するかは疑わしい。また粒子中の揮発成分を取り除いた測定法であることから、実際の粒子の排出を考慮しているとは考えられない。

4. まとめ

粒子数計測法は、新たな粒子の測定法として注目されているが、まだ多くの課題が残っていると考えられる。したがって、今後も更なる検討を行い、測定法をより適切なものに改善していく必要があると考えられる。

参考文献

- 1) J. Andersson et al. : Particle Measurement Programme (PMP) Light-duty Inter-laboratory Correlation Exercise (ILCE_LD) Final Report, Informal document No. GRPE-54-08 Rev.1, UNECE ホームページより (2007)
- 2) <http://www.unece.org/trans/doc/2008/wp29/ECE-TRA NS-WP29-2008-62e.pdf>
- 3) Y. Sogawa et al. : Nano Particle Emission Evaluation of State-of-the-Art Diesel Aftertreatment Technologies (DPF, urea-SCR and DOC), Gasoline Combustion Systems (Lean Burn/Stoichiometric DISI and MPI) and Fuel Qualities Effects (EtOH, ETBE, FAME, Aromatics and Distillation), SAE Paper 2007-01-4083 (2007)
- 4) E. Sandbach : Volatile Particle Remover Calibration and Validation Procedures (2007)
URL : <http://www.unece.org/trans/doc/2008/wp29grpe/PMP-VPR-CalibrationProcedure.pdf>
- 5) I. Marshall, Particle Number Counter Calibration Procedures (2007)
URL : <http://www.unece.org/trans/doc/2008/wp29grpe/PMP-PNC-CalibrationProcedure.pdf>