

# ディーゼル排出微粒子のレーザ計測

神本 武 征<sup>\*1</sup>

## Laser Diagnostics of Diesel Particulate

by

Takeyuki Kamimoto

(Received on Mar. 19, 2003 & accepted on May 28, 2003)

### Abstract

A two-color extinction method that can measure the temporal mass concentration of soot aggregates in diesel exhaust has been proposed. Two laser beams in co-axial alignment transmit a soot-loaded exhaust gas flow, and the transmittance at each wavelength is detected simultaneously. The scattering-to-absorption ratio in the extinction coefficient for the soot aggregates is theoretically determined by the transmittance values measured at two wavelengths. The refractive index of the soot aggregates is also determined from the comparison of mass concentrations measured under steady operating conditions by both the extinction and paper filter methods. Determining the scattering-to-absorption ratio in the extinction coefficient and the refractive index allow significant improvement in the accuracy of the extinction method.

**Keywords:** Laser diagnostics, Diesel engine, Exhaust emission, Soot particles

### 1. まえがき

東海大学に1999年4月に赴任して早くも4年になる。60才から65才までの5年間という限られた期間である。教育については東工大と他の大学での非常勤を合わせて30余年の蓄積があるので、熱力学、熱伝達、計測工学、エンジン実験などは最新情報を追加してスムーズに進んでいる。一方研究室はゼロからのスタートであったが、動力機械工学科の先生方の支援を受け小型動力計1台とクボタの副室式小型ディーゼルが貸与され、さらに立ち上げ費用が特別配分された。この費用で吸入空気流量計、スモークメータなどを購入し、なんとか最初の1年でエンジンの性能実験ができるようになった。しかしこの設備だけでは8人の卒論をこなすことができない。幸い平塚のコマツ研究所でディーゼル燃焼の基礎研究を行っており、大学と研究所の間で学生インターンシップ関係を結び、2名の学生が研究所で実験させてもらった。研究所も基礎研究ということでデータを公開してくれ、私も度々ディスカッションに加わり有益な卒業研究となった。誌面を借りて大学就職部とコマツ研究所に感謝する。

これで研究室の教育環境は何とか整ったが研究設備となると皆無である。民間企業からの委託研究費は得られたものの、やはり大型予算をとらねばと政府の公募型研究プロジェクトに2度応募した。2度とも最終ヒヤリングまでこぎつけたが、審査員は見知らぬ顔がほとんど、つまり応募したテーマが募集分野とミスマッチということで見事落選した。大学では最初の1年目は事務的に分らないことが多く、また適当な公募を探すためよく研究推進部に入出入りした。ある日K係長が「先生にピッタリのが

ありますよ」と運輸施設整備事業団の公募型「運輸分野の基礎的研究」の中に環境分野が含まれている募集要項をみせてくれた。チャンス到来と即座に交通安全公害研の室長、いすゞセラミックス研究所の専務に電話し、産官学共同研究「ディーゼル排出微粒子の除去とその評価に関する研究」を組織して虎ノ門の説明会に臨んだ。会場には100名ほどの応募予定者が集り激戦が予想されたが、好運にもその後のヒアリング審査を突破して2000年度採択9件に選ばれた。3年間の大型予算であり、きっかけを作ってくれたK係長には本当に感謝している。2000年度に入り、発注設備の仕様決定、設計などを行った。問題はテストエンジンの設置場所がないことであり、一時は研究推進にもお願いしたが、A課長の「外部資金をとってくるとすぐそういう要求があるので困るんですよ」と迷惑がられた。係長に比べて課長の意識の低さに愕然とした。部長への直訴も考えたが、苦境を察した学科の理解を得られ、12号館地下に150kwの新動力計と最新型3ℓターボディーゼルエンジンを設置できることになった。こうして2000年の12月から翌年の3月にかけて最新主要設備が納入された。

正式研究課題は「ディーゼル微粒子除去装置による排出微粒子の低減とその評価手法に関する基礎的研究」である。「いすゞセラミックス研究所」は東京都などのディーゼル車にディーゼル微粒子除去装置、いわゆるディーゼルPMフィルター(DPF)を提供しているが、その捕集効率を現在の82%から向上させるため、フィルターを構成するセラミックファイバー(太さ約10ミクロン)の表面形状を改善する研究を実施する。国土交通省下の独立行政法人「交通安全環境研究所」は内外のDPFの性能評価とディーゼル寸法の(PM)測定方法の検討を行うことにした。

\*1 東海大学工学部動力機械工学科教授

東海大学は「炭素状微粒子の光学的実時間測定法に関する研究」を分担することになった。

## 2. ディーゼル排出微粒子

ディーゼルエンジンは周知の如く、現存する熱機関の中で最も熱効率が高く、大形過給エンジンでは熱効率が50%を超えている。しかし拡散燃焼固有の高有害排出物特性、すなわち高NO、高微粒子排出特性が問題になっている。中でも(Particulate Matter: PM)は石原都知事が「ディーゼルNO作戦」を開始して以来悪玉の代表となっている。ディーゼルエンジンからの燃焼排出物は図1に示すように、NOx、すす、炭化水素が主体である。これらが大気中に放出され、大気によって希釈、冷却される過程で炭化水素のうちの高沸点成分、たとえば高温のため気相となった潤滑オイルなどが凝縮、核生成して直径10nmクラスの微粒子(2次ナノ粒子)を形成する。その結果、図2に示すように希釈排ガス中の粒子状物質の成分はいわゆる直径100~200nm前後のすす粒子と直径10nm前後の炭化水素の2次粒子となる。これら微粒子は人間の呼吸器系の毛細気管支まで呼吸とともに吸入され、末端で肺胞に取り込まれると云われている。すすの表面や2次粒子には発ガン性物質であるベンゾAピレンや1-ニトロピレンなどのPAHが微量ながら含まれることから人体影響が懸念されている。

エンジンアウトの排ガス成分: **すす微粒子、炭化水素、NOx、SOx**



希釈後の成分: **微粒子(PM) = すす微粒子、液体微粒子、硫酸塩微粒**  
**気体成分 = 炭化水素、NOx**

図1 ディーゼル排出微粒子

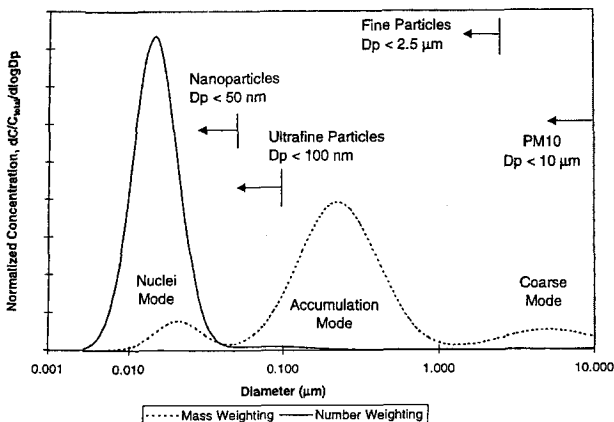
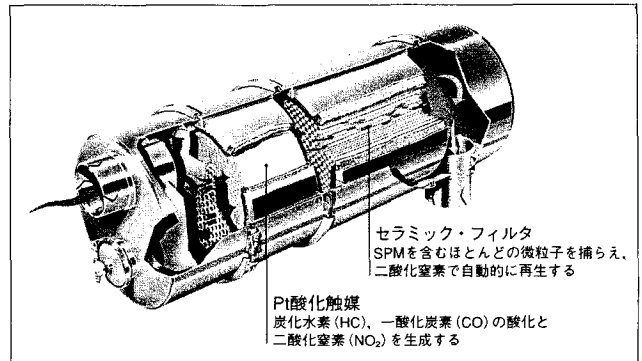


図2 ディーゼル微粒子の数密度分布



連続再生式 (ジョンソン・マッセイ社)

図3 微粒子捕集装置の一例

## System Flow Schematic

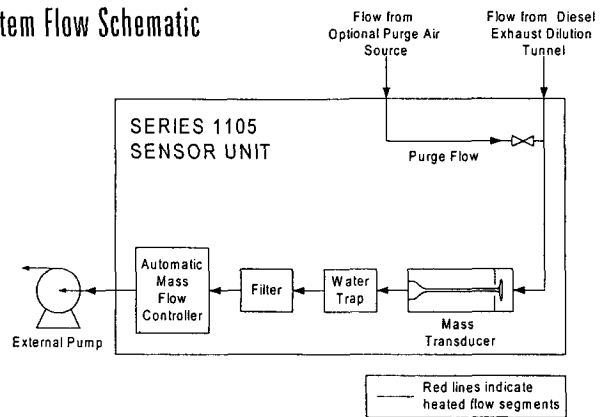


図4 微粒子質量濃度測定法 TEOM

このような点からディーゼル排出微粒子の低減は世界各地で解決すべき緊急課題となっている。アメリカ合衆国では1997年に直径2.5ミクロン以下の微粒子の質量排出量を規制するPM2.5が実施され、我国でも2004年までに1998年比で60%削減という規制が設けられている。

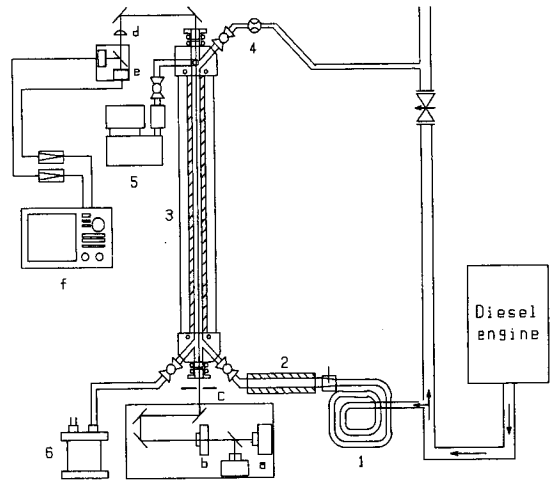
これまでエンジン技術者は排気循環(EGR)、高圧燃料噴射、電子制御噴射などの新技術を導入し、1975年レベルに対して75%以上のNOと微粒子の低減を図ってきた。しかしこれらの技術を導入しても燃焼改善だけでは将来のゼロエミッションビークル規制をクリアすることはできない。そこへ登場したのがガソリン車に装着されているようなディーゼルNOx触媒と微粒子除去装置である。図3はJohnson Matthey社のSCRシステムである<sup>2)</sup>。NOを酸化して生成したNO<sub>2</sub>が微粒子除去装置に捕集されたすすの低温酸化を促進するというものである。これらNOx触媒、微粒子除去装置に酸化触媒を装着すればクリーンなディーゼルエンジンが実現すると期待される。

しかしこれらの新しい装置は未だ耐久性が不十分であり、出来るだけエンジンから排出されるNOや微粒子の量を減らして除去装置の負担を軽減させることが望まれる。つまり後処理をするにしても燃焼チューニングが基本的に重要だということである。燃焼チューニングを評価するにはエンジンアウト、生ガス中の各種成分を実時間で正確に計測する必要がある。NOとHCについては既に優れた計測器があるが、すすについては良い製品が見当たらない。そこで私は質量濃度の実時間測定に焦点を合わせた。実時間測定にこだわるのは排気特性の評価は各国国

有の過渡運転モードによって行われるからである。

従来、微粒子質量濃度の測定に市販されている装置としてはTEOM(Tapered Element Oscillating Microbalance)とLII(Laser Induced Incandescence)法がある。前者は図4にみるようにテーパガラス棒の先端に小さなフィルターを乗せ、この上に気流に乗ってきた微粒子を捕集する<sup>3)</sup>。このテーパ棒は外部から加振されて自由振動数を計測するようになっており、先端に捕集されたすすの質量が増すと振動数が低下する。振動数の変化を測定することによって間接的に捕集されたすす質量を知ろうという原理である。しかしガスの温度によっては水分が捕集されたり、またフィルターから捕集された炭化水素粒子が蒸発して測定値が負の値になったりする欠点がある。

LIIは図5のような装置であり、排気管出口の排気流にNd-YAGレーザから高エネルギー密度のビームを一定周波数で照射する<sup>4)</sup>。排気中のすすはレーザのエネルギーを吸収して約4500Kまで加熱され、強力な近紫外の熱ふく射光を放射する。この熱ふく射強度はすすの温度が一定ならば測定容積中のすす粒子数に比例するので絶対光源によって検出感度を検定しておけば、ふく射強度の最大値からすす質量濃度を知ることができる。理論にいくつかの仮定を含むこと、加熱によってすすが蒸発することなどの欠点がある。また価格が2千万円程度と高価なことも問題である。



1. Conditioning tube 5. Air compressor a. Diode lasers e. Photo detectors  
2. Thermo controlled tube 6. Soot trap b. Beam expander f. Digital oscilloscope  
3. Measuring tube c. Iris  
4. Flow meter d. lens

図7 測定装置ブロック図

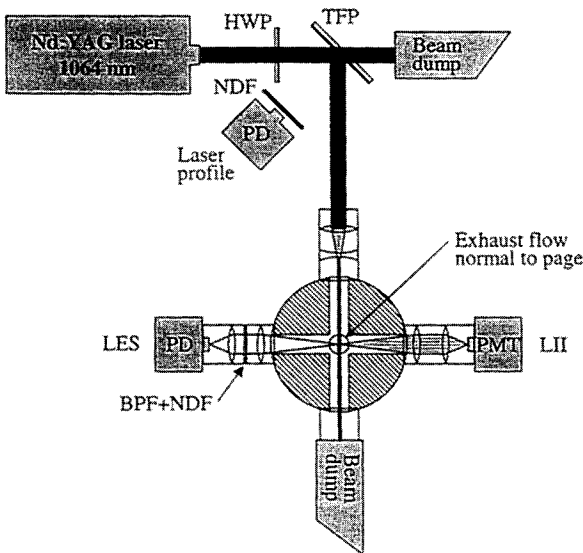


図5 微粒子質量濃度測定法 LII

### 3. 2波長透過光減衰法による

#### すす質量濃度の長時間測定

筆者の注目した方法は古典的な透過減衰法である。図6に示すように微小粒子群に平行光線が透過すると透過率 $\tau$ は次式によって表される。

$$\tau = \exp(\sigma_{ext} C_m L)$$

ここで $\sigma_{ext}$ : 比減衰係数  $m^2/kg$ ,  $C_m$ : すす質量濃度  $kg/m^3$ ,  $L$ : 光路長

したがって $\sigma_{ext}$ が既知ならば $\tau$ を測定することによって簡単にすす質量濃度 $C_m$ が測定できる。問題は透過率の測定精度がどこまで上げられるかに依存する。私は光源にダイオードレーザを使い、かつ光路長を長くすることによってこれを解決しようと考えた。従来のガスレーザは出力変動が1~2%あるのに対し、ダイオードレーザの出力変動は500ppm (=0.05%)と極めて低いからである。また試作1号機では $L=2.2m$ とした。図7に試作装置のブロック図を、図8にその外観を示す。ディーゼルエンジン(いすゞ4JX排気量3ℓターボインタークーラ、2000年式)の排気マニホールドから1.63mの位置でサンプリングプローブにより排気を測定管に導く。測定管両端に石英窓を設け、この窓を

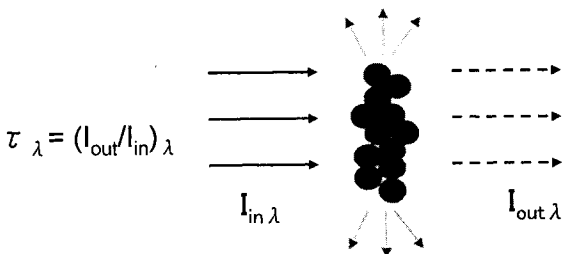


図6 すす微粒子による平行入射光の吸収と散乱

通してダイオードレーザ2本からのビームを同軸にして透過させる。透過光強度は射出側のシリコンフォトダイオードで検出し、デジタル化したのちCPUにてすす質量濃度を計算する。

まず最初に減衰係数 $\sigma_{ext}$ を決定するため、エンジンを定常状態で運転し、透過率を測定するとともにAVL社415S型ペーパーフィルター式スモークメータで標準状態換算のすす質量濃度を測定した。このスモークメータはEU規格の測定器であり、通常運転であれば信頼性の高い値を示すので、その測定値を正しい値とした。この濃度を排ガス温度における値 $C_m$ に換算して式に代入して $\sigma_{ext}$ を求めた。多数回の実験の平均値として $\sigma_{ext}=5670$ 、波長780nmに対し4380を得た。

次に得られた値の妥当性について検討と考察を行った。すすを排ガス中からサンプルして電子顕微鏡で観察すると、ぶどうの房のように直径30~35nmの球状要素すす粒子が100~200ヶつなまって、ひとつの房(凝集体と呼ぶ)を構成している。このようなすす凝集体のTEM写真を図9に示す。東海大学共同利用機器センタの日立HF-2210型を用いて宮本技師に撮影していただいた写真である。

このようなすす凝集体に平行光線が入射した場合の光の減衰係数は吸収係数と散乱係数の和として表わされる。両者の比は使用波長、要素すすの大きさ、要素すすの複素屈折率、凝集体の形状、凝集体の大きさの数密度分布の標準偏差などの関数である<sup>3)</sup>。しかしこれら多くのパラメータを個々に求めるのは現実的に不可能である。筆者はすす凝集体の散乱理論を詳細に検討した結果、複素屈折率の関数、凝集体の分布の標準偏差、凝集体の形状係数の3つのパラメータは2波長において測定した透過

率の対数比、 $\ln \tau_2 / \ln \tau_1$ の値によってひとつの定数としてまとめられるとの関係を導いた。要素すすの直径はTEM写真の結果から33nmとして与えた。この考え方が本研究のオリジナルであり、その導入によって実験的に透過光減衰法における吸収と散乱の寄与度を分離して評価することが可能となった。

いすゞ4JX3リッタエンジンの他に日野JO8C,8リッタトラック用エンジン、ヤンマー0.5リッタ小型発電用エンジンについて多くの実験を行ったところ、エンジンの種類や運転条件によらず $\ln \tau_2 / \ln \tau_1 = 0.78$ との値が得られた。この値をすす凝集体散乱理論に当てはめると、吸収係数を1.0とすると散乱係数は波長635nmで0.19、波長780nmで0.15となることが分った。さらにこれらの数値と先に求めた $\sigma_{ext}$ との値から吸収係数の値を求めたところ、各々の波長に対して $\sigma_{abs} = 4760$ と3820を得た。 $\sigma_{abs}$ は波長と複素屈折率であるので、この $\sigma_{abs}$ の値に適合する複素屈折率を検討したところ $m = 1.5 - 0.46i$ となった。以上より本研究で求められた $\sigma_{ext}$ の値はすす凝集体散乱理論にもとづき従来発表されたすすの複素屈折率の値と照らし合わせて妥当な値であることが確認できた。

2波長レーザ光減衰法はかくて理論的に確立され、また試作測定装置は学生達の操作が熟練の域に達して安定して動作するようになった。東海大学に設置したいすゞ4JX3リッタエンジンでデータを採取した他、三鷹の交通安全環境研究所に2002年の12月26日に搬入し、明けて2002年1月7日に日野JO8C大型エンジンを運転して規制過渡モード運転にてデータを収録した。図10が日本のJ13モード運転の結果、図11が米国のUSモードに対する結

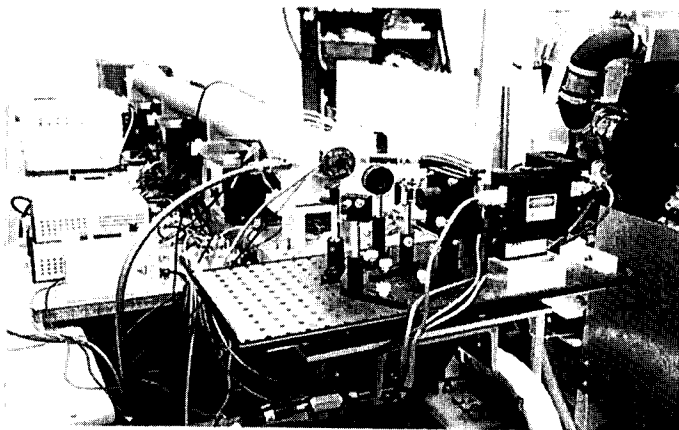


図8 測定装置外観

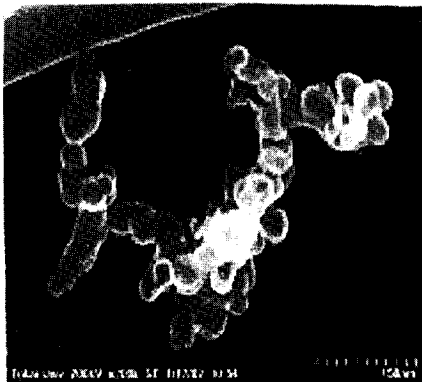


図9 ディーゼル微粒子の電顕写真

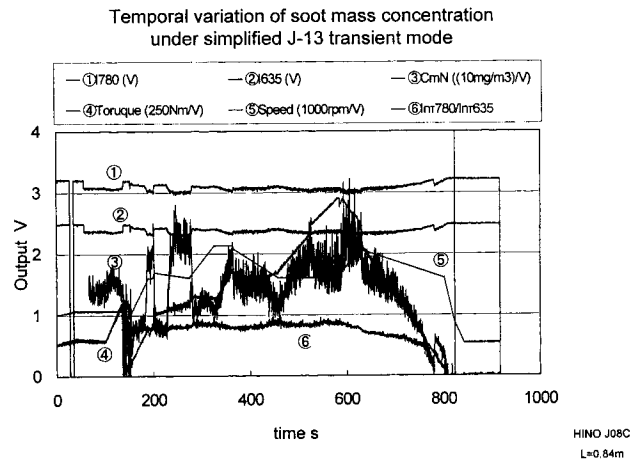


図10 J13トランジェントモードの測定例

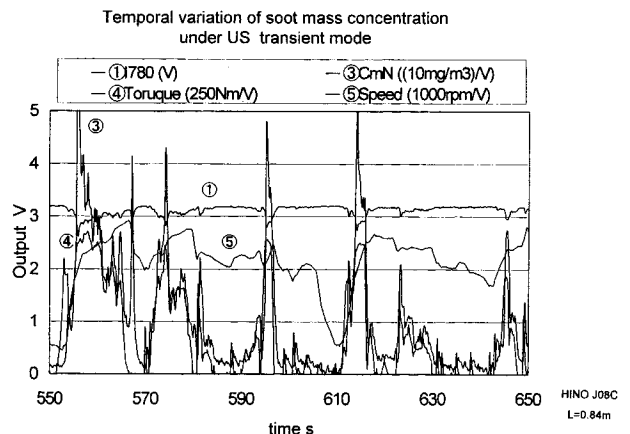


図11 USトランジェントモードの測定例

## 参考文献

- 1) Abdul-Khalek, I. S. 他4名 "Diesel exhaust particle size measurement issues and trends", SAE paper, No.980525, 1998
- 2) 掛川俊明 「ディーゼル車用後処理技術とその問題」 エンジンテクノロジー, 第3巻第4号2001年7月 pp.14-19
- 3) Gilbert M S and Clark N N "Measurement of particulate matter from diesel engine exhaust using a tapered element oscillating microbalance" Int. Jour. Engine Research, vol. 2, No. 4, 2001, pp. 277-287
- 4) Heimgartner C 他3名 "LI<sup>2</sup>SA for soot mass concentration and primary particle size measurement in engine exhaust gases" Proceedings of COMODIA 2001, pp. 604-612
- 5) Dobbins R A 他2名 "Comparison of a fractal smoke optics model with Light extinction measurements" Atmospheric Environment, vol. 28, No. 5, pp. 889-897, 1994

果である。図中、上から下へ2波長における透過率、エンジン回転速度、トルク、得られたすす質量濃度の順となっている。すす質量濃度はトルクカーブに対して時間遅れなく良く対応して変化していること、トルクが急変する時にはスパイク状に高いすす濃度が観察されること、最低0.5mg/m<sup>3</sup>以下のレベルまで測定されるなどのことがわかる。

ディーゼル排気規制はこれら過渡モード運転中に排出されるトータルのPM、質量などによって決められるが、ディーゼルメーカーは各モード運転条件下で刻々のすすの排出量変化を把握しながら噴射タイミング、パイロット噴射、EGR、ターボチャージャーなどのコンピュータ制御を最適化する。このような現場の要求からみて本研究で開発した実時間ベースのすす質量濃度計はクリーンディーゼルエンジン開発のための有用なツールとなることが期待される。

## 4. あとがき

最近のディーゼルPM排気問題について概説したのち本学で実施したディーゼルすす質量濃度測定の基礎的研究の研究資金獲得から研究経過と成果について報告した。光路長2.2mの装置を用いた実験は2001年度頃から開始したが、当初はノイズだらけの透過光強度信号しか得られなかった。不安気な学生の前で「最初はこんなものですよ。理論は正しい筈だから必ず上手く行きます」と云ってはみたものの、内心は大いに動揺していた。しかしその後、1年余り流路系、温度制御系、レーザ光入射系、光検出系などをひとつずつチェック、改良を続けた結果、忘れもしない2002年10月10日の午後、チャンピオンデータが収録でき学生ともども喜んだのであった。直ちにポータブルタイプ(L=0.84m)の組み立て、調整に入り、年末12月26日に東名高速経由で三鷹の交通安全環境研に搬入した。その成果は前述した通りである。

久しぶりに直接学生を現場で指導しながらの研究であった。研究に関った修士2年のN君他4年生は研究を進める内にメキメキ力を着け研究の進展と共に教育効果も大いに上ったと自負している。装置チューニングの段階でも色々アイデアを出しては実行して行く学生の姿は時として頼もしく感じられたのであった。

残る1年はこの測定方法を更に洗練して性能向上に努めたいと思っている。また紙面の都合で書かなかったもうひとつのテーマ「直接噴射式水素エンジンの基礎研究」(NEDOのWENETプロジェクトの中のひとつのTask)についても続行する予定である。

最後に本稿執筆の機会を与えて下さった本誌青木主査に感謝する。