

ディーゼル車からの多環芳香族炭化水素類の排出量調査

泉 川 碩 雄 吉 岡 秀 俊 秋 山 薫
 福 岡 三 郎 横 田 久 司 飯 田 靖 雄
 舟 島 正 直 竹 永 裕 二 坂 西 丕 昌
 梅 原 秀 夫

要 旨

ディーゼル車からの多環芳香族炭化水素やニトロ多環芳香族炭化水素の排出実態調査を実施した。

ベンゾ (a) ピレン等の多環芳香族炭化水素の排出特性は、NO_x等と同様に燃費の悪い平均車速の遅い領域で排出量が多く、車速の増加と共に減少する傾向にある。

仕事当たりの排出量は、等価慣性重量の小さい車種が多く、大きくなるにつれ減少する。この等価慣性重量の大小の差による排出量の変化は低速域で大きく現れ、高速域ではほとんどみられない。

仕事当たりの排出量の多い小型貨物車 (等価慣性重量3.5トン) のベンゾ (a) ピレンの排出量は、低速域 (平均車速8.1km/h) で1 μ g/t \cdot kmであった。

都内におけるディーゼル車からのベンゾ (a) ピレンの排出量を試算した結果10.4kg/年が得られた。

ディーゼル車から排出されるベンゾ (k) フルオランテンとベンゾ (a) ピレンの比、及びベンゾ (g h i) ペリレンとベンゾ (a) ピレンの比は、環境大気における浮遊粉塵中の比と類似する値であった。

ディーゼル車の黒煙対策の一手法として採用されると思われるディーゼルパテキュレートフィルタ一装置の装着により多環芳香族炭化水素とニトロ多環芳香族炭化水素の排出量は10%以下となる。

Discharge Investigation of Poly Aromatic Hydrocarbons from Diesel Vehicle.

Sekio Izumikawa, Hidetoshi Yoshioka, Kaoru Akiyama,
 Saburou Fukuoka, Hisashi Yokota, Yasuo Iida,
 Masanao Funeshima, Yuji Takenaga, Motomasa Sakanishi
 and Hideo Umehara

Summary

(1) An investigation was carried out regarding the emissions of poly aromatic hydrocarbons and poly nitro hydrocarbons from diesel vehicles in actual circumstances.

As for emission characteristic of aromatic hydrocarbons such as benzo (a) pyrene, there is a tendency that increase in emission occurs with increase in velocity, similar to NO_x in the range of low average velocity of bad mileage.

The emission per work of small class vehicle of equivalent inertia weight becomes large and decreasing in proportion to increase in the equivalent inertia weight. As for the variation of emission between large and small of this equivalent inertia weight, the difference appeared to be great in low speed region and hardly apparent in high speed region.

The highest emission of benzo (a) pyrene of small freight vehicles was 1 μ g/t \cdot km in low speed region

having mean velocity 8.1 km /h.

Benzo(a) pyrene emitted from diesel vehicle in Tokyo was calculated to be 10.4 kg / year from test.

The ratio of benzo (k) fluoranthene to benzo (a) pyrene drained from diesel vehicle, and the ratio of benzo (ghi) perylene to benzo (a) pyrene were similar in air-borne dust present in the atmospheric environment.

(2) DPF could be a counter-measure for black smoke from diesel vehicle, and is expected to reduce 90% of poly aromatic hydrocarbons and poly nitro hydrocarbons from diesel vehicles.

1 はじめに

自動車から排出される多環芳香族炭化水素やニトロ多環芳香族炭化水素が変異原性や発ガン性を有することから、これら物質の排出実態調査が要求されている。

我々は、これら物質の排出量が大きいとみられているディーゼル車を中心に発生原単位を求めするための調査とディーゼル車の窒素酸化物や黒煙の排出抑制対策がこれら物質の排出量に及ぼす影響について調査を実施してきた。

今回、これまでの調査結果をまとめたので報告する。

2 調査内容

(1) ディーゼル車多環芳香族炭化水素類発生原単位調査

ディーゼル車をシャシーダイナモメータ上で東京都実走行パターンに沿って運転し、その排出ガス中の多環芳香族炭化水素（以下、「PAH」という。）、ニトロ多環芳香族炭化水素（以下、「NPAH」という。）を測定した。測定した成分は、PAHとしてベンゾ（k）フルオランテン（以下、「BkF」という。）、ベンゾ（a）ピレン（以下、「BaP」という。）、ベンゾ（ghi）ペリレン（以下、「BghiP」という。）を、NPAHとして1-ニトロピレン（以下、「NP」という。）である。また、環境中におけるディーゼル車排出ガスの指標物質として使用される含酸素化合物の9-フルオレノン（以下、「FO」という。）を同時に測定した。

(2) ディーゼル車排出ガス対策による多環芳香族炭化水素類への影響調査

窒素酸化物の排出抑制対策として現在使用されている排出ガス再循環装置（以下、「EGR」という。）と黒煙の排出抑制装置として今後採用されると思われるディーゼルパーティキュレートフィルター装置（以下、「DP

F」という。）のPAHやNPAHの排出量に及ぼす影響について調査した。

3 調査方法

(1) 使用機器及び調査車種

ア 排出ガス実験装置は下記のものを使用した。

シャシーダイナモメータ：明電舎製の直流電気動力計を用いたシステム

CVS装置：CFV方式、設定風量40~120m³/min、希釈トンネル：トンネル有効長6.5m、内径61cm、ステンレス製の希釈トンネルを設定風量40~120m³/minにセットし使用した。

排出ガス分析計：堀場製作所製 MEXA9400F

イ 調査車種

これまでに調査した車両の車両諸元を表1に示す。なお、車種の区分は、バス（等価慣性重量が11トン以上）、普通貨物（等価慣性重量が6トン以上）、小型貨物（等価慣性重量が5トン以下）とした。

表1 調査車両主要諸元

車両記号	排気量 (cc)	等価慣性重量 (t)	備考
A	16683	14.39	バス
B	9880	11.54	
C	9880	11.49	
D	11149	14.54	普通貨物
E	11149	11.08	
F	7412	8.2	
G	6925	6.48	
H	3856	5.1	小型貨物
I	3460	3.49	
J	2996	1.64	乗用車

(2) 調査試験車の走行条件

調査試験車をシャーシダイナモメータ上で下記条件で運転した。

荷重条件：1/2積載として等価慣性重量を設定

走行条件：東京都実走行パターンNo.2（平均車速8.1km/h）、No.5（平均車速18.2km/h）、No.8（平均車速28.8km/h）、No.10（平均車速46.4km/h）の4本

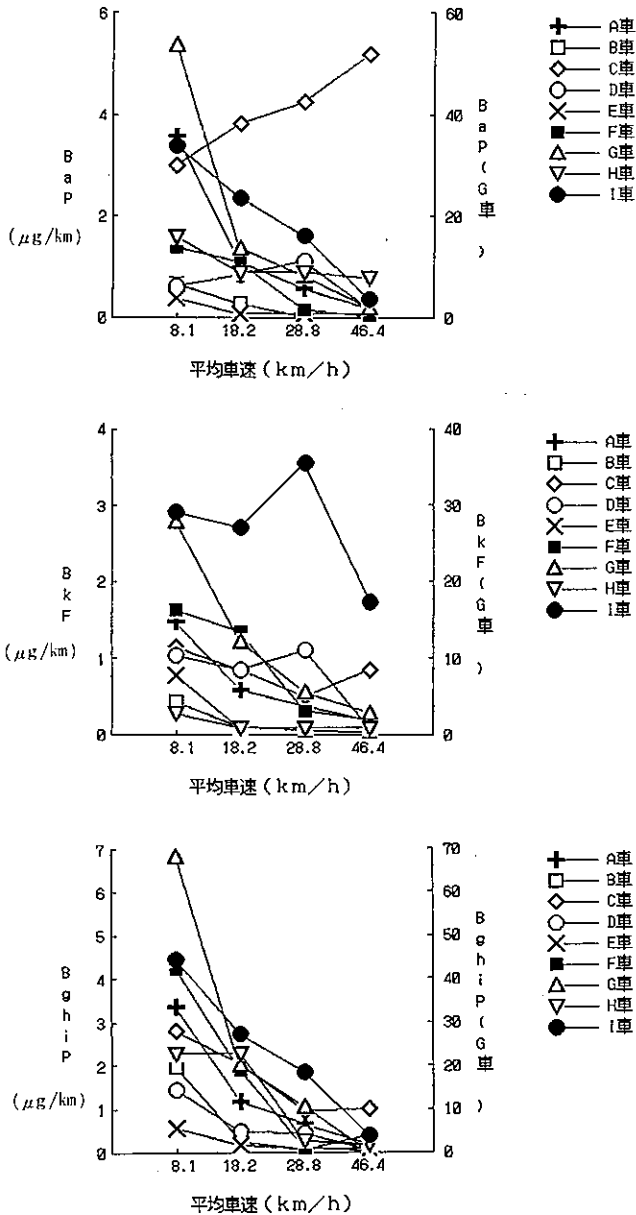


図1 BaP等の排出特性

(3) 粒子状物質の採取及び分析方法

ア 粒子状物質の採取

各走行条件での排出ガスを希釈トンネルに導入し希釈した後、希釈ガスをハイボリウムエアサンプラーを用い、

流速0.78~0.88m³/minで石英繊維ろ紙上に採取した。

イ 試料の分析

採取した粒子状物質（以下、「DEP」という。）から有機成分をジクロロメタンを用いて抽出し、さらにシリカゲルカラムクロマトグラフ法によりPAH、NPAH、FO成分に分画した。

分画したPAH成分の測定は、蛍光検出器付き高速液体クロマトグラフを用いて行った。また、NPAH成分の測定は、直接アミノ化還元処理、蛍光検出器付き高速液体クロマトグラフを用いて行った。FOの測定は、ガスクロマトグラフ・質量分析計の選択イオン検出法により行った。

4 調査結果と考察

(1) PAH等の排出特性と排出量

これまでに調査したディーゼル車9台のPAH、NPAH、FOの排出特性及び排出量を次に述べる。

ア PAH

調査した9台の実走行パターン別の排出量を図1に示す。

排出特性についてみると、これまでに調査している窒素酸化物（以下、「NOx」という。）や一酸化炭素（以下、「CO」という。）、炭化水素（以下、「HC」という。）、DEPは燃費の悪い走行パターン（平均車速の遅い領域）で走行距離（km）当たりの排出量が多く、平均車速が早くなるにしたがい排出量が少なくなる特性を示している。

PAHにおいても、C車のBaP以外は同様な傾向となっている。

排出量は、都内の平均走行車速とみられる実走行パターンNo.5（平均車速18.2km/h）の値でみると、G車を除く8台の濃度範囲は、BaPが0.1~3.8μg/km、平均濃度1.3μg/km、BkFが、0.1~2.7μg/km、平均濃度0.84μg/km、BghiPが、0.2~2.8μg/km、平均濃度1.4μg/kmであった。

G車の排出量は、BaPが14μg/km、BkFが12μg/km、BghiPが20μg/kmで他車種に比べて10倍以上も高い値であった。この高濃度の原因については、同時に測定したNOx、CO、HC等の濃度が他車種と同程度であり、不明である。

イ NPAH

実走行パターン別のNPの排出量を図2に示す。これによると区間平均車速別にみて、低速域で排出量の多い車両と、高速域で多い車両とがあり一定した排出傾向がみられない。

実走行パターンNO.5の排出量は、 $0.4\sim 11\mu\text{g}/\text{km}$ で、平均が $4.6\mu\text{g}/\text{km}$ であった。

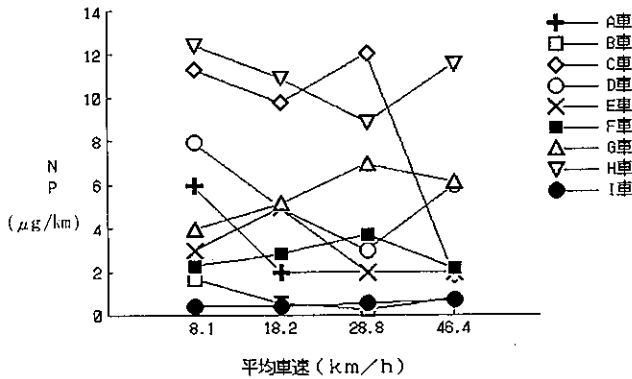


図2 NPの排出特性

ウ FO

実走行パターン別のFOの排出量を図3に示す。これによると区間平均車速の低速域と高速域で排出量が多く、中速域で最低排出量となる傾向にある。実走行パターンNo.5の排出量は、 $31\sim 500\mu\text{g}/\text{km}$ 、平均が $190\mu\text{g}/\text{km}$ であり、PAH濃度より100倍程度高い濃度となっている。

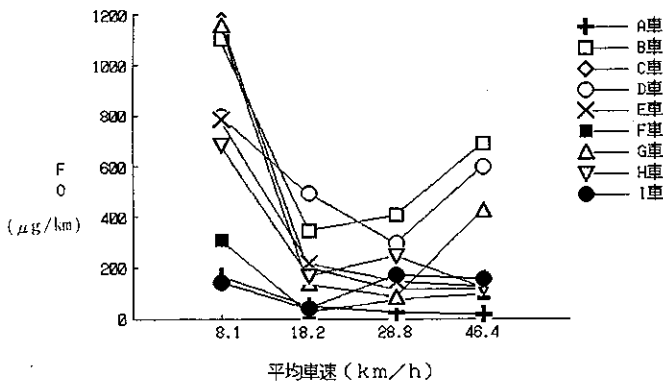


図3 FOの排出特性

(2) 仕事当たりのPAH等の排出量

ア PAH

仕事当たり（以下、「 $\text{t}\cdot\text{km}$ 」という。）のBaPの排出量について車両の等価慣性重量別に分けたものを図4に示す。これによると $\text{t}\cdot\text{km}$ 当たりの排出量は実走行パターンの低速域で特に等価慣性重量による大小の差が

みられ、小さい車種の排出量が多くなっている。すなわち、平均車速 $8.1\text{km}/\text{h}$ 時のBaPの排出量をみると、等価慣性重量 3.5トン 車で $1\mu\text{g}/\text{t}\cdot\text{km}$ 、 5トン 車で $0.3\mu\text{g}/\text{t}\cdot\text{km}$ 、 8トン 車以上は $0.1\sim 0.2\mu\text{g}/\text{t}\cdot\text{km}$ となっている。一方、高速域では等価慣性重量による大小の差がほとんどなく、全て $0.3\mu\text{g}/\text{t}\cdot\text{km}$ 以下の値であった。

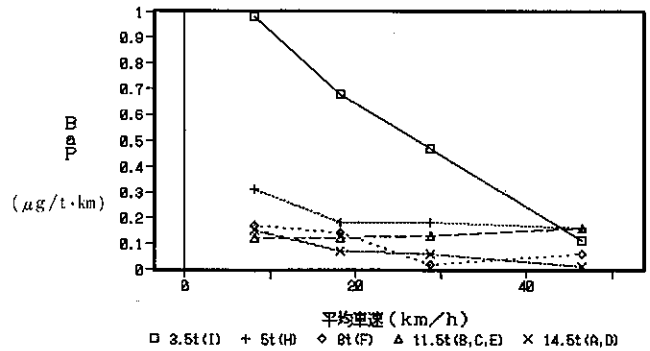


図4 仕事当たりのPAHの排出量

イ NPAH

図5にNPの $\text{t}\cdot\text{km}$ 当たりの排出量を示す。これによると等価慣性重量の小さい 3.5トン 車の排出量が最も小さい値となっているが、他は、BaPと同様に等価慣性重量が大きくなるにつれ排出量が小さくなる傾向にある。実走行パターンNO.5の排出量でみると 5トン 車が $2.0\mu\text{g}/\text{t}\cdot\text{km}$ 、 8トン 車 $0.8\mu\text{g}/\text{t}\cdot\text{km}$ 、 11.5トン 車 $0.6\mu\text{g}/\text{t}\cdot\text{km}$ 、 14.5トン 車と 3.5トン 車が $0.1\mu\text{g}/\text{t}\cdot\text{km}$ であった。

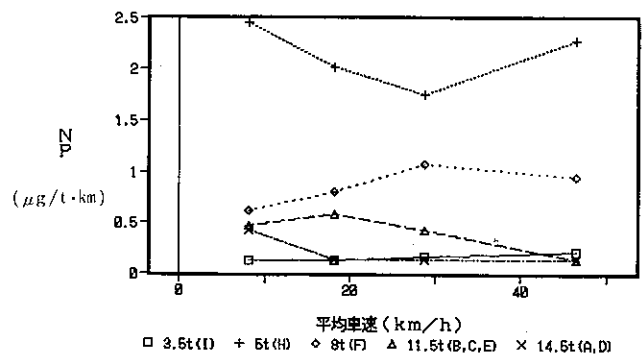


図5 仕事当たりのNPの排出量

ウ FO

図6にFOの $\text{t}\cdot\text{km}$ 当たりの排出量を示す。これによると等価慣性重量の大小と排出量は一定した関係がみられない。実走行パターンNo.5における排出量は $4\sim 33\mu\text{g}/\text{t}\cdot\text{km}$ の範囲にあった。

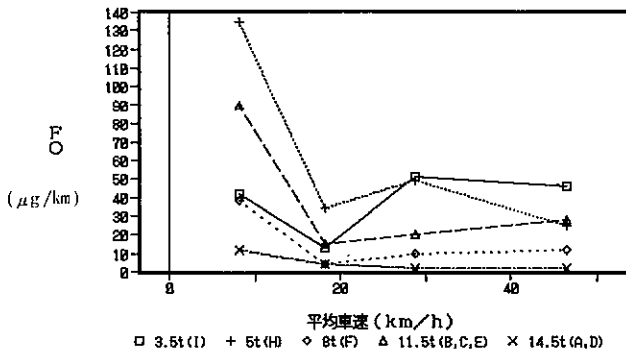


図6 仕事当たりのCOの排出量

(3) 汚染物質相互の関係

PAH等と、同時に測定したNO_x、CO、HC、DEPとの関係を調べた。

ア BaPとNO_x等との関係

BaPとNO_x、CO、HC、DEPとの関係をt・km当たりの排出量で求めた結果を図7に示す。これによるとBaPはHCとの相関が比較的高い (r²=0.65) 以外は高い関係にある成分は存在しない。

環境大気中のBaP調査において浮遊粉塵1g中のBaP濃度の測定が行われているが、平成元年度の都内の濃度13~30μgであった。今回調査した車両のDEP中の

BaP含有量をもてみると、仕事量あたりではDEP1g排出時にBaPを5μg排出している結果となっている。これは、さきの環境中の浮遊粉塵1g中に含有するBaP濃度より低い値である。

イ NPとNO_x等との関係

NPとNO_x、CO、HC、DEPとの関係をt・km当たりの排出量で求めた結果を図8に示す。これによるとNPはNO_xとの相関が高いと予想されるところであるが、他成分も含め高い相関関係にある成分はなかった。

(4) PAH成分相互の関係

環境大気中においてPAHの発生源を推定する手法としてBkF/BaP比やBghiP/BaP比が取られている。今回の調査車両について平均車速別に求めたこれらの比を表2に示す。これによると、BkF/BaP

表2 多環芳香族炭化水素成分の相互関係

実走行パターン	平均車速 (km/h)	BkF/BaP	BghiP/BaP
NO.2	8.12	0.19~2 (0.85)	0.3~3 (1.6)
NO.5	18.18	0.11~1.2 (0.72)	0.14~2.6 (1.2)
NO.8	28.79	0.12~2.7 (1.1)	0.1~2.7 (0.9)
NO.10	46.39	0.13~4.5 (1.6)	0.1~1.2 (0.6)

注：() 内の数字は平均値を示す。

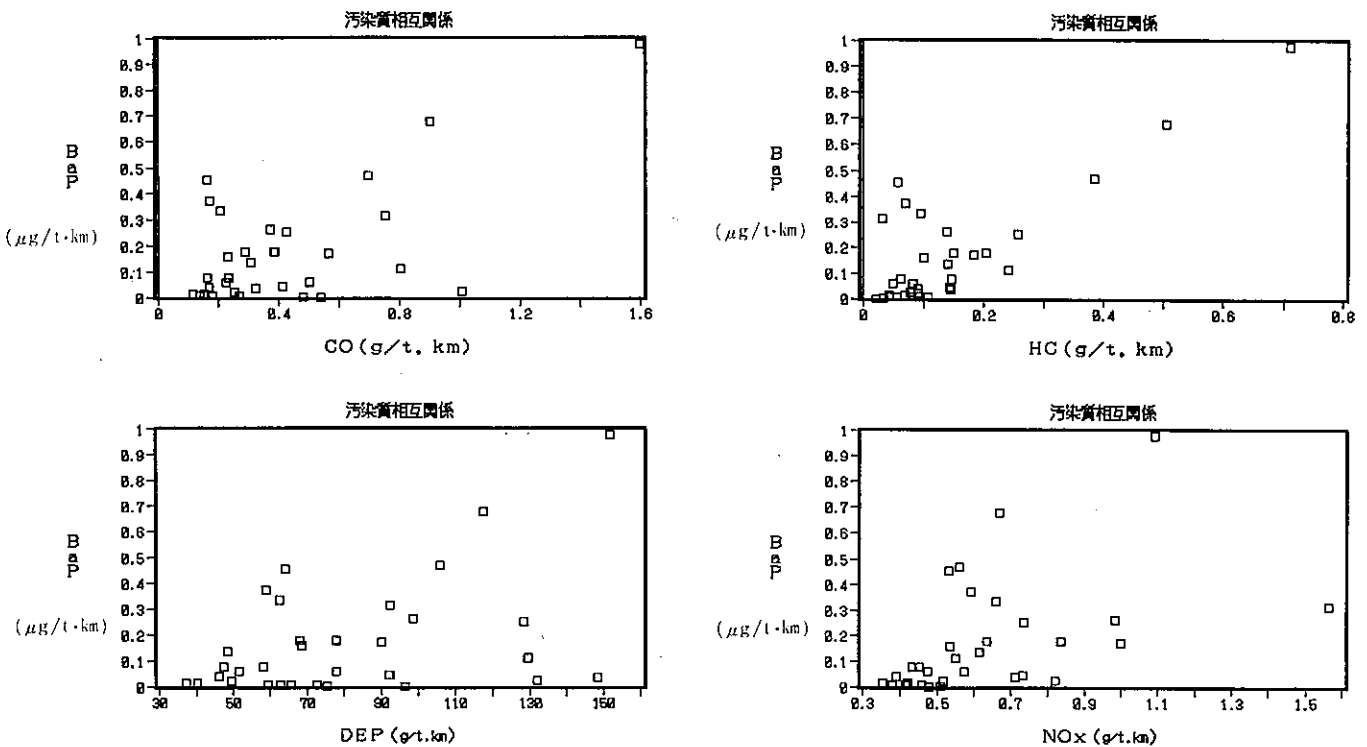


図7 BaPとNO_x等との関係

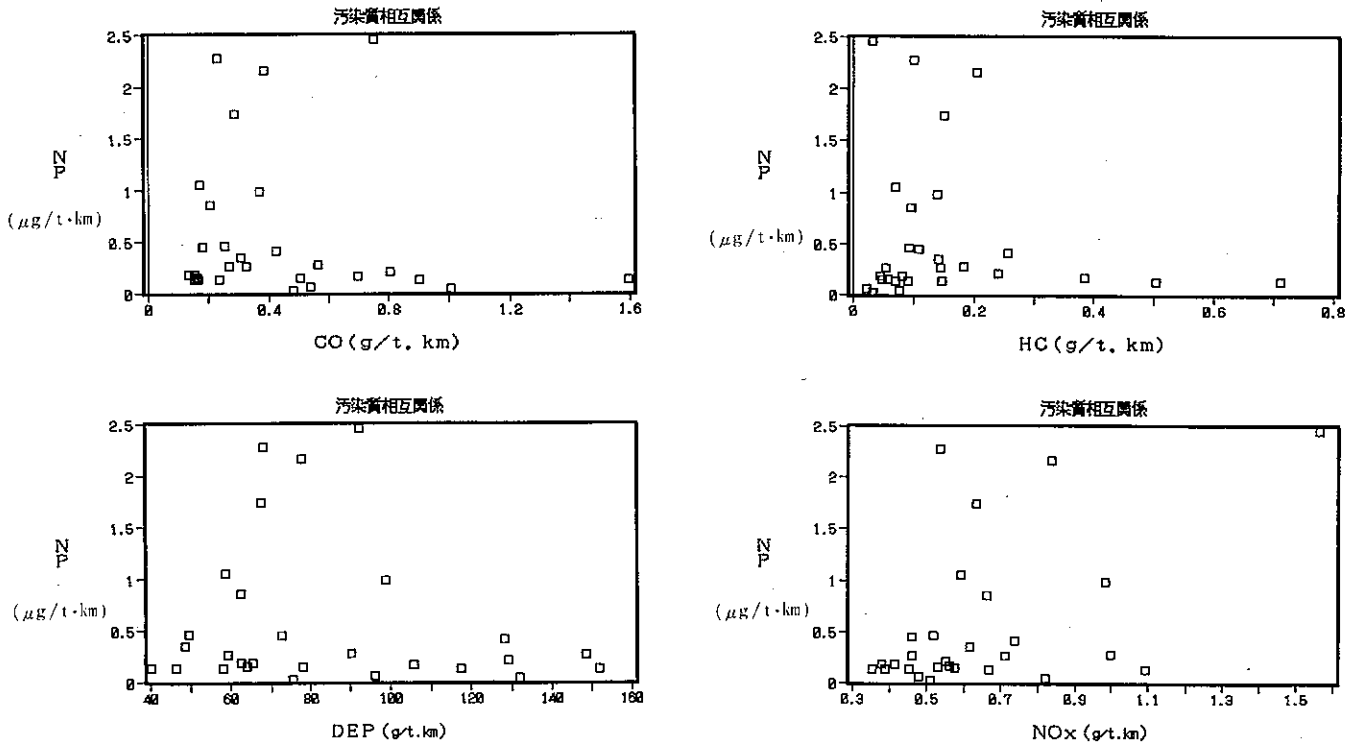


図8 NPとNOx等との関係

表3 車種別走行量 (平成7年度の予測値)

(単位: 100万台km/年)

車種	走行量
バス	312.5
小型貨物車	4,750.4
普通貨物車	3,937.6
特殊車	694.4

表4 平均車速分布

平均車速 (km/h)	割合
5	0.041
10	0.103
15	0.165
20	0.209
25	0.184
30	0.117
35	0.082
40	0.052
45	0.027

比が平均車速の増加とともに増加する傾向にあるのに対し、Bgh i P / B a P比は、逆に減少する結果となっている。都内の平均車速とみられている18.2km/h時のB k F / B a P比の平均値は0.72、B g h i P / B a P比の平均値は1.23であった。これは、都内の浮遊粉塵中のそれぞれの比、0.95、1.38と類似した結果となっている。

(5) 都内におけるディーゼル車から排出されるB a Pの排出量の試算

横田らは³⁾東京都全体におけるNOxの排出量を試算しているが、この試算式を使用し東京都全体のB a Pの排出量を試算してみた。横田らの試算式は、

$$Q_n = D_n \cdot \sum (X_i \cdot E F_i)$$

Q n : 車種毎の排出量 (kg/年)

D n : 各車種別走行量 (100万台km/年)

X i : 都内の平均車速分布

i は 5 km / h 毎の各平均車速

E F i : 各車種の平均排出係数 (µg/km)

となっている。

ここで、車種別走行量及び平均車速分布は、表3、4に示す値を使用した。また、B a Pの平均排出係数は、今回調査した車種の排出量を表1に示す車種に区分し、その平均値をもとに作成した図9に示す平均車速別排出量のグラフから読みとった(表5参照)。なお、特殊車の排出係数は、等価慣性重量が類似する普通貨物車の値

を使用した。

試算結果を表6に示す。これによると年排出量は、バス570g、小型貨物車5.6kg、普通貨物車3.6kg、特殊車630g合計10.4kgと試算された。

(6) ディーゼル車排出ガス対策による多環芳香族炭化水素類への影響調査

窒素酸化物の排出抑制対策として使用されているEG

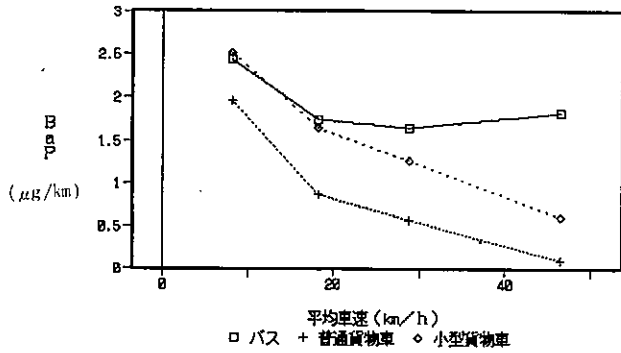


図9 BaPの車種別排出量

表5 BaPの平均排出係数

(単位: μg/km)

車速 (km/h)	バス	小型貨物車	普通貨物車	特殊車
5	2.65	2.80	2.30	2.30
10	2.40	2.45	1.80	1.80
15	1.95	1.95	1.20	1.20
20	1.75	1.60	0.85	0.85
25	1.70	1.45	0.75	0.75
30	1.65	1.20	0.55	0.55
35	1.70	1.00	0.40	0.40
40	1.75	0.85	0.30	0.30
45	1.85	0.65	0.15	0.15

表6 BaPの年間排出量

(単位: kg/年)

車種	試算排出量
バス	0.57
小型貨物車	5.6
普通貨物車	3.6
特殊車	0.63
合計	10.4

R装置と黒煙の排出抑制を目的として開発中のDPF装置がPAHやNPAH排出量に及ぼす影響について調査した。

ア BaPの排出量への影響

図10にEGR装置及びDPF装置の装着によるBaP排出量の変化を示す。これによるとEGR装置はBaP排出量にほとんど影響を及ぼさないことが分かる。一方、DPF装置は、BaPの排出量が10%以下に減少しており、ガソリン車の三元触媒装置と同様の効果を示している。今後、黒煙対策の一手法としてDPF装置の装着が考えられるが、この場合にはBaPなどPAHの排出量が減少する方向に進むことになる。

イ NPの排出量への影響

図11にEGR装置及びDPF装置の装着によるNP排出量の変化を示す。これによるとBaPの場合と同様に、EGR装置はNPの排出量への影響がなく、DPF装置は、NPの排出量を10%以下に低減する結果となっている。

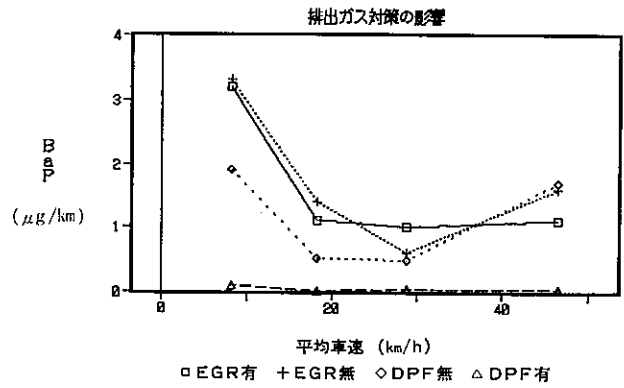


図10 排出対策によるBaP排出量への影響 (J車)

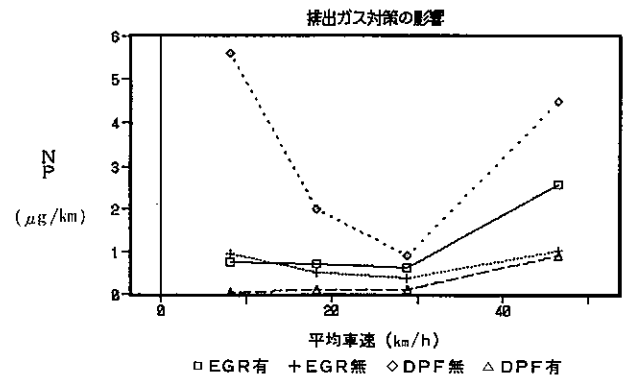


図11 排出対策によるNP排出量の影響 (J車)

5 まとめ

①ディーゼル車排出ガス中のPAH等の排出特性は、

PAHはNO_x等と同様に燃費の悪い平均车速の遅い領域で排出量が多く、车速の増加と共に排出量が減少する傾向にある。NPは、低速域で排出量の多い車種と高速域で排出量の多い車種とがある。FOは、低速域と高速域で排出量が多く、中速域で最低排出量となる傾向にある。

②PAH等の排出量を都内の平均车速とみられている実走行パターンNo.5の値でみると、BaPは1車種で14 $\mu\text{g}/\text{km}$ と高い濃度を示しているが、他は0.1~3.8 $\mu\text{g}/\text{km}$ であった。NPは、0.4~11 $\mu\text{g}/\text{km}$ であった。

③仕事当たりのPAH等の排出量は、BaP、NPでは等価慣性重量の大きい車種に比べ小さい車種で多く、この傾向は低速域でその差が大きくなっている。等価慣性重量3.5トン車の平均车速 8.1km/hにおけるBaP値は、1 $\mu\text{g}/\text{t}\cdot\text{km}$ であった。

④排出ガス中のBaPとBkF、BaPとBghiPの比は、実走行パターンNo.5における平均値がそれぞれ0.72、1.23であり、この値は大気浮遊粉塵中の比と類似している。

⑤都内におけるディーゼル車から排出されるBaPの排出量を試算した結果10.4kg/年であった。

⑥ディーゼル車の黒煙対策の一手法と思われるDPF装置の装着によりPAH等の排出量は10%以下になる。一方、EGR装置は、PAH等の排出量にほとんど影響を及ぼさない。

参考文献

- 1) 泉川碩雄ら：ディーゼル自動車排出ガス中の多環芳香族炭化水素について—エンジンダイナモメータによる調査—東京都環境科学研究所年報1990, p3.
- 2) 泉川碩雄ら：ディーゼル車からの微量有機物の排出量調査—黒煙除去装置の微量有機物への影響—東京都環境科学研究所年報1991, p 88.
- 3) 横田久司ら：アイドリング時エンジン停止のNO_x低減効果, 東京都環境科学研究所年報1993, p 148.