

IMPACTO DO PROCESSO DE REGENERAÇÃO DO FILTRO DE PARTÍCULAS (DPF) NAS EMISSÕES REGULADAS E NÃO REGULADAS EM VEÍCULO COMERCIAL LEVE DO CICLO DIESEL

Luiz Carlos Daemme¹, Renato Penteado¹, Fátima M. Zanon Zotin², Sérgio Machado Corrêa²,
Marcelo Errera³

¹Instituto de Tecnologia para o Desenvolvimento

²Universidade do Estado do Rio de Janeiro (UERJ)

³Universidade Federal do Paraná (UFPR)

E-mails: Luiz.Carlos@lactec.org.br, Renato@lactec.org.br, Fmzzotin@gmail.com,
Sergiomc@uerj.br, Merrera@gmail.com

RESUMO

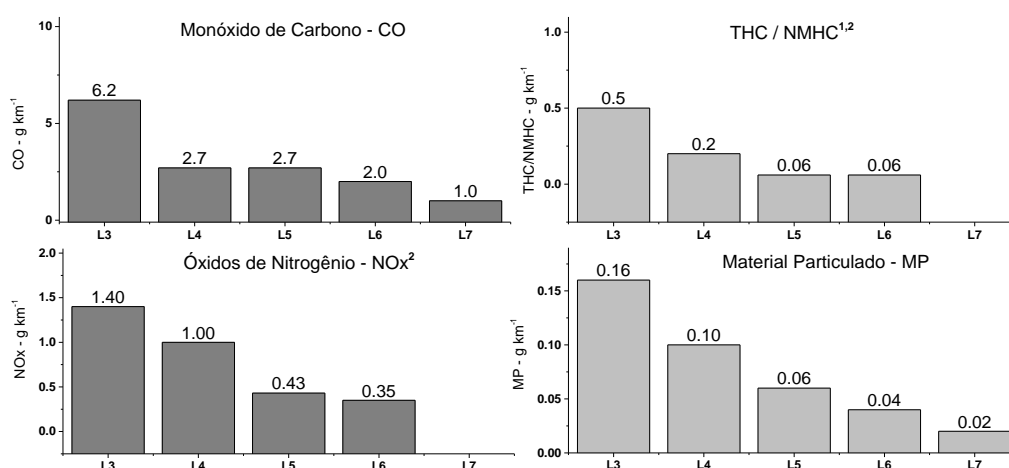
O desenvolvimento de motores, combustíveis e sistemas de controle das emissões veiculares está diretamente ligado às imposições da legislação. No Brasil a regulamentação das emissões veiculares iniciou em 1986 com a criação do PROCONVE, que implantou um cronograma para sua redução. Para os veículos comerciais leves do ciclo Diesel a maior redução nesses limites ocorreu na passagem da fase L4 para L6. Com a redução acentuada das emissões foram necessárias novas tecnologias de motores, *softwares* de controle e implantação de sistemas de pós-tratamento. Para os veículos do ciclo Diesel as emissões de NOx e material particulado são majoritárias e de controle mais difícil. Nesse cenário, ganham relevância tecnologias de pós-tratamento como uso de filtros (DPF) para redução da emissão de particulados. Essa tecnologia consiste em reter as emissões de partículas e, por diferentes estratégias reduzi-las. Algumas dessas estratégias impactam no funcionamento do motor ocasionando alterações nas emissões de outros compostos. O presente artigo tem por objetivo apresentar as alterações nas emissões de um veículo comercial leve do ciclo Diesel durante a regeneração de um sistema DPF, simulando a utilização em percursos puramente urbanos. Os resultados mostram a evolução do aumento da pressão que antecede a regeneração e do aumento da temperatura assim que ela se inicia. Nesse último caso, diferenças superiores a 350°C foram observadas, o que afetou significativamente as emissões reguladas (MP, THC e NOx) e não-reguladas (SO₂ e aldeídos). Praticamente, todas essas emissões aumentaram significativamente durante as etapas de regeneração, destacando-se as de material particulado, que aumentaram em uma ordem de grandeza, e de NOx, que superaram os limites da legislação. Segundo a literatura, o aumento nas emissões de MP ocorre devido ao acúmulo de material volátil nas partículas, à presença de sulfatos/ácido sulfúrico e à ocorrência de fragmentação dos particulados agregados, com a emissão de partículas mais finas (< 23 nm). Esse último aspecto é o de maior preocupação em termos de saúde pública, já que esses finos de particulados atingem as regiões mais profundas do trato respiratório.

INTRODUÇÃO

No Brasil, a legislação abordando emissões veiculares teve início em 1986 com a criação do PROCONVE, com seu primeiro estágio implantado em 1989. Para os veículos comerciais

leves do ciclo Diesel homologados em dinamômetro de chassi, os limites começaram a vigorar em 1997, fase L3. A FIGURA 1 apresenta um resumo da evolução da legislação nessa categoria de veículos. Observa-se que a fase L5 não foi efetivamente implantada devido à indisponibilidade de óleo diesel de baixo enxofre no mercado, sendo então antecipada a fase L6 do ano de 2014 para 2012. A nova fase da legislação, L7, entrará em vigor apenas em 2022 quando passará a ser controlada a emissão de NO_x + NMOG com limite de 0,32 g/km. Observa-se que na fase L7 o material particulado em veículos comerciais leves do ciclo Diesel continuará com controle apenas por massa, não seguindo a tendência da legislação europeia que adotou além da massa o limite para o número de partículas emitidas.

FIGURA 1 – LIMITES DE EMISSÕES DE VEÍCULOS COMERCIAIS LEVES DIESEL



NOTAS: ¹ - Legislada emissão de NMHC a partir da fase L4; ² - Fase L7 insere limites para emissão de NMOG+NO_x

A combustão no motor Diesel, diferentemente de motores Otto, ocorre em excesso de ar, diminuindo a temperatura da exaustão e a relação estequiométrica. A menor temperatura e o excesso de ar afetam o catalisador de três vias, acarretando perda de eficiência quando utilizado em veículos Diesel. Então, como primeiro elemento do sistema de pós-tratamento do motor Diesel opta-se pelo uso de um DOC (catalisador por oxidação) cuja função é oxidar hidrocarbonetos não convertidos e monóxido de carbono em CO₂ [1].

Porém, nesses motores, os compostos com maior foco de estudo são os NO_x, dada a dificuldade de reduzi-los em N₂ em meio oxidante, e o material particulado. Para as emissões de NO_x, são empregadas tecnologias como válvula para recirculação dos gases de exaustão (EGR), catalisadores de estocagem de NO_x (LNT) e catalisadores de redução (SCR). Para o material particulado são empregados filtros (DPF - *diesel particulate filter*) que atuam na retenção das partículas emitidas durante o processo de combustão. Os filtros são constituídos de material cerâmico poroso com alta densidade de canais paralelos, através dos quais os gases de exaustão são forçados a passar, retraindo o material particulado (MP) [2].

O acúmulo de MP nas células do filtro ocasiona um diferencial de pressão no sistema de exaustão, que é monitorado por sensores. Ao atingir um nível preestabelecido de restrição, ocorre a regeneração, que é o processo responsável pela oxidação do MP acumulado, propiciando o contínuo processo de filtragem [3]. A regeneração pode ocorrer por oxidação do MP com NO₂ (filtros CRT: *continuously regenerating trap*) ou por meio da elevação da

temperatura no interior do filtro, processo alcançado por meio de mudanças na etapa de combustão (retardo da injeção ou pós-injeção de combustível) [2][4].

Os filtros para material particulado podem reduzir em mais de 90 % a emissão de MP, porém essa redução na massa pode ser acompanhada de um aumento no número de partículas de menores dimensões [5][6][7]. Partículas com tamanho menor que $2,5\ \mu\text{m}$ (PM_{2.5}) não são retidas no trato respiratório superior dos seres humanos, podendo atingir os alvéolos pulmonares e a corrente sanguínea, sendo mais prejudiciais à saúde [8][9]. Devido a esses fatores, os limites de emissões na Europa (Euro VI) restringem, além da massa emitida de MP, o número de partículas [10]. No Brasil, observa-se que a nova fase do PROCONVE para veículos comerciais leves do ciclo Diesel (L7), não trará o controle do número de partículas presentes nos gases de exaustão.

As tecnologias citadas (DOC + DPF) podem ser usadas individualmente ou combinadas, dependendo das emissões a serem tratadas e dos níveis que o projeto visa atingir. Um exemplo é a associação das tecnologias LNT e SCR, onde os catalisadores colocados em série possibilitam reduzir o consumo de combustível necessário à fase rica de redução no LNT e dispensar a injeção de ARLA no SCR [11][12][13].

No DPF há naturalmente o acúmulo de particulados, havendo assim a necessidade de se realizar regenerações periódicas de forma a consumir esse material, evitando a obstrução do filtro. Quando a temperatura do gás de exaustão excede a temperatura necessária para a combustão dessa fuligem, essa regeneração é chamada de passiva, pois ocorre naturalmente, sem a necessidade de uma intervenção, como resultado do aumento da temperatura dos gases de escape durante uma operação em alta carga[14].

No entanto, a combustão do material particulado se dá em temperaturas elevadas (ao redor de $650\ ^\circ\text{C}$), valores normalmente não alcançados nos gases de escape desses veículos. Uma opção é utilizar um catalisador nas paredes do filtro. Outra possibilidade, que pode se somar à anterior, é usar um oxidante mais potente que o oxigênio. É o caso do dióxido de nitrogênio (NO_2), que pode ser gerado através da oxidação do NO, atuando efetivamente, diminuindo a temperatura de regeneração.

De forma a garantir que ocorra regeneração de forma regular, utiliza-se a regeneração ativa. Nela o sistema de controle de emissões monitora a pressão no DPF, e pode acionar a regeneração quando o MP estiver no limite superior do estabelecido pelo projeto. Essa ativação consiste no aumento da temperatura dos gases de exaustão, por exemplo, pela injeção de combustível extra no cilindro ou na saída dos gases de exaustão, pelo desligamento do EGR, entre outras estratégias.

No entanto, a regeneração ativa pode ocasionar um aumento da emissão de poluentes, inclusive de material particulado, e que será função do número de regenerações realizadas. Os filtros DPF de regeneração periódica, segundo as normas europeias, precisam ser avaliados também durante o ciclo de regeneração.

Outro aspecto relevante a se avaliar diz respeito a uma possível emissão de compostos legislados e não-legislados ao longo do processo de regeneração do DPF. Emissões significativas de hidrocarbonetos não-convertidos (HC), CO, CO_2 e formaldeído, bem como de HCN podem ocorrer, além de elevadas emissões de NH_3 e SO_2 [15].

Nesse contexto, este trabalho visa avaliar as emissões gasosas e de material particulado de um veículo leve do ciclo Diesel, da fase PROCONVE L6, em condições de uso no Brasil, durante a etapa de regeneração do DPF. Para tanto, será utilizada uma simulação de percursos puramente urbanos em dinamômetro, usando como combustível, um diesel de referência para emissões.

1. PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

O procedimento para geração dos dados experimentais se baseou na condução de testes em dinamômetro de chassis simulando um ciclo urbano de condução. Inicialmente foi realizado um processo de rodagem do veículo em condição estabilizada (80 km/h), com carga imposta pelo dinamômetro e acompanhamento da temperatura dos gases de exaustão. Com esse processo foi possível monitorar o ciclo de regeneração do DPF do veículo, propiciando o início do programa de testes com o filtro descarregado de material particulado. Após a ocorrência da regeneração, o veículo foi imediatamente colocado na área de estabilização térmica (20~30 °C) para iniciar a campanha de ensaios. Após o período de estabilização (24 horas), os testes com coleta de emissões foram efetuados sequencialmente, respeitando-se o tempo aproximado de 24 horas entre os testes.

1.1. Amostra

Para os experimentos foi utilizado um veículo comercial leve do ciclo Diesel, ano de fabricação 2014, com 15.500 km acumulados na ocasião da realização dos ensaios, pertencente à fase L6 do PROCONVE. Veículo dotado de sistema de recirculação dos gases de exaustão (EGR), catalisador de oxidação (DOC) e filtro de partículas (DPF). Observa-se que filtro e catalisador compõem um único bloco no veículo, contendo sensores de pressão e temperatura para monitorar o processo de carregamento de MP. Os ensaios de emissões foram conduzidos utilizando como combustível o diesel de referência, conforme resolução ANP nº 40 de 24/12/2008. Para propiciar mais detalhes aos ensaios o sistema DOC + DPF foi instrumentado com termopares em sua entrada e saída, bem como com pontos para coleta dos gases de exaustão.

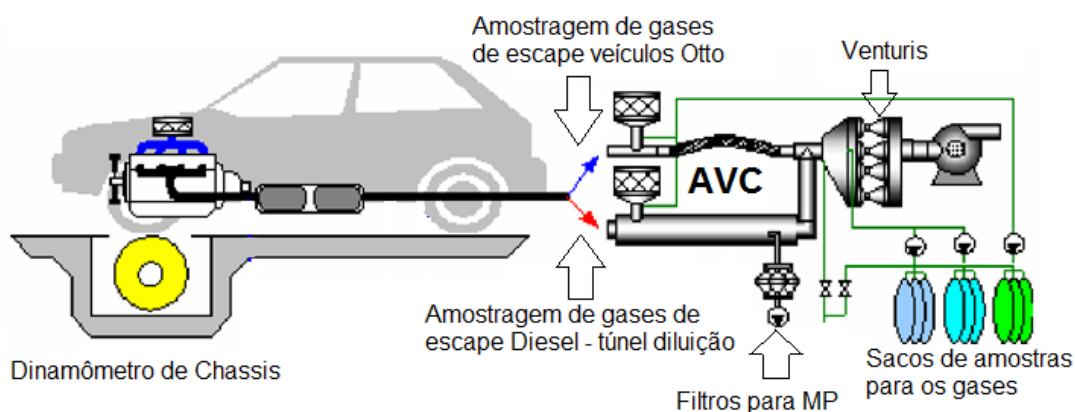
1.2. Ensaio de emissões em dinamômetro de chassis

Os ensaios de emissões foram realizados em dinamômetro de chassi, processo que simula uma condição urbana de uso veicular. O ensaio é normalizado pela NBR 6601 [16] que é baseado no ciclo americano de condução, FTP 75 (Federal Test Procedure) [17]. Para os ensaios foi utilizado um dinamômetro elétrico Horiba LDD de 48", CVS/DPS Horiba com túnel de diluição total, bancadas de análise de gases Horiba modelos Mexa 7200 e Mexa 7500.

Na FIGURA 2 tem-se uma representação simplificada de uma sala de ensaios de emissões para veículos leves dos ciclos Otto e Diesel, onde é possível observar o amostrador de volume constante (AVC) com túnel de diluição e ponto de amostragem de material particulado para veículos do ciclo Diesel.

A campanha de ensaios foi composta de 49 ensaios de emissões no ciclo urbano, sendo iniciada após a realização forçada de um processo de regeneração no DPF por rodagem em dinamômetro de chassis. Durante esse programa, foram observados em 13 ensaios, ocorrências do processo de regeneração, ou seja, para cada 3,8 experimentos sem regeneração ocorria um percurso com regeneração.

FIGURA 2 – LAYOUT SALA DE ENSAIOS EM VEÍCULOS LEVES



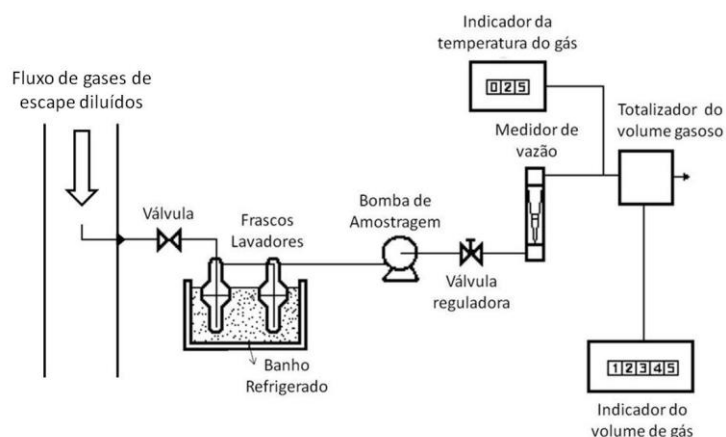
FONTE: Adaptado de [18].

1.3. Emissões não regulamentadas

Para os veículos comerciais leves, motocicletas e motores pesados, até o momento, não existe uma legislação definindo limites ou regulamentando métodos de coleta e quantificação de aldeídos. Nos experimentos dessa pesquisa a coleta de aldeídos foi realizada seguindo os preceitos da norma NBR 12026 [19], utilizada para veículos leves do ciclo Otto, que preconiza o procedimento de análise de aldeídos e cetonas pelo método de 2,4 dinitrofenil-hidrazina (DNPH) por cromatografia em fase líquida de alta eficiência (HPLC ou CLAE).

A FIGURA 3 ilustra o fluxo do gás de escapamento no AVC e a retirada de uma amostra contínua para os frascos lavadores de gás contendo solução absorvente reativa durante o ensaio de emissões.

FIGURA 3 – ESQUEMA DA COLETA DE ALDEÍDOS



FONTE: Adaptado de [19]

1.4. Análise de imagens

Para uma análise visual do material particulado depositado nos filtros de amostragem utilizados para determinação da massa de MP foram efetuadas imagens com a técnica de

técnica de microscopia eletrônica de varredura – MEV. Nesse processo foram efetuadas imagens do filtro de ensaios sem regeneração e com regeneração.

1.5. Micro soot

O AVL Micro Soot Sensor (MSS) é um instrumento para medição de partículas em regime transiente (tempo real) de concentração de fuligem. Baseia-se no princípio fotoacústico, possuindo uma unidade de condicionamento dos gases de exaustão que permite amostragem diluída ou bruta das emissões de escape.

1.6. FTIR

Para as análises de emissões brutas antes e após o sistema de pós-tratamento foi utilizado um espectrômetro AVL *Fourier Transform Infrared* (FTIR) da série SESAM. O dispositivo possui ajustes (métodos) que aperfeiçoam sua operação de acordo com o combustível testado. O equipamento foi operado de acordo com o método Diesel. As emissões foram analisadas a uma frequência de 1 Hz. Uma linha aquecida (191 °C) foi usada na amostragem para evitar condensação e perda de compostos em reações secundárias a uma taxa de fluxo de 6 Lpm.

1.7. Análise dos resultados

Os resultados foram avaliados utilizando ferramentas estatísticas no nível de significância de 5 %, sendo empregada análise de variância (ANOVA), teste de médias (Tukey), erro padrão e gráficos *box-plot*.

2. RESULTADOS E DISCUSSÃO

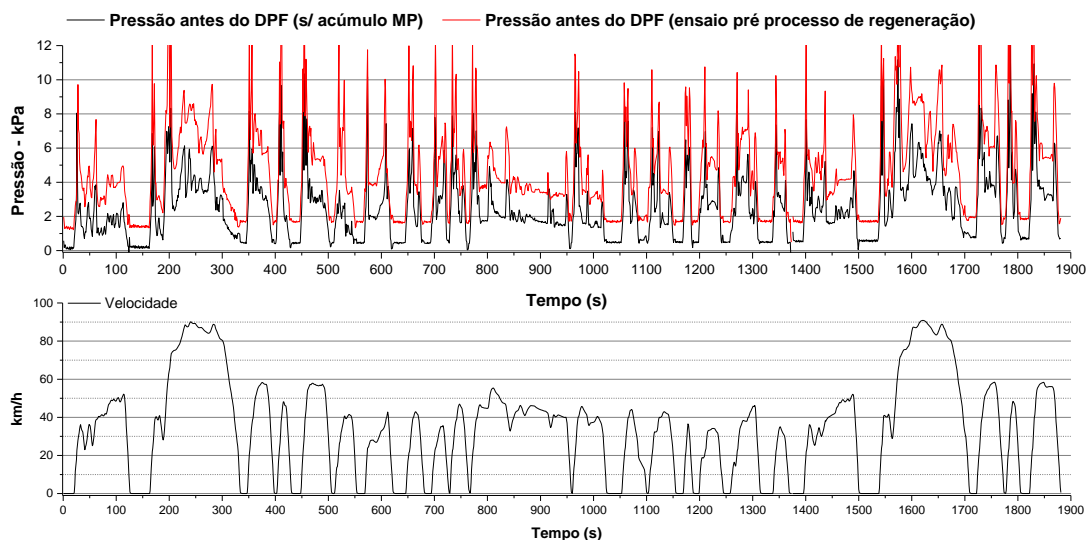
Durante a campanha de experimentos, observou-se que, em média, a cada quatro ensaios FTP 75 ocorria o processo de regeneração. Em alguns casos, o processo iniciava e finalizava em apenas um teste. Em outros casos, iniciava no meio da segunda fase ou na terceira fase do ciclo de emissões (NBR 6601) e, conseqüentemente, nesses casos o processo se estendia para o ensaio seguinte.

No tocante à diferença de pressão na entrada do sistema de pós-tratamento observou-se entre ensaios com filtro descarregado e ensaio pré-regeneração, em média, uma diferença de 2,1 kPa no sistema, ocasionando o processo de regeneração no ensaio seguinte. A FIGURA 4 apresenta a diferença de pressão medida na entrada do sistema de pós-tratamento em condições sem acúmulo de MP e já com alta carga de particulados. Nota-se nitidamente a elevação da pressão na situação que antecede a regeneração.

A regeneração se caracteriza pelo aumento da temperatura da corrente gasosa que atinge o sistema de controle de emissões. As FIGURAS 5 e 6 destacam a evolução da temperatura antes e após o sistema de pós-tratamento (DOC + DPF) para um dos ensaios realizados. Nota-se um aumento da temperatura pré catalisador no ensaio com regeneração logo no início da primeira fase e sua redução após aproximadamente 1070 s (FIGURA 5). Na terceira fase as temperaturas nos dois ensaios já estão equalizadas. Efetuando-se uma média ponderada da temperatura em todos os experimentos sem regeneração obteve-se uma temperatura média pré-catalisador de 206 °C. Nos ensaios com regeneração essa média subiu para 282 °C. Em termos de temperaturas pontuais máximas feitas antes do catalisador, observam-se aumentos de temperatura superiores a 300°C durante a regeneração do sistema. A FIGURA 6 revela as temperaturas após o sistema de tratamento nos ensaios com e sem regeneração. A temperatura após o DPF segue a mesma tendência já comentada, porém alcançam-se temperaturas

máximas superiores ($\approx 550\text{ }^{\circ}\text{C}$), o que pode estar associado ao caráter exotérmico das reações de oxidação que ocorrem na queima dos particulados.

FIGURA 4 – MEDIÇÃO DO GRADIANTE DE PRESSÃO NA ENTRADA DO SISTEMA DE PÓS-TRATAMENTO



Assim, durante o processo de regeneração ativa, a temperatura do filtro aumenta acentuadamente enquanto a pressão cai gradualmente, devido à combustão da camada de particulados depositados nas paredes do filtro [20].

FIGURA 5 – MEDIÇÃO DA TEMPERATURA PRÉ CAT NO DECORRER DE UM CICLO FTP 75 COM E SEM REGENERAÇÃO DO DPF

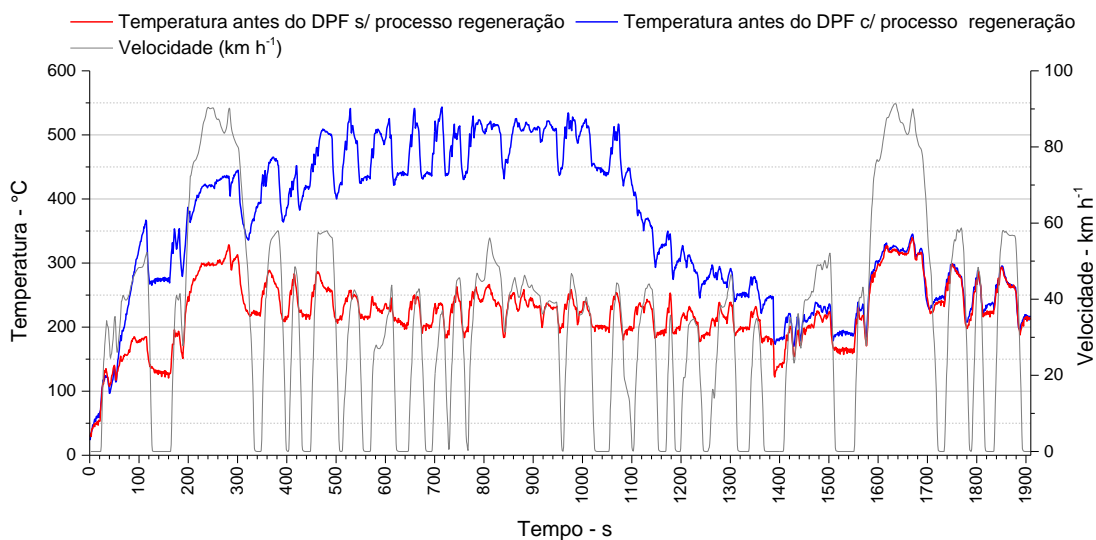
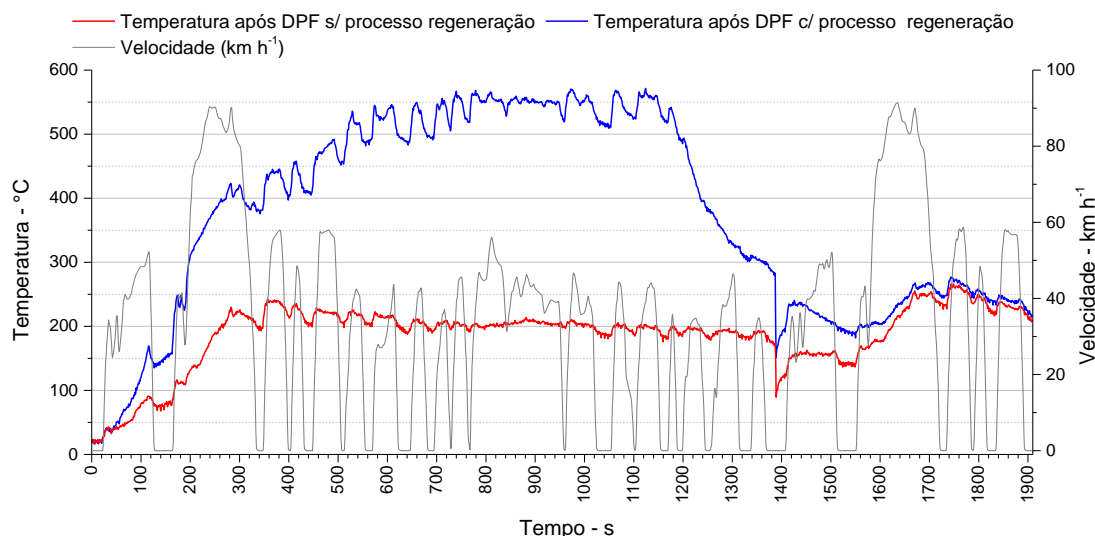
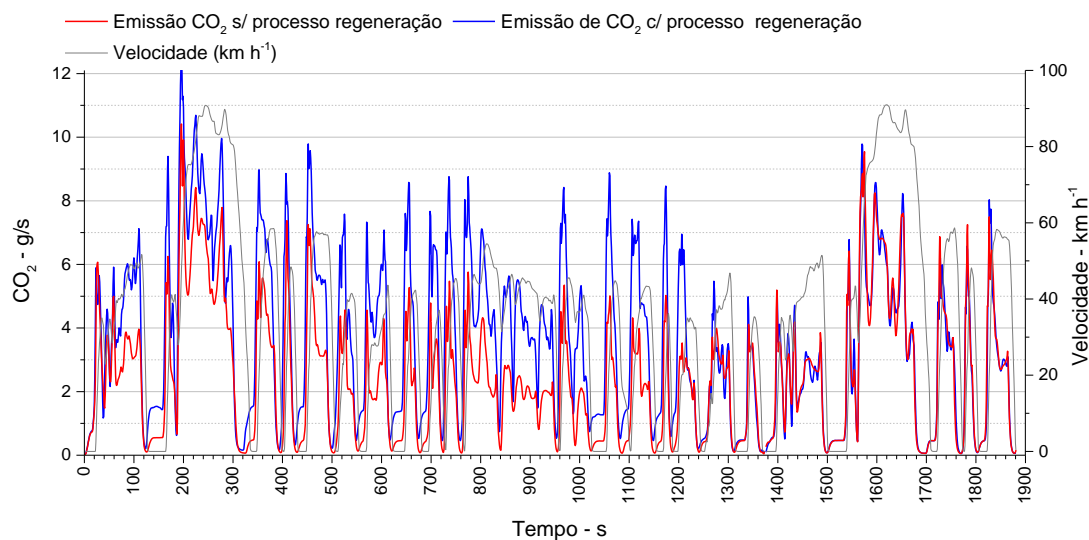


FIGURA 6 – MEDIÇÃO DA TEMPERATURA PÓS CAT NO DECORRER DE UM CICLO FTP 75 COM E SEM REGENERAÇÃO DO DPF



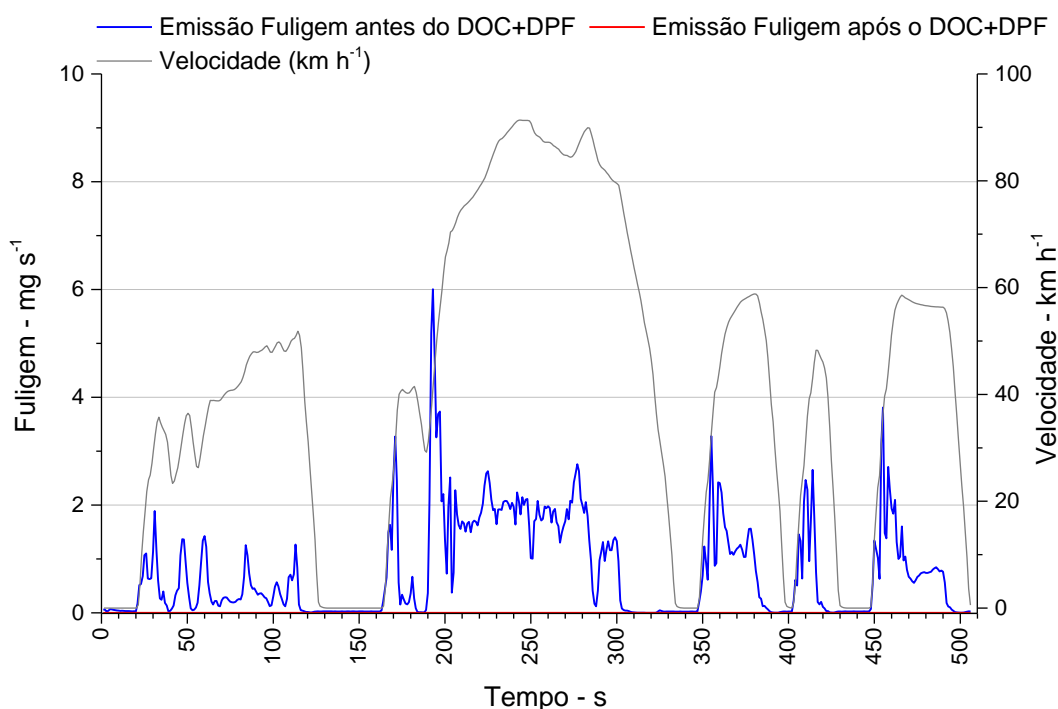
A etapa de regeneração também é acompanhada pelo aumento nas emissões de CO_2 , já que se injeta combustível para aumentar a temperatura dos gases de exaustão [14]. Nota-se claramente a relação entre a curva de aumento dessas emissões, FIGURA 7, e o perfil de elevação da temperatura (FIGURAS 5 e 6). Ao final da regeneração, com a diminuição da temperatura, o teor de CO_2 também retorna aos níveis normais, observados anteriormente à regeneração.

FIGURA 7 – EMISSÃO DE CO_2 EM CICLO FTP 75 COM E SEM REGENERAÇÃO NO DPF



A FIGURA 8 apresenta a medição de particulados realizada com o equipamento MICROSOOT (AVL), com medição antes e após o DPF durante a terceira fase do ensaio de emissões (NBR 6601), já com sistema aquecido. Essa condição foi realizada em dois ensaios onde não houve processo de regeneração. A eficiência aproximada na redução dos particulados foi de 98 %.

FIGURA 8 – MEDIÇÃO DE PARTICULADOS PRÉ E PÓS O DPF NA TERCEIRA FASE DO FTP 75



Esses valores estão próximos do estudo de Young et al [21]. Esses autores mostraram que a eficiência do DOC + DPF na remoção de partículas não voláteis é superior a 99 %.

No entanto, é fundamental acompanhar essas emissões em ensaios envolvendo a regeneração do DPF. Imagens de microscopia eletrônica de varredura são apresentadas nas FIGURAS 9 e 10. Elas foram obtidas analisando-se o filtro de coleta de material particulado localizado ao final do túnel de diluição do AVC (vide FIGURA 2) em ensaios sem e com a ocorrência de regeneração, respectivamente. No primeiro caso, sem a regeneração, o filtro de coleta para análise se encontra praticamente limpo, sendo possível identificar poucos aglomerados. Na FIGURA 10, imagem do filtro de coleta de MP durante o processo de regeneração, nota-se um grande acúmulo de material, mostrando a emissão de muitas partículas pequenas durante o processo da regeneração no DPF.

Assim, apesar de se obter a regeneração do DPF com eficiência, nota-se que esse processo proporcionou elevadas emissões de material particulado. Observa-se ainda na FIGURA 10 que as partículas emitidas majoritariamente estão abaixo de 2 μ m.

Antes de iniciar a apresentação dos resultados relativos às emissões, vale ressaltar que os mesmos estão separados em três condições, a saber: média dos testes onde não ocorreu a regeneração (S/ reg), média dos testes com regeneração (C/ reg) e, ainda, a média geral de todos os testes (Média). Nesse sentido, as figuras apresentam, à esquerda, o gráfico *box plot* com os resultados dos ensaios nas diferentes condições mencionadas anteriormente. À direita consta o resultado do teste de comparação das médias (teste Tukey).

Os resultados relativos ao MP estão apresentados na FIGURA 11 sendo uma constatação de emissão de particulados durante a etapa de regeneração. Nota-se que ao longo do processo de regeneração, a massa de particulado emitido aumenta consideravelmente, porém o limite estipulado pela legislação, que é de 0,040 g/km, não chega a ser ultrapassado. Assim, mesmo

durante o processo de regeneração, as emissões ficam em torno de 29 % do limite. Nos ensaios sem regeneração a emissão representa apenas 3 % do limite, aproximadamente.

FIGURA 9 – IMAGEM DO FILTRO DE MP, SEM REGENERAÇÃO, COM AMPLIAÇÃO DE 15.000 VEZES

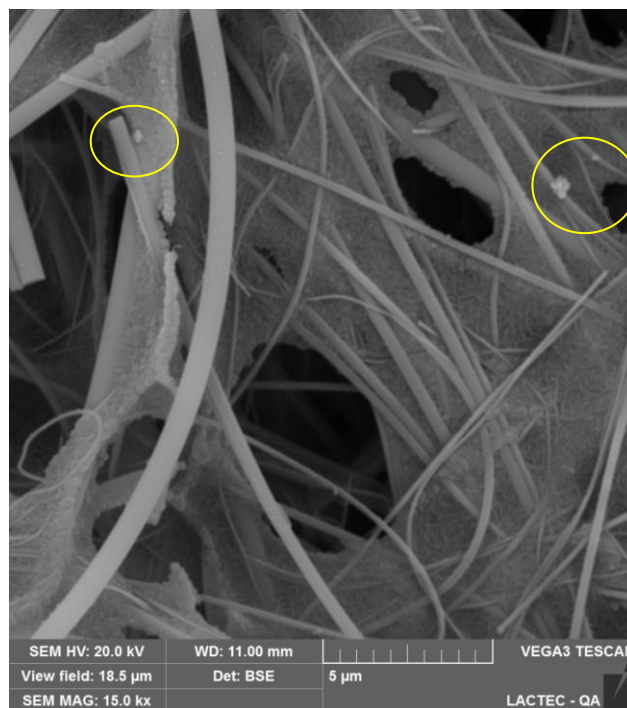
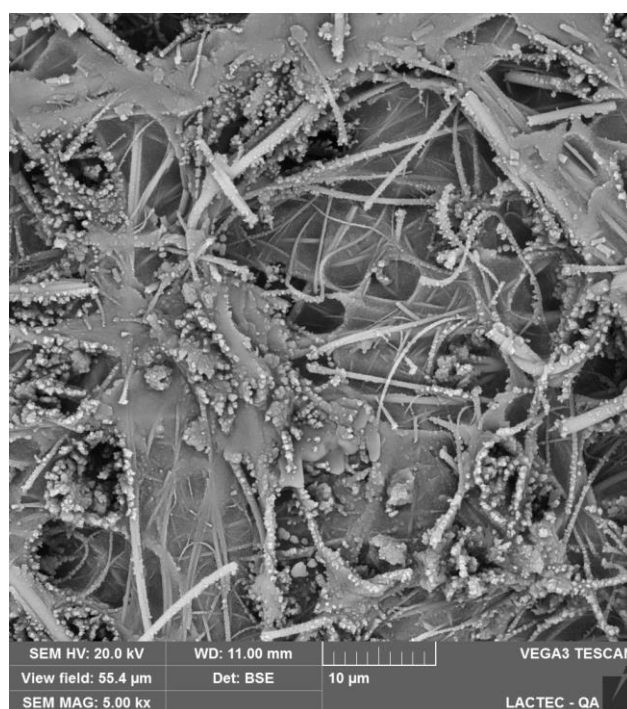
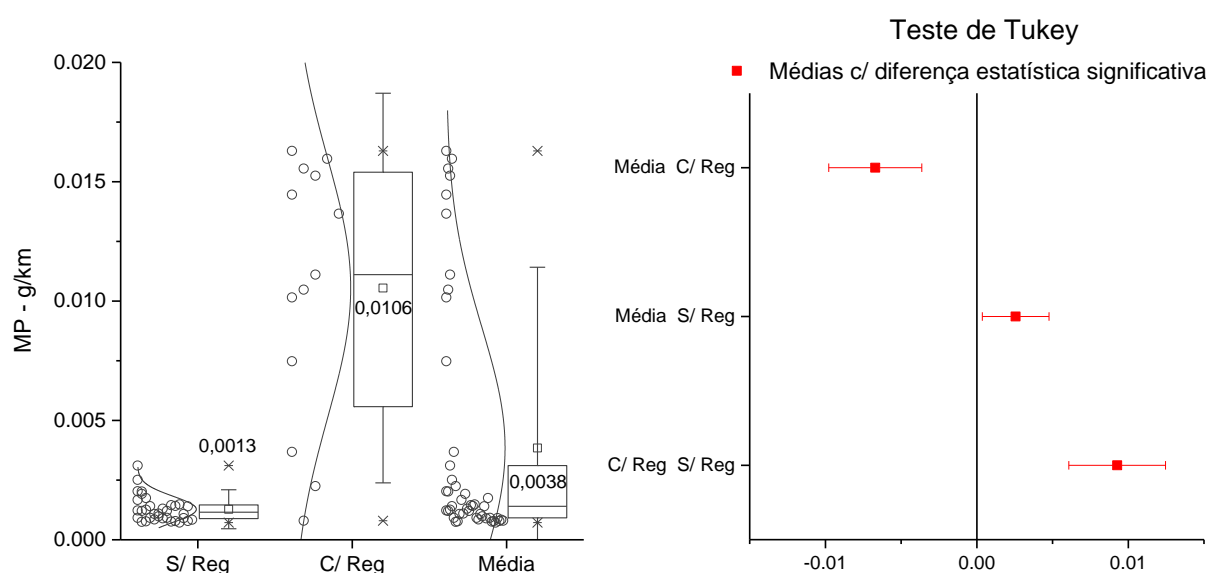


FIGURA 10 – IMAGEM DO FILTRO DE MP, COM REGENERAÇÃO, AMPLIAÇÃO DE 5.000 VEZES



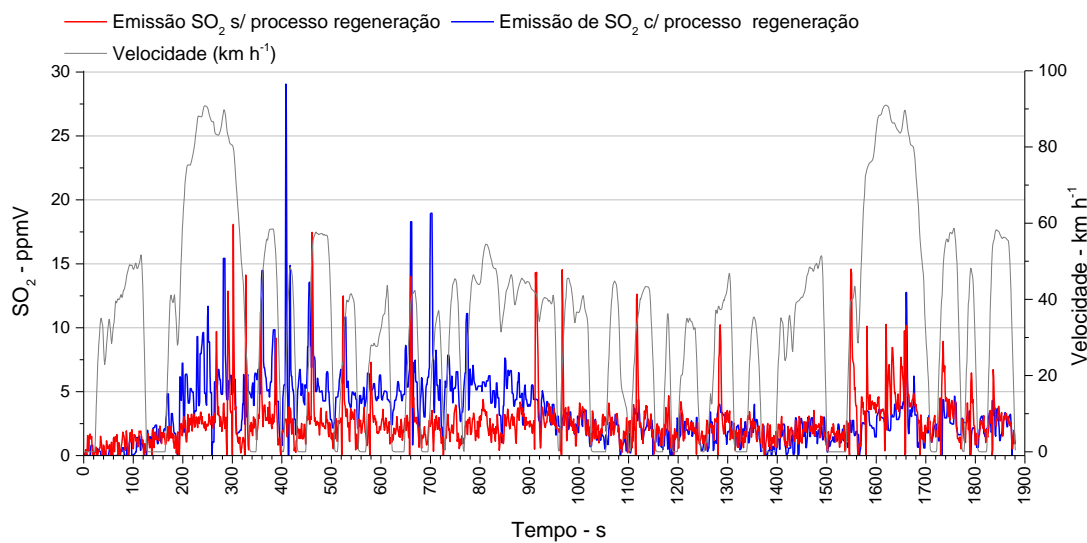
Nota-se, portanto, que a ação do DPF depende não apenas de sua eficiência de filtragem durante a operação normal, que é muito satisfatória, mas também das emissões geradas ao longo da regeneração, que naturalmente se relacionam com a frequência desses eventos [22]. Segundo a literatura, a regeneração do DPF leva a distribuições de partículas bimodal atribuída a alguns fatores como estocagem de material volátil como óleo lubrificante e sulfatos/ácido sulfúrico, bem como à fragmentação dos particulados agregados [14][23]. Yamada et al [14] verificaram que as emissões de partículas aumentam na última parte do período de regeneração, mas dependendo do tamanho das partículas, os mecanismos de formação são diferentes. A emissão de partículas acima de 23 nm ocorre pela menor eficiência de filtragem do DPF devido à quantidade decrescente de fuligem retida durante a regeneração. Já, partículas abaixo de 23 nm consistem principalmente de partículas de ácido sulfúrico/sulfato produzidas a partir de SO₂ retido pelo catalisador, sendo liberadas e oxidadas durante a regeneração. Vale ressaltar que o presente estudo foi realizado com diesel contendo teores de enxofre inferiores a 10 ppmV. Considerando que os estudos realizados sobre o assunto apontam a emissão de partículas de dimensões inferiores as do material particulado que atinge o DPF, fica a preocupação de se considerar as emissões de particulados não somente em termos mássicos, mas principalmente em número de partículas emitidas.

FIGURA 11 - EMISSÃO DE MP NOS ENSAIOS COM E SEM REGENERAÇÃO DO DPF E SUA MÉDIA



Na FIGURA 12 apresentam-se as emissões de SO₂ medidas nos gases brutos de exaustão após o DPF com uso da técnica de FTIR. Os dados se referem a ensaios com e sem regeneração do DPF. Nota-se que níveis mais elevados de SO₂ ocorrem durante o processo de regeneração. Esses resultados estão de acordo com trabalhos anteriores. Segundo Bikas et al. [24], as emissões de SO₂ aumentam durante a regeneração devido ao aumento do consumo de combustível. No entanto, outros autores sugerem que em altas temperaturas, o enxofre do combustível previamente armazenado na superfície do catalisador, é liberado como SO₂ [23][25]. Nota-se que apesar dos baixos teores de compostos sulfurados no Diesel utilizado nos ensaios (10 ppmV), existe a contribuição do enxofre na formação dos particulados.

FIGURA 12 -: EMISSÃO DE SO₂ DURANTE CICLO FTP 75 COM E SEM REGENERAÇÃO NO DPF



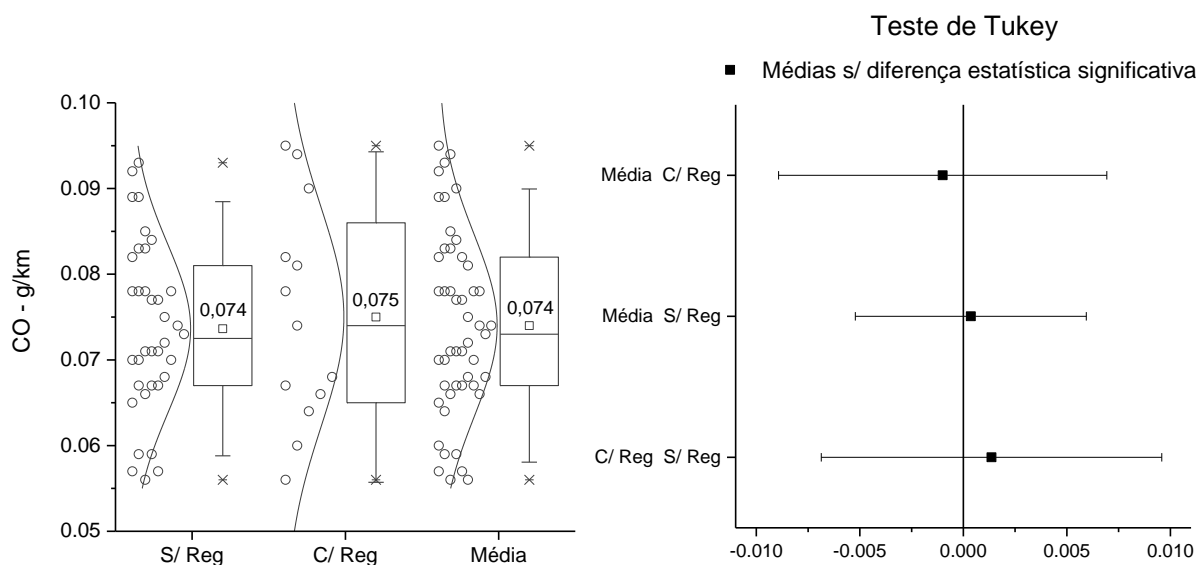
Ruehl et al [22] constataram que quando as temperaturas de pós-tratamento aumentam acentuadamente, elas são acompanhadas por um aumento das emissões veiculares, além do material particulado. Nesse sentido, a seguir será feita uma análise de alguns poluentes e sua evolução durante a etapa de regeneração. Em alguns casos também será analisado o comportamento dessas emissões em situações de regeneração e sem a ocorrência da mesma.

Na FIGURA 13 são apresentados os resultados referentes às emissões de monóxido de carbono (CO). É possível verificar que essas emissões não foram afetadas pelo processo de regeneração, pois todos os valores não possuem diferenças estatísticas significativas (barra horizontal corta a barra vertical). Além disso, os valores estão bem abaixo do limite de emissão que, para o CO, é de 2,0 g/km. Esses resultados estão de acordo com os observados por Yamada et. al. [14].

Na FIGURA 14 constam os resultados das emissões de NO_x, que, em conjunto com o material particulado, são as mais críticas para os veículos do ciclo diesel. Nesse caso, as emissões médias de óxidos de nitrogênio durante a etapa de regeneração aumentam em mais de 100%. Observa-se que nos ensaios sem regeneração o veículo atende aos limites de emissão que, para o NO_x na fase L6, é de 0,35 g/km (linha em vermelho no gráfico *box plot*). Já nos ensaios com regeneração, e na média geral, esse limite é ultrapassado e os valores podem ser considerados diferentes entre si, segundo o teste de Tukey. Para os limites da fase L7, que entrará em vigor em 2022 (Res. CONAMA 492/18) está previsto o uso de um “fator de regeneração”. Que de forma simplificada indica a necessidade dos veículos, que executam esses processos, devem atender os limites de emissão nos resultados médios entre ensaios com e sem regeneração.

De acordo com Leblanc et al [15] que estudaram as emissões oriundas de um veículo a diesel (Euro 6b) em diversos ciclos de condução europeus, ocorre um aumento superior a 30% nas emissões de NO_x durante a fase de regeneração (considerando o ciclo WLTC). Esse valor é significativamente inferior ao observado neste trabalho, provavelmente pelo sistema estudado envolver um SCR, o que não está contemplado no sistema aqui analisado. Além disso, no estudo de Leblanc et al [15] as emissões de amônia foram muito elevadas, o que consumiu parte importante do NO_x formado. Neste trabalho não foram constatadas emissões de amônia.

FIGURA 13 – EMISSÃO DE CO NOS ENSAIOS COM E SEM REGENERAÇÃO DO DPF E SUA MÉDIA



A FIGURA 15 apresenta os resultados relativos às emissões de NO_x ao longo do tempo, comparando as situações com e sem a ocorrência da regeneração. Observa-se que a regeneração ocorre no início do ciclo de ensaios, com o aumento da temperatura (FIGURAS 5 e 6), acompanhado pelas maiores emissões de NO_x, até aproximadamente, 500 s. Ao redor de 1200 s o processo é finalizado, com as emissões retornando ao patamar “normal”, consistente com o retorno da temperatura aos valores sem a interferência da etapa de regeneração observados nas FIGURAS 5 e 6.

FIGURA 14 - EMISSÃO DE NO_x NOS ENSAIOS COM E SEM REGENERAÇÃO NO DPF E SUA MÉDIA

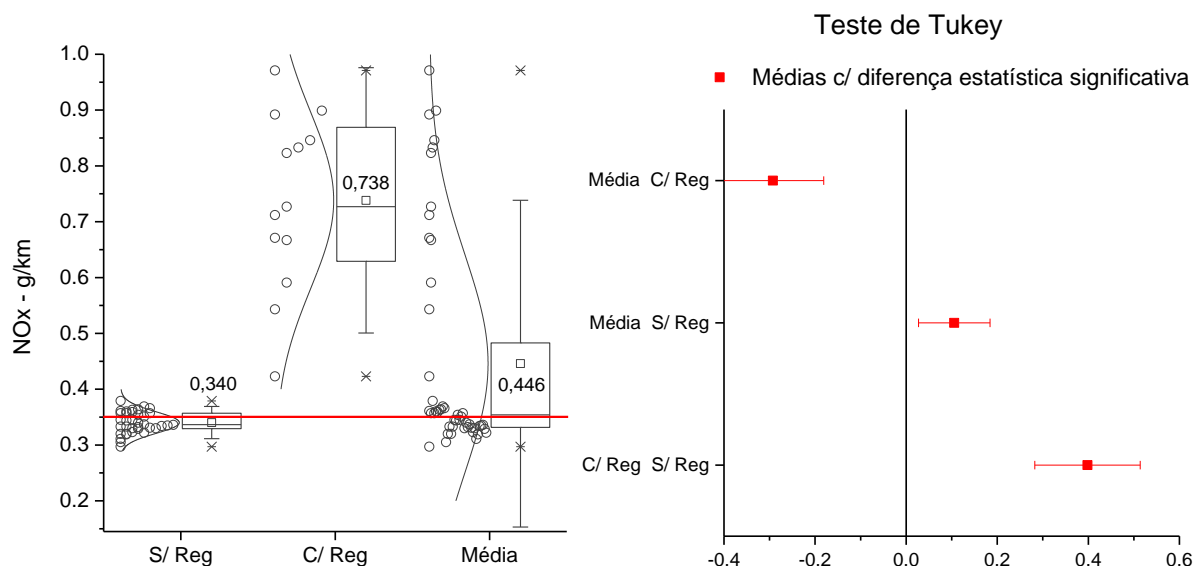
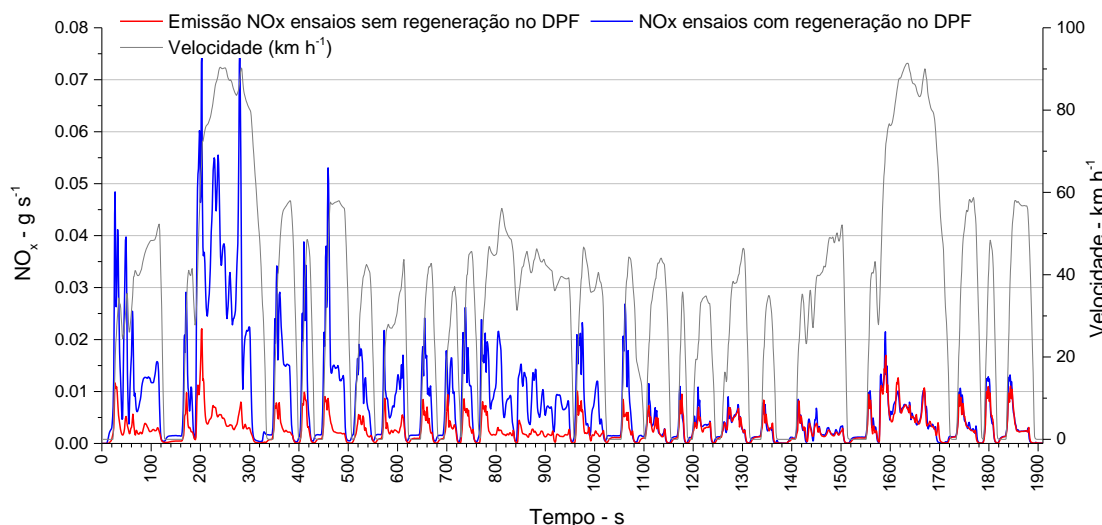
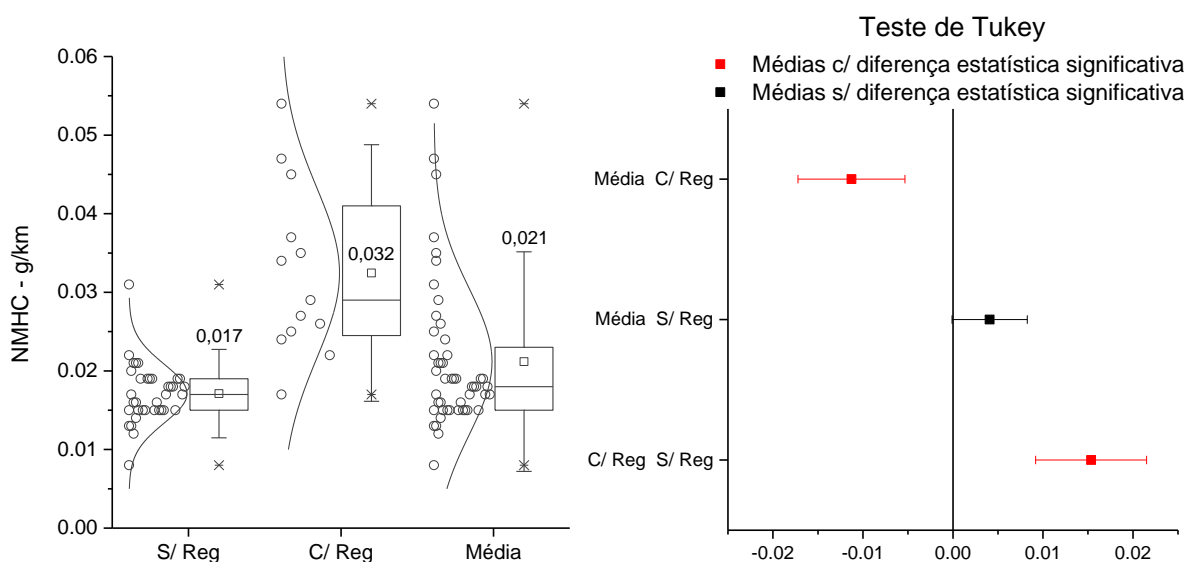


FIGURA 15 - EMISSÃO DE NO_x NO DECORRER DE UM CICLO FTP 75 COM E SEM REGENERAÇÃO NO DPF



Os resultados para os hidrocarbonetos do tipo não-metano (NMHC), encontram-se na FIGURA 16. Nesse caso, também se observam diferenças quando ocorre o processo de regeneração, porém não excedendo aos limites regulatórios, que são de 0,06 g/km. São consideradas sem diferenças estatísticas a média entre todos os experimentos (Média) e o valor das emissões nos ensaios sem ocorrência de regeneração (S/Reg). Esses resultados estão condizentes com os observados por Leblanc et al [15] e segundo esses autores, esse incremento nas emissões de HC se deve à injeção de Diesel necessária para alcançar as elevadas temperaturas de regeneração do filtro (normalmente superiores a 600°C).

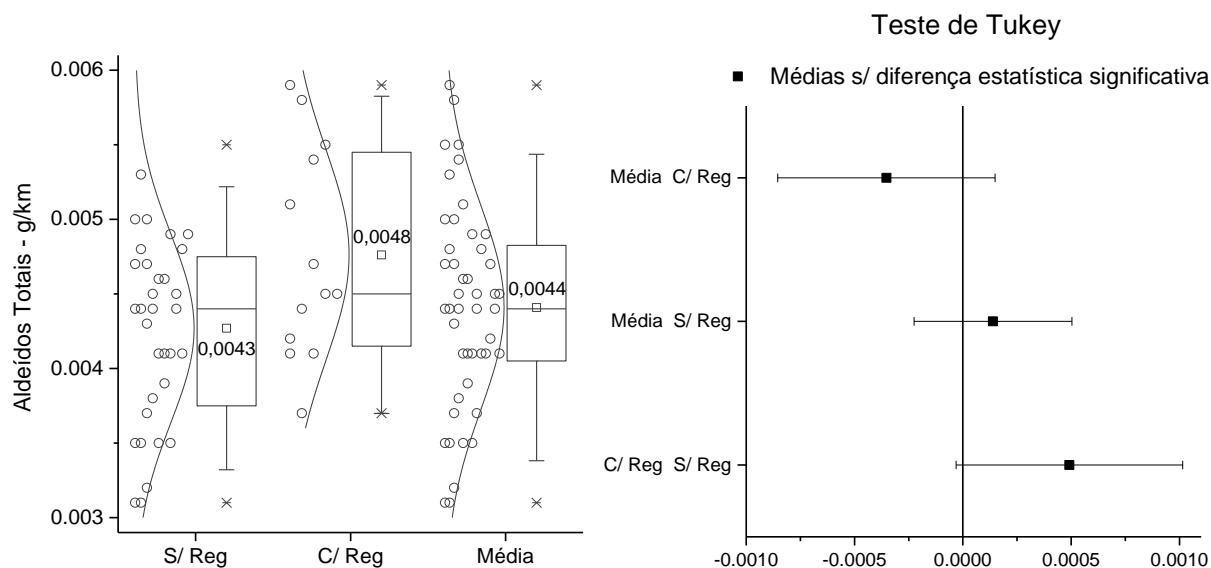
FIGURA 16 - EMISSÃO DE NMHC NOS ENSAIOS COM E SEM REGENERAÇÃO DO DPF E SUA MÉDIA



Os experimentos incluíram ainda uma análise das emissões não regulamentadas de aldeídos. Na FIGURA 17 estão apresentados os valores de aldeídos totais que são a soma do formaldeído e do acetaldeído. Ao contrário do observado nos veículos do ciclo Otto, a

emissão majoritária é de formaldeído, que manteve uma participação média de 67% nas emissões totais. Não foi observada diferença estatística entre os resultados, e, portanto não se observa uma contribuição significativa da regeneração do DPF nas emissões de aldeídos totais.

FIGURA 17 - MEDIÇÃO DE ALDEÍDOS COM E SEM REGENERAÇÃO DO DPF E SUA MÉDIA



Cabe ainda apresentar a evolução das emissões de CO e THC antes e após o conjunto (DOC + DPF) em ensaios sem regeneração, para observar a eficiência de conversão no DOC. Para CO (FIGURA 18), a eficiência de conversão foi de aproximadamente 94%. Para o THC (FIGURA 19), a taxa de conversão foi de aproximadamente 82%.

FIGURA 18 - MEDIÇÃO DE CO EM CICLO FTP, SEM REGENERAÇÃO, ANTES E APÓS O DPF

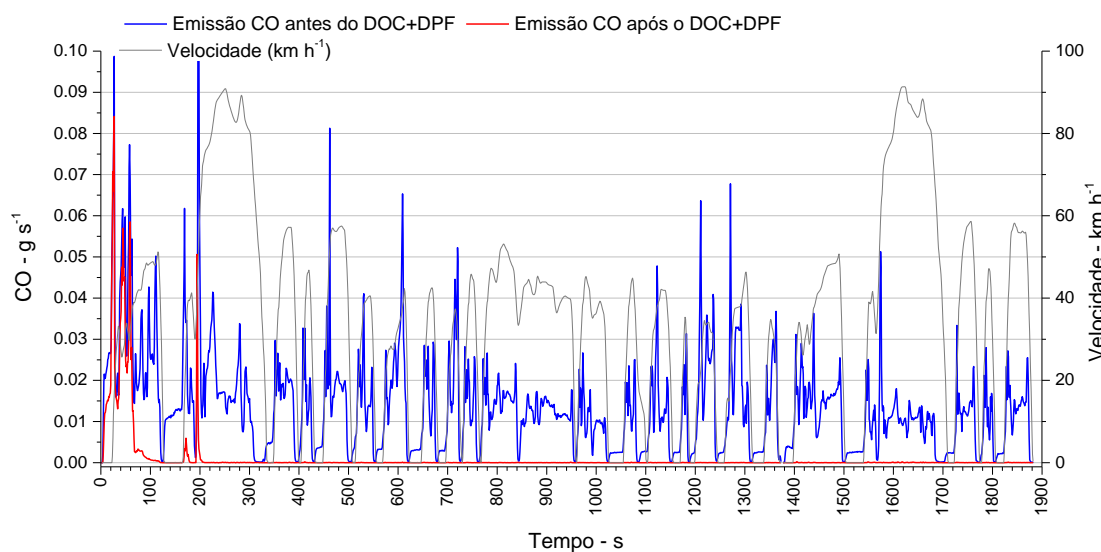
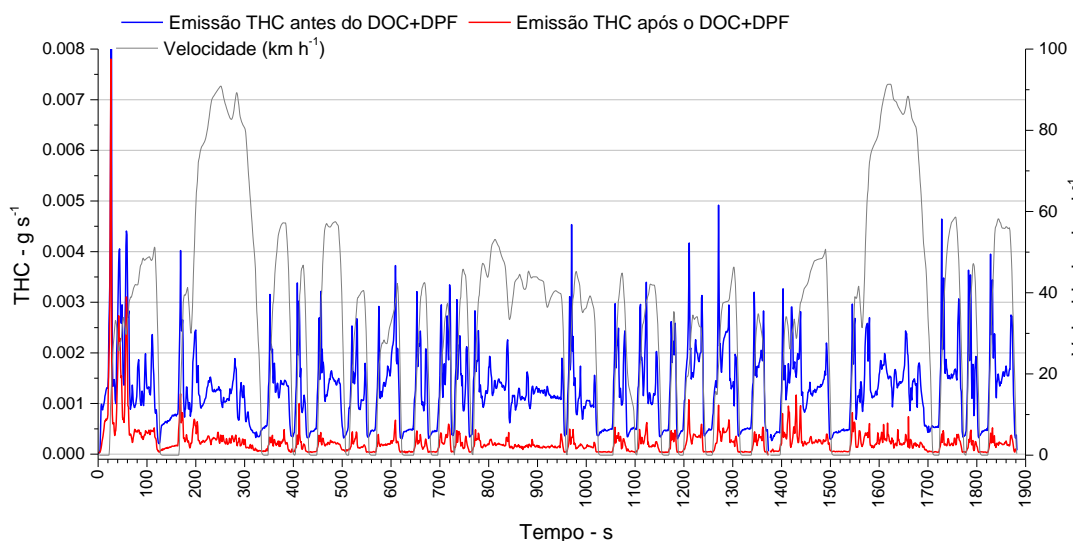


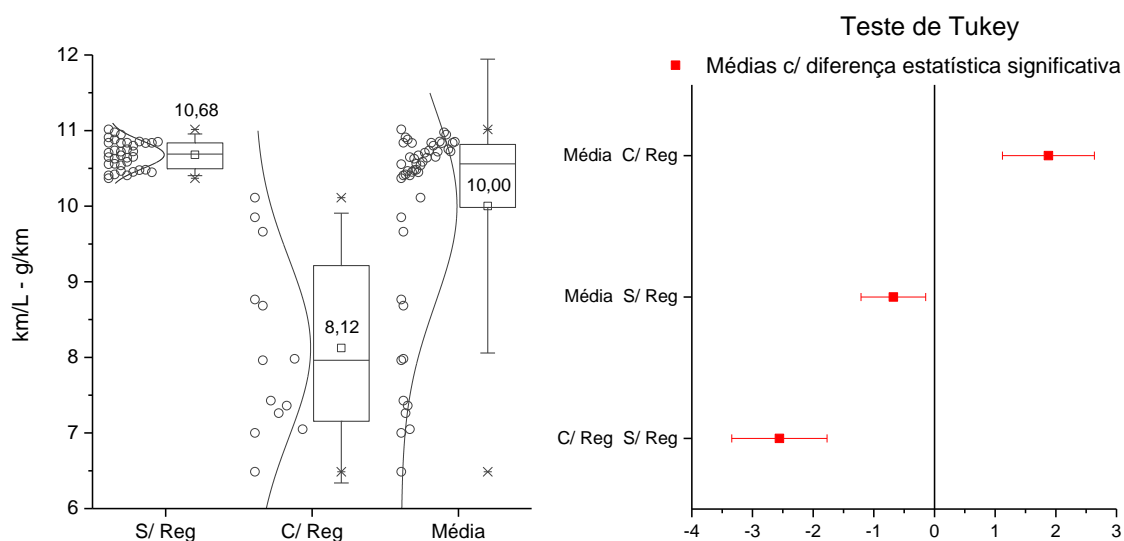
FIGURA 19 - MEDIÇÃO DE THC EM CICLO FTP, SEM REGENERAÇÃO, ANTES E APÓS O DPF



Observou-se ainda a influência do conjunto DOC + DPF nas emissões de NO_2 e NO. Para o NO_2 ocorreu uma redução de sua emissão entre o conjunto da ordem de aproximadamente 74 %. Para o NO já se observou o contrário, após o sistema de pós-tratamento houve um incremento de aproximadamente 35 %. O DOC tem como principal papel a oxidação do CO e de compostos orgânicos não queimados. No entanto, ele também oxida o NO para formar NO_2 , de forma a auxiliar na oxidação dos particulados no DPF, reduzindo consequentemente a frequência de regeneração ativa do DPF [15][26].

Vale ressaltar ainda a questão da autonomia. Observa-se pela FIGURA 20 que o processo de regeneração reduz, em média, em 25 % a autonomia do veículo. Os dados de consumo em km/L para os tratamentos realizados são considerados estatisticamente diferentes entre si. Esses resultados estão de acordo com a literatura segundo a qual, o maior consumo de combustível associado à regeneração ativa demonstra que as regenerações passivas são preferíveis às regenerações ativas em termos de consumo de combustível [22].

FIGURA 20 – AUTONOMIA NOS ENSAIOS COM E SEM REGENERAÇÃO DO DPF E SUA MÉDIA



CONCLUSÃO

Este trabalho consistiu no acompanhamento experimental da etapa de regeneração de filtro de material particulado (DPF) que, juntamente com o catalisador (DOC), respondem por parte do controle das emissões de veículos leves a Diesel. O DPF é um sistema efetivo no controle de particulados em ensaios que não envolvam regeneração, alcançando-se eficiência ao redor de 98%, conforme resultados obtidos neste trabalho. No entanto, a etapa de regeneração, que se dá pela injeção extra de combustível de forma a promover o aumento da temperatura do filtro e proporcionar a queima do material acumulado, se mostrou crítica, pois é acompanhada por um aumento tanto das emissões reguladas (principalmente MP, NMHC e NOx) como as não-reguladas (SO₂ e aldeídos). Praticamente, todas essas emissões aumentaram significativamente, com destaque para a de material particulado cujo aumento foi de uma ordem de grandeza e para o NOx que ultrapassou os limites da legislação. A emissão de material particulado em veículos dotados de DPF é caracterizada pela presença prioritária de partículas de menor dimensão, o que é preocupante no contexto da saúde pública, já que os finos de particulados se alojam nas regiões mais profundas do trato respiratório, ocasionando inúmeros problemas de saúde pública.

A venda de veículos comerciais leves do ciclo Diesel da fase L6 teve seu início no ano de 2012, sendo que essa fase irá vigorar até o ano de 2021, dando representatividade a esta frota. Dessa forma, os resultados obtidos na presente pesquisa suscitam a necessidade de novos estudos, ampliando-se o número e modelos de amostras, com intuito de aprofundar a discussão aqui apresentada.

Em suma este estudo indica um compromisso entre a introdução de medidas de controle de emissão de partículas, as emissões de NOx e o desempenho energético do veículo. Por fim, demonstra que as soluções para controle de todas as emissões não são triviais e necessitam novas tratativas e investigações.

AGRADECIMENTOS

Ao Instituto de Tecnologia para o Desenvolvimento – LACTEC, em especial ao corpo técnico do LEME – Laboratório de Emissões Veiculares pelo apoio prestado ao desenvolvimento da presente pesquisa.

Ao Centro de Pesquisas Leopoldo Américo Miguez de Mello – Cenpes, Petrobras.

A Agência Nacional do Petróleo – ANP.

Ao Ministério da Ciência e Tecnologia e ao CNPq (Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico) pelo incentivo recebido com a aplicação da Lei 8010/90 nos Laboratórios do LACTEC-LEME.

REFERÊNCIAS

- [1] MAJEWSKI, W.A.; KHAIR, M.K. Diesel Emissions and Their Control. **SAE International**: Warrendale. PA, 2006
- [2] BOSCH, R. **Manual de tecnologia automotiva**. Edgard Blucher, 2005. ISBN 8521203780.

- [3] VAN SETTEN, B. A.; MAKKEE, M.; MOULIJN, J. A. Science and technology of catalytic diesel particulate filters. **Catalysis Reviews**, v. 43, n. 4, p. 489-564, 2001. ISSN 0161-4940.
- [4] REŞİTOĞLU, İ. A.; ALTINIŞIK, K.; KESKIN, A. The pollutant emissions from diesel-engine vehicles and exhaust aftertreatment systems. **Clean Technologies and Environmental Policy**, v. 17, n. 1, p. 15-27, 2015. ISSN 1618-954X.
- [5] KITTELSON, D. et al. On-road evaluation of two diesel exhaust aftertreatment devices. **Journal of Aerosol Science**, v. 37, n. 9, p. 1140-1151, 2006. ISSN 0021-8502.
- [6] HERNER, J. D. et al. Nucleation mode particle emissions from in-use heavy duty vehicles equipped with DPF and SCR retrofits. Proceedings of the 26th **Annual Aerosol Conference of American Association for Aerosol Research**, 2007. p.24-28.
- [7] BISWAS, S. et al. Physical properties of particulate matter (PM) from late model heavy-duty diesel vehicles operating with advanced PM and NOx emission control technologies. **Atmospheric Environment**, v. 42, n. 22, p. 5622-5634, 2008. ISSN 1352-2310.
- [8] ANDRADE, M. et al. Vehicle emissions and PM_{2.5} mass concentrations in six Brazilian cities. **Air Quality, Atmosphere & Health**, v. 5, n. 1, p. 79-88, 2012. ISSN 1873-9318
- [9] WALSH, M. P. PM_{2.5}: global progress in controlling the motor vehicle contribution. **Frontiers of Environmental Science & Engineering**, v. 8, n. 1, p. 1-17, 2014. ISSN 2095-2201.
- [10] GIECHASKIEL, B. et al. Review of motor vehicle particulate emissions sampling and measurement: From smoke and filter mass to particle number. **Journal of Aerosol Science**, v. 67, p. 48-86, 2014. ISSN 0021-8502.
- [11] WANG, J. et al. A non-NH₃ pathway for NO_x conversion in coupled LNT-SCR systems. **Applied Catalysis B: Environmental**, v. 111, p. 562-570, 2012. ISSN 0926-3373
- [12] XU, L.; MCCABE, R. LNT+ in situ SCR catalyst system for diesel emissions control. **Catalysis Today**, v. 184, n. 1, p. 83-94, 2012. ISSN 0920-5861.
- [13] DIGIULIO, C. D. et al. Passive-ammonia selective catalytic reduction (SCR): Understanding NH₃ formation over close-coupled three way catalysts (TWC). **Catalysis Today**, v. 231, p. 33-45, 8/1/ 2014. ISSN 0920-5861. Disponível em: <<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0920586114000625>>.
- [14] YAMADA, Hiroyuki; INOMATA, Satoshi; TANIMOTO, Hiroshi. Mechanisms of increased particle and VOC emissions during DPF active regeneration and practical emissions considering regeneration. **Environmental Science & Technology**, v. 51, n. 5, p. 2914-2923, 2017.
- [15] LEBLANC, M. et al. Impact of engine warm-up and DPF active regeneration on regulated and unregulated emissions of a euro6 diesel vehicle equipped with urea SCR catalyst. In: **21st International Transport and Air Pollution Conference**. 2016.
- [16] ABNT - Associação Brasileira de Normas Técnicas. **NBR 6601**: Veículos rodoviários automotores leves — Determinação de hidrocarbonetos, monóxido de carbono, óxidos de nitrogênio, dióxido de carbono e material particulado no gás de escapamento. Rio de Janeiro, 2012^a
- [17] ABRANTES, R. de.; ASSUNÇÃO, J. V. de; HIRAI, E. Y. Caracterização das emissões de aldeídos de veículos do ciclo diesel. **Revista de Saúde Pública**, v. 39, n. 3, p. 479-485, June 2005. ISSN 0034-8910.
- [18] AVL. **Air pollution and emissions**. 2014. Disponível em: <www.avl.com>. Acesso em: 22 jun. 2015.

- [19] ABNT - Associação Brasileira de Normas Técnicas. **NBR 12026**: Veículos rodoviários automotores leves - Determinação de aldeídos e cetonas contidos no gás de escapamento, por cromatografia líquida - Método DNPH. Rio de Janeiro, 2009.
- [20] Beatrice, C., Di Iorio, S., Guido, C., & Napolitano, P. (2012). Detailed characterization of particulate emissions of an automotive catalyzed DPF using actual regeneration strategies. **Experimental thermal and fluid science**, 39, 45-53.
- [21] YOUNG, L.H.; LIOU, Y.J.; CHENG, M.T.; LU, J.H.; YANG, H.H.; TSAI, Y.I.; WANG, L.C.; CHEN, C.B.; LAI, J.S. Effects of biodiesel, engine load and diesel particulate filter on nonvolatile particle number size distributions in heavy-duty diesel engine exhaust. **Journal of Hazardous Materials**, v 199-200, p. 282-289, 2012
- [22] RUEHL, Chris et al. Emissions during and real-world frequency of heavy-duty diesel particulate filter regeneration. **Environmental science & technology**, v. 52, n. 10, p. 5868-5874, 2018.
- [23] R'MILI, Badr et al. Physico-chemical characterization of fine and ultrafine particles emitted during diesel particulate filter active regeneration of Euro5 diesel vehicles. **Environmental science & technology**, v. 52, n. 5, p. 3312-3319, 2018.
- [24] BIKAS, George; ZERVAS, Efthimios. Regulated and non-regulated pollutants emitted during the regeneration of a diesel particulate filter. **Energy & fuels**, v. 21, n. 3, p. 1543-1547, 2007.
- [25] HERNER, Jorn Dinh et al. Effect of advanced aftertreatment for PM and NO_x reduction on heavy-duty diesel engine ultrafine particle emissions. **Environmental science & technology**, v. 45, n. 6, p. 2413-2419, 2011.
- [26] SHRIVASTAVA, Manish et al. Kinetics of soot oxidation by NO₂. **Environmental science & technology**, v. 44, n. 12, p. 4796-4801, 2010.