

大型ディーゼル車への酸化触媒装着による NO₂排出量比率の変化について

木下 輝昭 小谷野真司 岡村 整 横田 久司

要 旨

近年、大気中の SPM 濃度が大きく低減しているのに対し、NO₂濃度は低減の傾向が緩やかである。その一因として、排出ガス規制の強化等において、大型ディーゼル車に酸化触媒を装着することが一般的になり、排気管における NO_x 中の NO₂ 排出量比率が増加していることが考えられる。ここでは、大型ディーゼル車 22 台の排出ガス試験結果から、酸化触媒の有無と NO₂ 排出量比率及び NO₂ 排出原単位の関係について検討を行った。その結果、以下のことが明らかになった。①酸化触媒装着車 (KR 車を除く) は、酸化触媒を装着していない車両より NO₂ 排出量比率が高かった。②酸化触媒装着車 (KR 車、尿素 SCR 車を除く) は、酸化触媒を装着していない車両より NO₂ 排出原単位が高かった。③特に、新長期規制車 (尿素 SCR 車を除く) の NO_x 排出原単位は、酸化触媒を装着していない長期規制車両に比べて約 60%低減していたが、NO₂ 排出原単位は、逆に約 20%増加していた。

キーワード：大型ディーゼル車、酸化触媒、NO₂ 排出量比率、NO₂ 排出原単位

Change of NO₂ Emission ratio by the Oxidation catalyst for Heavy-Duty Diesel Vehicles

KINOSHITA Teruaki, KOYANO Shinji, OKAMURA Hitoshi, YOKOTA Hisashi

Summary

Recently, NO₂ concentration in the atmosphere gradually decreases contrary to the greatly decrease of SPM concentration. Because of the oxidation catalyst equipped with the heavy-duty diesel vehicles for the exhaust gas regulation, the NO₂ emission ratio may increase. We investigated about 22 heavy-duty diesel vehicles to clarify the change of NO₂ emission ratio and NO₂ emission coefficient by the oxidation catalyst. The results were as follows. ①The NO₂ emission ratio was high on the heavy-duty diesel vehicles with the oxidation catalyst. ②The NO₂ emission coefficient was high on the heavy-duty diesel vehicles with the oxidation catalyst. ③The NO₂ emission coefficient of the heavy-duty diesel vehicles suitable for the latest regulation increased about 20% than that of the heavy-duty diesel vehicles without the oxidation catalyst. On the other hand, the NO_x emission coefficient of these decreased about 60% than that of those.

Key Word : heavy-duty diesel vehicle, oxidation catalyst, NO₂ emission ratio, NO₂ emission coefficient

1 はじめに

都市地域における大気汚染の原因物質である窒素酸化物 (NO_x) や粒子状物質 (PM) の排出量は、50%以上が自動車から排出されている。この自動車からの排出量のうち、NO_x の約 8 割、PM のほとんどがディーゼル車によるものである¹⁾。都は、八都県市と連携し 2003 年 10 月からディーゼル車走行規制を実施した。その結果、平成 17 年度には、浮遊粒子状物質 (SPM) について、一般環境大気測定局 (以下、一般局) 及び自動車排出ガス測定局 (以下、自排局) の全局で初めて環境基準を達成した。一方、二酸化窒素 (NO₂) については、一般局のほぼ全局で環境基準を達成しているものの、自排局では 56% と依然低い達成率であった²⁾。自排局における一酸化窒素 (NO) 及び NO₂ 年平均値の推移 (図 1) をみると、NO は低減傾向にあるが、NO₂ はほぼ横ばい状態であった。

大気汚染の移動発生源である自動車の公害対策として、NO_x や PM 等の排出ガスの規制が段階的に強化されている。折原³⁾や鈴木⁴⁾らは、大型ディーゼルの長期規制適合車や新短期規制適合車から排出される NO_x は、実走行では必ずしも低減していないとしているが、これら旧式車両の代替となる新長期規制適合車については、実走行においても大幅な NO_x の低減効果が確認されている⁵⁾。

一方、排出ガス規制により、新型車には酸化触媒の装着が標準化し、特に新短期規制以降は SCR や DPF 等の後処理装置のパーツとして酸化触媒が装着されて

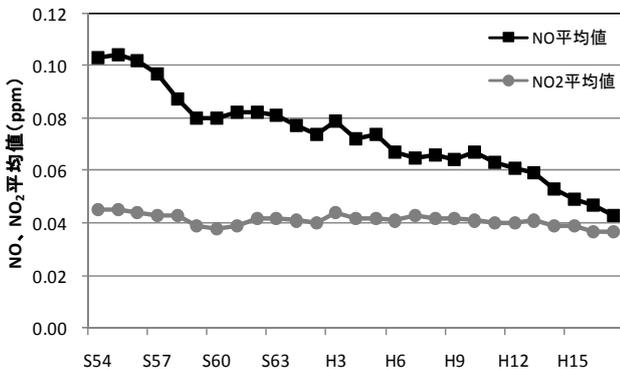


図 1 自動車排出ガス測定局における NO、NO₂ 年平均値の推移

いる。酸化触媒の装着により、排気管からの NO₂ 排出量が増加している可能性があり、直接的な沿道環境濃度への影響だけでなく、近年増加している光化学オキシダント濃度への影響も懸念される。

このため、本報告では、平成 14 年度以降に当研究所で調査を行った大型ディーゼル車 22 台の排出ガス試験結果から、酸化触媒の有無と排気管レベルでの NO₂ 排出量比率及び NO₂ 排出原単位との関係について検討した結果を報告する。

2 調査方法

(1) 対象車両及び試験方法

ア 対象車両

今回調査したディーゼル車 22 台の諸元を表 1 に、自動車排出ガス規制の識別記号一覧を表 2 に示した。

調査車両は、長期規制車 (平成 10、11 年規制) が 10 台、新短期規制車 (平成 15、16 年) が 8 台、新長期規制車 (平成 17 年規制) が 4 台で、そのうち酸化触媒を装着していない車両 (以下、非装着車両: D-1~10) は 10 台、装着している車両 (以下、装着車両: DOC-1~12) は 12 台である。以下では、表 2 の識別記号により、長期規制車を KK、KL 車、新短期規制車をそれぞれ KR、PA、PB 車、新長期規制車を ADG 車 (尿素 SCR を装着している車両は、尿素 SCR 車とする) と記す。

イ 試験方法

当研究所の大型自動車排出ガス実験システム (以下、大型 C/D) 使い、実車を走行させ、その排出ガスを測定した。走行パターンは、定常試験モードである D13 モードと都内における自動車の実際の走行状態をモデル化した東京都実走行パターンのうち、No.2 (平均車速 8.4km/h)、No.5 (平均車速 17.9km/h)、No.8 (平均車速 28.5km/h) を用いた。最大積載量の記載のある車両については、等価慣性重量の設定を 1/2 積載とした。

(2) 自動車排出ガスの測定方法

ア 測定

① NO_x (CVS 法)

定容量希釈試料採取装置 ((株) 堀場製作所製 CVS-9400T、平成 18 年度より CVS-7400T に更新) を用いて、希釈排出ガスをサンプリングし、自動車排出ガス分析装置 ((株) 堀場製作所製 MEXA7400D) を用いて分析を行った。

② NO_x、NO (直接測定法)

車両の排気管より排気ガスをサンプリングし、直接排出ガス分析計 ((株) 堀場製作所製 MEXA-1160CLT-H) を用いて分析を行った。

MEXA-1160CLT-H は、NO_x 分析計と NO 分析計を装備していて、両物質を同時に測定できる。

イ データ処理

直接法による NO_x、NO 濃度の 1 秒毎の測定値から、下記のように NO₂ 濃度、排出量等を求めた。

① NO₂ 濃度 (瞬時値)

ここで、NO₂ 濃度、NO 濃度、NO_x 濃度をそれぞれ C_{NO2}、C_{NO}、C_{NOx} とする。NO₂ 濃度は、以下の(1)式により求めた。ただし、分析計 (MEXA-1160CLT-H) では、NO_x 濃度はコンバータにより NO₂ を NO に変換後、NO_x として計測している。その影響により、NO と NO_x はコンバータ容積の増加及び流路の違い

による応答時間が違うため、遅れ時間を補正している。

$$C_{NO2} = C_{NOx} - C_{NO} \dots\dots(1)$$

②NO₂ 排出濃度比率（瞬時値）

排気管からの排出濃度の比率を下記により求めた。

$$R_{NO2} = \frac{C_{NO2}}{C_{NOx}} \dots\dots(2)$$

③NO₂ 排出量（瞬時値）

1 秒毎の NO_x 排出量を、次式のように求めた。

$$Q_{NOx} = V_{ex} \times d \times C_{NOx} \times 10^{-3} \dots\dots(3)$$

ただし、 Q_{NOx} ：排出ガス中の NO_x 排出量（g/s），

V_{ex} ：排出ガス流量（m³/s）

d ：排出ガス密度（g/l），

C_{NOx} ：排出ガス中の NO_x 濃度（ppm）

(2)式と(3)式より、NO₂ 排出量を求めた。

$$Q_{NO2} = R_{NO2} \times Q_{NOx} \dots\dots(4)$$

④NO₂ 排出量比率

③において、1 秒毎の NO_x 及び NO₂ 排出量の積算値の比率を NO₂ 排出量比率とする。

$$W_{NO2} = \frac{\sum_t Q_{NO2}}{\sum_t Q_{NOx}} \dots\dots(5)$$

$$\sum_t Q_{NO2}, \sum_t Q_{NOx} : \text{実走行パターンにおける瞬時}$$

排出量の積算値（t：走行時間）

⑤NO₂ 排出原単位

排出原単位は、通常、CVS 法によるバッグ計測法により、単位走行距離当たりの排出量（g/km）として求められているが、総重量の異なる各車両の評価を行うために、排出原単位を等価慣性重量で除した値（g/t・km）を排出原単位として用いることとした。NO₂ 排出原単位は、NO_x 排出原単位に W_{NO2} を乗じて算出した。

$$EF_{NO2} = W_{NO2} \times EF_{NOx} \dots\dots(6)$$

ただし、

EF_{NO2} 、 EF_{NOx} ：NO₂、NO_x 排出原単位（g/t・km）

表 2 自動車排出ガス規制の識別記号一覧

区分	レギュラー	低公害車	識別記号	GVW区分	
長期	平成10年規制		KK	3.5トンを超え12トン以下	
	平成11年規制		KL		12トン超
新短期	平成15年規制		KR	3.5トンを超え12トン以下	
	平成15年規制	平成12年基準粒子状物質75%低減レベル	PA	3.5トンを超え12トン以下	
	平成15年規制	平成12年基準粒子状物質85%低減レベル	PB	3.5トンを超え12トン以下	
新長期	平成17年規制		ADG	3.5トン超	

表 1 車両諸元

車両	型式	総重量 (kg)	最高出力 (NkW/min)	エンジン型式	酸化触媒	排出ガス対策
D-1	KK-XZU411M	5,725	103/3000	S05D	無	EGR
D-2	KK-FC3JJEA	7,970	125/2900	J07C	無	EGR
D-3	KK-MK25A	7,990	152/3000	FE6	無	電子式燃料、噴射ポンプ、EGR
D-4	KK-MK26A	7,960	165/2700	MD92	無	EGR
D-5	KK-FK71GH	7,980	132/2900	6M61	無	高圧分配式、EGR
D-6	KK-FE70EB	4,745	103/3200	4M51	無	高圧分配式、EGR
D-7	KK-FK61FA	7,990	177/2700	6M60	無	コモンレール、EGR
D-8	KK-NKR71EA	4,425	133ps/3100	4HG1	無	冷却式EGR
D-9	KK-NPR72LV	5,925	114/3100	4HJ1	無	EGR(平成16年度調査)
D-10	KL-FW1KXHA	24,930	272/2000	K13C	無	コモンレール、EGR
DOC-1	KR-BKR81EAV	4,810	96/3000	4HL1	有	冷却式EGR、コモンレール
DOC-2	KR-NPR81LR	6,385	100/3000	4HL1	有	冷却式EGR、コモンレール
DOC-3	KR-NPR72PAV	7,475	114/3100	4HJ1	有	冷却式EGR、コモンレール
DOC-4	KR-NPR72LV	5,665	114/3100	4HJ1	有	冷却式EGR、コモンレール
DOC-5	PA-FE82DEV	6,195	103/2700	4M50	有	コモンレール、冷却式EGR、連続再生DPF
DOC-6	PA-FE83DEY	7,965	132/2700	4M50	有	コモンレール、冷却式EGR、連続再生DPF
DOC-7	PB-FC7JKFA	7,980	154/2700	J07E	有	コモンレール、EGR、DPR
DOC-8	PB-NKR81N	7,055	96/3000	4HL1	有	冷却式EGR、コモンレール、DPD
DOC-9	ADG-FD8JLWA	7,985	177/2700	J08E	有	コモンレール、EGR、DPR
DOC-10	ADG-CG4ZA	24,950	279/1800	GE13	有	ユニットインジェクタ、尿素SCR、EGR
DOC-11	ADG-CG4ZA	24,950	279/1800	GE13	有	ユニットインジェクタ、尿素SCR、EGR
DOC-12	ADG-CYJ77W7	24,990	279/2000	6UZ1	有	冷却式EGR、コモンレール、DPD

3 結果及び考察

3-1 D13モードにおけるNO₂排出濃度比率

酸化触媒の有無による車両の特性を把握するため、D13モードの各モードにおけるNO₂排出濃度比率を算出し、エンジン回転数及び負荷率との関係を明らかにした。事例として、非装着車両D-2を図2に、装着車両DOC-7を図3に、尿素SCR車両DOC-10を図4に示した。

非装着車両については、各モードにおけるNO₂排出濃度比率が3~15%程度であった。一方、装着車両については、エンジン回転数にかかわらず、負荷率が0~40%の時にNO₂排出濃度比率が70~90%と高く、負荷率が60%以上の高負荷になると、NO₂排出濃度比率が低下する傾向にあった。尿素SCR車両については、装着車両と同様に、高負荷になるとNO₂排出濃度比率が低下する傾向にあった。また、エンジン回転数にかかわらず、負荷率が20%でNO₂排出濃度比率が約20%と低くなる特徴がみられた。

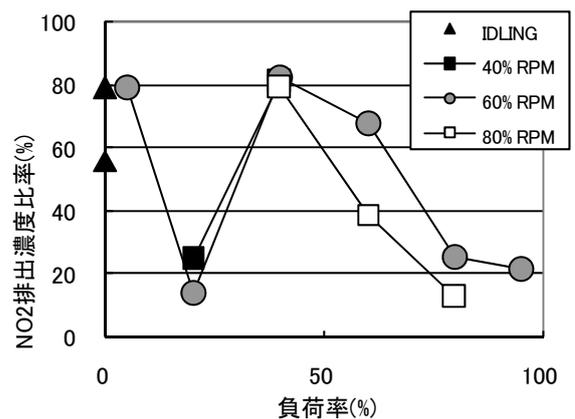


図4 エンジン回転数及び負荷率とNO₂排出濃度比率の関係 (DOC-10)

3-2 酸化触媒の有無によるNO₂排出量比率

酸化触媒の有無によるNO₂排出量比率を比較するため、非装着車両(D-1~10)のNO₂排出量比率を図5に、装着車両(DOC-1~12)のNO₂排出量比率を図6に示した。NO₂排出量比率は、東京都実走行パターンNo.2、5、8の平均値である。

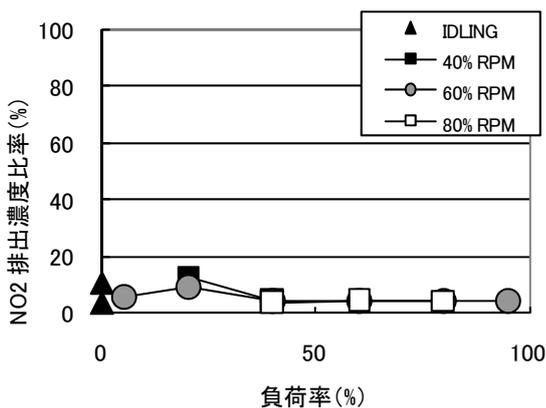


図2 エンジン回転数及び負荷率とNO₂排出濃度比率の関係 (D-2)

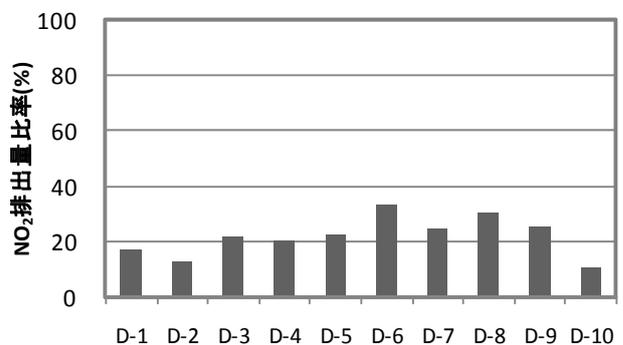


図5 非装着車両におけるNO₂排出量比率

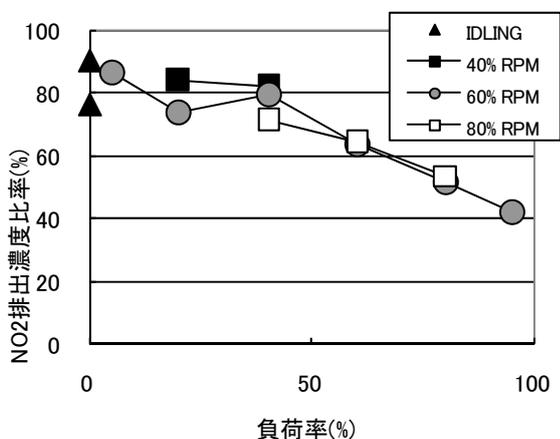


図3 エンジン回転数及び負荷率とNO₂排出濃度比率の関係 (DOC-7)

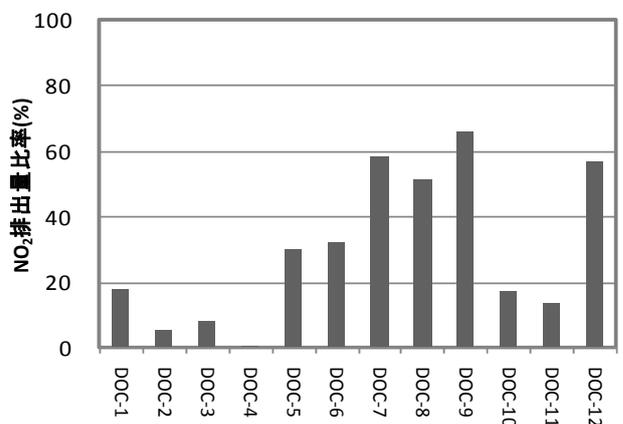


図6 装着車両におけるNO₂排出量比率

非装着車両の NO₂ 排出量比率は 0.10～0.33 であった。一方、装着車両を表 2 の識別記号により、規制区分別にみると、KR 車 (DOC-1～4 車) の NO₂ 排出量比率は 0.01～0.18、PA 車 (DOC-5、6 車) は 0.31、尿素 SCR 車 (DOC-10、11 車) は 0.15、PB 車 (DOC-7、8 車) 及び ADG 車 (DOC-9、12 車) は 0.51～0.66 で、装着車両については、ばらつきが大きかった。結果として、PA 車、PB 車及び ADG 車で酸化触媒の影響による NO₂ 排出量比率の増加がみられた。なお、KR 車の NO₂ 排出量比率が低い原因は不明である。また、尿素 SCR による NO_x 低減のシステムは、NO 濃度と NO₂ 濃度が等しいとアンモニアとの反応速度が速くなるため、尿素 SCR の前段に酸化触媒を用いて NO₂ 濃度を増加させている。しかし、今回の結果では、尿素 SCR 車の NO₂ 排出量比率の増加は見られなかった。

3-3 規制区分別の車両における NO_x 及び NO₂ 排出原単位

今回調査を行った車両を、表 2 による識別記号で分類し、NO_x 及び NO₂ 排出原単位を算出した結果を図 7 に示した。NO_x 及び NO₂ の排出原単位は、各車両の実走行パターン No.2、5、8 における平均値を算出し、これを規制区分毎に平均した値である。

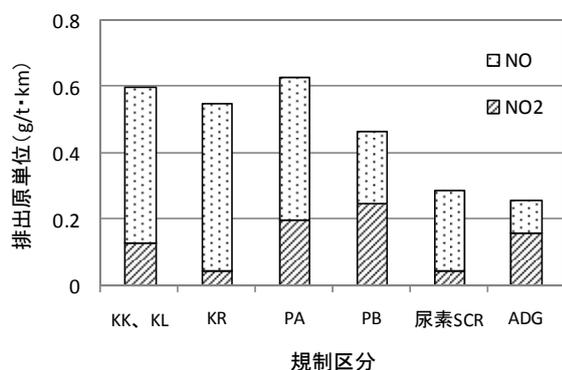


図 7 規制区分別による NO_x 及び NO₂ 排出原単位

NO_x 排出原単位を規制別でみると、長期規制車 (KK、KL 車) は 0.60g/t·km、新短期規制車 (KR 車、PA 車、PB 車) は 0.55g/t·km、新長期規制車 (尿素 SCR 車、ADG 車) は 0.28g/t·km であった。新短期規制車は長期規制車とほぼ同じレベルの排出原単位であったが、新長期規制車は新短期規制適合車と比較して約 50%低減していた。

次に、NO₂ 排出原単位をみると、非装着車両の KK、KL 車は 0.13g/t·km であった。一方、装着車両のうち KR 車と尿素 SCR 車は 0.05g/t·km と非装着車両より低かったが、PA 車、PB 車、ADG 車はそれぞれ 0.20g/t·km、0.25g/t·km、0.16g/t·

km で非装着車両より高かった。特に、ADG 車についてみると、NO_x 排出原単位は、非装着車両より約 60%低減していたが、NO₂ 排出原単位は、逆に約 20%増加していた。

4 まとめ

自動車の排出ガス規制が段階的に強化されるに従い、大型ディーゼル車では酸化触媒の装着が標準化しており、特に新短期規制以降は SCR や DPF 等の後処理装置のパーツとして酸化触媒が装着されている。酸化触媒の装着により、排気管から NO₂ が増加することが懸念されており、その排出実態を知ることが急務である。

今回の報告では、平成 14 年度より蓄積されてきたデータをもとに大型車 22 台の酸化触媒の有無による NO₂ の排出実態をまとめた。その結果、酸化触媒の装着された車両のうち、新短期規制かつ低排出ガス車 (PA 車、PB 車) 及び新長期規制車 (ADG 車) において、非装着車両より NO₂ 排出量比率と NO₂ 排出原単位が増加していることを明らかにした。

現在、自排局における NO₂ の環境基準達成率が低いが、当研究所では、今後とも使用過程車調査を継続し、NO₂ の排出係数、インベントリーへの影響等を検討していくこととしている。

参考文献

- 1) 東京都環境局：東京都環境白書 p56 (2006)
- 2) 東京都環境局：平成 17 年度大気汚染状況の測定結果について 報道発表資料 (2006 年 9 月)
- 3) 折原ら：長期規制適合車における排出ガス低減効果 東京都環境科学研究所年報 p64-71 (2005)
- 4) 鈴木ら：最新ディーゼル排出ガス対策技術の違いが実使用時の排出ガス特性に及ぼす影響 交通安全環境研究所研究発表会講演概要 p21-26 (2006)
- 5) 小谷野ら：最新規制適合大型ディーゼル車の排出ガス測定結果 (速報) 東京都環境科学研究所年報 (2007) (掲載中)