

寒冷地における触媒温度挙動が亜酸化窒素 (N₂O) 排出に与える影響

環境エネルギー部 小高 松男 小池 章介 石井 素 鈴木 央一 後藤 雄一

1. まえがき

亜酸化窒素 (N₂O) は CO₂ の約 300 倍の温室効果を持つといわれており、人為的発生源の中で約 40% が自動車からの排出といわれている。N₂O は三元触媒車から特異的に排出され、劣化状態に加えて触媒反応時の温度 (以下触媒温度という) がその排出の主要な因子であることをこれまで明らかにしてきた¹⁾、²⁾。一方、車両使用時の外気環境温度 (以下環境温度という) が変化した場合、触媒温度挙動が変化して、これが N₂O 排出量にも影響を及ぼすことが考えられる。

本報では、環境温度変化が三元触媒車からの N₂O 排出に与える影響を把握するために寒冷地における実車走行試験を実施し、排気系及び触媒の温度挙動を詳細に把握するとともに、この結果と、触媒温度に対する N₂O の生成と分解特性から、環境温度変化が N₂O 排出に与える影響を解析した結果について報告する。

2. 触媒温度が N₂O 排出に与える影響

自動車から放出される N₂O は触媒の組成、耐久劣化状態により若干異なるが、おおむね触媒層の温度 (以下、触媒温度) に対して図 1 に示したような特性がある³⁾。ここで、触媒の NO_x、CO の浄化率が 50% に達する触媒温度を触媒活性化開始温度 (Lt₁) と定義すると、図 1 に示した実験車触媒の Lt₁ は 250 である。さらに触媒温度が上昇し、NO_x、CO の浄化率が 95% に達する点を触媒活性温度 (Lt₂) とすると Lt₂ は 350 近辺にある。

一方、N₂O は冷始動時から触媒温度が上昇するにつれ約 150 近辺から生成が始まり、以後、温度の上昇につれてほぼ直線的に増加する。N₂O の生成は約 320 でピークとなるが、ほぼ同じ温度で分解も始ま

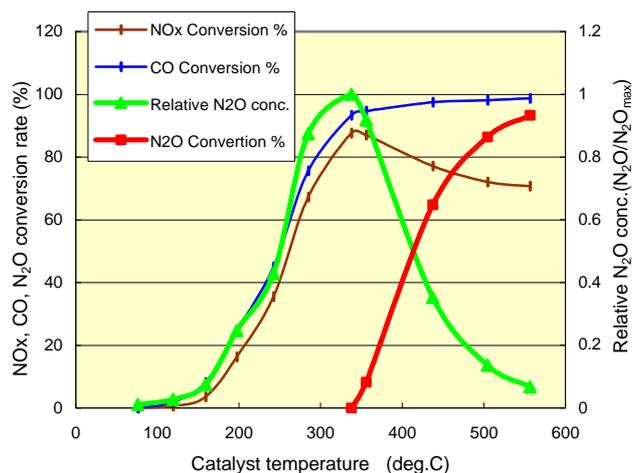


図 1 触媒温度に対する N₂O の生成分解特性³⁾

るため以後、温度の上昇に伴って減少に転ずる。図 1 はモデルガスによる実験結果であるが、実車の場合にもほぼ同じ経過をたどるものと考えられる。したがって、N₂O の生成が多い触媒温度領域の使用頻度が実路走行における N₂O 排出量の推計に重要であることがわかる。

自動車からの N₂O の年間排出総量は自動車の保有台数に排出原単位、年間走行距離を乗じて求められる。この排出原単位 (g/km) はシャシーダイナモメータ上 (以下、台上と表記する) での排出ガス試験で得られた値が用いられるが、試験法では環境温度を 25 で行うことが定められている。しかし我が国は南北に長く、環境温度は地域、季節により大きく異なる。自動車保有台数が多い大都市の気温を比較すると、北海道の札幌市における 1 月の平均気温は -4.6 であり、排出ガス試験環境温度 25 より 30 も低い。また比較的温暖と考えられる東京でも年平均外気温度は 15.6 であり、1 月は 5.2 迄下がる⁴⁾。試験環境温度 25 は沖縄の年平均より高く、試験環境温度としては高すぎるといえる。

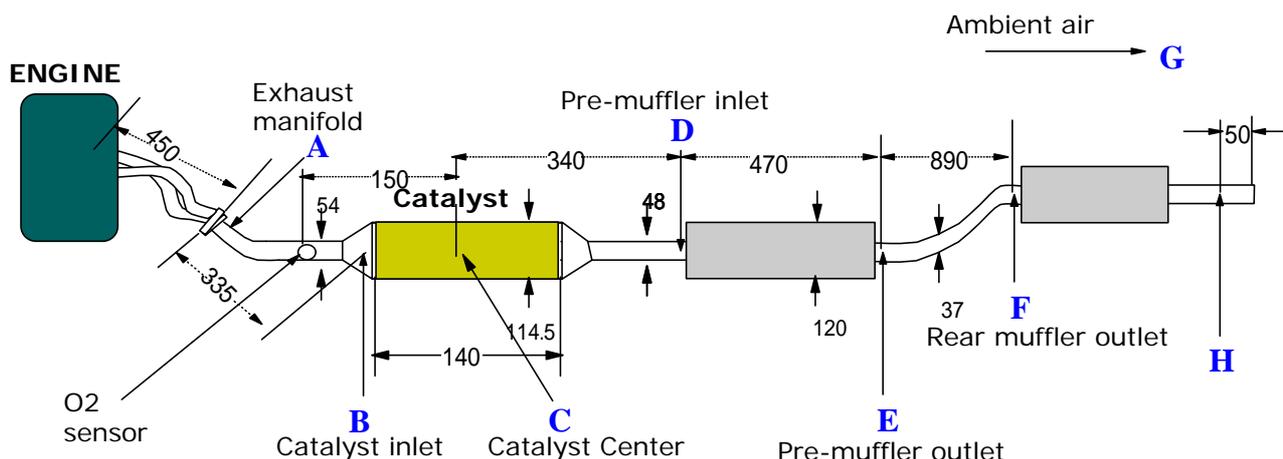


図2 実車走行実験における排気系の温度計測箇所

このような環境温度の違いは車両走行中の触媒温度に影響を与えることが考えられ、これが排出ガス性能にも影響すると考えられるが、環境温度の違いが排出ガス性能にどのような影響を与えるかは不明である。とくに、環境温度が低い条件下では触媒の使用温度が低下し、 N_2O の発生が多くなる触媒温度領域を使用する可能性が高くなることが懸念される。

3. 実験の方法と実験装置

このため本研究では、寒冷地における走行実験を実施し、エンジン排気系及び触媒各部の温度変化を連続測定することによって、寒冷地における触媒の使用実態を把握することとした。実路走行実験には、車両保有台数が多く、月平均環境温度が-5 近くまで下がる冬季の仙台市、盛岡市、青森市を選んだ。

実験に用いた車輛は乗用車として代表的な排気量 1500cc クラスの触媒車を選択した。図2に実験車両の排気系レイアウトと実車走行実験における温度計測箇所を示す。実験車の触媒は排気マニホールド（以下エキマニと表記する）直近に配置され、冷始動時の触媒早期活性化を図っている。触媒の組成や制御の内容は通常の三元触媒車として一般的な構成と考えられるが詳細は不明である。実験車の排気系各部温度は図2に示す8箇所に取り付けた外形 1.0mm の熱電対により検出し、車速パルス信号を分岐し、F/V コンバータでアナログ信号に変換した車速信号と共にサンプルレート 0.5 秒でデータロガーへ記録した。また、同様のデータを東京地区においても採取すると共に、台上において各種の試験モードで同じ実験車両

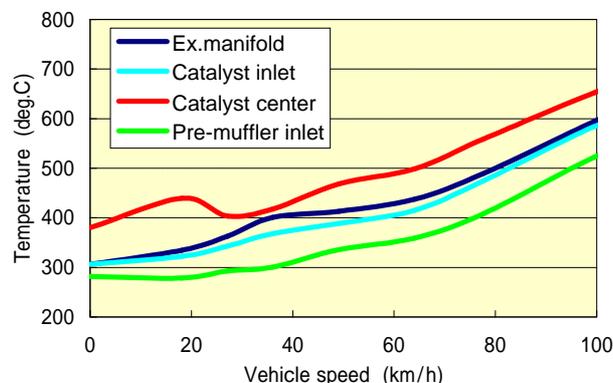


図3 定常走行時の車速に対する触媒各部の温度変化 (室温 25 、シャーシ台上試験)

を運転し、このときの排気系及び触媒各部の温度挙動と排出ガス挙動を基準値として求めた。

4. 実験結果と考察

4.1 定常走行時の車速に対する触媒温度

環境温度 25 で台上定速走行を行い、車速に対する図2に示した排気系((A)~(D))温度の関係を解析した結果を図3に示す。排気系各部の温度上昇は車速の上昇と良い相関を示している。したがって図3の環境温度 25 における触媒中心温度(以下、触媒温度)を基準とし、低環境温度における触媒温度を比較すれば、環境温度の低下が触媒温度に与える影響を把握できるものと考えられる。そこで寒冷地の実路走行データから車速と触媒温度の関係を抽出し、環境温度 25 の条件と比較した。寒冷地実験における連続

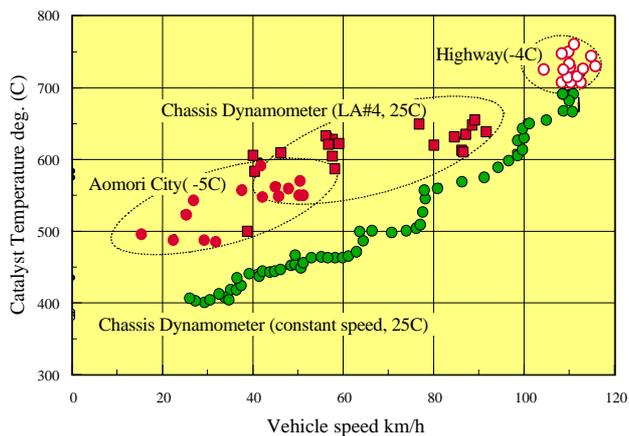


図4 . 定常走行時における車速と触媒温度

走行時の計測データの中から、車速が $\pm 2\text{km/h}$ 以内で10sec以上継続している部分を定速と見なし、この部分のみを抽出して車速に対する触媒温度の関係を求めた。-5 の環境温度条件下で青森市内を走行したデータから定常走行部分のみを抽出した結果を25 の台上実験結果と併せて図4に示す。

市内走行では定常走行時の車速が50km/hまでしか得られなかったため、環境温度-4 の高速道路走行時のデータを同一グラフに加えた。

図4では環境温度25での定常走行時触媒温度より、環境温度-5での触媒温度の方が高いことを示し、当初、環境温度が低下すれば触媒温度も低下すると予測した逆の結果となった。この原因は、台上における定常走行では触媒温度の安定を待ってから車速、温度を計測したのに対して、実路走行では車速の安定した部分から触媒温度を抽出したため、定速に至る迄の、加速時のエンジン負荷の増加による触媒温度の上昇履歴があることによるため考えられる。したがって、環境温度が同じであっても実路走行では安定した定常走行状態はほとんど存在せず、触媒温度は常に前の運転状態の影響を受けるため、台上定常走行時の温度より高くなるものと見られる。これを確認するために環境温度25で、実路走行型試験モードであるLA#4モードを台上で運転し、このときのデータから、実路走行実験データと同じ条件で定速部分の触媒温度を抽出し、図4に重ねて見ると、ほぼ環境温度-5での実路走行における車速 - 触媒温度線上に一致した。

このことから環境温度の影響は触媒が暖機した状態では現れず、触媒温度は走行状態に、より依存するものと考えられる。

そこで走行時の平均車速と平均触媒温度から、環境温度が触媒温度に及ぼす影響を明らかにできないかを検討した。

4.2. 台上モード走行及び実路走行時の平均温度

図5は環境温度25での各種試験モードを冷始動台上走行したときの排気系各部のモード平均温度と、青森、盛岡市内を環境温度-5で冷始動開始から市内を走行し、市外に出るまでの平均温度を示したものである。台上試験時において排気系各部の温度は平均車速の異なるモード間での相違はそれほど大きくないが、環境温度の異なる寒冷地走行実験の結果とは明ら

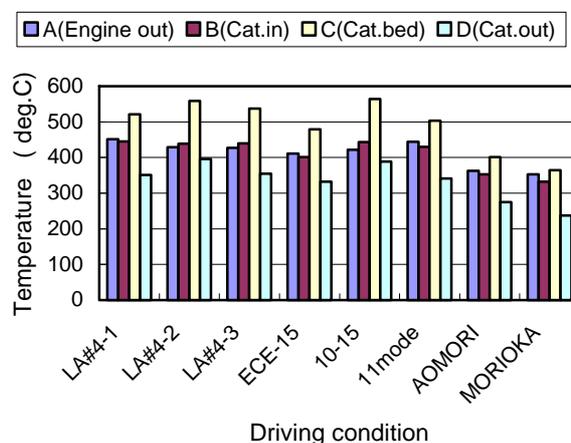


図5 . 各種走行条件下における排気系各部の平均温度の比較

かに有意差が存在する。このことから、平均触媒温度の変化は走行パターンよりも環境温度の影響が大きいことがわかる。

エキマニガス温度(A)について各種の走行モードにおける平均温度を右列の青森、盛岡市の冷始動走行時と比較してみると、エンジンからの排気温度は、環境温度25での11モードやECEモードに比して、環境温度-5の寒冷地では約80下がっている。また触媒温度(C)では11モードでは503であり、-5の盛岡市は平均364であり、140も低い。

環境温度の影響がエキマニガス温度より触媒温度により強く現れる理由は、エキマニから触媒に至る排

気管の放熱損失が、環境温度差と排気管長さに比例して増大するためと考えられる。

次に平均触媒温度の低下が排出ガス性能に与える影響を考察した。

表 1 . 各種走行モードの排出ガス測定結果
(環境温度 : 25)

MODE	COMP.	CH4 g/km	CO g/km	NOx g/km	N2O g/km	CO2 kg/km
11		0.051	2.801	0.180	0.007	0.1841
ECE		0.008	3.258	0.136	0.014	0.198
10-15		0.005	0.031	0.036	0.001	0.1966
LA#4(1)		0.013	2.267	0.065	0.005	0.1597
LA#4(2)		0.001	0.015	0.046	0.004	0.1695
LA#4(3)		0.003	0.196	0.074	0.005	0.1405

供試車輛の標準環境温度 25 で行った各種走行モードの排出ガス測定結果を表 1 に示す。供試車の N₂O 排出量はいずれの走行モードでも 15mg/km 以下であり三元触媒車としては非常に少ない。この理由は供試車輛の触媒がエキマニの直近に配置されており、これまでの床下型三元触媒車に比べると N₂O 分解効率の高い触媒温度で使用されていることによるものと考えられる。表 1 の N₂O の排出量をモード平均触媒温度で比較すると、各走行モードの N₂O 排出量は図 6 に示すようにモードの平均触媒温度の上昇にともなって低くなる傾向を示し、平均触媒温度の低下は N₂O 排出を増大させる事を示している。

以上のことから、環境温度の低下は平均触媒温度の低下を招き、実路走行時における N₂O を増加させることが推定される。

4 . 3 . 環境温度が触媒暖気時間に及ぼす影響

環境温度の低下が N₂O 排出量に影響する要因とメカニズムは次の二つが考えられる。

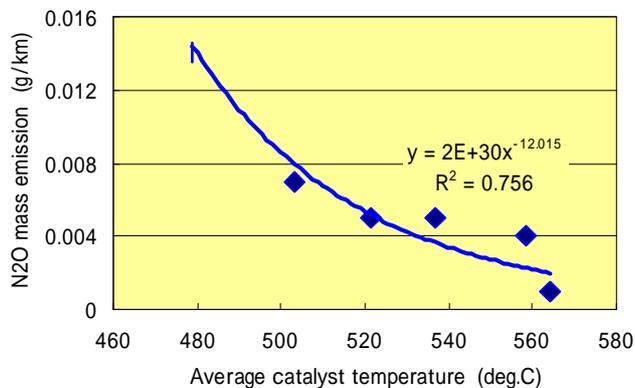


図 6 . 平均触媒温度と N₂O 排出量

- (1) 環境温度の低下が触媒温度の低下を招き、排ガス浄化性能が低下することによる排出量の増大。
- (2) 環境温度の低下が触媒活性温度(Lt₂)に達する時間の遅延を招き、未浄化ガスが増大することによる排出量の増大(モード走行時間内における触媒不活性時間比率の増大)。

まず、(1) のメカニズムは図 5 に示した平均触媒温度(C)が 350 以下にさがれば図 1 に示す触媒の浄化性能から触媒温度低下が NO_x や CO の排出を増大させることが分かる。しかし N₂O は 300 付近に排出ピークがあり、NO_x や CO とは逆に 300 以下の温度では触媒温度の低下は N₂O 排出を減少させ、300 以上では N₂O の浄化率が直線的に向上するから N₂O の排出は減少する。すなわち、触媒温度範囲

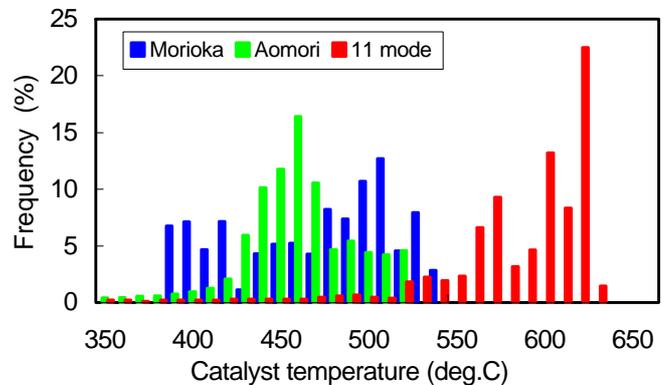


図 7 . 寒冷地走行と室内台上試験時の触媒温度頻度分布比較

として、300 近辺を中心として 200 から 500 間での頻度が増加すると N₂O の排出増加を招く。

図 7 は寒冷地である青森、盛岡市内走行時と室内台上試験による 11 モード走行時における触媒温度の頻度分布を示したものである。寒冷地における走行では 500 以下の頻度が高くなっており、N₂O 排出が環境温度の高い条件よりも増加していることが予想される。

次に (2) のメカニズムであるが、図 1 に示した Lt₁、Lt₂ の両者とも触媒の暖機特性を表す指数といえる。すなわち Lt₁、Lt₂ が大きければ未浄化の CO や NO_x が増加し、これらの成分についてモード排出量は増加する。

N₂O は図 1 に示すごとく、NO_x や CO と異なり 150 近辺から生成が始まり、Lt₁ を超えるとその排出が急激に増大し始め、約 300 で排出ピークに達す

る。したがって全走行時間に占める (Lt_2-Lt_1) の割合が N_2O 排出量を決定するものと考えられる。

環境温度 25 での各種走行モード台上運転時、及び環境温度-5 での実路走行時における冷始動からの触媒温度挙動を図 8 にまとめて示した。寒冷地の実験車両は前夜から屋外に放置し、朝の 9 時に始動したのち 2 ~ 3 分の暖気運転を行い、輻輳した市街中心地から郊外に向かう走行形態であり、モード走行時間は冷始動排ガス試験モードの時間に合わせてエンジン始動後、10 分程の温度挙動を解析した。

この図から、冷始動からの触媒暖気特性は走行パターンの影響をほとんど受けず、環境温度が支配的であることがわかる。

図 9 は冷始動時の触媒温度が Lt_1, Lt_2 に達するまでの時間を、青森市における寒冷地走行と、25 の環境条件下における台上 11 モードについて比較した例である。外気温度が 25 の時に、エンジンを始動してから Lt_1 に達するにまでに要した時間(t_1)は 52 秒で

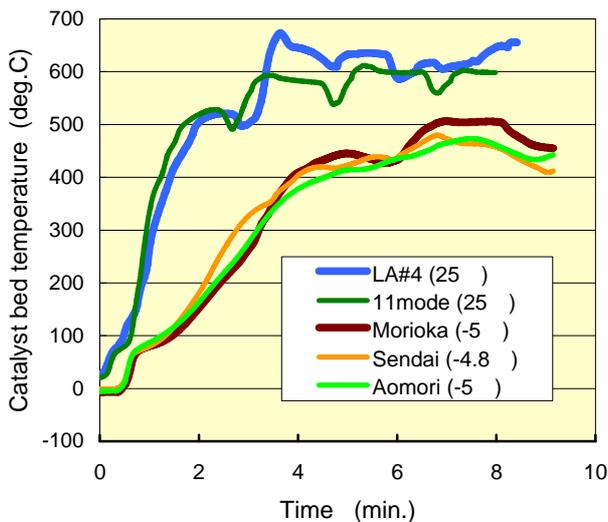


図 8 . 各種冷始動条件下における触媒温度の変化

あるが、環境温度-5 の青森市での t_1 は 167 秒である。同様に、 Lt_2 に達するまでの時間(t_2)はそれぞれ 60 秒、197 秒と、環境温度の低下に伴って触媒の暖気時間が長くなり、特に t_2 への影響が大きい。

図 10 は、全走行時間 T に対する (Lt_2-Lt_1) の時間比 ($(t_2-t_1)/T$) を N_2O 排出時間比と定義し、環境温度の異なる冷始動走行条件について N_2O 排出時間比を示したものである。環境温度の低下に伴って N_2O 排出時間比は増加し、約 5 から 0 まではその増加

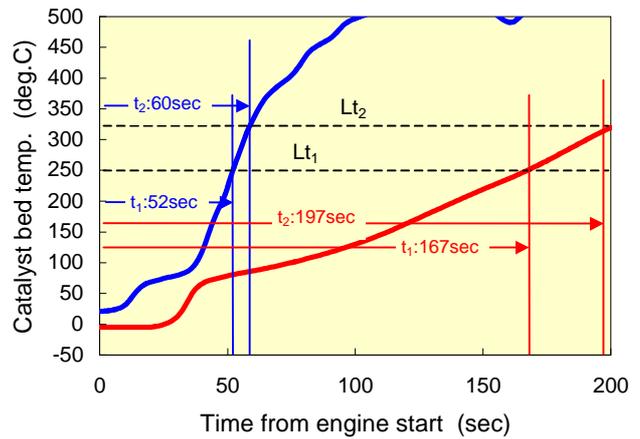


図 9 . 冷始動時触媒暖気特性に与える環境温度の影響

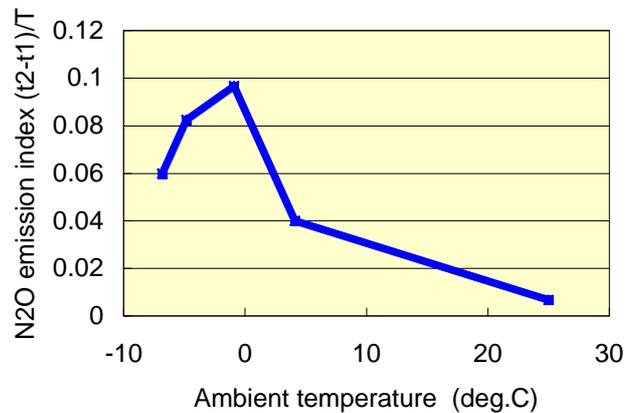


図 10 . N_2O 排出時間比 ($(t_2-t_1)/T$) に与える環境温度の影響

率が高くなる。零度以下で N_2O 排出時間比が減少傾向に転ずるのは、低温時の始動特性や暖機特性を向上させるため、空燃比の過濃化や点火進角、バルブタイミングの変更を行う事によるエンジン側での影響が現れたものと考えられる。

4.4. 環境温度低下が N_2O 排出量に及ぼす影響

触媒入口のガス組成が一定であれば、 N_2O 排出濃度は触媒温度に依存することから、実測温度データと、図 1 の触媒温度 - N_2O 排出特性から環境温度が N_2O 排出量に与える影響について推計を試みた。

図 11 は、実験車両の環境温度 25 における 11 モード走行時の N_2O 排出挙動実測値と環境温度-5 における N_2O 生成濃度変化を推計した結果を示す。両者は走行条件やこれに伴う排出ガス挙動等が異なり、

定量的な比較は出来ないが、環境温度に対する概略の排出傾向は把握できるものと考えた。

図 11 上段に示した前者では、サイクルの始めに大きな N₂O のピークが認められ、このときの触媒温度は図 1 の N₂O 生成温度領域と一致している。その後、触媒温度が上昇すると N₂O の分解が生じる領域に入るので N₂O はほとんど生成されないことを示し、これまで述べてきた推定を裏付けるものとする。

これに対して、図 11 の下段に示した寒冷地における推定値では、N₂O 排出濃度の高い触媒温度領域での滞在時間が長くなり推計した N₂O 挙動によればその排出量は環境温度 25 時の 3 倍以上になるものと思われる。

5.まとめ

環境温度の低下が自動車の N₂O 排出に及ぼす影響を調べた。これまでの結果をまとめると、

1. 環境温度の影響は冷始動時に現れ、環境温度の低下は実走行時の平均触媒温度を低下させ、触媒が活性化に至る時間を長くする。
2. 冷始動からの触媒暖気特性は走行パターンの影響をほとんど受けず、環境温度が支配的である。
3. 台上試験により実測した冷始動時触媒温度変

化と N₂O 排出濃度は、触媒温度に対する N₂O 生成特性と良い一致を示し、環境温度の低下が冷始動時の N₂O 排出量に与える影響は、触媒活性化開始温度 Lt₁ から、排出ガス浄化率が 95%に達する触媒活性化温度 Lt₂ に至るまでの時間差の全走行時間に対する比率(N₂O 排出時間比)から推計出来る。

参考文献

- 1): M. Odaka et al SAE Technical paper 980676 (1998))
- 2): N. Koike et al SAE Technical paper 1999-01-1081
- 3): M. Odaka et al Chemosphere-Global Change Science 2, P414-423 (2000))
- 4): 理科年表、丸善.(1997 年度版)

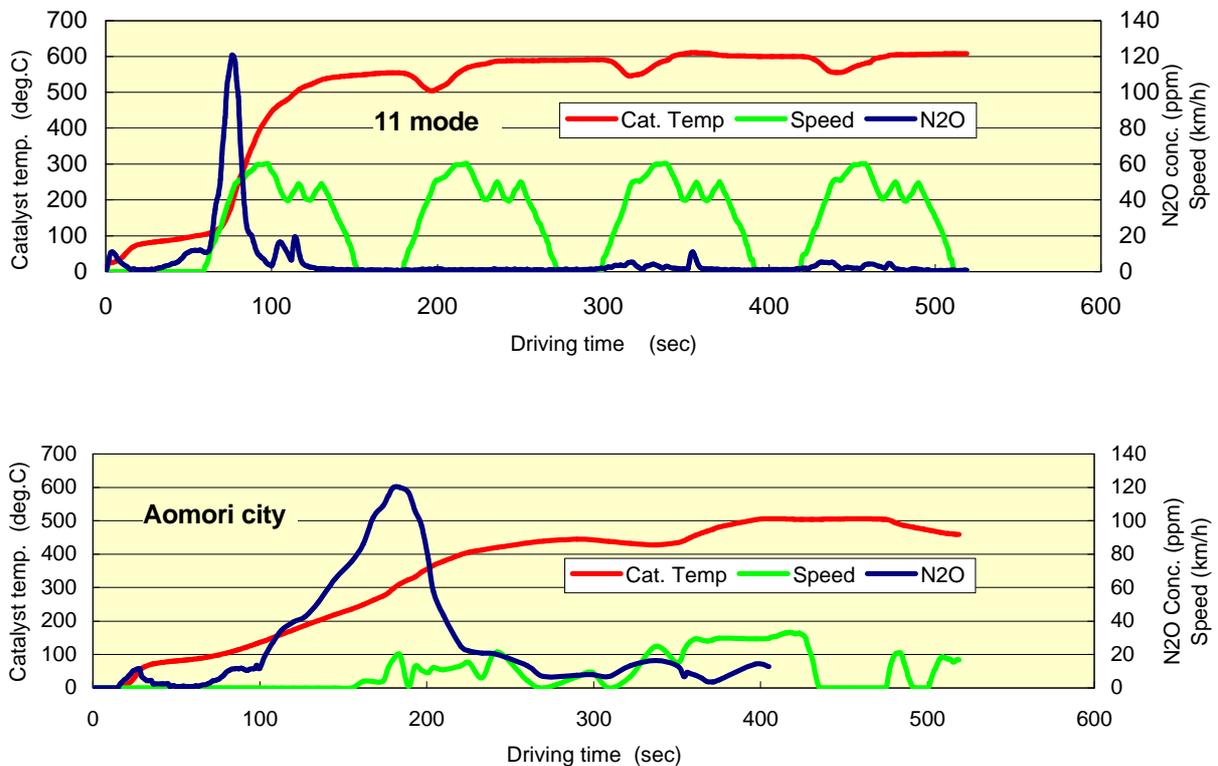


図 11 . 環境温度の違いによる N₂O 排出挙動の比較 (11 モード : 25 、 青森市内 : -5)