

# 各種運転条件下におけるNOx吸蔵還元触媒の反応特性の解析

- 排気管直挿型NOxセンサによる実験解析 -

環境エネルギー部

山本 敏朗、野田 明、阪本高志

## 1. まえがき

燃費性能に優れた希薄燃焼エンジンは、自動車から排出されるCO<sub>2</sub>の低減に役立つことから、地球温暖化対策の1つとして注目されている。しかし、希薄燃焼では排気が酸素過多となり、従来の三元触媒によるNOx低減ができないため、希薄燃焼下でも低減を可能とするNOx吸蔵還元触媒の実用化が進められてきた。同触媒は、希薄燃焼時にNOxを吸蔵し、吸蔵量が増加するとリッチスパイクを発生させてNOxを還元・浄化する機能を有する。ただし、リッチスパイク発生のタイミングは、NOx吸蔵量を演算処理により推計する方法で決定しており、これが実用運転条件下で適切に機能しているかどうか検証する必要があると考える。本研究では、筒内直接燃料噴射型ガソリン車のNOx吸蔵還元触媒の前後に、2本の排気管直挿型NOxセンサを取り付けて、シャシダイナモメータ上で各種走行条件により運転を行い、同センサが出力するNOx濃度や空燃比（以下、A/Fと記す）の信号、その他の計測データから、希薄燃焼運転時のNOx吸蔵状態の推移やリッチスパイク直後のNOx還元反応特性について検討した。

## 2. 実験方法

実験装置の概略を図1に示す。実験は、供試車両をシャシダイナモメータ上に設置し、各種走行条件（11モード、10・15モード、実走行条件及び定常走行条件）で運転することによって行った。走行条件によっては、テールパイプにベンチュリー式排出ガス流量計を装着して、瞬時排出ガス流量を連続的に計測した。供試車両の主要諸元を表1に示す。同車両は、排気マニホールド

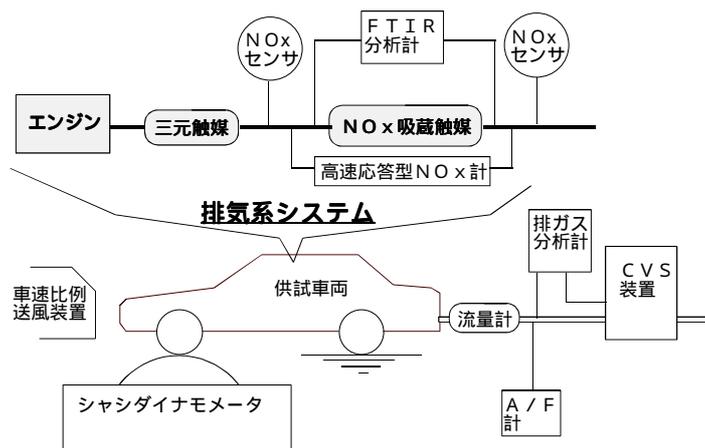


図1 実験装置の概略

表1 供試車両の主要諸元

エンジン型式	4サイクル、直列6気筒、DOHC
使用燃料	無鉛プレミアムガソリン
総排気量 mL	2997
燃料供給装置	筒内直接燃料噴射式
排気対策方式	TWC + NOx吸蔵還元触媒、EGR

表2 供試NOxセンサの主要諸元

測定原理	ZrO <sub>2</sub> 素子のO <sub>2</sub> ポンプ機能を利用
NOx出力レンジ	NO : 0~1000ppm 出力: 0.3~4.8V
	応答性: <400mSec
A/F出力レンジ	A/F=10~O <sub>2</sub> =0% 出力: 0~2.5V
	O <sub>2</sub> =0%~O <sub>2</sub> =Air 出力: 2.5~5V
	応答性: <200mSec

直後に三元触媒を、また車両の床下位置にNOx吸蔵還元触媒を装着している。図1に示すように、NOx吸蔵還元触媒の前後に2本の排気管直挿型NOxセンサと、2台の高速応答型NOx計（CLD方式）を取り付けて各種走行条件で運転を行い、同触媒前後の排出ガス中のNOx濃度の変化を連続計測した。供試NOxセンサは、ジルコニア固体電解質の積層構造体であり、排出ガス中のNOx濃度とA/F（O<sub>2</sub>濃度換算値）をリアルタイムに測定可能とするセンサである。その主要諸元を表2に示す。同センサのNOx濃度出

力の精度は、高速応答型NO<sub>x</sub>計による計測値との比較により検証した。同様にA/F出力の精度検証は、テールパイプに取り付けたラムダスキャン型A/F計による計測値と比較することにより行った。また、NO<sub>x</sub>センサを用いてNO<sub>x</sub>濃度を測定する場合、排出ガス中のNH<sub>3</sub>濃度は大きな誤差要因となることから、NO<sub>x</sub>吸蔵還元触媒前後の排出ガス中のNH<sub>3</sub>濃度を、FTIR分析計を用いて測定した。

以下に、一連の実験・解析の結果を示す。

### 3. 実験結果及び考察

#### 3.1. NO<sub>x</sub>センサのNO<sub>x</sub>及びA/F出力の検証

NO<sub>x</sub>センサを使って排出ガス中のNO<sub>x</sub>濃度を計測する場合、排出ガス中のNH<sub>3</sub>の干渉を受けて、NO<sub>x</sub>濃度出力に大きな誤差が生じることが解っている。<sup>(1)</sup>そこで、各種走行条件で運転したときの、NO<sub>x</sub>吸蔵還元触媒前後の排出ガス中のNH<sub>3</sub>濃度を測定した。図2に、10・15モード運転時の測定結果を示す。同図より、排出ガス中のNH<sub>3</sub>濃度は、運転域全体を通じて、触媒前後ともに10ppm以下であり、測定精度内の低濃度を示していることがわかった。このNH<sub>3</sub>分析は、他の走行条件においても行ったが、ストイキ制御運転が中心となる11モード運転は除くものの、その他の希薄燃焼状態での走行条件においては同様の結果であった。このことから、供試NO<sub>x</sub>センサを希薄燃焼走行条件下で使用する限りにおいて、NH<sub>3</sub>干渉は問題にならないことがわかった。図3は、実走行条件で運転したときの、NO<sub>x</sub>吸蔵還元触媒後の排出ガス中のNO<sub>x</sub>濃度を、NO<sub>x</sub>センサと高速応答型NO<sub>x</sub>計で測定して比較した結果である。同図より、2つの測定結果は、運転域全体でよく一致していることがわかる。触媒前の濃度測定の比較においても同様であることから、希薄燃焼走行条件では、同触媒前後のNO<sub>x</sub>濃度は、NO<sub>x</sub>センサによって連続測定が可能であることがわかった。

次に、NO<sub>x</sub>センサのA/F出力の精度について検討した。図4は、ストイキ制御型エンジン及び筒内直接燃料噴射型エンジンを用い、定常運転条件で任意のA/F状態を発生させ、そのときのNO<sub>x</sub>センサのA/F出力値を測定してプロット

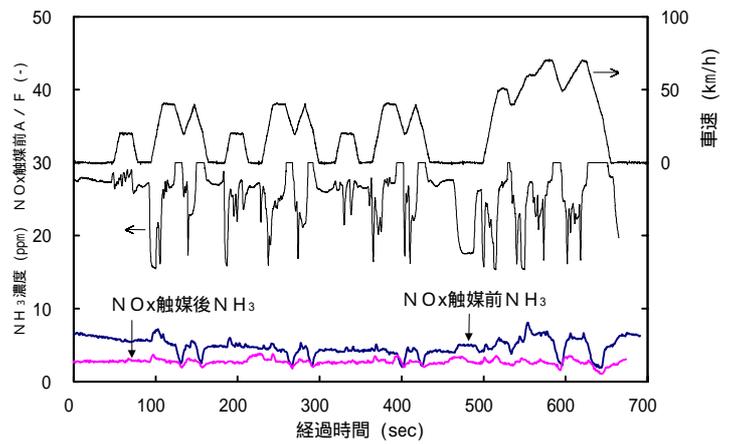


図2 10・15モード運転時の排出ガス中のNH<sub>3</sub>濃度

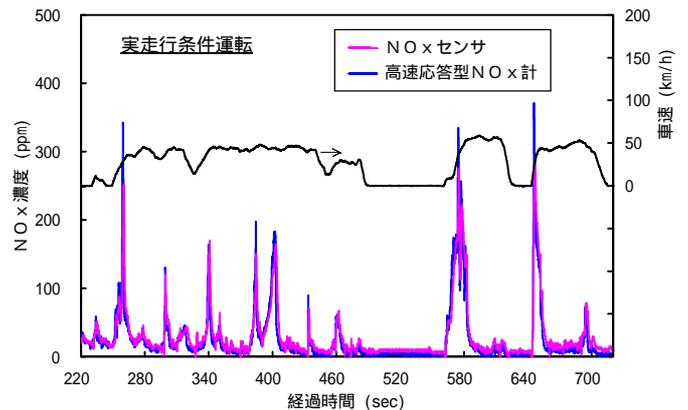


図3 NO<sub>x</sub>センサと高速応答型NO<sub>x</sub>計による連続濃度分析結果の比較

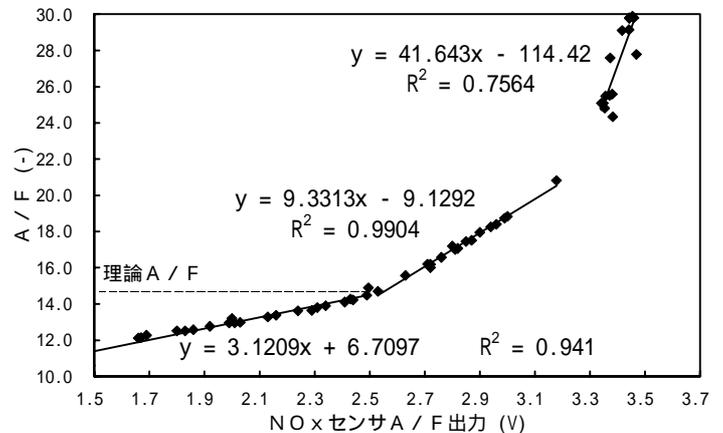


図4 供試NO<sub>x</sub>センサのA/F出力特性

した結果である。同図より、NO<sub>x</sub>センサのA/F出力は、リッチ域～理論A/F、理論A/F～A/F 20近傍、A/F 20近傍以上のリーン域の3つの領域に分かれて出力特性が変化していることがわかる。A/F 20近傍よりリッチ側においては、A/Fとセンサ出力値との間に高い直線性が認められ、NO<sub>x</sub>センサにより高精度のA/F計測が可能であることがわかる。

次に、このNO<sub>x</sub>センサを用いて、リッチスパイク発生時のA/F変動及び吸蔵NO<sub>x</sub>の還元反

応について検討した。

### 3.2. リッチスパイク時の吸蔵能再生過程の検知

NOx吸蔵還元触媒のNOx吸蔵能を維持するためには、適切なタイミングでA/Fリッチスパイクを発生させ、吸蔵NOxを還元・浄化して放出する必要がある。図5は、リッチスパイク発生時の吸気管負圧、A/F、排出ガス流量のそれぞれの変化を示している。同図より、スパイク発生に伴って、吸気管負圧は上昇し排出ガス流量は減少していることから、このとき吸気スロットルを絞って新気の導入を抑え、A/F変動を拡大する制御が行われていることがわかる。次に、各種走行条件ごとのリッチスパイク変動を調べた。その結果の一例を、図6に示す。同図は、30km/h～80km/hの定常走行時において、NOx吸蔵還元触媒前に取り付けられたNOxセンサのA/F出力変動を、各車速条件ごとに表示したものである。車速の増加に伴い、変動の時間幅が短くなっていることがわかる。また、30km/h、50km/h、60km/hでは、車速が増加するに従い、リッチ側への変動量が増加していることがわかる。ここで、吸蔵NOxの還元量は、スパイク変動の時間幅とリッチ側への変動量に比例するとの報告<sup>(2)</sup>があり、車速が増加すると時間幅が短くなるがリッチ側への変動量が増加することにより、還元能が保持されているものと考えられる。

次に、A/Fリッチスパイクによる、吸蔵NOxの触媒吸蔵材からの放出と還元の過程について調べた。図7は、リッチスパイク発生時におけるNOx吸蔵還元触媒通過後のA/F(NOxセンサ出力)変化と排出ガス中のNOx(NOxセンサ出力)、THC、CO<sub>2</sub>濃度の変化を示している。同図より、NOx濃度は、リッチスパイク発生後、1秒程度遅れて立ち上がっている(図中のA領域)。この遅れ期間中は、CO<sub>2</sub>濃度が増加していることから、吸蔵材からのNOxの放出とその後の還元反応が活発化している領域であると考えられる。その後、放出されても還元されない未反応の放出NOx量が増加するようになって、触媒出口側のNOx濃度が上昇したものと推測する。このように、触媒後に取り付けられたNOxセンサのNOx出力信号は、NOx吸蔵還元触媒の吸蔵能の再生過程を検知するモニター信号となり得ることが

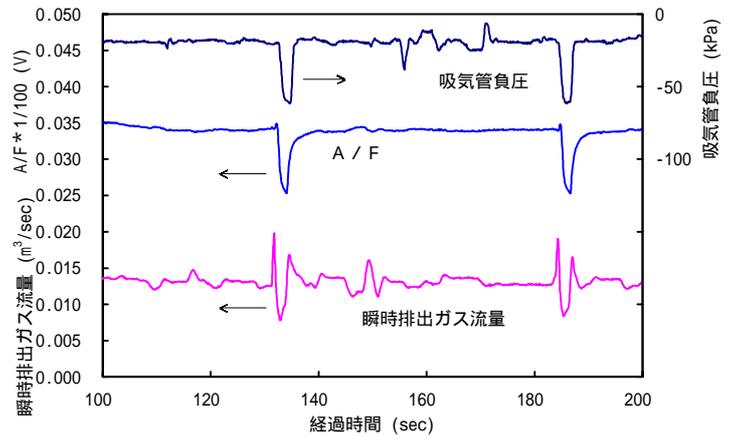


図5 リッチスパイク発生時の吸気スロットル弁制御

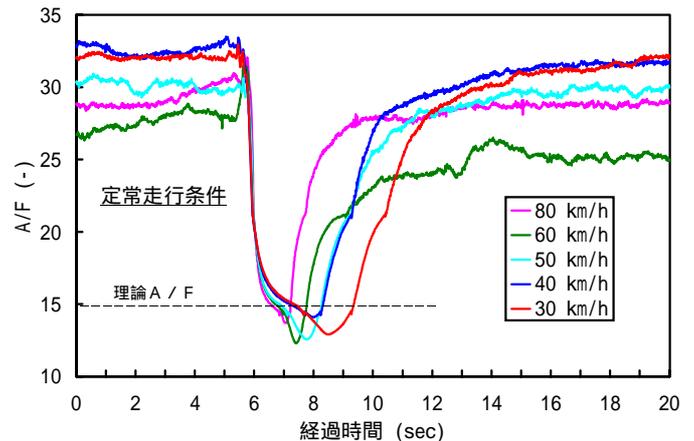


図6 リッチスパイク発生時のA/F変動

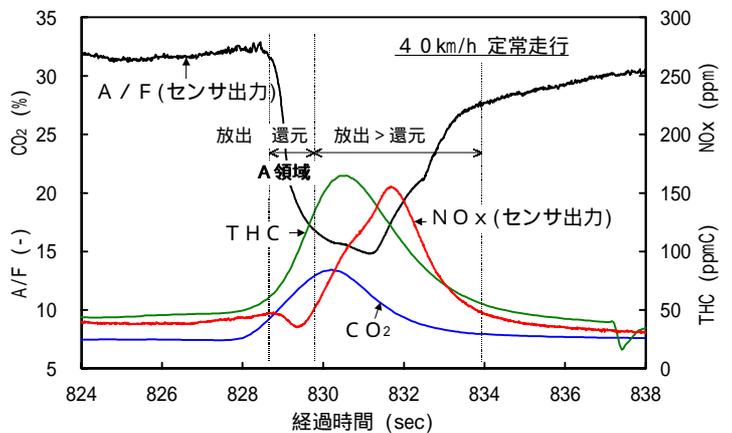


図7 リッチスパイクによる吸蔵NOxの放出・還元過程

わかった。

### 3.3. NOxセンサによるNOx吸蔵状態の検知

NOx吸蔵還元触媒は、リッチスパイクと次のリッチスパイクの間の区間(以下、NOx吸蔵区間と記す)において、排出ガス中のNOxを吸蔵してNOx排出量を低減する機能を有する。このNOx吸蔵能は、吸蔵量の限界に達する前にリッチスパイクにより再生されるが、再生量には限度があるため、NOx吸蔵区間を適切に設定することが必要となる。本研究では、このNOx吸蔵区

間を適切に設定するための手法について検討した。

図8に示すように、NO<sub>x</sub>吸蔵区間は、NO<sub>x</sub>センサのA / F出力信号の2つのリッチスパイクによって挟まれた領域として検出することができる。このNO<sub>x</sub>吸蔵区間の平均区間時間を調べた結果を、図9に示す。同図は、30km/h ~ 80km/hの定常走行時の結果を示している。車速が増加するに従って、平均区間時間は140秒ほどから40秒ほどまで短くなっている。なお、20km/h定常走行においては、300秒間の試験走行中にリッチスパイクは発生しなかった。

NO<sub>x</sub>吸蔵区間でのNO<sub>x</sub>の吸蔵量とリッチスパイクによる再生量がほぼ一致していれば、触媒のNO<sub>x</sub>吸蔵能は保持される。しかし、吸蔵量が再生量より大きくなれば、吸蔵能は低下していくことになる。このことから、区間内でのNO<sub>x</sub>の吸蔵能をモニターして、吸蔵量が再生量より大きくなってきたときに、NO<sub>x</sub>吸蔵区間時間等を制御して修正できれば、NO<sub>x</sub>吸蔵能は保持できることになる。本報では、NO<sub>x</sub>吸蔵能の指標として、「区間NO<sub>x</sub>吸蔵率」を用いることとする。これは、触媒前後に取り付けた2本のNO<sub>x</sub>センサのNO<sub>x</sub>濃度出力と排出ガス流量によって算出され、以下の式により定義される。

区間NO<sub>x</sub>吸蔵率 = NO<sub>x</sub>吸蔵区間におけるNO<sub>x</sub>吸蔵量 (g) / NO<sub>x</sub>吸蔵区間における触媒へのNO<sub>x</sub>流入量 (g)

図10に、30km/h ~ 80km/hの定常走行時における区間NO<sub>x</sub>吸蔵率を、各NO<sub>x</sub>吸蔵区間ごとにプロットした結果を示す。同図より、80km/hでは、NO<sub>x</sub>吸蔵区間の数が増えるごとに、即ち吸蔵と再生を繰り返すごとに、区間NO<sub>x</sub>吸蔵率が減少していることがわかる。これは、区間時間が適切に設定されていないことが一因であると考えられる。

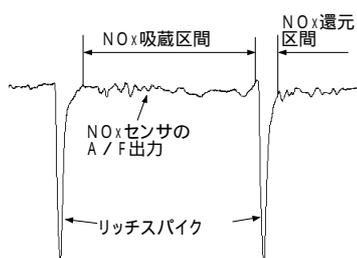


図8 NO<sub>x</sub>吸蔵区間の検出

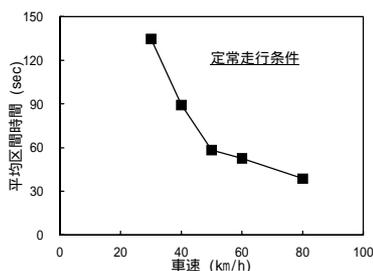


図9 NO<sub>x</sub>吸蔵区間の平均区間時間

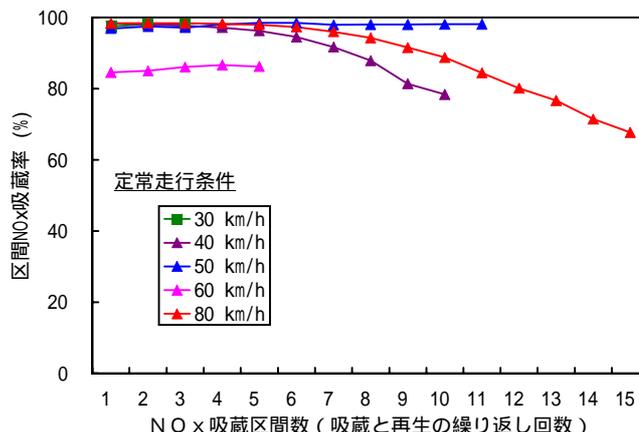


図10 定常走行条件での区間NO<sub>x</sub>吸蔵率の推移

区間時間を短くする等の修正制御を行えば、NO<sub>x</sub>吸蔵率の低下は回避できるものと考えられる。

#### 4. まとめ

筒内直接燃料噴射型ガソリン車に装着されているNO<sub>x</sub>吸蔵還元触媒の反応特性の解析に、触媒前後に取り付けた2本の排気管直挿型NO<sub>x</sub>センサを用い、以下の結論を得た。

- (1) 希薄燃焼走行条件でのNO<sub>x</sub>センサによるNO<sub>x</sub>濃度の測定は、NO<sub>x</sub>吸蔵還元触媒前後の排出ガス中のNH<sub>3</sub>濃度が極めて低いことから、NH<sub>3</sub>干渉を受けることなく、高精度の測定が可能であることがわかった。
- (2) NO<sub>x</sub>センサに用意されているA / F出力を利用すれば、A / F 20近傍よりリッチ側において、高精度のA / F測定が可能であることがわかった。
- (3) A / Fリッチスパイク時に、触媒後に取り付けたNO<sub>x</sub>センサからのNO<sub>x</sub>濃度出力及びA / F出力をモニターすることにより、NO<sub>x</sub>吸蔵能の再生過程を検知できる見通しを得た。
- (4) 触媒のNO<sub>x</sub>吸蔵能の指標として、触媒前後に取り付けた2本のNO<sub>x</sub>センサからの出力と、排出ガス流量によって算出される「区間NO<sub>x</sub>吸蔵率」を提案した。この指標は、NO<sub>x</sub>吸蔵能の低下の検知に有効であることを示した。

#### 5. 参考文献

- (1) 山本 他：平成12年度交通研研究発表会講演概要，P93-96
- (2) 加藤 他：自動車技術会学術講演会前刷集 946,9437368