

尿素 SCR 触媒装着自動車から排出される粒子状物質に関する研究

環境研究領域

後藤 雄一 石井 素 鈴木 央一 河合 英直

1. はじめに

新長期排出ガス規制に対応するためのディーゼル車の窒素酸化物 (NO_x) の低減技術の 1 つとして、尿素SCR(Selective Catalytic Reduction, 選択還元触媒)システムの開発が進められている。固定発生源ではアンモニアを還元剤とした例が実用化されているが、車載用では安全性から尿素を還元剤としたシステムが検討されている。図 1¹⁾に示すようにSCRの前に尿素水を添加して、加水分解により尿素水をアンモニアに変換し、SCRにおいてアンモニアを還元剤としてNO_xを浄化する。またSCR出口にも尿素分解で生成した余剰のアンモニアを酸化・低減するための酸化触媒を配置している。NO₂への転換、HC、COの酸化・低減やSCR触媒活性温度への排気ガス温度の上昇のために前段に酸化触媒を配置する場合もある。尿素SCRシステムは、NO_x低減に有効な新技術として実用化されつつあるが、アンモニア (NH₃) が排出される可能性があること (アンモニアスリップ) 尿素水欠乏時にNO_xが低減されないことなど本システムの実用化に当たって事前に解決すべき安全面及び環境面の技術的課題の検討が進められている。²⁾

尿素 SCR システムによる NO_x 低減対策 (図 2) は他の NO_x 吸蔵還元 (NSR, NO_x Storage Reduction) 触媒を用いた方策とは異なり、ベースエンジンからみて後

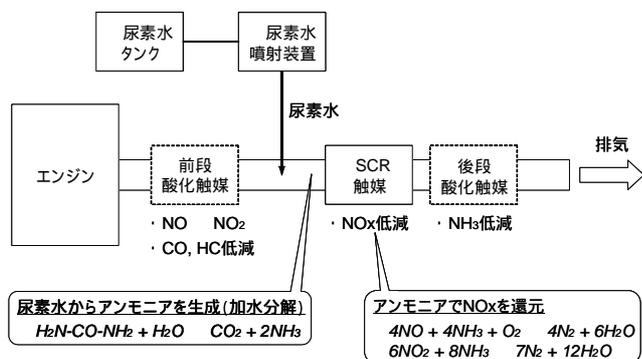


図 1 尿素 SCR システム構成例

処理装置により全てのNO_xを低減するため、高圧噴射化の向上などの熱効率が低い燃焼に最適化することによりエンジン出口の粒子状物質 (PM) 排出量を大幅に低減する方向でエンジン設計を行う。PM排出規制レベルによりDPF+尿素SCR又は尿素SCRのみが選択される。新長期規制レベルでは燃料供給系の高圧噴射化の向上などのエンジン側の改良のみでPMを低減し、NO_xは尿素SCRシステムのみで低減することが可能である。そのため、従来のフィルタ重量法によるPM排出量で新長期規制値以下を達成しているものの排気系に新たに尿素水を添加する後処理システムを追加したことによる粒子数基準での粒子状物質の排出挙動がどの様であるかは明らかでない。

本研究は、新長期規制達成レベルの尿素SCRシステム装着車両における粒子数基準での粒子状物質の排出挙動を調べ、その実態と課題について述べる。

2. 実験車両及び実験装置

表 1 に供試車両・エンジンの仕様を示す。車両総重量 25 t、排気量 9.2 L の T I エンジンに尿素 SCR システムを装着した車両である。表 2 に試験燃料の仕様を示す。JIS2 号軽油で硫黄濃度は 24ppm である。尿素水は DIN 規格 (表 3) 相当を使用した。

図 3 に実験設備配置図を示す。車両総重量 25t まで

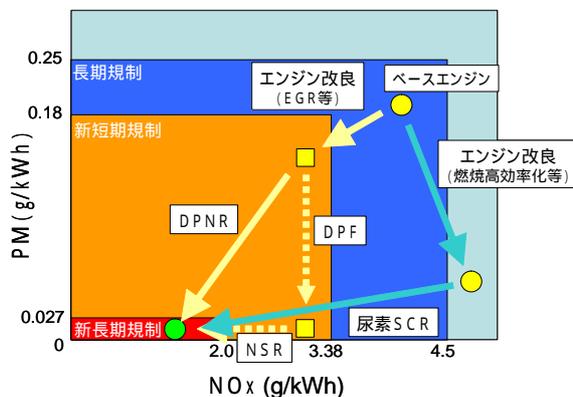


図 2 ディーゼル車排出ガス低減対策概念図

表1 供試車両・エンジンの仕様

車両重量(kg)	(8,740)
車両総重量(kg)	(24,850)
総排気量(L)	9.203
シリンダー数および配置	4サイクル・水冷直列6気筒・縦置き・T
内径×行程(mm)	125.0×125.0
燃料供給装置、方式	コモンレール式
使用燃料	軽油
排気ガス低減デバイス	尿素SCR

表2 供試燃料の仕様

試験項目	単位	測定値
セタン指数(JISK2280)		59.4
密度(15)	g/cm3	0.8261
硫黄分	質量%	0.0024

表3 供試尿素水の規格(DIN)

項目	単位	DIN規格
水溶液濃度	%	32.5±0.5
PH(10%液)		10>
密度(20)	kg/L	1.085~1.095
屈折率(20)		1.3821~1.3835
アルカリ成分(as NH3)	%	0.1>
カーボネート(as CO2)	%	0.1>
ピュレレット	%	0.3>
ホルムアルデヒド	wt-ppm	10>
不溶解成分	wt-ppm	10>
リン酸(PO4)	wt-ppm	0.2>
Ca	wt-ppm	0.5>
Fe	wt-ppm	0.5>
Cu	wt-ppm	0.2>
Zn	wt-ppm	0.2>
Cr	wt-ppm	0.2>
Ni	wt-ppm	0.2>
Mg	wt-ppm	0.5>
Na	wt-ppm	0.5>
K	wt-ppm	0.5>

の車両を試験可能なシャシーダイナモメータ上に供試車両を設置し、定常・過渡運転実験を行った。排出ガス中の粒子濃度は高いため Dekati 社製 Diluter により 8 倍希釈を行った後、高速で粒径分布を計測可能な EEPS (Engine Exhaust Particle Sizer, TSI3090) により排出ガス中の粒径分布計測を行った。同時に工

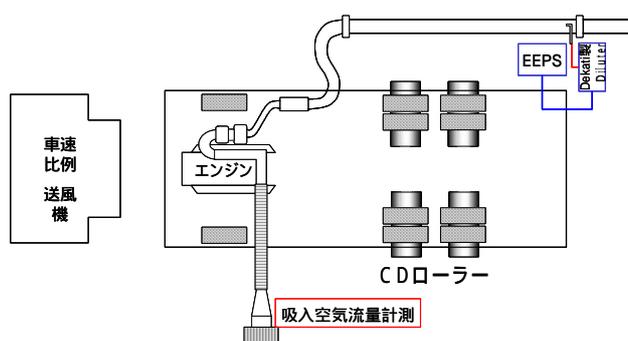


図3 実験設備配置図

ンジン回転数、車速等も計測した。表4に EEPS の仕様を示す。100ms 程度の時間分解能で粒径分布を計測可能である。粒子計測は、尿素 SCR システム通過後のテールパイプ後流において粒子サンプルして行った。

3. 実験条件

定常運転条件(60, 80 km/h) 準定常運転条件(D13 モード) 過渡運転条件(JE05 モード、FTP モード) の各条件について実験を行い、尿素 SCR システムの過渡応答条件での粒径分布挙動を含めた計測を行うこととした。

4. 結果と考察

4.1. 定常及び準定常試験(D13)

図4に Idling 条件における粒径分布を示す。6nm 以下にピークを持つものと 70nm 程度にピークを持つ双峰分布となる。粒径の小さいピークは nuclei (核凝縮) モードのピークで、炭化水素が凝縮してできた

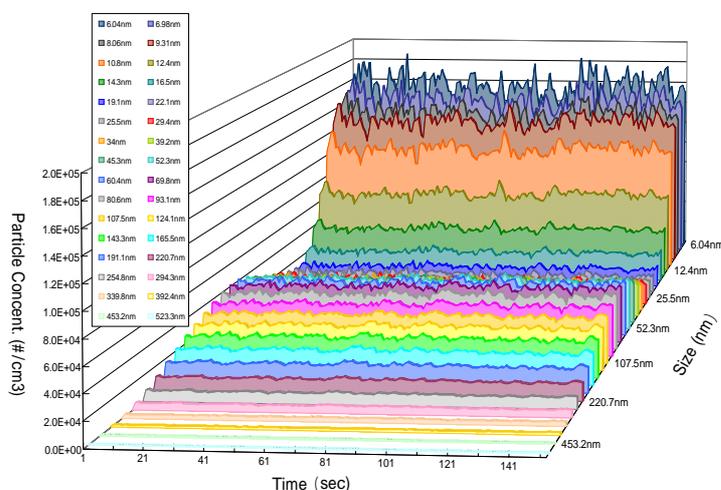


図4 Idling 時の粒径分布挙動

nuclei モード粒子によるものと考えられる。70nm 近傍のピークは凝集モード粒子と考えられる。

図5に定常運転（60, 80km/h）条件における粒径分布を示す。0km/から60km/h、60km/hから80km/hの定常運転条件に入る前の加速条件において排出粒子濃度が高くなるのが分かるが、最後の減速条件において最も大量に粒子が排出されている点が特徴的である。通常減速時には燃料を燃焼室内に投入せず燃料カットをして燃費性能の向上を図るため、減速時には燃焼に起因する粒子の発生はないと考えられる。潤滑油蒸気の凝縮粒子、排気管壁に吸着していた高沸点炭化水素蒸気の凝縮粒子などの発生が尿素SCRシステムを装着していない通常のディーゼルエンジン、ガソリンエンジン等からの排出粒子として観測されているが、いずれもnucleiモード粒子で粒径が50nm以下のナノ粒子であり、今回の実験で観測された凝集粒子に相当する粒径範囲70nm近傍とは異なる。従って、減速時に観測された粒子は燃焼起源の粒子ではなく排気系又は尿素SCRシステムに起因する粒子と思われる。

図6にD13モード運転時の粒径分布を示す。図5のような減速時における粒子の大量の排出は認められないが同様な凝集粒子に相当する粒径範囲で減速時に粒子排出が認められる。この粒子は、上述のように燃焼起源の粒子ではなく、後処理装置起源の粒子と考えられる。

4.2. 過渡モード試験 (JE05, FTP)

図7にJE05モード運転条件における粒径分布の3次元・2次元表示を示す。従来のディーゼル車に繰り替えて燃焼改善により大幅に排出粒子数濃度は改善されているが、加速時に凝集モード粒子が 10^6 個/cc以上の粒子が排出されている。一般的に大気中粒子濃度は 10^4 個/cc程度であることを考えると環境濃度に比べ高い粒子数濃度が認められる。また、コーディライト製フィルタを使用したDPF (CRT™) 装着車ではの粒子排出濃度は 10^5 個/cc以下であることから、尿素SCRシステムのみでの装着車では重量基準のPM規制を満たすものの粒子数基準ではDPF装着車に比べ高いピーク粒子数濃度で排出していることが分かる。また、減速時においても2次元表示に矢印で示すように凝集モード粒子で相当量の粒子を排出している。前節に述べたように減速時には通常、燃料カットしているため燃焼起因の粒子とは考えにくい。燃焼室から排出される潤滑油蒸気の凝縮や排気系に吸着した高沸点炭化水素の脱離・凝縮による粒子は50nm以下の粒子が多いと考えられ、凝集モード粒子の粒径範囲(70nm)とは異なる。排気系に付着した粒子の再排出による場合はより大粒径粒子で粒子個数も少ないと考えられる。以上のことから、矢印に示した凝集モード粒子は尿素SCRシステムに起因する粒子と予想されるがその生成過程については今後明らかにする必要がある。

尿素SCRシステムでは尿素の加水分解により NH_3 を生成し還元剤として利用する。 NH_3 と燃料中硫黄が酸化して生成する SO_x とから硫酸アンモニウム(硫安)

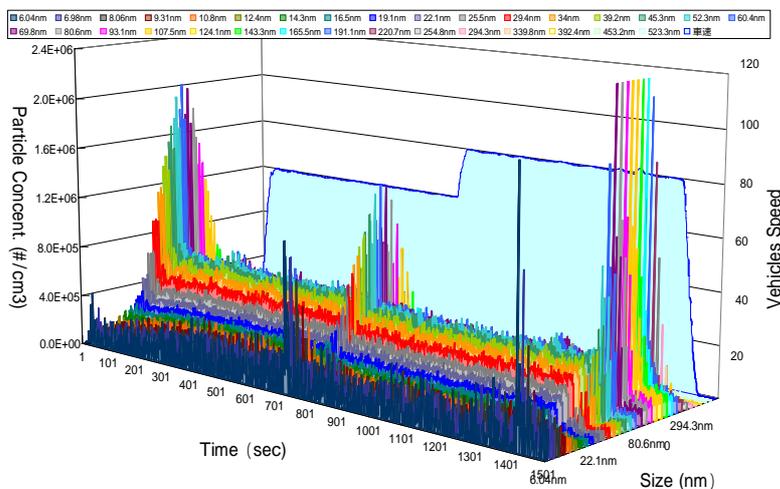


図5 定常運転（60, 80km/h）条件における粒径分布

の粒子が生成する可能性があり、また、NH₃と燃焼生成物のNO_xとから硝酸アンモニウムの粒子が生成する可能性もある。NH₃は大気中の粒子生成に深く関わっている³⁾ことが指摘されており、NH₃による排気系での粒子生成について今後研究を進める必要がある。

図8に米国公定モードのFTPモード運転条件における粒径分布を3次元、2次元表示で示す。JE05モードと同様に加速時に凝集モード粒子が10⁶個/cc以上の粒子が排出されている。また、減速時においても2次元表示に矢印で示す凝集モード粒子でも粒子数の増加が認められる。

図7と図8のいずれにおいても50nm以下のナノ粒子の排出増加が認められた。通常観測される減速時だけでなく加速時にも認められることから、尿素SCRシステムからの生成粒子の可能性も考えられる。特に、10nm以下の粒子排出が顕著に認められ、超微小粒子の生成と粒径分布測定器の粒径精度の妥当性を含めた詳細な検討が必要である。

5. まとめと今後の展望

新長期規制達成レベルの尿素SCRシステム装着車両における粒子数基準での粒子状物質の排出挙動を調べた結果、以下の結論を得た。

- (1) 尿素SCRシステムのみでの装着車では重量基準のPM規制を満たすものの加速・減速時には凝集モード粒子が通常のDPF装着

車に比べ高いピーク粒子数濃度で排出される。

- (2) Idling 条件では凝縮モード粒子に比べナノ粒子の排出濃度が高い。
- (3) 定常運転からの減速時、過渡モード試験の減速時に、凝集モード粒子が多く排出される。燃焼起因の粒子とは考えにくく、尿素SCRシステム又は排気系に起因する粒子と考えられる。

従来の粒子排出挙動とは異なる尿素SCRシステム特有の排出挙動が見られることから、粒子生成機構を含めた詳細な研究が今後必要であると考えられる。

6. 参考文献

- 1) http://www.mlit.go.jp/kasha/kisha03/09/091218_.html
- 2) 国土交通省HP, 尿素SCRシステム技術検討会の設置について, http://www.mlit.go.jp/kasha/kisha03/09/091218_.html
- 3) 唐澤正宜、SPMの挙動解析、豊田中央研究所R&Dレビュー、Vol.35 No.1 (2003.3)
- 4) 後藤雄一、連続再生式DPFを装着したディーゼル機関におけるナノ粒子排出挙動に関する研究、2003年交通安全環境研究所発表会、(2003.12)

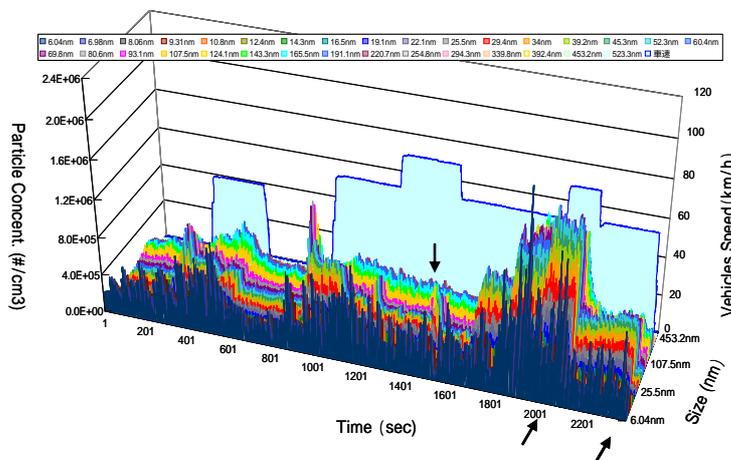


図6 D13モード運転時の粒径分布

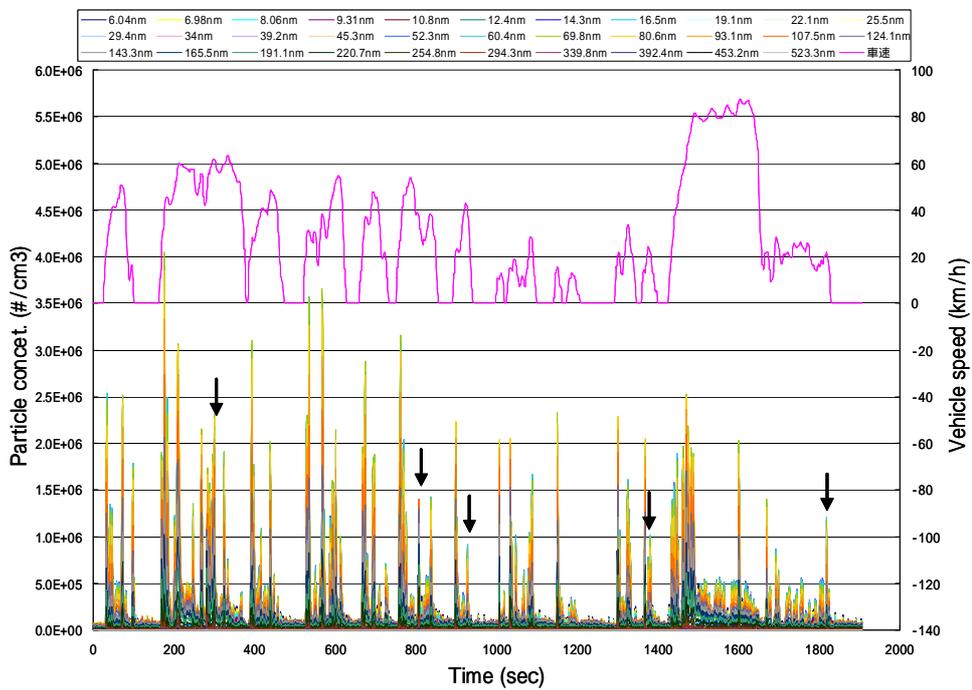
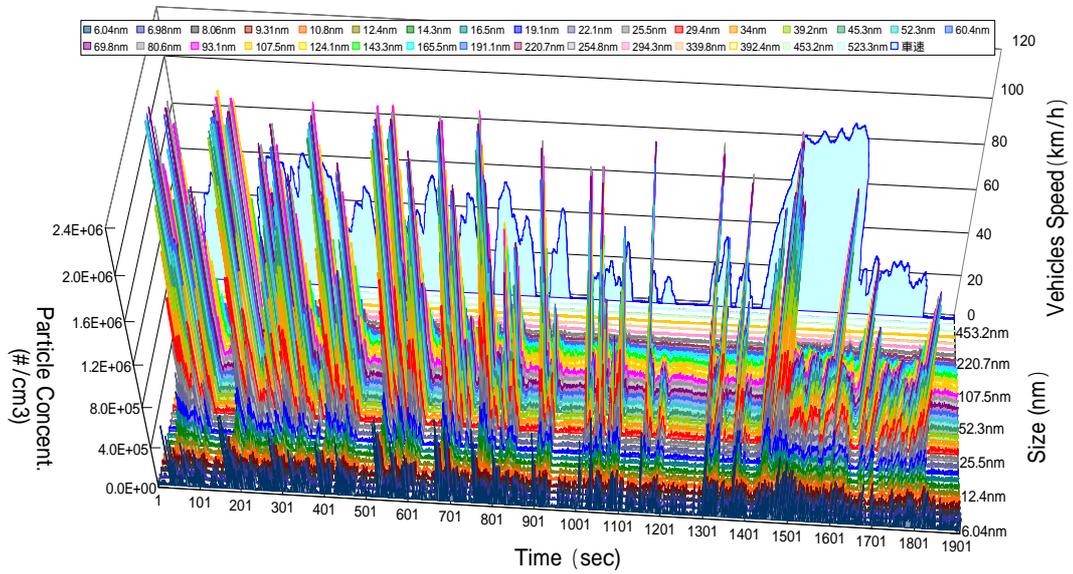


図7 JE05 モード運転条件における粒径分布

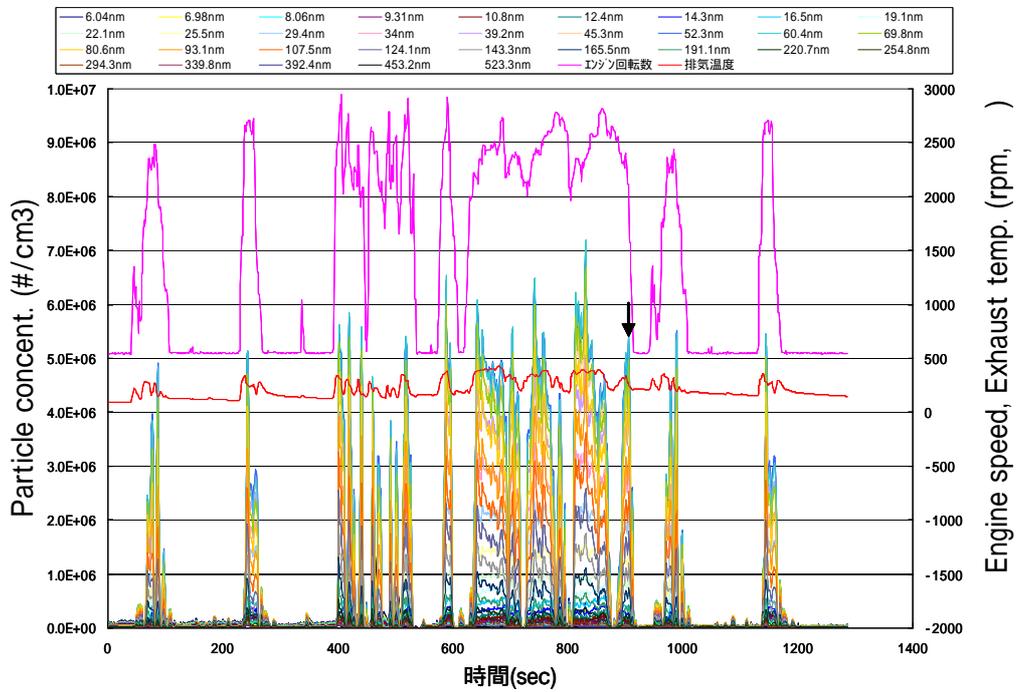
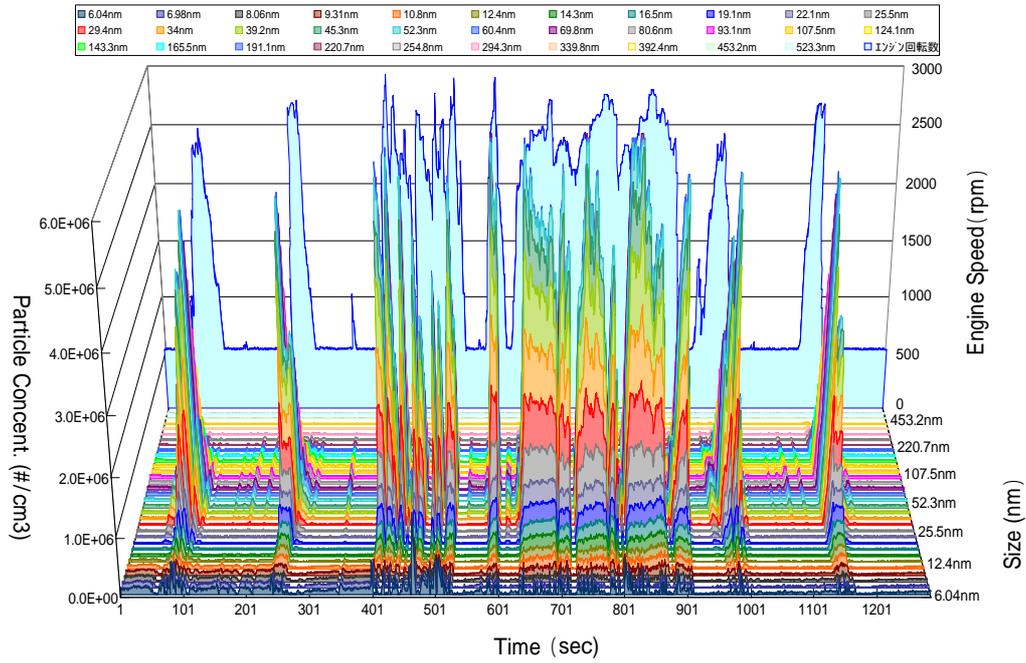


図8 FTPモード運転条件における粒径分布

