

6. 使用過程尿素 SCR 車の排出ガス性能と 実環境改善に向けた課題

環境研究領域 ※鈴木 央一 石井 素 酒井 克治 藤森 敬子

1. はじめに

ディーゼル機関の現在および将来に求められる低環境負荷化に向けて、尿素水を使用した NO_x 選択還元触媒システム（以下、「尿素 SCR」という。）は、NO_x 低減後処理システムの一つの主流といえる。排気ガス中に燃料以外のものを添加するという意味で、従来なかったものであり、新たな技術基準の制定が求められた。しかしながら、さまざまな環境で使用された場合の性能維持方策等については、知見が不十分なところがあり、早急な基準策定は困難な面があった。現在、国土交通省自動車交通局では、尿素 SCR 車が満たすべき「尿素選択還元型触媒システムの技術指針」（以下、技術指針）を示し、それに基づく形で審査等を実施している。最初の尿素 SCR 車が市販開始されてから約3年が経過し、2007年3月で約2万台が実用に供されている。未だ長期間使用後の状態等を把握できるまでには至っていないが、現実の尿素 SCR 車を測定調査することが可能な環境となってきた。そこで、使用過程にある尿素 SCR 車について試験を実施し、実際に運用されている状態での排出ガス性能を把握することとした。それにより、今後尿素 SCR 車が、より確実に低排出ガス性を維持していく方策のための知見を得ることを試みた。

2. 実施した試験概要

使用過程にある諸元の異なる5台の尿素 SCR 車について、JE05 モードを中心とした排出ガス測定試験を実施した。うち1台については、SCR 触媒の一時的な機能低下とみられる症状による排出ガス悪化が観察された。そうした悪化が、一般的な使用状況で容易に起こりうるものか検証試験を行った。その際には、NO_x などの規制成分の他に、アンモニア排出についても計測することで、現象解析の助けとした。ま

た、PM 排出率については、積算走行距離との相関が見られた。その一般性について、オパシメータによる PM 汚染度試験結果を参考にして解析を行った。

3. 試験設備と供試車両

3. 1. 試験設備など

測定試験は、すべて実車両をシャシダイナモに設置して実施した。排出ガス測定は CVS 法およびフルダ伊利ューシオントンネルを用い、排出ガス測定評価設備等については JE05 モード試験法に準拠したものを使用した。エンジンベンチを対象とする JE05 モードをシャシダイナモで実施するにあたっては、「シャシダイナモメータによる JE05 モード排出ガス測定方法（国自環第 280 号平成 19 年 3 月 16 日付）」を採用した。一部の試験については、その通達前に実施した関係で調整運転等がやや異なる。ただし、同時測定した排気管出口温度等の差は十分小さく、NO_x 排出性能は同等であることを確認している。シャシダイナモ試験では、エンジンベンチ試験とのさまざまな状態の違いから、尿素 SCR 車に限らず排出ガス評価値が高めに出る傾向がある。ただし、定量的にどれだけ高くなるかは、一般則といえるものが存在しないため、今回それについて補正等は行っていない。

アンモニア (NH₃) および亜酸化窒素 (N₂O) 排出については、フーリエ変換式赤外分光計 (FTIR、堀場製作所 MEXA-4000FT) を用いて測定を行った。

3. 2. 供試車両について

試験車両の諸元を表 1 に示す。すべて尿素 SCR を搭載した重量車である。車両 A、B は走行距離の異なる一般運送会社のトラックである。車両 C も同様だが、この車両のみ製造者が異なっている。車両 D、E は車種の異なるものであり、車両 D は都市内走行のみを行う路線バス、車両 E は海上コンテナ等の輸送に

携わるトラクタである。適合排出ガス規制は、5台とも新長期（'05）規制だが、車両CはそれよりNOx、PMともに10%減の低排出ガス認定を受けている。

このほか、無負荷急加速（フリーアクセル）時PM汚染度測定試験に関しては、平成18年度に実施したオパシメータ導入に向けた測定調査（品川、札幌車検場および都内運送事業者にて実施）にて、多数の車両を試験した結果を使用した。

表1 試験車両諸元

識別記号	A	B	C	D	E
エンジン型式	GE13	GE13	6M70	MD92	GE13
吸排気系統	TCL EGR	TCL EGR	TCL EGR	TCL EGR	TCL EGR
排気量 L	13.1	13.1	12.8	9.2	13.1
最高出力 kW/rpm	257/1800	302/1800	265/2000	221/2000	331/1800
燃料噴射システム	Unit injector	Unit injector	Common rail	Common rail	Unit injector
車両総重量 kg	21980	24980	24850	14905	37200
試験時走行距離 km	4925	50100	8900	56300	44800
車体形状	Cargo	Cargo	Cargo	Local bus	Tractor
適合排ガス規制（年）	'05	'05	'05(☆)	'05	'05

4. 実験結果と考察

4. 1. 基本性能

4. 1. 1. NOx、PM 排出について

まず、実際に稼働している状態での排出ガス性能調査として、試験車両が持ち込まれた状態（以下、「実使用状態」という。）でJE05モード試験を行った。

図1に、各車両の実使用状態におけるJE05モードでのNOx、PM排出率を示す。車両B~Dにおいてやや高い排出となっているが、これは車両としての性能の他に、シャシダイナモ上で実施したことによる要因を含んでいる。車両による違いについては4. 3項にて解析を行う。それに対して、車両Eでは、車両や試験条件の差などのレベルを大きく上回るNOx、PMの排出悪化がみられた。この要因については、他の車両とは異なる原因があるとみられ、4. 2項で解析を行うこととする。

4. 1. 2. アンモニアスリップについて

図2に、各車両のJE05モードにおけるアンモニア平均排出濃度を示す。特異的な排出ガス悪化がみられた車両Eにおいて、非常に高い排出がみられた。このことは、この車両のNOx増加が、尿素水添加系に関する問題によるものではなく、尿素水は添加されているものの、触媒等に問題があってアンモニアがNOx浄化に使用されていないことを示すものである。残る4台については、すべて平均20ppm以下となっており、人体影響面からみて十分に低い。ただし、車両A、Bと比較して、車両C、Dは1ppmレベルのとくに低い結果となった。

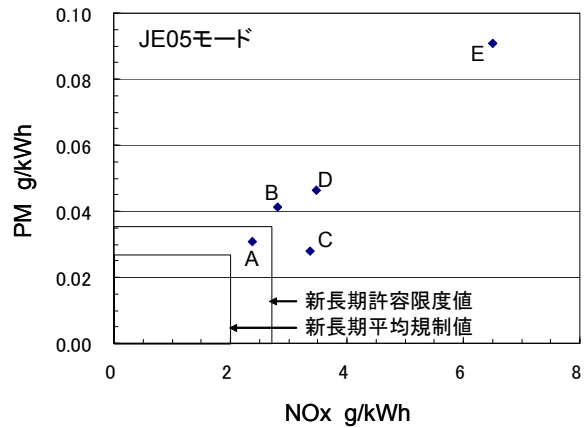


図1 各車両の実使用状態におけるNOx、PM排出率

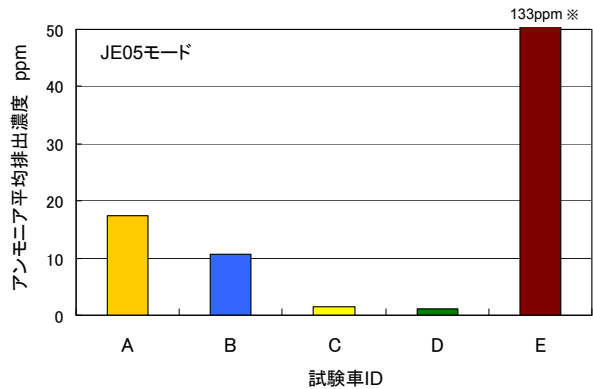


図2 各車両におけるアンモニア平均排出濃度

※ 測定レンジ（200ppm）をオーバーした部分があり、実際はもっと高い値になる

4. 2. 排出ガス大幅悪化要因とその回復について

E車において、著しい排出ガス悪化がみられた。こうした悪化に至るには、使用状況、整備状況など使用者側に依存する課題も影響した可能性があり、車両側によらない多くの要素が影響しているとみられる。したがって、試験車の測定結果のみからその全体を明らかにすることは困難である。しかし今後、より安定した排出ガス抑制を確保していくにあたり、部分的なものに限られるにせよ、悪化原因の解析は必要といえる。このNOx増加について、高い可能性を有する要素として、ハイドロカーボンによるSCR触媒の被毒（以下、「HC被毒」という。）が挙げられる。それについては、欧米の論文等で取り上げられている例¹⁾、²⁾がある。

今回の試験車はすべてSCR触媒としてゼオライト系のものを使用している。ゼオライト系触媒では、とくに低温でアンモニアを吸着することで、アンモニアとNOxの接触機会を増やし、NOx浄化率向上を図っ

ている。この吸着能力を生かして、例えばガソリン車における冷始動時のHCを吸着・低減する目的でゼオライト系触媒が使用されることがある。したがって、SCR触媒においても、HCが大量に存在すると、それを吸着するため、アンモニア吸着能力が低下し、結果としてNOx浄化能力が低下する。こうした触媒の性能低下をHC被毒としている。HC被毒は触媒そのものを劣化させるものではなく、触媒を高温にするなどして吸着したHCを除去すれば機能は回復される、いわば一時的な劣化である。

ディーゼル機関では、燃焼によるHCの排出は低いことに加え、尿素SCRシステムでは、SCR触媒前段に酸化触媒を装備していることから、通常の使用状態において、大量のHCがSCR触媒に入り込むことは考えにくい。しかしながら、例えば長時間アイドルングを行った場合、排気温度が低いため、前段酸化触媒は活性状態にならない。その上、温度が低いと尿素水添加も行われなため、アンモニアが供給されないままHCのみが触媒に入り込むことになる。アイドル時のHC排出は多量とはいえないが、長時間その状態が連続すると被毒に至る可能性が否定できない。そこで、車両B、Cにおいて、15時間以上の連続アイドルングを実施した後排出ガス測定を行うこととした。

図3は、長時間アイドル後と、その状態で試験を行った後に回復運転を実施した後の、JE05モードにおけるNOx、PM排出率変化を示したものである。試験モードはJE05モードであるが、温度条件を合わせつつ被毒状態を確認する必要があることから、調整運転を省き、事前運転後に測定運転を実施して評価を行った。また、被毒試験後、機能回復のため、中速エンジン回転で80%以上の負荷率にて20分以上の定常運転（以下、「回復運転」という。）を行い、再度JE05モード試験を行った。試験結果から、15時間程度の連続アイドルングによるHC被毒でNOxは1.3~1.5倍に増加した。ゆえに使用状況によっては、比較的短期間のうちにNOx浄化性能が大幅に低下する可能性があるといえる。このような被毒状態が継続的に起きて悪化が蓄積したことが、車両EにおけるNOx等の大幅悪化をもたらした一つの原因とみられる。そしてこれらのNOx増加は、回復運転を実施することで大幅に改善される。車両Eにおいても、回復運転後は車両BやCと同等レベルにまで改善し、あわせてPMも改善した。PM改善に関しては、SCR触媒以外に前

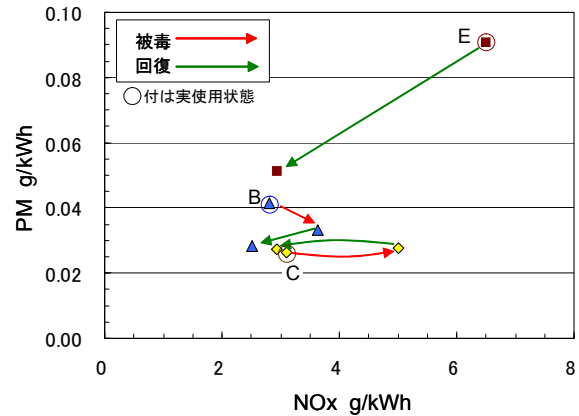


図3 HC被毒によるNOx悪化と回復運転による性能回復（車両B、Cの被毒は約15時間のアイドルによる）

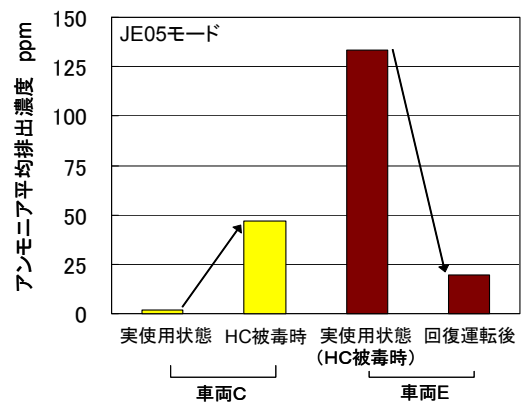


図4 HC被毒時のアンモニア平均排出濃度

段酸化触媒についても付着物等による機能低下があったと推測される。この前段酸化触媒の機能低下は、車両BやCでのHC被毒再現試験では起きておらず、より長期的、継続的な要因によるものと考えられる。

また、車両Bにおいても、回復運転後のNOx排出率が実使用状態と比較して10%以上低減し、PMについても減少する傾向が見られた。このことは、車両Eのみならず、車両Bにおいても小幅ながらHC被毒が進行しつつある状態で使用されていたことを示唆するものといえる。

前記で、HC被毒によるNOx浄化性能劣化要因として、アンモニア吸着能力が低下することを挙げている。その状況を示すものとして、車両C、EにおいてHC被毒の有無におけるアンモニア平均排出濃度の違いを表したものが、図4である。車両CにおいてHC被毒状態とした場合には、アンモニア平均排出濃度が大幅に上昇した。これはHC被毒によりSCR触媒のアンモニア吸着能力が低下したためと考えられる。ま

た、車両 E において観察された高い濃度のアンモニア排出は、回復運転を行うことで大きく減少した。

以上より、今回の試験における車両 E でみられた著しい排出ガス悪化要因は、それに至る過程は明らかでないが、結果として HC 等の付着（被毒）により、SCR 触媒の NO_x 浄化性能が低下していたことが主要な一因と思われる。ところが、現在こうした排出ガス悪化状態を検出、通知、回復することは行われていない。現状では、こうした事態が頻出するとは考えにくいですが、この点についてはさらなる調査が必要である。また、その結果によっては、大幅な悪化状態を検出あるいは防ぐ手段の導入が検討されていくべきであろう。

4. 3. その他の排出ガス変動要因

E 車以外の一般的な状態にあるとみられる車両においても、NO_x、PM 排出率に少なからずばらつきがある。その可能性の一つとして、継続使用することによる影響を調査することとした。図 5 は、試験車両の走行距離に対する各車両の NO_x および PM 排出を示したものである。いずれも走行距離の大きい車両ほど高くなる傾向を示すが、その相関係数は大きく異なる。相関係数の低い NO_x については、むしろ走行距離よりも、車両自体の要因による部分が大きいといえる。よって、NO_x 排出変動については、個々の車両側における要因、PM については積算走行距離に着目して解析を行うこととした。

4. 3. 1. NO_x 排出を変化させる要因

尿素 SCR では、実際に NO_x 還元に参加するのはアンモニアであり、NO_x 浄化性能の上限は、「アンモニアの量」と、「十分な反応速度が得られるだけの（＝活性）温度」があるか、に依存する。図 2 に示したアンモニア平均濃度において、比較的 NO_x 排出の高い C 車、D 車でアンモニア排出が低い。このことは、温度条件もさることながら、尿素水添加量が確保されていなかった可能性も示唆する結果といえる。

図 6 に実使用状態で JE05 モードを実施したときの、排気管出口平均温度を示す。車両 E でやや温度が低くなっているが、これは触媒を内蔵したマフラーから排気管出口まで 2m 以上もあることによるもので、触媒温度は他と同等であるとみられる。他の車両についても排気管形状等の違いがあり、全く対等な比較といえない部分はあるが、やや NO_x の高かった車両 C、D において、他より温度が低かったとはいえない。したがって、NO_x 浄化率を決める前記 2 つの要因のう

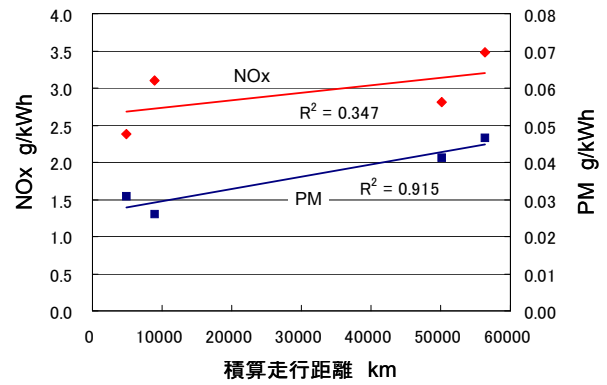


図 5 試験車の積算走行距離に対する NO_x、PM 排出率の変化

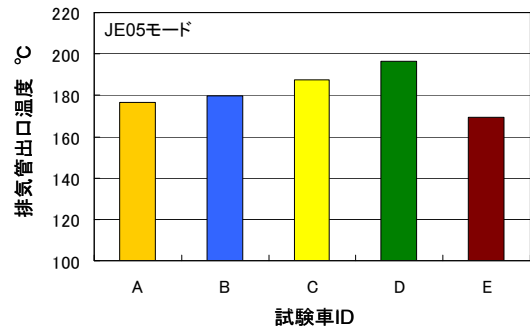


図 6 実使用状態における各車両の JE05 モードでの排気管出口平均温度

ち、低い触媒温度が制約条件であったとは考えにくいといえる。一方、尿素 SCR 車では、触媒温度が低いと NO_x 浄化が進行しにくいために、ある閾値温度以下では尿素水添加を停止する制御が行われる。そのため、触媒温度の検出が変化すると、尿素水の供給量に変化することになる。そこで、低排出ガス認定車ながら NO_x がやや高い値を示した車両 C について、触媒入口温度を検出する温度センサー（サーミスタ）を交換して試験を行った。比較用に、車両に搭載されていたものの他、2 つの温度センサーを用意した。販売店より購入したものを交換部品 A、メーカーより直接入手したものを同 B と記載する。

温度センサー交換による JE05 モードの NO_x 変化を図 7 に示す。図より、JE05 モードにおいて、最大 10% を超える NO_x 排出率の違いがみられた。この試験での CO₂ 排出率差は最大で 1.5% 未満であり、この NO_x 排出率の差は、有意な差といえる。温度センサーの違いにより、実際に供給される尿素水の量に変化したと予想される。JE05 モードでは、SCR 触媒の活性温度下限近傍を多く使用するため、その付近の温度センシングが多少ずれて尿素水添加の有無が変化する

ると、全体の NOx 排出にかなりの影響を及ぼしうることがわかる。したがって、仮にこうした温度センサーが劣化して性能が変わるようなことがある場合には、それをチェックする機構がないと、新車レベルの NOx 排出性能を維持できない可能性がある。

だが、最も NOx が低減した温度センサーであっても、車両 C の NOx 排出は基準値 (1.8g/kWh) よりかなり高い。その要因は明らかではない。ギア比や変速時間など変速機に関してエンジンベンチ試験と違いがあり、それらが尿素水添加制御に影響を及ぼしていると推測される。今後さらに制御が複雑化、高度化すると、個別の車両特性や周囲環境などの違いが、排出ガス性能に、より大きな影響を及ぼす方向に行く可能性がある。

4. 3. 2. PM 排出に関して

PM 排出について、今回の試験車でもっとも走行距離の長い D 車に着目して解析を行った。

図 5 において走行距離と PM 排出との相関を示したが、データ数および走行距離の大きい車両のデータが不足している面は否めない。そこでデータ数等を補う観点から、PM 排出を直接示すものではないが、オパシメータを用いた無負荷急加速 (フリーアクセル) 時 PM 汚染度測定試験の結果を用いることとした。

図 8 は、測定車両の走行距離と無負荷急加速試験におけるオパシメータ測定値の関係を示している。赤で示す尿素 SCR 車に加え、青で DPF を持たない新短期 3 ☆ (PM75%低減) 車の結果を示した。尿素 SCR 車では、4 万キロ近く走行してもゼロを示すものがあるなど、かなりばらつきはあるが、走行距離の大きな車両ほどオパシ測定値が高くなる傾向を示している。なお、1 万キロ以下でオパシ測定値の高いものは、概ね走行頻度の低い車両であり、走行距離による増加と別の理由によるとみられる。その中で D 車は尿素 SCR 車両中最大値を示している。PM 排出がやや高い値を示した車両 D だが、この結果を見ると、一般的な使用状態にある尿素 SCR 車の中においても PM 排出が最も高い部類になると予想される。重要な問題は、この車両の走行距離がさらに伸びた場合に、PM 排出が増加し続けるかという点である。それを予測する参考として、新短期 3 ☆車のオパシ測定値も併せて示した。それらは、DPF を持たない低 PM 排出車であり、PM 中の SOF 等を酸化触媒にて浄化する点で尿素 SCR 車と合致する点があるからである。その新短期

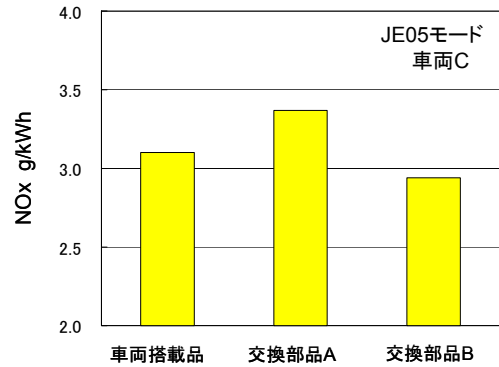


図 7 温度センサーを交換した場合の JE05 モード NOx 排出率変化

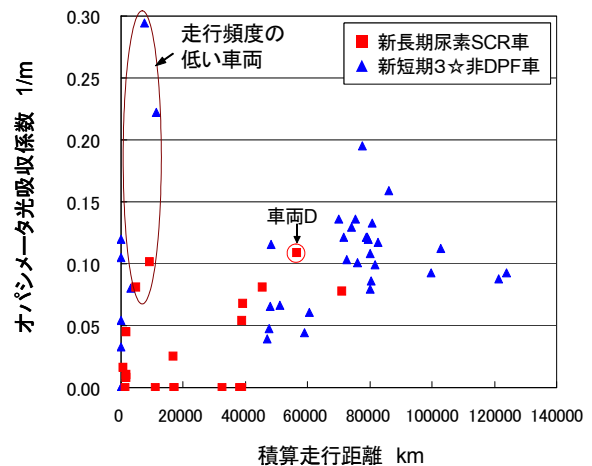


図 8 積算走行距離に対するオパシメータを用いた無負荷急加速試験 PM 汚染度

3 ☆車のオパシ測定結果をみると、走行距離が 6 ~ 8 万キロで極大値を示し、10 万キロ以上走行しているものでは、同等かやや減少している。したがって、耐久劣化が問題となる 100 万キロを超えるような場合は別として、今回 5 万キロ走行レベルであった試験車が 10 万キロ超の走行距離となっても、著しく PM 排出が増加する可能性は低いと予想される。したがって、通常の使用過程における悪化レベルのほぼ上限が車両 D のレベルであると予想される。

5. 今後の検討事項

これまで述べてきたとおり、触媒の被毒あるいは温度センサーの劣化等により、NOx 等排出ガスの大幅悪化が起こりうることから、これらの検出、あるいは回復制御といった事柄について今後議論が望まれる。

一方、昨今では排出ガスのみならず地球温暖化防止の観点からの評価について重要性が高まっている。温暖化物質の中心となる CO2 抑制については、燃費基準が制定されたが、他の温暖化物質である亜酸化窒素

(N₂O) などについて、自動車に関して抑制を図る政策は現在行われていない。N₂O は地球温暖化係数が310 (CO₂ の310 倍) と高いことから、排出量は少なくても、変動が大きいとその影響は無視できない。自動車における N₂O 排出のほとんどは、触媒等後処理装置で生成されるため、従来のディーゼルエンジンでは、排出が十分低いレベルであった。だが、NO_x 後処理装置の普及により状況が変わる恐れがある。

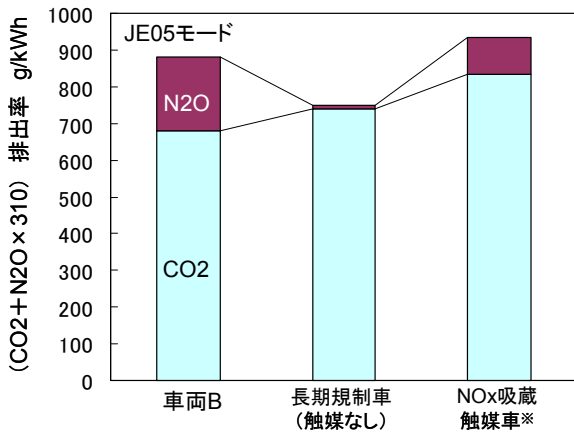


図9 JE05モードにおけるCO₂および310倍(地球温暖化係数)したN₂O排出率

*他の2台より小型であるためCO₂排出率比較の際は注意

図9は、地球温暖化負荷を比較するものとして、JE05モードにおける、CO₂と310を乗じたN₂O排出率を合わせて示したものである。尿素SCR車として、最もCO₂排出率の低かった車両Bを採用し、比較のため後処理装置のない同等重量クラスの長期規制適合車、NO_x吸蔵還元触媒を搭載する新短期規制適合車の値も掲載した。触媒なしの車両では、N₂Oの地球温暖化効果はCO₂の1%レベルであり、CO₂排出がほぼ温暖化負荷そのものを指すといえた。車両Bでは、CO₂に関しては、多段自動変速機の導入などエンジンのみならず車両も含めた技術改善により、長期規制車から大幅に低減する結果となった。しかしながら、N₂O排出が、CO₂の30%近い温暖化負荷をもたらし、結果として総合的な温暖化負荷は約20%増加した。ただし、これは尿素SCR車に限った課題ではなく、NO_x吸蔵触媒車でもN₂O排出がCO₂の10%を超える温暖化負荷をもたらす結果であった。

CO₂排出については、1%レベルの増減が非常に重大な問題となる。そうした中、亜酸化窒素による温暖化効果がCO₂の10~30%といったオーダーで影響す

ることは、燃費改善等の努力を損なうものである。したがって、今後は亜酸化窒素も含めた「地球温暖化影響度」的な評価を考慮していく必要があるだろう。

6. まとめ

使用過程状態にある5台の尿素SCR車について、排出ガス測定試験を行った。結果を以下にまとめる。

1. 今回試験を行った5台のうち1台は、NO_x、PMともに従来の試験から想定されない高いレベルの排出がみられ、アンモニア排出も高かった。この悪化原因の一つとして、ヒドロカーボン(HC)による触媒被毒があったとみられる。
2. 通常の排出ガスレベルの車両においても、15時間の連続アイドリング後では、NO_x排出が1.3~1.5倍に増加したことから、HC被毒は比較的短期間で起こりうるものであることがわかった。現在では、そうした被毒を検出したり、自主的に回復する機構は持っていないことから、今後対策の検討が望まれる。
3. PM排出について、今回の試験結果では、5万キロ走行レベルの範囲で、積算走行距離の増大とともに増加する傾向がみられた。しかし、フリーアクセルPM測定試験の結果から類推して、6~8万キロ走行以降は概ね悪化しないとみられる。
4. 亜酸化窒素排出が増加し、温暖化負荷が従来車の約20%増加する例が観察された。CO₂以外の成分も含めた温暖化に対する総合的な評価を考慮していくべき段階になりつつある。

おわりに

今回使用した試験車両は、すべて異なる運送事業者等の所有するものであり、それらを借用するにあたっては、多くの関係各位に多大な協力を得た。この場を借りて謝意を表す。

参考文献

- 1) Bob Hammerle et. al, "Urea SCR and DPF System for Diesel Sport Utility Vehicle Meeting Tier 2 Bin 5", DEER Conference, 2004
- 2) Giovanni Cavataio et. al, "Laboratory Testing of Urea-SCR Formulations to Meet Tier 2 Bin 5 Emissions", SAE paper 2007-01-1575