

ディーゼルエンジン用複合脱硝 システムに関する調査

EGRと脱硝触媒反応器との
複合システムの開発

平成5年度
—
平成10年度

A STUDY ON A HYBRID DENOX SYSTEM FOR
REDUCING DIESEL NO_x EMISSION

The development of the hybrid
between EGR and DeNO_x
catalytic reaction vessel

1993-1998



公害健康被害補償予防協会

THE POLLUTION-RELATED HEALTH DAMAGE COMPENSATION AND PREVENTION ASSOCIATION

目 次

はじめに

要 約	4
Abstract	5
口絵	9

I 調査研究の概要

I-1 調査研究の目的	15
I-2 調査研究期間と体制	16
I-3 調査研究の対象と方法	16
I-4 研究結果の概要	17
I-5 総括	21

II 調査研究の結果

II-1 脱硝触媒の改良	25
1. 開発触媒の性能	25
(1) ディーゼルエンジン排出ガスによる耐久試験	25
2. 触媒性能改良の試み	27
(1) 触媒改良（金属の複合化）	27
(2) 触媒改良（高温活性への改善）	30
(3) 脱硝触媒の高温活性化と作用温度範囲の拡大	35
(4) 脱硝触媒の選定	38
II-2 複合脱硝システムの基本理念の検討	38
1. EGRによるNO _x 低減	38
(1) EGRの必要性	38
(2) EGRの排気特性への効果	39
(3) EGRによるエンジン部品の摩耗	41
(4) EGRによる潤滑油性状への影響	41

目 次

2. 複合脱硝システムによるNO _x 低減のケーススタディ	45
(1) EGRと脱硝触媒との組み合わせケース	45
(2) 推定方法	45
(3) 推定結果	45
(4) まとめ	47
3. 複合脱硝システムの基本仕様	47
(1) 基本仕様のコンセプト	47
(2) EGRシステムの構造と制御	47
(3) 電子制御式燃料噴射装置付きエンジン	47
(4) EGRと脱硝触媒の適用範囲および概念図	51
(5) 複合脱硝システムの基本仕様	51
II-3 ディーゼルエンジン複合脱硝システム試験装置の製作	52
1. ディーゼルエンジンの選定	52
2. 試験装置の製作	54
3. エンジン性能と排気特性の確認	58
(1) エンジン性能	58
(2) ディーゼル13モード運転	59
II-4 複合脱硝システムの要素技術の性能確認試験	62
1. EGRによるNO _x 低減	62
2. 脱硝触媒反応器によるNO _x 低減	67
3. 複合脱硝システムによるNO _x 低減性能の確認	67
4. 低温排出ガスの触媒性能に及ぼす影響	73
5. エンジン排出ガス中のSO ₂ と粒子状物質(PM)の検討	75
(1) 模擬排出ガスによる脱硝触媒通気後のSO _x 挙動検討	75
(2) エンジン排出ガスによる脱硝触媒通気前後のSO _x 挙動検討	78
(3) 脱硝触媒に捕集された黒煙の挙動検討	80
6. 軽油還元剤供給法の確認試験	84
II-5 複合脱硝システムの性能実証試験	93
1. 複合脱硝システムによるNO _x 低減技術の実証	93
2. 脱硝触媒反応器前後における粒子状物質(PM)の挙動検討	97
3. 複合脱硝システムの総合評価	100
(1) 軽油還元剤の供給法	100
(2) EGRと脱硝触媒反応器の組み合わせ	100

目 次

4. 複合脱硝システムの実車搭載の検討	101
(1) 複合脱硝システムの運転制御	102
(2) 燃費低減	102
(3) 触媒反応器	102

I-1 調査研究の目的

(4.5g/kwh) の25%～50%削減

粒子状物質：ディーゼル13モードで試験エンジンに対して30～40%削減（粒子状物質の目標性能は、スモークメータによる黒煙濃度比とする。）

ディーゼルエンジンは熱効率が高く、またCO₂発生量が少ないなど環境に対して好ましい点があるが、その反面、NO_xや粒子状物質（PM）の排出量が多いという問題がある。中央公害対策審議会（中公審）の答申（平成元年）により、ディーゼルエンジンを対象とした長期規制（NO_x 4.5g/kWh）が平成10年から実施されているが、将来的な自動車の増加を考慮すると、大気中のNO_x濃度を低減するには、自動車のNO_x排出量をさらに低減する必要がある。また、浮遊粒子状物質のディーゼル微粒子による割合が大きいことからその規制強化も実施される。

本研究では、ディーゼルエンジンのNO_x排出量を長期規制値よりさらに25～50%低減化すると同時に、PMをも低減化することを狙い、排出ガス再循環（Exhaust Gas Recirculation EGR）と脱硝触媒反応器を組み合わせた複合脱硝システムをエンジン性能試験装置（エンジンダイナモ）上に構築し、中低負荷域はEGR、高負荷域は脱硝触媒反応器で運転することにより、全運転領域にわたりNO_x低減を目指すシステム技術を確証することを目的とした。

ディーゼルエンジン用複合脱硝システムの開発目標は下記のとおり設定した。

《開発目標》

試験条件

エンジン：平成6年度規制適合直接噴射式ディーゼルエンジン

燃料：低イオウ軽油 (S<0.05%以下)

還元剤：低イオウ軽油 (S<0.05%以下)

空間速度：20,000hr⁻¹以上

目標性能

脱硝率：ディーゼル13モードで長期排出規制値

I-2 調査研究期間と体制

I-3 調査研究の対象と方法

(1) 調査研究期間

平成5年～平成10年度

(2) 調査研究の実施機関

財団法人 産業創造研究所

柏研究所 〒277-0861 千葉県柏市高田1201

電話 0471-46-0011

本 部 〒277-0861 東京都文京区湯島

1-6-8

中央自動車ビル

電話 03-5689-6356

(3) 調査研究の担当者

総括責任者：熊谷 幹郎

実行責任者：勝田 晨陸

(4) 研究体制

複合脱硝システム性能試験を円滑に実施するためには検討委員会を設置した。委員は下記のとおりである（敬称略、順不同）。

（委員）

座長 永田 勝也 早稲田大学理工学部 教授

委員 大聖 泰弘 早稲田大学理工学部 教授

委員 菊田 一雄 菊田環境計画事務所 所長

1. 脱硝触媒の改良（平成5年～平成8年度）

複合脱硝システムの重要要素である脱硝触媒の性能を改良する。

（1）開発触媒の性能

エンジン排出ガスによる耐久試験

（2）触媒性能改良の試み

触媒改良（金属の複合化、高温活性への改善）

脱硝触媒の高温活性化と作用温度範囲の拡大

2. 複合脱硝システムの基本理念の検討 (平成5年～平成7年度)

後処理以外の排出ガス低減技術のうち、低減効果の高いEGRと脱硝触媒を組み合わせたシステムについて、その効果と問題点を検討する。

（1）EGRによるNO_x低減効果

（2）NO_x低減化のケーススタディ

（3）複合脱硝システムの基本仕様

3. 複合脱硝システム試験装置の製作 (平成8年度)

試験装置用ディーゼルエンジンを選定し、エンジンダイナモ装置に設置し、EGRシステムと脱硝触媒反応器を組み込んだ複合脱硝システムを構築する。

（1）ディーゼルエンジンの選定

（2）試験装置の製作

(3) エンジン性能の確認と排気特性

4. 複合脱硝システムの要素技術の確認試験
(平成9年～平成10年度)

EGRによるNO_x低減効果、軽油還元剤供給および脱硝触媒反応器によるNO_x低減効果等の要素技術の確認試験を行う。

- (1) EGRによるNO_x低減
- (2) 脱硝反応器によるNO_x低減
- (3) 複合脱硝システムによるNO_x低減性能の確認
- (4) 低温排出ガスの触媒性能に及ぼす影響
- (5) エンジン排出ガス中のSO₂と粒子状物質(PM)の検討
- (6) 軽油還元剤供給法の確認試験

5. 複合脱硝システムの性能実証試験
(平成9年～平成10年度)

要素技術の確認試験を踏まえ、脱硝システムの性能実証試験を行う。また排出ガス中のSO₂挙動や脱硝触媒によるPM(黒煙)燃焼挙動を調べる。

- (1) 複合脱硝システムによるNO_x低減技術の実証
- (2) 脱硝触媒反応器前後におけるPMの挙動
- (3) 複合脱硝システムの総合評価
- (4) 複合脱硝システムの実車搭載への検討

I-4 研究結果の概要

本研究では、これまでに酸素過剰雰囲気のディーゼルエンジン排出ガス中NO_x除去法として、水素化ゼオライト触媒や金属酸化物触媒と、燃料などの炭化水素類を還元剤とした新脱硝法(NO_x選択還元法)を提案し、より高活性な触媒の開発とその改良を行ってきたが、活性温度や耐久性などの課題も多く残り、本調査研究中もその改良を継続して実施した。

1. 脱硝触媒の改良 (平成5年～平成8年度)

これまでの触媒研究により、ディーゼル車の全運転領域に対して脱硝触媒だけでNO_xを削減することが困難であることがわかった。その原因是低負荷領域は排気温度が低く(300°C以下)、還元剤として軽油燃料が使用しにくいことが最大の要因であった。そこで、脱硝触媒を中心に常時エンジン排気ガス環境に適合すべき触媒改良や他の低減技術との複合化を検討した。

(1) 脱硝触媒の高温活性化と作用温度範囲拡大の検討とその改良

当初、脱硝触媒の開発研究は低温活性とSO₂劣化防止を中心に対応した。触媒性能は軽油還元剤のとき、脱硝率が40%以上(SV=20000/h, 450°C)に達し、またSO₂劣化は5%以内まで改善することができた。しかし、複合システムに用いる触媒は主に高負荷域の使用が中心になるため、高温活性型触媒の検討を行った。

その結果、排出ガス温度500°C以上(450~600°C)の初期脱硝率が40~45%(軽油還元剤)、また50時間耐久試験後の脱硝率も初期脱硝率と同等であり、ほぼ目標値(脱硝率40~50%, SV=20,000/h)に達した。

ただし、実車への搭載を考慮した場合、排気マニホールドの近傍に触媒反応器を設置することは車体構造上好ましくないことから、400～550°Cの排気温度で使用可能な触媒反応器の候補として、高温型触媒と中低温型触媒（1：1）を均一混合した反応層で試験したところ、50時間耐久後の脱硝率は42%（450°C）であった。また高温型触媒、中低温型触媒の順に充填した2層反応器の脱硝率は49%であった。両者を比較すると混合型反応器のほうがWindow（触媒作用範囲）が広く、また高活性であり、目標値も達成した。さらに、コバルト触媒に第2金属を添加した高温型触媒の改良は、第2金属塩類としてVb族金属塩（V, Nb, Ta）を担持して調製したところ、脱硝性能は触媒温度600～650°Cでも約40%の脱硝率を示した。

しかしながら、検討したいずれの触媒もエンジン排出ガスによる耐久試験後の脱硝率が低温域（350°C以下）で低下した。

2. 複合脱硝システムの基本理念の検討 (平成5年～平成7年度)

そこで、NO_x低減化技術のうち、EGR（排出ガス再循環）技術と脱硝触媒との組み合わせたシステムを検討した結果、両者の作動範囲を限定すれば、PMを悪化することなくNO_xを広い運転条件に対して大幅に低減できることが明らかになった。

3. 複合脱硝システム試験装置の製作 (平成8年度)

① エンジン選定と試験装置の製作

EGRおよび脱硝触媒反応器の構造と配置など複合脱硝システム試験装置の基本構造を決定した。脱硝システム試験装置の製作にあたり、長期規制適合用エンジンは開発中であったため、平成6年度規制に適合したエンジンのうち、排気温度やEGR制御性などを考慮してNAエンジン（自然吸気式）を選定した。このエンジンをエンジン性能試験装置（エンジンダイナモ）に設置し、EGRと還元剤供給システムおよび脱硝触媒反応器などを組み込んだ複合脱硝システム試験装置を製作した。

② 試験装置の性能確認と還元剤添加法の検討

エンジン回転数に対する軸出力(kW)とそのときの燃料消費量を計測し、エンジンメーカ作成の性能曲線と比較した。その結果、中高負荷域でのエンジン出力の低下、排気圧の増大およびエンジン室内温度の上昇などの問題点が見出された。

その対策として、エンジンの出力低下に対しては燃料噴射系を改良し、また、排気圧増大に関しては排気管口径を30%拡大して、かつ、曲がり箇所を50%減らしたことにより800mmAq程度まで下げた。エンジン室内の温度は吸気口の拡大と換気ファンの増設により外気温と同等レベルにした。

対策後は、エンジン回転数に対する軸出力(kW)がメーカ性能のほぼ90%を達成し、燃費(g/kWh)もメーカ公表値と一致した。また、排気マニホールド直後の排気ガス温度は450～800°Cであった。

ディーゼル13モードのNO_x、SO_x、全炭化水素(THC)、CO、CO₂、吸・排気温度、PM（黒煙）を調べた。その結果、13モード合計でのNO_x排出量は5.6g/kWhで、触媒作用範囲（モード8～12）のNO_x濃度は約400～800ppmであった。

PM（黒煙）は、中高負荷領域（モード8～12）の濃度が高く、約10～20%であった。

軽油還元剤の添加は触媒層の直前に添加する方法に加えて、安全性、供給システムの簡素化および軽油熱分解の低分子化を考慮して吸気マニホールドおよび排気マニホールドの2法を追加することと、注入口を設置した。

4. 複合脱硝システムの要素技術の確認試験 (平成9年～平成10年度)

脱硝触媒とEGRの特性を考慮すると、低中負荷域はEGR、高負荷域は脱硝触媒反応器を作動させれば、PMを増加することなくNO_xを低減できることが示唆されている。そこで、同一エンジンを用いて、EGRによるNO_x低減効果および脱硝触媒反応器による脱硝効果を実測し、合わせて両者を組み合わせてシステム化するための課題を検討した。

(1) EGR+脱硝触媒反応器を組み合わせた複合脱硝システムによるNO_xとPMの低減技術の確証試験

①エンジン中低負荷域におけるEGRと排気ガス特性の関係把握

エンジン中低負荷域（モード1～7および13）において、EGR率0, 10, 20, 30, 40%のときの排出ガス特性を調べた。分析項目は、NO_x, THC, CO, CO₂, PM（黒煙）, SO_xおよび排気温度とした。なお、PM（黒煙）は反射式スモークメータ（JIS D 8004）で測定した。

その結果、エンジン中低負荷領域（2, 3, 5, 6, 7, 13モード）におけるNO_x低減率は、EGR率が増すと大きくなるが、黒煙濃度が悪化することが確認された。黒煙排出が悪化せず、NO_x低減効果の大きいEGR率は20～30%であった。そのときのNO_x低減率は約40%であった。

②エンジン13モードにおける脱硝触媒反応器のみのNO_xおよびPM（黒煙）の低減効果

粒状触媒反応器を用いて全量処理試験を行った。その結果、中低負荷領域（EGR使用域）の脱硝率は10%以下であったが、高負荷領域（6, 7, 8, 9, 10, 11, 12モード）の脱硝率は、軽油還元剤を排気マニホールドに添加したとき、約40%であり、両者を合わせた13モードのNO_x排出量は3.4g/kWhであった。

③エンジン13モードにおけるEGRと脱硝触媒反応器の組み合わせによるNO_xとPM（黒煙）の低減効果

中低負荷領域（モード2, 3, 5, 13）はEGR、高負荷領域（モード6～12）は脱硝触媒反応器と各々単独で運転したときのNO_xおよびPM（黒煙）低減率をエンジン13モードで評価した。その結果、NO_x排出量は約40%の低減が可能との見通しが得られ、13モード排出量では3.36g/kWhであり、長期規制値（4.5g/kWh）より低かった。

④EGR運転の触媒性能に及ぼす影響

本複合脱硝システムでは、全運転領域のエンジン排気ガスが触媒層を通過し、放出される。低中負荷運転時では、脱硝触媒は触媒作用範囲外の環境に曝露されるため、触媒性能に影響を及ぼす可能性が考えられた。

そこで、小型反応層を用い、中低負荷域（EGR領域）のエンジン排出ガスを触媒層に所定時間通気した

のち、高負荷域の排出ガスを通気し、触媒性能への影響を調べた。

その結果、EGR運転時の低温排出ガス（300°C, 12時間）通気後の脱硝率は400°C以下の触媒温度の場合で約8%, 450°C以上で約3%ほどの低下がみられた。引き続き高温排出ガスに通気（500°C, 5時間）したところ、そのときの脱硝率は初期活性と同等であった。以上の結果から、EGR運転時の低温排出ガスが触媒層を通過しても触媒性能に影響がないことが判明した。

(2) 軽油還元剤添加法の確認試験

軽油還元剤の添加位置は、吸気・排気マニホールドと燃料噴射ノズルの空間容積（サックボリューム）を利用した方法の3種類を検討した。吸気・排気マニホールドへの添加は改造した添加装置を用い、排気ガス中のNO濃度に対して軽油燃料を2～3倍量（w/w）を供給し、また燃料噴射ノズルからの添加はノズル先端に4μlおよび8μlの空間を設け、そこに残留した軽油をピストンの膨張行程時にシリンダ内に吸引して排気行程で触媒層に供給した。

吸気マニホールド供給の場合、いずれのモードでも脱硝率は低く、供給した還元剤は燃焼してしまったと考えられた。排気マニホールド供給では、どの運転モードでも40%の性能が得られ、また小型反応器の脱硝率ともよく一致していた。

サックボリュームからの供給は、空間容積4μlでは、ほぼ20%の脱硝率であった。還元剤量として、排気マニホールドへの供給量と同等であるが、脱硝率は約半分になった。一方、空間容積8μlのノズルでは、脱硝率は40%であり、排気マニホールドへの供給とはほぼ同一活性を示した。

黒煙濃度は、排気マニホールド供給では、どの運転モードでも触媒反応器通過後には、低減されていた。サックボリューム供給では、両者（4μl, 8μl）ともモード9以下で増加し、モード10以上で削減されたが、モード9以下と13では白煙が多く、その量は、負荷量が小さいほど、また空間容積が大きいほど多くみられた。モード10以上では排気温度が450°C以上と高いために燃焼されたと考えられた。

以上、軽油還元剤は排気マニホールド直後に供給すれば、約40%の脱硝率が得られ、目標値を達成するが、サックボリューム供給では、シリンダー内で燃焼し、目標値を達成するためには2倍量の供給が必要であつ

た。

(3) エンジン排出ガス中のSO₂挙動とPM低減化

本複合脱硝システムでは、NO_x低減を主に検討してきた。その中でシステム運転条件によりPM（黒煙）も低減できることが示唆されたが、サルフェート生成についての知見が得られていなかった。そこで、本システムによる微粒子の低減とサルフェート生成について調べた。

触媒層通過後の排出ガスを5%NaOH水溶液トラップにバブリングさせ、SO₂およびSO₃を亜硫酸イオン、硫酸イオンの形で捕集し、イオンクロマトグラフで分析した。触媒のある場合とない場合で同様の試験を行い、触媒によるイオウの酸化挙動を確認した。また別のラインでエンジン中のSO₂をSO₂計で測定し、PMを採取し、ろ紙中のサルフェートを抽出分析した。

その結果、脱硝触媒がない場合は、SO_xはすべて亜硫酸イオン(SO₃²⁻)の形態でトラップされており、排出ガス中ではほぼ全量がSO₂と考えられる。

また、脱硝触媒上に付着したPM（黒煙）の挙動を調べた結果、脱硝触媒に捕捉されたPM（黒煙）は200°Cから二酸化炭素への分解が開始し、400°Cでその大部分が分解されることが示唆された。

5. 複合脱硝システムの性能実証試験 (平成9年～平成10年度)

確認試験結果を踏まえて、複合脱硝システムの性能実証試験を実施した。

(1) EGR+脱硝触媒を組み合わせた複合脱硝システムによるNO_xとPMの同時低減技術の実証試験

本試験では、各運転モードごとに複合脱硝システム運転あり・なしについて、排ガス成分を測定し、システム性能を評価した。

EGR運転時は、EGR率を40%に設定して排出ガスの全量を触媒反応器に通気し、軽油還元剤供給は中止した。運転モード1～7と13におけるNO_x排出量はシステムなしと比較して、いずれのモードでも50%以上の低減を示した。またEGR運転を停止し、軽油還元剤を供給した運転モード6～12では、その排出量は40%以上低減した。エンジン13モードにおける複合脱硝

システム運転時のNO_x排出量をシステムなし(5.7g/kWh)、現行排出規制値(4.5g/kWh)と比較すると、システムなしに対して53～58%低減し、また現行排出規制値に対しては40～47%低減した。

PM（黒煙）排出量はスマートメータ値(%)をスス量(g/m³)に換算し、重み付き黒煙排出量(g/h)として評価した。運転モード1～5における黒煙量は0.5～2g/hときわめてわずかであったが、モード6ではシステムなしに対してほぼ同等量、またモード7では約3倍量の排出量であった。また運転モード8～12の脱硝触媒反応器運転では、いずれのモードでも約50%低減した。エンジン13モードにおける複合脱硝システム運転時の排出量をNO_x排出量の場合と同様に見ると、その排出量は88g/hであり、システムなしに対して約60%低減した。

以上の結果から、本複合脱硝システムによるNO_xと黒煙の低減化は、当初の性能目標値を達成し、現行排出規制値よりさらに50%近く削減でき、また新短期規制値(2003年)達成の見通しも得られた。

(2) 触媒反応器によるPM浄化特性の把握

一般的にはPM量を評価する場合、エンジン13モードで行う必要があるが、本試験では触媒反応器前後のPM挙動を知ることが目的であったため、脱硝触媒作用領域のうち、運転モード7、9、11の3モードについて、触媒反応器前後のPM量と成分分布を調べた。その結果、PM排出量は、脱硝触媒反応器後では40%以上減少していた。

PM成分では、脱硝触媒反応器前では各モードともSOF4～6%，サルフェート0.1%以下で、大部分はススであった。また触媒反応器後では、サルフェートは0.1%以下、SOFはモード9で0.3%，他はゼロであり、残りはススであった。

以上、触媒反応器前後のPM挙動から、脱硝触媒によりPMは低減し、またその成分のうち、SOFとススの一部は燃焼していることが示唆された。

(3) 複合脱硝システムの総合評価

ディーゼル車は小型からバスやトラックなどの大型まで広範囲に利用されているが、その反面、NO_xや黒煙(PM)などの大気汚染物質を排出する。その低減対策はエンジン改良を中心に検討されてきたが、厳しい排出基準を達成するには、さらなる技術開発が必要

であった。またNO_x還元触媒やDPFシステムなどの後処理技術は使用適用条件に達していないのが現状である。これまで、本研究では脱硝触媒の開発を行ってきたが、低温域の脱硝活性が不十分であり、全運転領域の利用が不十分であった。以上の理由から、単独技術でNO_xやPMを低減することは非常に困難であった。

本複合脱硝システムは、EGRと脱硝触媒を組み合わせて、エンジン負荷60%以下の中低負荷域ではEGR運転で、また60%以上の高負荷域では脱硝触媒反応器で運転することにより、現行（平成10年）規制値に対して、NO_xは47%低減を達成した。

またPM低減の可能性も示されており、有望なシステムと評価される。実際に自動車に搭載するには、EGRや軽油還元剤供給の制御技術の確立が必要である。

(4) 複合脱硝システムの実車搭載への検討

車種として大都市圏で走行台数が多く、また環境負荷も大きい積載量4トンクラスを対象とすると、実車搭載システムは以下のようになると想定される。

搭載エンジンは電子制御式燃料噴射ポンプ付きエンジンとEGRシステムの設置可能なものとし、軽油還元剤供給は電子制御式燃料噴射ポンプでシリンダー内に所定量の後噴射を行う。

触媒反応器は脱硝触媒層の後方に酸化触媒層を設置した構造とし、脱硝触媒層でNO_xとPM一部分の除去、また酸化触媒層で余剰還元剤とPMの酸化を行い、NO_xとPMの同時除去を可能にする。

EGRと触媒反応器の運転は、中低負荷域はEGR運転を行い、運転中の全量排ガスは触媒反応器に通す。ただし、この運転時では軽油還元剤は供給しない。高負荷域では、EGR運転は停止し、触媒反応器のみの運転を行う。この繰返しにより、全運転領域のNO_xとPM低減を行う。

(5) 排ガス中の微量有害物質の検討

微量有害物質として、高負荷域（モード7, 9, 11）における触媒反応器前後のPM中多環芳香族炭化水素を分析したが、検出されなかった。サンプリング法を改良し、再検討することが必要である。

I-5 総括

ディーゼル車は小型車からバスやトラックなどの大型車まで広範囲に利用されているが、その反面、NO_xや黒煙（PM）などの環境物質を排出する。その低減対策はエンジン改良を中心に検討してきたが、きびしい排出基準を達成するには一層の技術開発が必要であった。またNO_x還元触媒やスズフィルターなどの後処理技術は、使用適用条件に達していないのが現状である。

本研究では、これまで脱硝触媒の開発を中心行ってきたが、低温域の脱硝活性が不十分であり、全運転領域でのNO_x低減には解決すべき問題点が多く、現時点では、脱硝触媒単独でNO_xとPMを低減するのは非常に困難であった。その対策として、エンジン負荷40～60%以下の中低負荷域、すなわち、排気温度の低い領域ではEGR運転で、またそれ以上の高負荷域（排気温度400°C以上）では脱硝触媒反応器運転し、全運転領域のNO_x低減が可能なシステムを検討した。

本複合脱硝システムは、平成6年度規制適合ディーゼルエンジンにEGRシステムと脱硝触媒反応器および軽油還元剤供給装置から構成されており、この3種の技術の連携により、黒煙を悪化せずにNO_x低減ができることが大きな特徴である。

(1) 軽油還元剤の供給法

還元剤の供給量と供給位置は、脱硝触媒の性能や燃費に大きく影響を及ぼし、また安全性の観点からも重要である。そこで、本研究ではエンジン近傍の供給位置として、吸気マニホールド、排気マニホールドおよび燃料噴射ノズルの3カ所からの軽油還元剤供給法を比較検討した。

吸気マニホールドへの供給は、Fumigation効果により黒煙発生が抑制されるといわれているが、供給した還元剤はほぼ100%シリンダー内で燃焼したため、

脱硝率は数%ときわめて低かった。

排気マニホールド直後への供給は、脱硝率が40%以上を示し、触媒反応器直前に供給したときの脱硝活性と一致した。またNO_x低減と同時に黒煙濃度も約45%低減した。

燃料噴射ノズル空間（サックボリューム）を利用したシリンダー内への供給は、空間容積4 μlと8 μlの2種類で行った。その結果、空間容積4 μlでは、脱硝率は約20%と低く、また8 μlの脱硝率は40%と高かったが、逆に、黒煙濃度が増加した。

以上の通り、脱硝活性の効果は、排気マニホールド>燃料噴射ノズル>吸気マニホールドの順であった。今後は、供給装置の簡素化、安全性などを考慮すると、電子制御式燃料噴射ノズルにより排気行程の上死点近傍に後噴射で供給する技術の開発が重要となろう。

(2) EGRと脱硝触媒反応器の組み合わせ

本複合脱硝システムでは、EGRと脱硝触媒反応器をエンジン負荷に応じて切り替えて運転する。すなわち、中低負荷域はEGR運転、高負荷域は脱硝触媒反応器で運転することにより、NO_xと黒煙の同時低減化を行う。

本研究では、ディーゼル13モード運転のうち、中低負荷域として1～5または1～7、13モードをEGR運転、高負荷域として6～12または8～12モードを脱硝触媒反応器運転を行い、全運転領域でのNO_xとPM（黒煙）の挙動を調べた。ただし、EGR運転時には軽油還元剤を供給せず、排出ガスを脱硝触媒反応器に通した。

表1-1にディーゼル13モード運転時のNO_x排出量を示した。EGRと触媒反応器の運転領域を限定することにより、NO_x排出量は大幅に削減できることが実証できた。

一方、Bosch法で測定される黒煙の濃度は、脱硝触媒反応器通過時に大幅に低下しており、脱硝システムなしに対して約50%強の削減と推定された。6、9、11モードにおける触媒反応器前後の黒煙を採取し、重量法で確認したところ、触媒反応器の前後で45～50%の低減が見られた。

さらに、排出ガス中のSO₂は脱硝触媒通過時に酸化されず、SO₂のままで排出されることが確認された。

本複合脱硝システムでは、EGR運転中の排出ガスも触媒反応器を通過する。その場合、低温排出ガスに

表1-1 ディーゼルモード13運転時のNO_x排出量

EGR率 (%)	低減効果	
	複合脱硝システム (g/kWh)	対現行規制値 (%)
システムなし	5.6	+24
0	3.8	-16
10	3.5	-22
20	3.0	-33
30	2.8	-38
40	2.4	-47

よる触媒寿命の短縮化が懸念されたが、12時間の連続通気を行ったところ、活性低下がほとんど認められなかった。

以上の試験結果から、本ディーゼル車用複合脱硝システムは、NO_xの大幅な低減を達成できることが実証され、またPMの低減可能性のあることも示された。

本研究の達成レベルは、新短期規制をほぼクリアし得る値であるが、技術の実用化、新長期規制をにらむと下記のような解決すべき課題がある。

(1) 希釈トンネル法によるPMの詳細評価

(2) システム運転制御の確立

エンジン負荷変動に応じたEGR運転の制御、軽油還元剤の供給制御の技術を確立する。

(3) 触媒反応器の複合化と長寿命化

脱硝触媒の後方に酸化触媒を組み込み、CO、HCおよびPM低減を促進することが必要である。また新短期目標（2003年）の耐久走行距離は現行（30,000km）の8～21倍に延長されるので、触媒のさらなる長寿命化が要求される。

(4) 脱硝触媒のさらなる高活性化

新長期目標の達成には、①脱硝触媒の活性向上とWindow拡大などの改良、②軽油燃料の低S化および低アロマ化、③エンジン燃焼技術の向上、などが必須である。

これらの課題を解決できれば、本複合脱硝システムの実用化が加速されると期待される。