

II-5 複合脱硝システムの性能実証試験

前章までの検討において、EGRおよび脱硝触媒反応器における各単独のNO_x低減性能がほぼ目標値に達したため、実車搭載を考慮した複合システム全体の性能確認を行った。

1. 複合脱硝システムによるNO_x低減技術の実証

要素技術の確証試験において、EGRと脱硝触媒反応器の単独運転におけるNO_xと黒煙の低減効果を調べ、その性能を確認した。

本実証試験では、EGR運転時の排気ガスを触媒反応器に通し、また脱硝触媒反応器運転時にはEGR運転を停止して、ディーゼル13モードにおけるNO_xと黒煙の低減効果を調べた。

①試験方法

試験開始にあたり、エンジン温度が70℃以上に達するまでアイドリング運転を行ったのち、モード1から順に30分間づつ運転し、そのときの排気ガス組成と燃費、排気温度を測定した。そのうち、モード6と7では軽油還元剤供給の有無とEGR率20%についても行った。排気ガス分析は、触媒反応器前後で行った。EGR率は排気ガス中のCO₂濃度で以下の式で決定した。

$$\text{EGR率(\%)} = \frac{B-C}{A-C} \times 100$$

A : 排気ガス中の二酸化炭素濃度 (%)

B : エンジン流入ガス中の二酸化炭素濃度 (%)

C : 吸気 (空気) 中の二酸化炭素濃度 (%)

(試験条件)

エンジン運転モード : 1～13

ケース1 : モード1, 2, 3, 4, 5, 13はEGR率40%,

モード6, 7, 8, 9, 10, 11, 12は脱硝触媒反応器

軽油還元剤は排気マニホールド直後に供給。

ケース2 : モード1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 13はEGR率40%

モード8, 9, 10, 11, 12は脱硝触媒反応器,

軽油還元剤供給はケース1と同様

(分析ガス)

NO_x : 常圧化学発光法

THC : FID法

CO, CO₂ : 非分散赤外分光法

O₂ : 磁気風式

SO₂ : 炎光光度法

黒煙 : BOSCH式

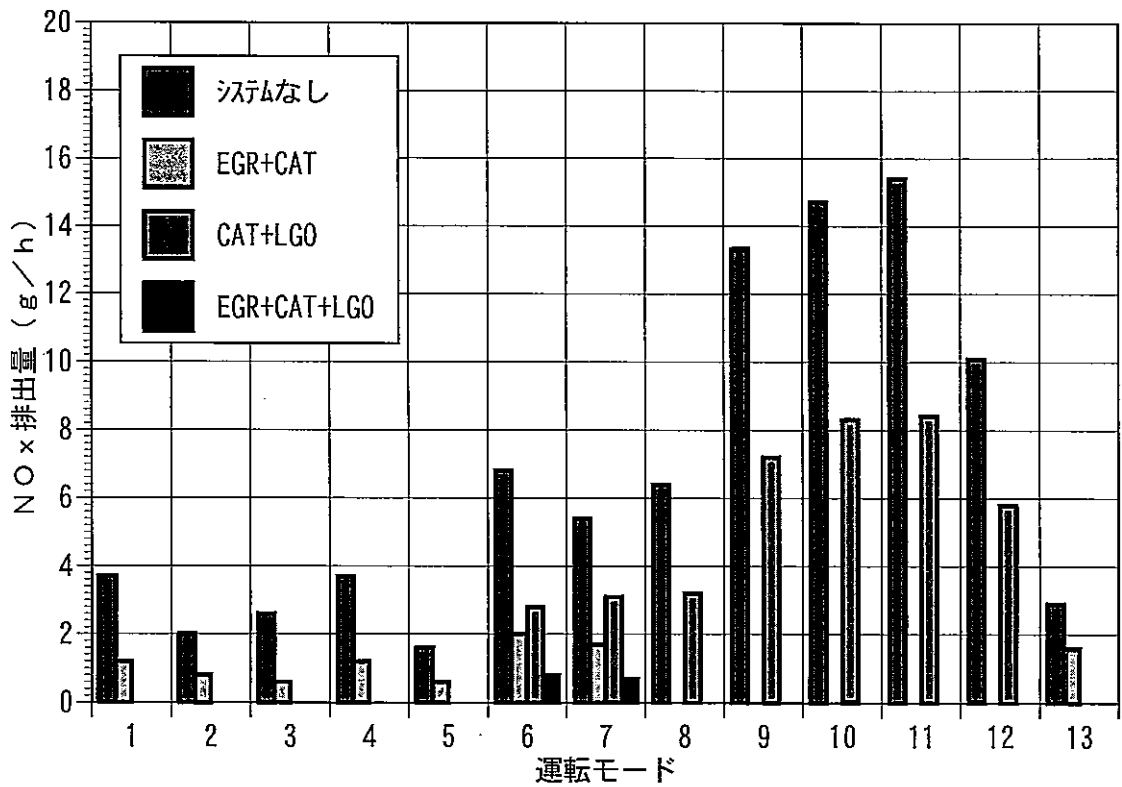
②試験結果

本試験では、各モードごとに複合脱硝システム運転あり・なしについて、排ガス成分量を測定し、システム運転なしの測定結果を基準にして、システム性能を評価した。

図5-1に各エンジンモードごとのNO_x排出量(重み付き)を示す。なお、EGR率はいずれも40%に設定して排気ガスの全量を触媒反応器に通気し、EGR運転時には軽油還元剤供給は中止した。図に示すとおり、運転モード1～7と13において、EGR運転時(EGR+CAT)のNO_x排出量は、システムなしの排出量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運転を停止して、軽油還元剤を供給した運転モード6～12(CAT+LGO)の排出量は40%以上低減した。

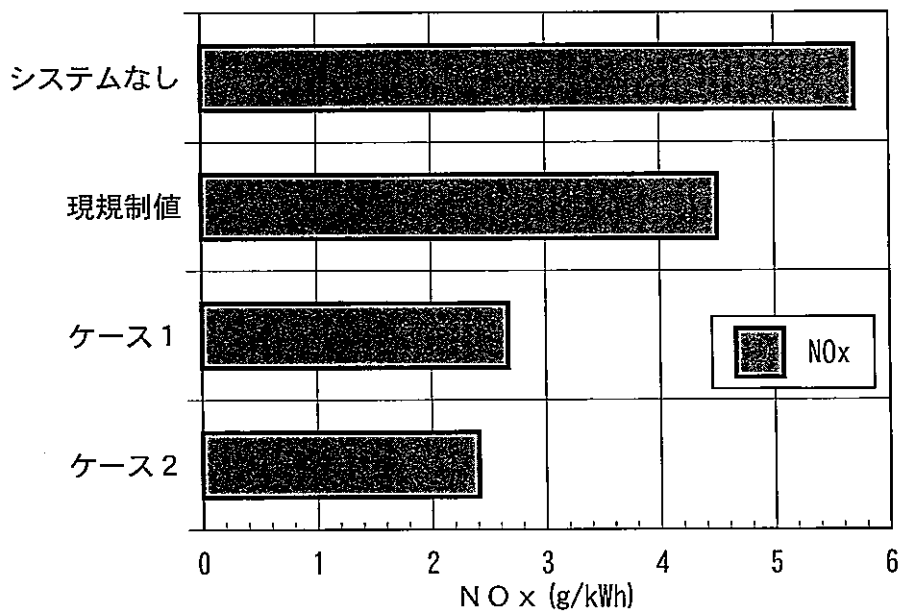
一方、モード6と7では、排気温度が触媒作用の境界域にあり、EGRと軽油還元剤供給の運転(EGR+CAT+LGO)では、システムなしの排出量に対して約90%以上と大幅に低減した。

以上の結果をディーゼル13モードでみると、図5-2に示すとおり、NO_x排出量は、ケース1では2.7g/kWhであり、システムなしに対して53%低減し、また現行排出規制値に対しても40%低減した。同様に、ケース2では2.4g/kWhで、システムなしに対して58



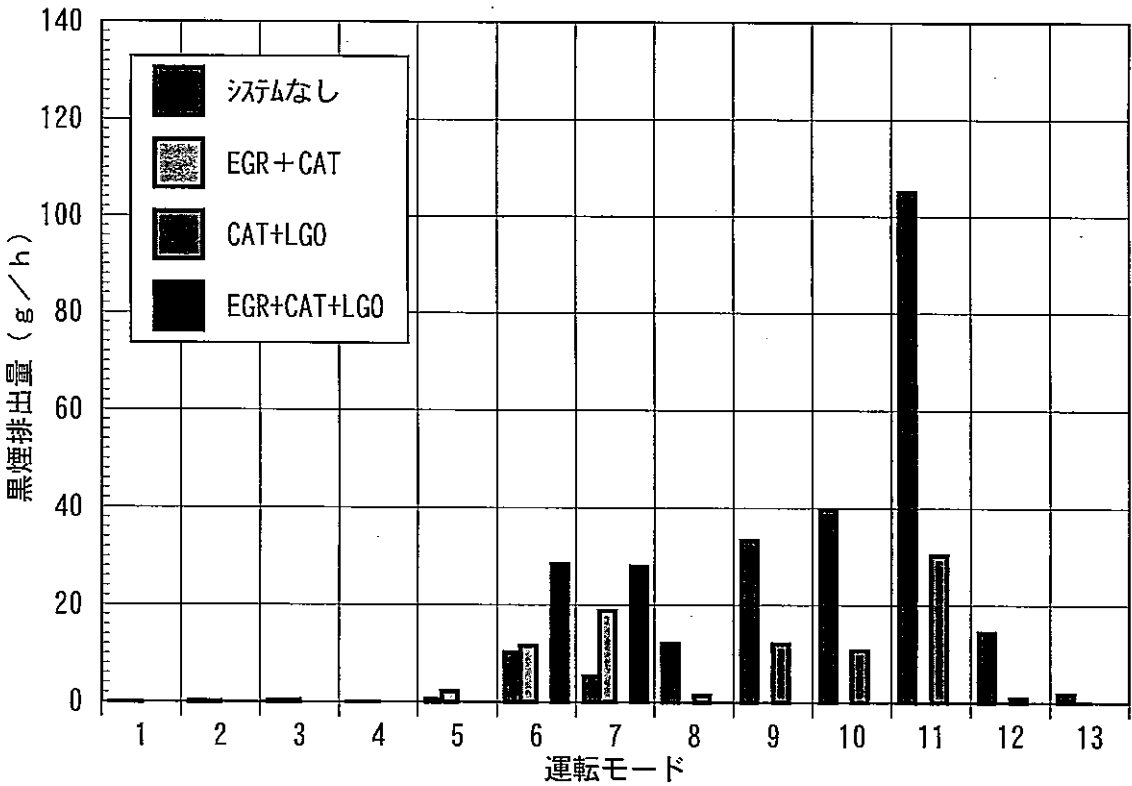
システムなし : EGR、触媒なし EGR+CAT : EGR、触媒あり（軽油還元剤なし）
EGR+CAT+LGO : EGR、触媒あり（モード6、7のみ還元剤添加）
CAT+LGO : 触媒のみ（還元剤添加）
EGR率 : 40%

図 5-1 各運転モードにおけるEGRと脱硝触媒を組合せたときのNO_x排出量（重み付き）



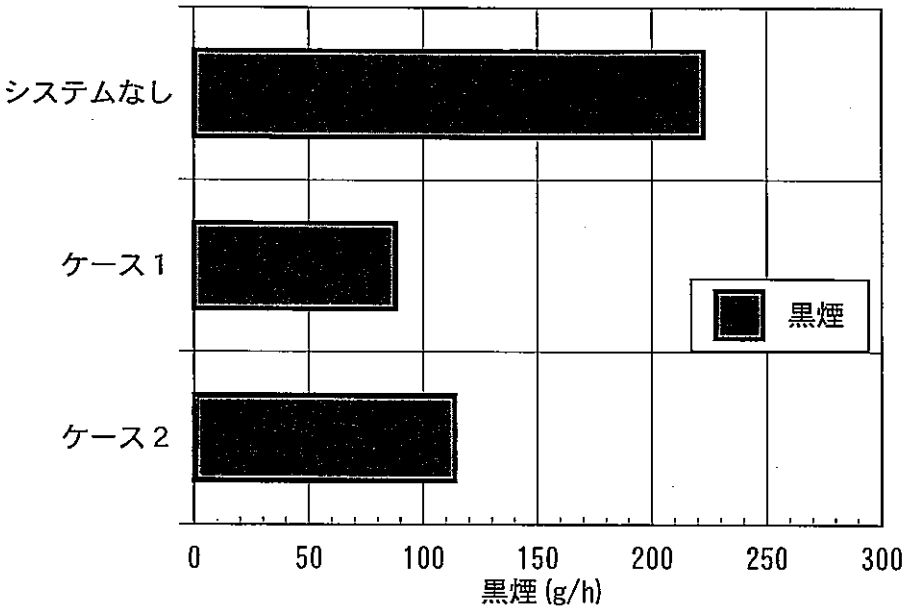
ケース 1 : EGR1～5、13+脱硝触媒
ケース 2 : EGR1～7、13+脱硝触媒

図 5-2 エンジン13モード運転におけるNO_x排出量



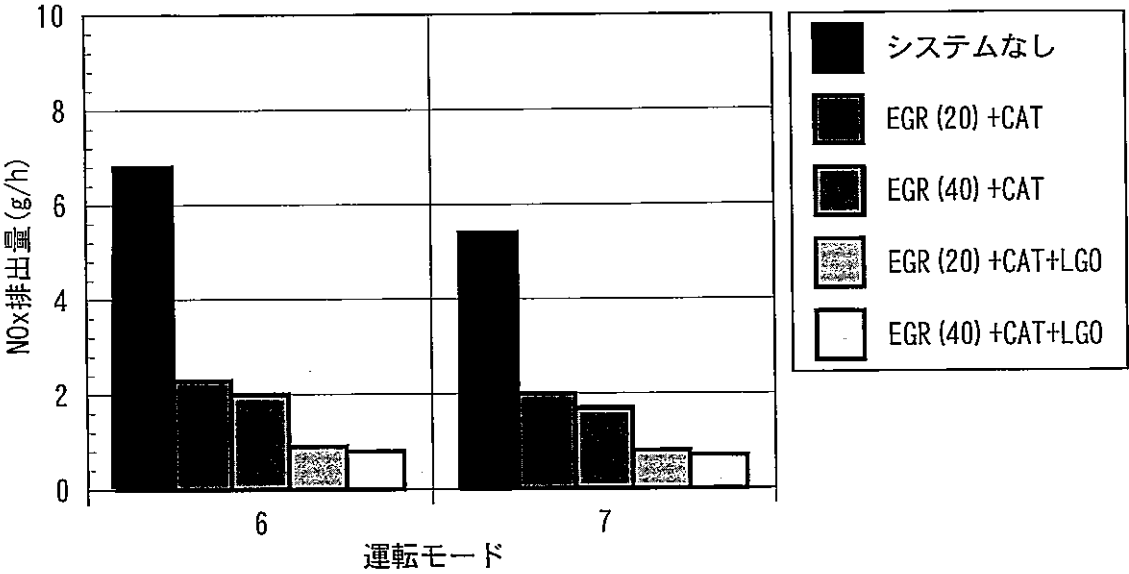
システムなし : EGR、触媒なし EGR+CAT : EGR、触媒あり（軽油還元剤なし）
EGR+CAT+LGO : EGR、触媒あり（モード6、7のみ還元剤添加）
CAT+LGO : 触媒のみ（還元剤添加）
EGR率 : 40%

図5-3 各運転モードにおけるEGRと脱硝触媒を組合せたときの黒煙排出量（重み付き）



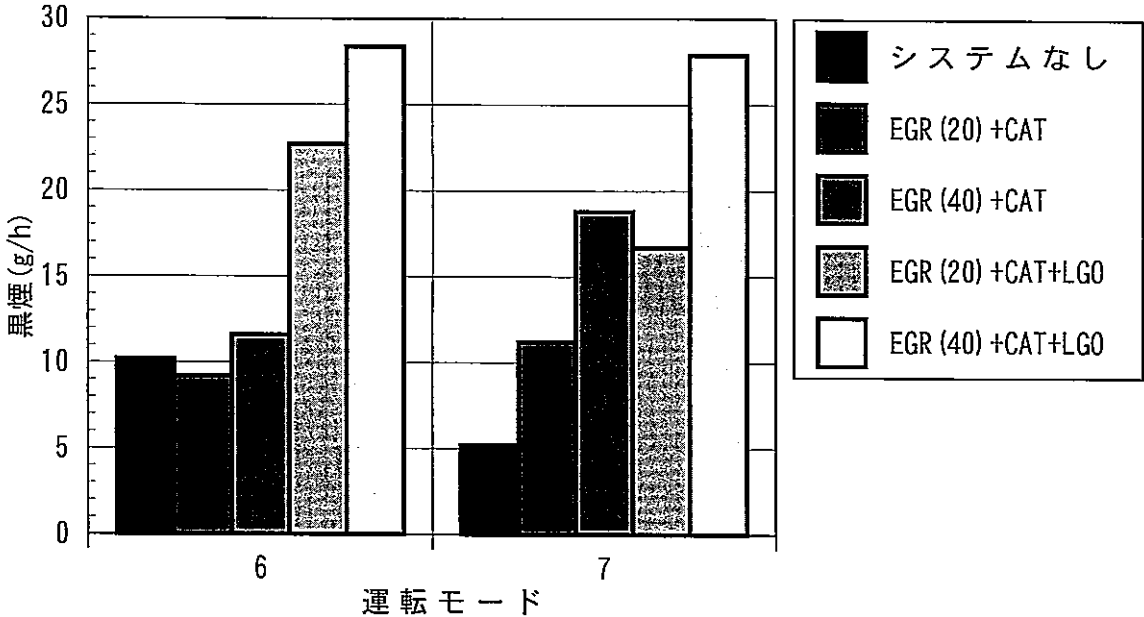
ケース1 : EGR1～5、13+脱硝触媒
ケース2 : EGR1～7、13+脱硝触媒

図5-4 エンジン13モード運転における黒煙排出量



EGR (20) +CAT : EGR率20%、触媒あり（軽油還元剤なし）
EGR (40) +CAT : EGR率40%、触媒あり（軽油還元剤なし）
EGR (20) +CAT+LGO : EGR率20%、触媒あり（軽油還元剤添加）
EGR (40) +CAT+LGO : EGR率40%、触媒あり（軽油還元剤添加）

図 5-5 モード 6 と 7 においてEGR率20%、40%のときのNO_x排出量の比較



EGR (20) +CAT : EGR率20%、触媒あり（軽油還元剤なし）
EGR (40) +CAT : EGR率40%、触媒あり（軽油還元剤なし）
EGR (20) +CAT+LGO : EGR率20%、触媒あり（軽油還元剤添加）
EGR (40) +CAT+LGO : EGR率40%、触媒あり（軽油還元剤添加）

図 5-6 モード 6 と 7 においてEGR率20%、40%のときの黒煙排出量の比較

%, また現行排出規制値に対して47%低減した。

図5-3にスモークメータ値(黒煙濃度(%))をスス量(g/m^3)に換算し、重み付き黒煙排出量(g/h)を示す。運転モード1~5の黒煙量(システムなしとEGR+CAT)は0.5~2 g/h とごくわずかであったが、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。この両モードに軽油還元剤を供給すると(EGR+CAT+LGO), システムなしに対して、モード6では約3倍弱、モード7では5倍とさらに増加した。

モード8~12の脱硝触媒反応器運転(CAT+LGO)は、図で明らかなとおり、いずれの運転モードでも70%以上の黒煙を削減していた。

図5-4にディーゼル13モードにおける黒煙排出量を示す。ケース1の排出量は88 g/h であり、システムなしに対して60%の削減であった。またケース2では114 g/h であり、システムなしに対して50%削減された。

以上のとおり、本複合脱硝システムは、 NO_x と黒煙を大幅に削減できることが明らかになったが、運転モード6と7では黒煙濃度が増える問題点も明らかになった。

そこで、EGR率20%にしたときの NO_x 排出量と黒煙排出量を調べた。その結果を図5-5に NO_x 排出量を、図5-6に黒煙排出量を示す。 NO_x 排出量は、EGR率40%(EGR(40)+CAT, EGR(40)+CAT+LGO)に対し、EGR率20%にすると排出量は5~10%ほど悪化した。システムなしと比べると65%(EGR+CAT)および約90%(EGR+CAT+LGO)の削減が確認された。

同様に、黒煙排出量(図5-6)をみると、EGR率20%では、EGR率40%に対して、モード6の(EGR+CAT)は25%、モード7で42%減少し、また軽油還元剤を供給した(EGR+CAT+LGO)場合、モード6で12%、モード7で40%の減少がみられたが、それでもシステムなしと比べれば2.3倍(モード6)~3.4倍(モード7)の排出量になった。

以上、本複合脱硝システムにより NO_x と黒煙排出量は大幅な削減が可能になり、性能目標値も達成し、現行規制値よりさらに50%近くの削減と新短期目標値達成の見通しが得られたが、EGRと脱硝触媒反応器との切替え時期の課題も残った。すなわち、モード6

と7において、EGR運転を行うと、排気温度が脱硝触媒作用温度に達し、 NO_x 排出量を大幅に削減できるが、その反面、黒煙濃度が増加することである。

この対策として、脱硝触媒と酸化触媒を組み合わせた複合触媒反応器により改善できると思われた。もう1つの課題は、黒煙排出量の測定が希釈トンネル法ではなく、スモークメータ法のために、定量的な評価ができなかった点である。

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

複合脱硝システム運転により、 NO_x 低減だけでなくPMも低減することを説明したが、その評価を黒煙濃度(Bocsh式)で行ったため、量的評価が難しかった。そこで、JIS Z8808(排ガス中のダスト濃度の測定方法)を参考に脱硝触媒反応器前後のPMを採取し、そのときのPM量と含有成分分布(SOF, Soot, サルフェート)を調べた。また脱硝触媒による黒煙燃焼挙動も調べた。

①試験方法

高負荷域(脱硝触媒反応器運転域)のうち、7, 9, 11モードでの脱硝触媒反応器前後のPMを採取する。

図5-7に採取試験装置フロー図を、また採取管を図5-8に示す。触媒反応器前後の排気管中心に採取管の吸入口をセットし、吸引ポンプで排気ガスを吸引した。ポンプの前には水分除去器を、また後には乾式ガス流量計を設置した。採取条件は、20L/minの流速で、合計吸引ガス量3 m^3 を採取し、採取後のろ紙はデシケーター中で12時間放置した。

図5-9に分析方法フロー図を示す。採取用ろ紙は円筒ろ紙(86Aアドバンテック)を用い、前処理として、超音波によるアセトン洗浄(30min)後、300℃空気焼成を行った。

PM量は重量法で測定した。含有成分分布は、重量測定後、超音波によるアセトン抽出(60min)を行い、抽出後のろ紙重量からSOF量を算出した。またアセトン抽出後のろ紙を同様に水抽出(100min)し、液体クロマトグラフで SO_4^{2-} を定量してサルフェートとした。最後に残ったものをSootとした。

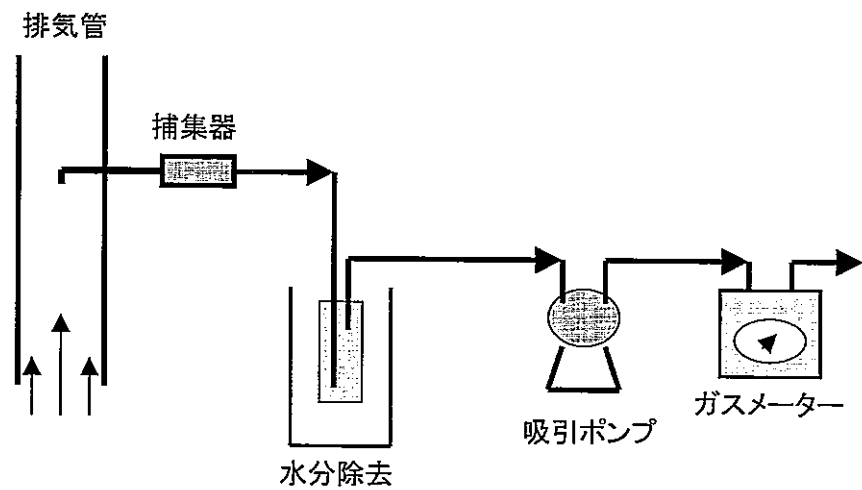


図 5-7 PM採取試験装置のフロー図

ろ紙の前処理

採 取

抽 出

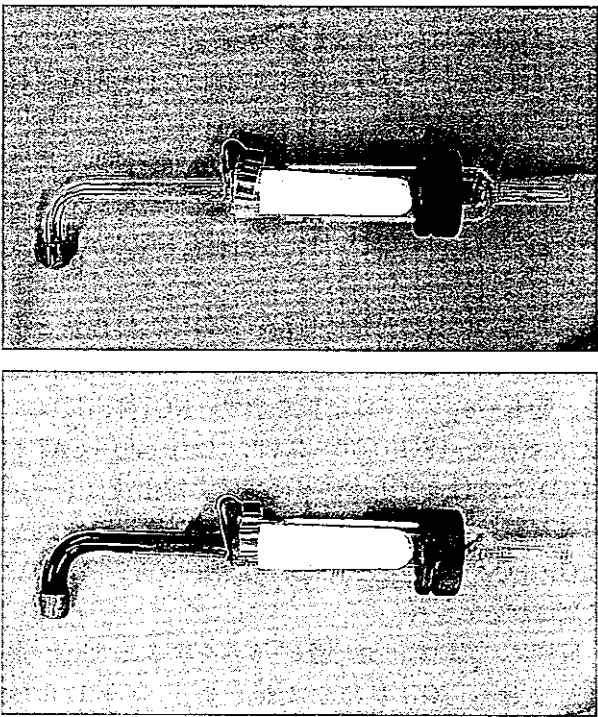
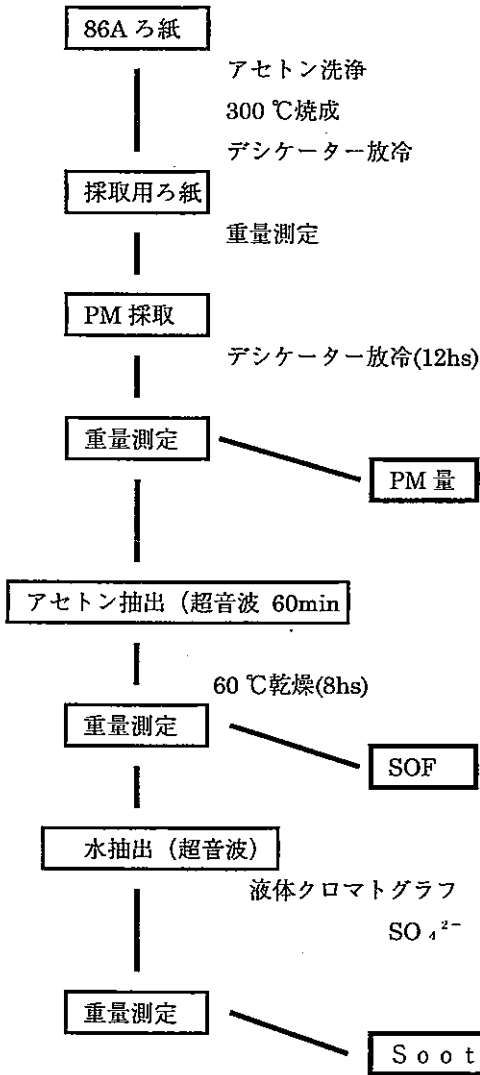
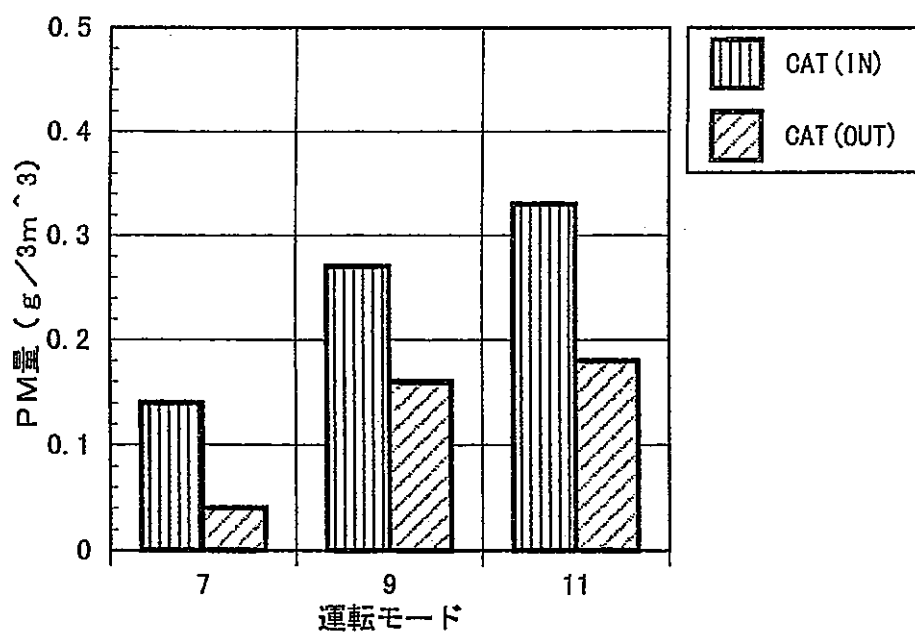


図 5-8 PM採取管 (上：採取前，下：採取後)

図 5-9 PM成分の分析フロー図



CAT (IN) = 触媒層前 CAT (OUT) = 触媒層後

図 5-10 運転モード 7, 9, 11における触媒反応器前後のPM量

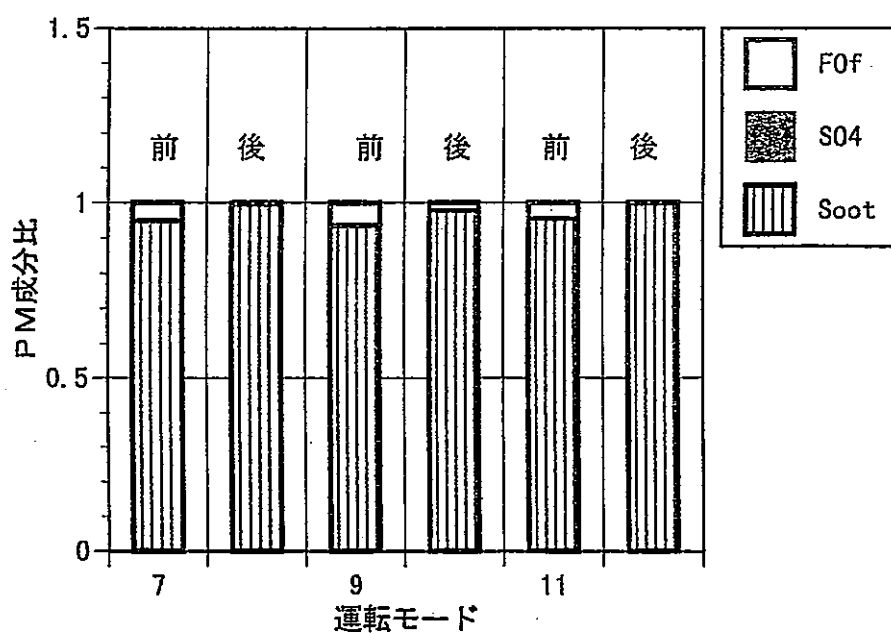


図 5-11 運転モード 7, 9, 11における触媒反応器前後のPM成分比

②試験結果

図5-10に7, 9, 11モードにおける触媒反応器前後のPM(黒煙)量($\text{g}/3\text{m}^3$)を示す。図に示すとおり、触媒反応器前のPM量は、7モードで $0.14\text{g}/\text{m}^3$ 、9モードで $0.27\text{g}/\text{m}^3$ 、11モードで $0.33\text{g}/\text{m}^3$ と負荷量が高くなるにしたがって増し、また反応器後では、大幅に減少し、7モードで70%、9モードで40%、11モードで45%の減少率であった。このことから、本触媒反応器は、 NO_x 低減とPM低減を同時に行っていることが確認できた。実証試験時に測定したスモークメータ値と同様な挙動であった。

図5-11に7, 9, 11モードにおける脱硝触媒反応器前後のPM成分を示す。触媒反応器前のPM成分分布は、各モードとも大差がなく、SOFは4~6%、 SO_4 は0.1%以下であり、大部分はSootであった。また触媒反応器後では、 SO_4 はいずれのモードも0.1%以下であり、またSOFはモード9で0.3%、他モードはゼロ、残りはSootであった。

以上、触媒反応器前後のPM挙動から、PMは脱硝触媒により除去されていること、またその成分のうち、SOFとSootも一部は除去されていることが確認できた。

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 還元触媒やススフィルタ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に行ってきたが、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種類の運転技術が密接に連携し合うことにより、黒煙を悪化させずに 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%シリンダ内で燃焼したため、脱硝率は数パーセント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内への供給は、空間容積 $4\mu\text{l}$ と $8\mu\text{l}$ の2種類で行った。その結果、空間容積 $4\mu\text{l}$ では、脱硝率は約20%と低く、また $8\mu\text{l}$ の脱硝率は40%と高かったが、逆に、黒煙濃度が増加した。

以上のように、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)の低減化を調べた。ただし、EGR運転時には軽油還元剤を供給せず、排気ガスを脱硝触媒反応器に通した。

その結果、表5-1にディーゼル13モード運転時のNO_x排出量を示すとおり、EGRと触媒反応器の運転領域を限定することにより、平成元年度排出規制適合エンジン(NO_x 6g/kWh)のNO_x排出量を大幅に削減でき、さらに新短期規制目標値(現行規制値の30%削減)も達成可能であることを実証できた。

表5-1 複合脱硝システムによるNO_x低減効果

EGR率 (%)	本システム (g/kWh)	低 減 効 果	
		対現行規制値 (%)	対新短期目標 (%)
NO	5.6	+24	+78
0	3.8	-16	+21
20	3.0	-33	-5
40	2.6	-44	-17

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%の低減がみられた。

さらに、排気ガス中の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運転中の排気ガスも触媒反応器を通過する。その場合、低温排気ガスに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、いくつかの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酸化を促進することが必要である。また新長期目標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、④脱硝触媒の活性向上とWindow拡大などの改良、⑤軽油燃料の低S化および低アロマ化、⑥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。

4. 複合脱硝システムの実車搭載の検討

今後のディーゼル車は、高エネルギー効率を維持しつつ、さらなる燃費改善が要求され、3L以下の小型エンジンも副室式から直接噴射式へ転換されつつある。これに伴い低公害化技術の高度化が求められる。

平成10年度規制をクリアしたディーゼル車は、下記の排出ガス対策を採用しているものが多い。

- ①PM対策：燃料噴射圧の高圧化、吸気系・燃焼室の改善、過給器、酸化触媒の装着、低S軽油の導入
- ②NO_x対策：燃料噴射の電子化(噴射時期、パイロット噴射)、EGR装着

燃料噴射圧は、前規制時の60MPに対して、現規制対応車では130MPで約2倍に達している。また空気量は、NAエンジンで12%(未規制時に対して)増えているが、今後は過給器(TI)エンジンへの移行が早まり、さらに空気量を増やして燃費改善と排出ガス低減を計ろうとしている。

このように着々と改善されつつある新型エンジンに本複合脱硝システムを搭載するには、いくつかの課題を念頭に置く必要がある。

(1) 複合脱硝システムの運転制御

これまでの実証試験結果から、中低負荷領域はEGR、高負荷領域は脱硝触媒反応器を適切な条件で運転すれば、ディーゼルエンジン排出ガス中の NO_x とPM（黒煙）排出量を現行排出規制値よりも大幅に削減が可能であり、新短期目標の達成にも見通しを得ることができた。このシステムを実車搭載するには、EGR制御と軽油還元剤の供給制御法を確立しなければならない。

①EGR制御

EGRによる NO_x 低減効果は非常に大きく、今後の新規制対応エンジンでは重要な要素技術であるが、軽油燃料中のイオウ含有量が0.05%になってもピストンリングの腐食などの問題も残っている。新長期規制にあわせてイオウ含有量がさらに1/10に低減されようとしており、これによって腐食の問題はクリアできる可能性がある。

本複合脱硝システムのEGR運転は、低負荷で40%のEGR率、中負荷で20%で行うことが望ましいことがわかっている。その場合の NO_x 低減効果は20%程度と小さいが、PM排出量も少ないという利点がある。さらに、効率の向上を計るには、EGR量の細かい可変運転が必要になる。すなわち、低負荷域のEGR率は高くし、負荷割合が増すにしたがってEGR率を低くする運転法であるが、実走行では、時々刻々と変わる負荷割合に対応してEGR率も変えなければならない。その場合、電子制御式EGRシステムが必要になり、エンジン回転数、燃料噴射量、排気圧、排気温度などのセンサ情報から、EGR作動とバルブの開閉度を調節することになる。

この技術は自動車メーカー各社が取り組んでいる開発技術であり、本研究ではこの成果を適切に組み合わせることが求められる。

②軽油還元剤の供給制御

本複合脱硝システムでは、高負荷域の NO_x 低減を脱硝触媒反応器で行う。そのときに還元剤として軽油燃料を添加するが、その場合、添加時期と添加量が脱硝性能を左右し、システム性能にとっては重要な動作である。

還元剤供給法として、燃料噴射ノズルによる後噴射と排気マニホールドへの注入が考えられる。燃料噴射

ノズルによる後噴射としては、電子制御式噴射ポンプを用い、パイロット噴射、主噴射の後の排気行程終了直前に後噴射を付加することを想定している。また排気マニホールドへの供給は、別途供給ポンプと制御装置により行う。両供給法も時々刻々と変化する運転情報を的確に利用し、軽油還元剤を供給しなければならない点は共通である。

後噴射の利点は、すでに一部の市販車で実用化されている電子制御式燃料噴射ポンプと噴射ノズルによる供給法であること、供給時期と供給量（軽油量/ NO_x 比）を可変とし、運転状態に応じて生成される NO_x 量に対応できることである。ただし噴射ノズルが微量の還元剤添加に使えるか、還元剤が高温にさらされるために一部燃焼してしまわないか、といった検討課題がある。

一方、排気マニホールドへの注入法の場合は、添加還元剤の効果がすでによく解明されているが、新たに電子制御式供給装置と供給ポンプの開発が必要となる点が問題である。また高温排気管に可燃物（軽油燃料）を注入することになるので、安全性にも注意が必要である。

(2) 燃費低減

地球温暖化の観点から CO_2 削減、また経済性などから燃費向上は重要な開発課題である。本システムでは軽油を脱硝用還元剤として用いており、現状では燃費は約2～3%悪化する。その対策として、触媒の高活性化が最も重要であるが、軽油の低アロマ化も有効と予想される。軽油中のアロマ成分は還元剤としての効果が低く、未利用状態で排出され、HC排出と黒煙の増加要因となるので、低アロマ軽油が望ましい。

(3) 触媒反応器

現在使用している触媒は、500時間の耐久試験後も脱硝率40%を維持している。平均時速を50km/hとして、25,000kmの走行距離に相当する。新長期目標では250,000kmの耐久性が要求されており、さらなる耐久性改善が必要である。

新長期対応エンジンは、燃費と排出ガス低減のため、過給器付きが増加すると予想される。吸入空気量は大幅に増加し、排ガス量も増え、また排気温度が低くなるため、過給器付きに対応するには、低温高活性が必要となる。

実車搭載のためには、(1)の制御技術の確立が最も重要であり、これを何らかの形で実現させ、実車搭載試験により問題点を把握し、実用化へ向けた開発を促進することが必要と思われる。