

講演 2. N₂O の計測精度を確保した排出ガス試験方法の検討

環境研究部

※越川 翔生 鈴木 央一

1. はじめに

排出ガスの規制強化に伴い、電子制御式燃料噴射装置や排出ガス再循環システムといった排出ガス中の有害物質低減技術が進歩を遂げてきた。特に、排出ガス後処理装置は必要不可欠な存在となり、粒子状物質捕集フィルタに加え、ガソリン車では主に三元触媒が、ディーゼル車では主に尿素選択触媒還元（尿素 SCR）システムが広く普及している。三元触媒および尿素 SCR システムはいずれも化学反応によって排出ガスを浄化する仕組みであり、大気汚染の改善に効果がある反面で亜酸化窒素（N₂O）の排出が課題となっている。N₂O は化学的に安定であるため大気中での寿命（一時的な濃度増加の影響が小さくなるまでの時間）は 109 年と長く、地球温暖化ポテンシャルは CO₂ の 273 倍とされている⁽¹⁾。すでに米国では軽量車および重量車の N₂O 排出基準を設けており、欧州の次期排出ガス規制である EURO7 においても重量車での N₂O 排出規制が設けられる。このように、地球温暖化を考える上で自動車由来の N₂O 排出量は無視することができなくなっており、温暖化対策の観点から少量であっても N₂O 排出量の適切な評価が求められる。

排出ガス等の認証試験にはシャシダイナモメータを用いた台上試験が実施されている。台上試験時の環境湿度条件は 5.5～12.2g H₂O/kg dry air（規定温度 23℃での相対湿度換算で約 30～70%）と規定されている。実環境を考慮した N₂O 排出実態の調査は多く、特に環境温度によって実車からの N₂O 排出量が増加することが報告されているが⁽²⁾、湿度に着目した研究は見受けられない。そこで本研究では、台上試験において N₂O の計測を適切に行うための試験条件を定めるため、ガソリン車およびディーゼル車を用いて N₂O 排出特性に与える環境湿度の影響について検討した。本報では主にガソリン車についての結果を述べ、速報値としてディーゼル車の結果も報告する。

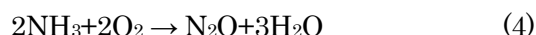
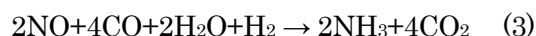
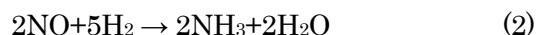
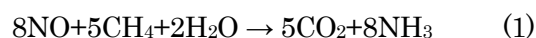
2. N₂O 排出特性の評価に影響を与える要因

自動車の N₂O 生成機構はエンジン燃焼と後処理装置の 2 つに大別できる。エンジン燃焼では燃焼で生成された NO が還元されて N₂O を生成すること⁽³⁾、および燃料中の硫黄分に起因した SO₂ と燃焼ガス中の NO、水分が反応して副次的に N₂O を生成⁽⁴⁾することが挙げられる。しかしながら、燃焼に起因して生成した N₂O はその後還元物質によって還元される。また高温場では N₂O は不安定となり、短期間で他の物質に転換される。そのため、エンジン燃焼では最終的な N₂O 排出量は比較的少ない。加えて、燃料中に含まれる硫黄分は少なく、N₂O 排出に対するエンジン燃焼の影響は小さい。このことから、自動車では主に排出ガス後処理装置にて N₂O が生成される。

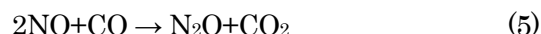
2. 1. ガソリン車での N₂O 生成機構と湿度との関係

ガソリン車においては主に三元触媒にて N₂O が生成される。三元触媒での主な N₂O 生成機構は以下の通りである^{(3), (5)}。

- ① 空燃比制御がリッチに転じた場合に、燃焼により生成した NO が式(1)～(3)のように還元され NH₃ を生成する。その後、リーンに転じた場合に NH₃ が式(4)のように酸化されて N₂O を生成する。



- ② 還元物質共存下で燃焼時の NO が還元され N₂O を生成する。



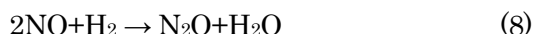
三元触媒が活性温度よりも低温である場合は浄化率の低下によって N₂O の生成量が増加する⁽⁶⁾。ガソリン車においては走行パターンや車両によって異なるが、エンジン始動直後に多量の N₂O を排出する場合

がある。これは触媒温度と①、②の反応が複合的に重なった結果である。さらには、エンジン停止後、排気管や触媒に滞留している NH_3 が触媒層において N_2O に転換され、次のエンジン始動後に排出される可能性もある⁽⁷⁾。仮に環境湿度が高い場合、エンジン停止後、排気管や触媒に残留する凝縮水が増え、水に溶解する NH_3 や硝酸 NH_3 等が増加することで N_2O の生成を抑制することが考えられる。また、環境湿度が高い場合は吸入空気に含まれる水分が増加するため燃焼温度が低下し、 NO_x が減少する。そのため①、②の反応による N_2O の生成が抑制される可能性がある。

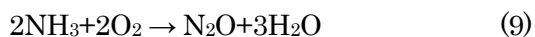
2. 2. ディーゼル車での N_2O 生成機構と湿度との関係

ディーゼル車においては主に尿素 SCR システムにて N_2O が生成される。尿素 SCR システムでの主な N_2O 生成機構は以下が挙げられる⁽⁸⁾。

- (i) 還元物質共存下で燃焼時の NO が還元され N_2O を生成する。



- (ii) 尿素水の熱分解によって生成した NH_3 が NO_x に対して過剰に供給された場合や NO_x と反応できなかった場合に未反応 NH_3 が酸化されることで N_2O を生成する。



- (iii) NO_2 とアンモニアが化合して生じた硝酸アンモニウムが分解して N_2O が生成する。



ディーゼル車においては(i)～(iii)の反応が複合的に重なり N_2O を排出する。(ii)は NH_3 の酸化という点でガソリン車と共通するが、 NH_3 の生成機構が異なる。尿素 SCR システム以外に、 NO_x 吸蔵触媒 (LNT) も(i)～(iii)の反応で N_2O を生成する場合がある。

環境湿度が高い場合はガソリン車同様に吸入空気に含まれる水分が増加するため燃焼温度が低下し、 NO_x が減少する。さらに、 NO_x の減少に比例して尿素水噴射量も減少することが予想される。これらのことから環境湿度が高い場合は(i)～(iii)の反応による N_2O の生成が抑制される可能性がある。

以上より、ガソリン車、ディーゼル車ともに化学反応としては N_2O の生成に環境湿度が影響すると予想されたが、その相関について台上試験にて検証する。

3. 実験方法

3. 1. 実験装置

図1に試験設備の概要を示す。車両前方には車両冷却ファンが設置されており、車速に応じた走行風を吹き出した。温度と湿度が制御可能な空調機の吹き出し口は車両冷却ファンの上方に設置している。排出ガス分析装置には排出ガスを未希釈で計測する2台の分析計 [SESAM i60 FT(以降: FTIR)、MEXA-ONE (以降: 従来型分析計)] を用いて同時に計測を行った。排出ガス濃度に加え、排出ガス流量計 (EFM) により排出ガス流量を計測した。排出ガス温度は EFM に取り付けられた熱電対によって取得した。EFM はテールパイプ直下に接続し、排出ガスのサンプリングポートを FTIR、従来型分析計の順で EFM の下流に設置した。なお、従来型分析計は水分を含まない Dry 計測のため、FTIR で計測した H_2O 濃度を用いて Wet 換算した。表1に供試車両の諸元を示す。アクセルおよびブレーキの操作には、当研究所で構築した運転ロボット⁽⁹⁾を用いて排出ガス特性に与える運転操作の影響を排除した。

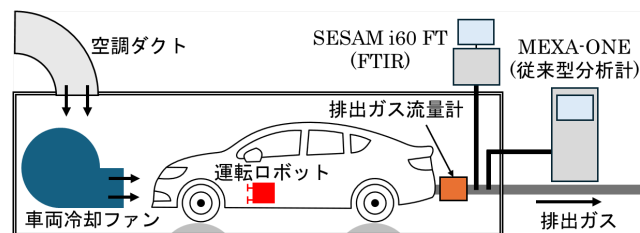


図1 試験設備の概要

表1 供試車両の諸元

	ガソリン車	ディーゼル車
パワートレイン	直列3気筒ターボエンジン	直列4気筒ターボエンジン
排気量	1.2 L	2.0 L
燃料	ハイオクガソリン	軽油
排出ガス後処理装置	TWC, GPF	LNT, Urea-SCR, DPF

3. 2. 実験手順

本実験では環境温度を 23°C で固定し、環境湿度を $30\%RH$ (Relative Humidity)、 $50\%RH$ 、 $70\%RH$ と変化させて台上試験を行った。いずれの条件もソーク後に暖機運転なしで計測を開始する Cold 条件で WLTC (Worldwide light-duty test cycles) モードの4フェーズ (Low+Middle+High+Ex-High) の走行を行った。本実験では各条件において3回の走行を行った。いずれもソーク時間は23時間程度とした。

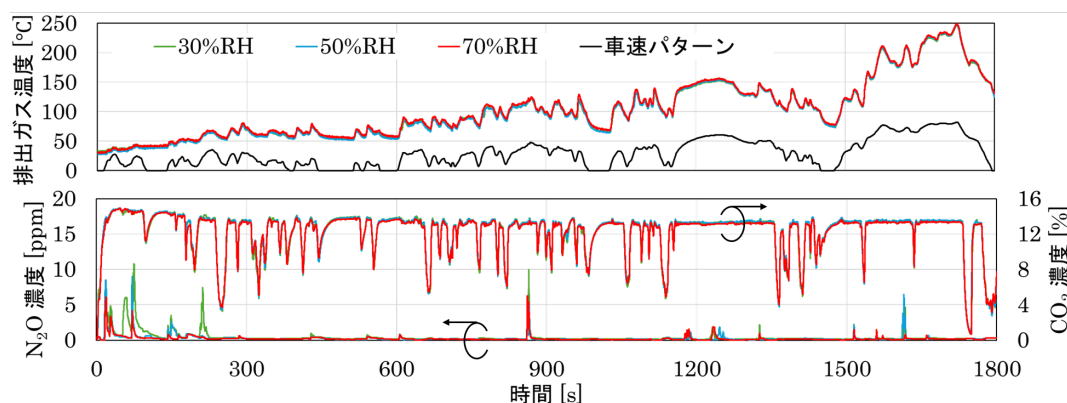


図2 ガソリン車における車速パターンと各環境湿度条件下の排出ガス温度と排出ガス濃度

4. 環境湿度がN₂O 排出特性に与える影響

4. 1. ガソリン車における環境湿度とN₂O の関係

図2にガソリン車における車速パターンと各環境湿度条件の排気温度、N₂O 濃度、CO₂ 濃度を示す。排気温度は300s程度まで上昇を続け、その後は車速パターンに比例して変化する。CO₂ 濃度のピーク値はエンジン始動後に最も高い値を示した後、300s程度まで減少を続ける。エンジン始動後は排出ガス中の水分が凝縮して触媒や排気管に付着するため見かけ上のCO₂ 濃度は高くなるが、昇温後とみられる300s程度からはCO₂ 濃度も13%程度で安定した。

一方、N₂O は触媒が活性温度未満であると生成量が増加することから始動直後に比較的高濃度のN₂O を排出する。また、300s未満では環境湿度によってN₂O 濃度が大きく変化することに対し、300s以降ではピーク値に若干の変動はあるものの排出時期に違いは見られない。排出ガス温度が安定した300s以降ではいずれも加速や減速のタイミングでN₂O が排出されていることから、空燃比の変動が要因であると考えられる。図3にガソリン車におけるフェーズごとのN₂O 排出量の平均値と標準偏差およびWLTCモード全体でのN₂O 排出量と環境湿度との関係を示す。Lowフェーズでは最も多くのN₂O を排出しており、排出量全体の約半数を占める。また、いずれのフェーズにおいても高湿度であるほどN₂O 排出量は減少傾向を示しており、特にLowフェーズでの影響が顕著である。N₂O 排出量と環境湿度の関係を見ると、試行回数ごとにばらつきはあるものの環境湿度とN₂O 排出量は負の相関であることがわかる。70%RHを30%RHと比較すると平均で39.1%減少しており環境湿度が大きな影響を与える。

N₂O 以外の排出ガス量に与える環境湿度の影響を

解析した結果についても述べる。本実験においてCO₂、O₂、NH₃への環境湿度影響は見られなかった。一方、70%RHを30%RHと比較するとCOは7.4%、H₂Oは8.6%増加し、NO_xは25.9%減少した。これは吸入空気に含まれる水分量の増加と燃焼温度の低下によるもので、基本的なエンジン燃焼の特性と一致する。ここで、認証試験にて規定されるNO_xの湿度補正⁽¹⁰⁾をNO_xおよびN₂Oに適用すると、NO_xの差(70%RHと30%RHで比較)は25.9%から7.3%まで減少した。N₂Oの差(70%RHと30%RHで比較)も39.1%から23.8%まで減少したが、環境湿度による排出量の差は依然として大きいままであった。N₂Oへの上記の湿度補正は適用対象外のため参考ではあるが、NO_xに適用される湿度補正はN₂Oの補正には不十分であることから、環境湿度によるNO_x排出特性の変化だけではなく、NH₃の酸化等の要因も影響してN₂O排出特性が変化するものと推察される。

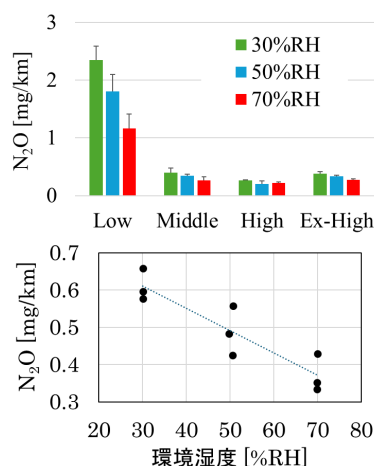


図3 ガソリン車における(上)フェーズごとのN₂O 排出量の平均値と標準偏差および(下)WLTCモード全体におけるN₂O 排出量と環境湿度との関係

4. 2. ディーゼル車における環境湿度と N_2O の関係

図 4 にディーゼル車におけるフェーズごとの N_2O 排出量の平均値と標準偏差および WLTC モード全体での N_2O 排出量と環境湿度との関係を示す。図 3 と比較するとディーゼル車の N_2O 排出量はガソリン車よりも数倍～数十倍多いことが分かる。尿素 SCR システム搭載車では NO_x の還元のために尿素水から NH_3 を生成することから、ガソリン車よりも NH_3 生成量が多く、(ii)および(iii)の反応による N_2O 生成量が増加したと考えられる。また、各フェーズにおいて N_2O 排出量と環境湿度との明確な関係は確認できないが、WLTC モード全体で見ると試行回数ごとにばらつきはあるものの環境湿度と N_2O 排出量は負の相関であることがわかる。70%RH を 30%RH と比較すると N_2O 排出量は平均で 5.2%減少する結果となり、環境湿度の影響はガソリン車よりも小さくなった。

5. まとめ

台上試験において N_2O の計測を適切に行うための試験条件を定めるため、ガソリン車およびディーゼル車を用いて N_2O 排出特性に与える環境湿度の影響について検討した。WLTC モードで走行した場合、試行回数ごとにばらつきはあるものの環境湿度と N_2O 排出量は負の相関を示した。環境湿度の影響はガソリン車よりもディーゼル車の方が小さいが、 N_2O 排出量は数倍～数十倍多い結果となった。今後は試験台数の増加や計測機器の違い、プレコンディショニングおよびソークの影響についても検討を進める予定である。

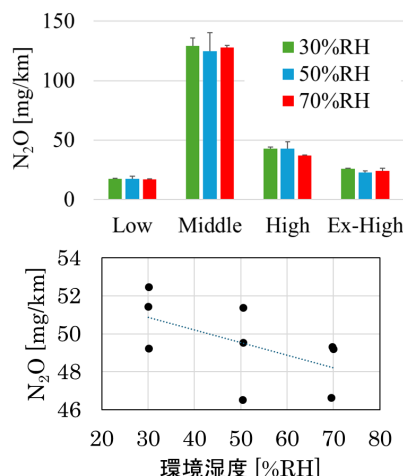


図 4 ディーゼル車における (上) フェーズごとの N_2O 排出量の平均値と標準偏差および (下) WLTC モード全体における N_2O 排出量と環境湿度との関係

参考文献

- 1) IPCC, “Climate Change 2021: The Physical Science Basis,” <https://www.ipcc.ch/report/ar6/wg1/>, (参照 2025.07.18)
- 2) Roberto Gioria, et al., “Regulated and unregulated emissions from Euro VI Diesel and CNG heavy-duty vehicles”, Transportation Research Part D, Vol.134, pp.1-15 (2024)
- 3) 小池章介ほか, “自動車から排出される亜酸化窒素の排出挙動に関する研究-第 3 報 三元触媒車から排出されるアンモニアと亜酸化窒素の FTIR 法による解析-”, 自動車技術会 1998 年秋季学術講演会講演前刷集 9839605
- 4) L.J.Muzio et al., “An artifact in the measurement of N_2O from combustion sources”, Geophysical Research Letters, Vol.15, No.12, pp.1369-1372 (1988)
- 5) Pauliina Nevalainen, et al., “Formation of NH_3 and N_2O in a modern natural gas three-way catalyst designed for heavy-duty vehicles-the effects of simulated exhaust gas composition and ageing-”, Applied Catalysis A: General, Vol.552, pp.30-37 (2018)
- 6) Matsuo Odaka et al., “ N_2O Emissions from Vehicles Equipped with Three-Way Catalysts in a Cold Climate”, SAE Technical Paper 2002-01-1717 (2002)
- 7) 山本敏郎ほか, “始動時にガソリン車から排出される N_2O の FTIR 分析-ソーク条件の影響-”, 自動車技術会絵論文集, Vol.44, No.1, pp.157-163 (2013)
- 8) 堀正雄ほか, “自動車用 SCR 触媒の現状と課題”, ゼオライト, Vol.36, No.2, pp.10-19 (2019)
- 9) Nobunori Okui, “Development of Driving Robot and Driver Model Applied Regenerative Brake Control of Electrified Vehicles”, Journal of Robotics and Mechatronics, Vol.36, No.4, pp. 879-888 (2024)
- 10) 国土交通省, “道路運送車両の保安基準の細目を定める告示 第 31 条 別添 42 軽・中量車排出ガスの測定方法,” <https://www.mlit.go.jp/jidosha/content/B042.pdf>, (参照 2025.07.18)