

B-51 CH₄、N₂O のインベントリーの精緻化と開発中核技術の内外への普及

(2) 自動車の N₂O の排出総量推計とその低減手法の中核技術の汎用化と普及に関する研究

独立行政法人 交通安全環境研究所

環境研究領域 後藤 雄一 小池 章介 鈴木 央一

平成12～14年度合計予算額 13,394 千円

(平成14年度予算額 4,418 千円)

[要旨]

自動車の温室効果ガスの一つである N₂O 排出原単位はばらつきが大きく、排出総量推計値を不確実なものにしている。そこで排出原単位を不確かにしている加齢からくる排出量増大や、排出原単位測定に使用する走行モード種類の違いからくる排出量影響、外気温度が排出量に与える影響等について検討し、より確実性の高い自動車 N₂O 総排出量を推計する手法を明らかにすることを試みた。

実験は追跡調査による長距離走行時の N₂O 排出量変化や、N₂O 計を車載した実車実路走行から、走行時の外気温度変動が N₂O 排出量に与える影響を把握した。実験の解析結果から現在の推計式を補強し、より確実性の高い総排出量推計値を得るに必要な幾つかの補正係数を得た。また実車走行実験から得られた実路における触媒温度分布、N₂O 排出挙動から、推計精度の向上には新たな N₂O 排出量測定モードの構築が必要不可欠であることを明らかにした。

キーワード： N₂O、自動車排気、亜酸化窒素、触媒、輸送機関

1. はじめに

我が国は地球温暖化防止のために京都議定書を締結しその発効へ向けて準備を進めている。京都会議（COP3）では新たに N₂O を含めた6種の温室効果ガス（GHG）をバスケット方式として削減対象ガスに指定し国別 GHG 排出量枠を定めた。したがってこれまで CO₂ 主体であった GHG 削減計画とその実施は、新たに加えられた温室効果ガスを含めて全体を見直す必要が生じたといえる。人為的な温室効果ガス排出源として主要な輸送機関について見れば、その保有台数や燃料の消費量統計は正確に把握されており、CO₂ の排出総量は正確に推計できる。しかし N₂O は排出原単位のばらつきが大きく、その総量推計値は CO₂ に比べて不確実性が高い。IPCC の提示した総排出量推計方法に従えば、車種ごとの排出原単位に年間活動量をかけ、その総和を N₂O 総排出量として推計している。しかし排出量寄与率の高い触媒装着車の排出原単位が大きくばらついているため、その排出原単位から推計された総排出量は不確実性が高くなる。そこで実際の排出量推計作業では測定モードの統一や測定対象車の絞り込みを行い、見かけ上再現性のある排出原単位に集約することになる。しかしもともと N₂O 排出量は車両の触媒仕様や車齢により大きく分散しているのが現実であるから、単純化された排出原単位から推計された総排出量はむしろ現実の値から遠ざかる可能性が高い。したがってより現実的な総量を求めるには多様な車両の触媒仕様、車齢、走行形態等の影響因子を明らかにし、それらの因子で排出量原単位を補正するこ

とにより、確度の高い排出総量を推計する必要がある。

2. 研究目的

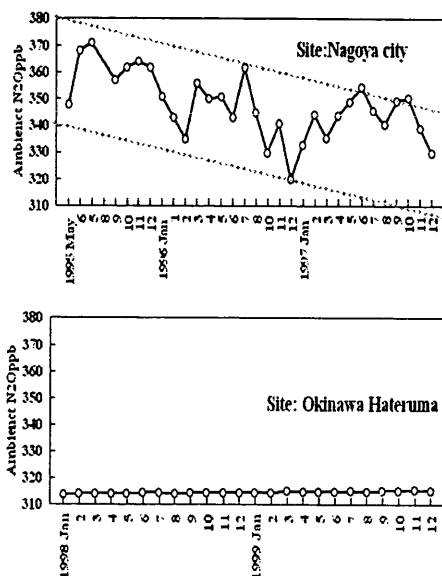
これまでの報告によれば、 N_2O 濃度は 1975 年頃から急激に大気濃度が増加し始めた。その原因は化石燃料の燃焼による人為的な増加と推定されているが、大気 N_2O 濃度の増加率は人為的な N_2O 排出源ら推計する増加より高く、いまだ知られていない N_2O 放出源の存在が疑われている。しかし未知の放出源の存在以外に既知の放出源寄与率が過少に評価されていても大気中の N_2O 濃度収支は整合しないことから、 N_2O 排出総量推計値の確実性を高めには現在の人為的な N_2O 放出源の推計精度をもう一度詳しく検

Tab.1 Difference of Regions Ambient Temperature

City	Average Temperature (deg. C) (1997)			Registered car (1999)
	January	August	Year	
Sapporo	-4.6	21.7	8.2	2,203,000 (All Hokkaido)
Aomori	-1.8	22.9	9.7	579,000
Morioka	-2.5	23.2	9.8	577,000 (All Iwate-ken)
Sendai	1.0	24.1	11.9	989,000 (All Miyagi-ken)
Tokyo	5.2	27.1	15.6	3,136,000
Fukuoka	5.8	27.6	16.2	1,997,000
Kagoshima	7.2	27.9	17.6	711,000
Naha	16.0	28.1	22.4	542,000

証する必要がある。

N_2O の主要な排出源である輸送機関の寄与率は全体の 20% 程度であり、それほど大きくないが排気対策に触媒を装着した乗用車の N_2O 排出源単位のばらつきは大きく年間に排出され総量は未だ不確かである¹⁾。図 1 に示す大気中の N_2O 濃度を見ると、自動車の影響がほとんどない沖縄の波照間では 300ppb 程度であり、その濃度は季節にかかわらず一定である。これに対して自動車影響の多い都市部（名古屋市）の N_2O 大気濃度は沖縄波照間の 2 割近く高い 350ppb であり、その濃度は年度と季節により増減していることが



Data: <http://gaw.kishou.go.jp/wdgg/pub/data/n2o/monthly/ngy235a0.dat>

Fig. 1 Seasonal fluctuations of ambient N_2O concentration at different

Table. 2 Specification on tested cars

Product Maker	Toyota	Fuji heavy Industry	Nissan	Honda
Car name, type	Corolla Sedan	Subaru Legacy Sedan	Skyline Sedan	Concert Sedan
Weight (kg)	1040	1390	1320	1030
Tested Weight	1150	1500	1450	1140
Emission Regulation year	2000 Japan	1978 Japan	1978 Japan	1978 Japan
Model	TA-NZE12	E-BGS	E-HCR32	E-TM20G
Production year	2001	1993	1991	1990
Engine Model, Type	1NZ-FE, 4-cyl, L-4, 1.496L	EJ20, 4-cyl, L-4, 1.77L	RB20, 4-cyl, L-4, 1.998L	DB15, 4-cyl, L-4, 1.49L
Transmission type	Automatic	Manual 5th	Manual 5th	Automatic
Mileage(km)	3780	330	3526	88130
Fuel type	Gasoline Regular	Gasoline Premium	Gasoline Regular	Gasoline Regular
Catalyst technology	Tree way Cat. Month type	Tree way Cat. Month type	Tree way Cat. Month type	Tree way Cat. Month type
Turbo-charge	N	Y	Y	N
EGR	N	Y	Y	Y
Test date	2001 / Feb.	1995 / July	1995 / July	2001 / Feb.
Catalyst Position	Close-coupled	Close-coupled Under floor	Under floor	Close-coupled

明瞭に認められる¹⁾。IPCC の提案する輸送分野の N_2O 総排出量推計手法では自動車の N_2O 排

出原単位は 25℃ の環境温度で試験した排出原単位から推計しており、季節や地域による外気温度影響は考慮されていない。しかし我が国は南北に長く位置し、表 1 に示すごとく自動車が集まる主要都市の季節温度は大きく異なっている²⁾。もし自動車の N_2O の排出量が外気温度に影響され変化するとすれば各都市における排出量は季節ごとに異なることになり、より確実性の高い推計には外気温度により排出量補正が必要である。しかし 25℃ 以外の温度条件で自動車の N_2O 排出量はどう変化するかについては全く報告がなく、実験から外気温度と N_2O 排出量の関係を明らかにする必要がある。

3. 実験の方法と実験装置

自動車の N_2O 排出量は様々な要因で変動する。したがってその年間総排出量を求めるには外気温度以外の変動要因も明らかにしておかなければならない。触媒劣化（車両の加齢、走行距離）が N_2O 排出量に与える影響を、具体的な補正係数として把握することを試みた。また外気温度変化は実路の交通走行形態にも影響を与え、その交通走行形態変化が N_2O 排出量に影響することも予測されるので、実際に外気温度の異なる幾つかの都市で実車走行実験を行い、走行形態変化影響を含めた実際の外気温度変化による N_2O 排出量影響を検討することにした。

3. 1 実験車の仕様とシャシーダイナモの負荷設定

外気温度が触媒温度に及ぼす影響の測定と実路の N_2O 排出量測定に用いた車両 A は、我が国で代表的な大衆乗用車であり、表 2 に供試実験車両 A 車の諸元を示す。A 車の排気規制対応は 2000 年であり、触媒はクロードカップル方式（エキゾーストマニホールド触媒、以下エキマニ触媒と記す）である。触媒は排気マニホールド直下に配置され、冷始動時の触媒早期活性化を図っている。触媒組成は不明であるが、排出ガス試験時の触媒温度に対する N_2O 排出特性からみて、一般的な白金／ロジウム（Pt/Rh）触媒と見られる。

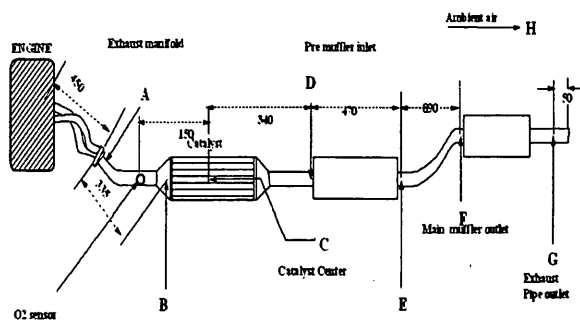


Fig. 2 Detail of the gas temperature measurement point in the exhaust line

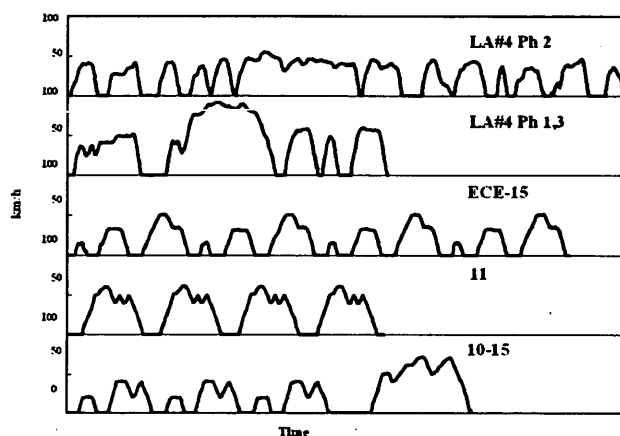


Fig. 3 Emission test modes

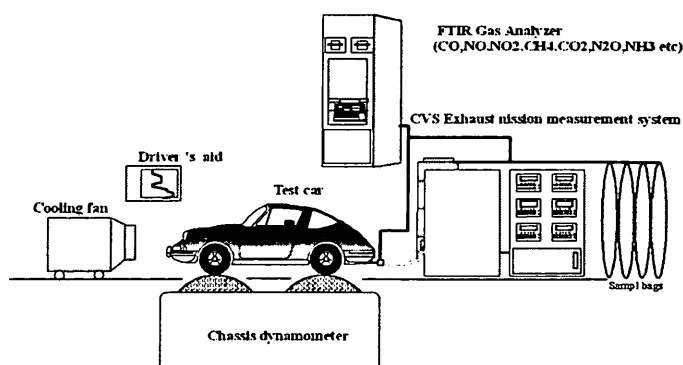


Fig. 4 Measurement system N_2O mass emission

実験車はレンタカーであり、借り入れの度に車両が異なるため、触媒条件が同一とならない。そこで別途 O_2 センサーや熱電対、排ガス流測定装置を取り付けた排気系アセンブリーを用意し、(図2) 実験の都度、実験車の排気系と交換し、常に同一の触媒を用いるようにした。

排気系の触媒取り付け位置による N_2O 排出量の違いを観察した実験車は、床下型触媒を持つ表2の B,D 車とエキゾーストマニホールド直下に触媒を持つ A,C 車であり、触媒位置による N_2O 排出量の差を同一走行モードで比較した。台上の排出量測定に必要な実験車の走行抵抗は日本自動車研究所 (JARI) の総合テストコースにおいて、実験車を 105km/h から停車に至るまで惰行させ、その車速変化から走行抵抗を算出した。シャシーダイナモを用いた台上試験は空車重量に定員2名の重量を加えた慣性重量とテストコースで得られた走行抵抗で走行モードを運転し N_2O 排出量を測定するとともに、図3、図4に示すシャシーダイナモ上での走行モードの排気系各部温度挙動を測定した。

3. 2 触媒の温度に対する N_2O 生成量と排気系の触媒位置による N_2O 生成濃度

N_2O 生成濃度は触媒温度により変わる。また触媒が排気系のどの位置に装着されているかにより触媒温度は異なる。したがって触媒の取り付け位置からおおよその N_2O 生成濃度を予測することが可能となる。本報ではエキマニ出口の高温ガスが排気管出口までに至る間の排ガス温度を詳細に調べるとともに、同一走行モードでエキマニタイプ触媒車と従来の床下型触媒車それぞれの N_2O 排出量を比較し、触媒位置による排出補正係数が求められないか検討した。

3. 3 車齢による N_2O 増大挙動

排出量の大きな変動要素に自動車の車齢がある。自動車の N_2O 排出量は走行距離が増加すると増加すると多くの報告がある^{5), 6), 7)}。しかしそれらの報告はモデルガス、反応炉を用いた触媒片による強制劣化試験による報告が主であり、実際の車両走行距離に対する N_2O 排出量の増加については定量的な把握がなされていない。そこで表2の D 車 (エキマニ触

媒) について新車時から 85,000km 走行するまで N_2O 排出量の追跡調査を行い、走行距離と N_2O の排出量の関係を各種の走行モードで比較し、排出量増大係数を把握した。この試験車両の加齢は触媒の迅速耐久試験ではなく、日常の自動車使用形態から触媒を加齢させたものであり、現実の走行距離増加に対する N_2O 排出量増大係数を得ることが期待できる。

3. 4 自動車の走行形態調査

もう一つの排出量変動要素に車両の走行形態があり、走行形態が異なれば N_2O 排出量にも当然影響すると考えられる。従来の走行形態 (排出ガス試験走行モード) による有害ガスまたは CO_2 排出量の違いは、都市内の自動車旅行速度すなわち走行区間の車速分布を負荷要素として走行モードを構築している。しかし、触媒の温度に対する N_2O 生成の挙動は図5に示すように CO, HC, NO_x などの有害ガス浄化が始まる触媒の活性化温度 (ライトオフ温度、Pt/Rh 触媒では

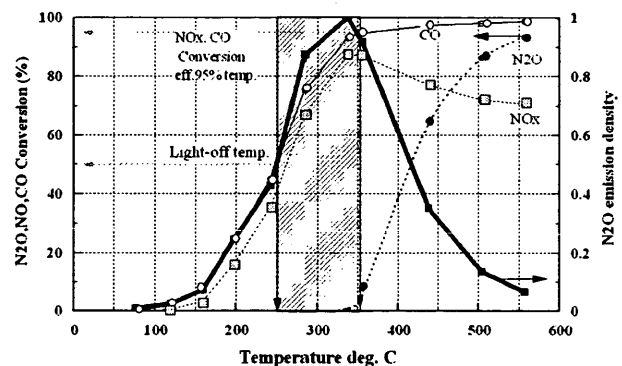


Fig. 5 Behavior of N_2O formation temperature zone in three-Way catalyst

250℃～350℃) 付近で生成し、250℃以下では生成されず、また 500℃以上では逆に N_2O は触媒に分解されてしまう⁴⁾。この様に負荷が低くても高くても N_2O は排出されない特性があるために N_2O 排出量評価は車速分布ではなく、触媒温度頻度分布の再現が重要であり、10・15 や LA4 のスタビライズフェーズなどのように冷始動や再始動条件を含まない従来の排出ガス試験走行モードは N_2O 総排出量評価には適していない。したがって新たに触媒温度頻度分布を再現できる N_2O 排出量測定に適した走行モードを構築する必要がある。本報では冷始動、再始動を含めた実際の日常生活で使用する車両の走行形態、触媒温度頻度分布調査を行い、 N_2O 年間総排出量推計に適した走行モードの構築を試みた。

3. 5 N_2O 排出量測定方法とオンボード N_2O 排出量測定装置

各種走行モードにおける N_2O の排出量評価は、図 6 に示す排出ガス測定装置としてシャシーダイナモメータ、排出ガス量測定装置の CVS、排出ガス分析計一式を用い、 N_2O ガス分析には加熱型自動車排ガス FTIR (堀場 FT4000) を用いた。また現在の排ガス試験走行モードと、実路走行形態での N_2O 排出量の違いを把握するためにオンボード N_2O 排出量測定装置を試作し、 N_2O 濃度と瞬時排ガス流量の積和から排出量を算出する手法を用いたオンボード N_2O 排出量測定装置を試作した。車載ガス分析計は、NDIR 方式の N_2O 計 (堀場 VIA-500) であり、 CO 、 CO_2 、 HC 濃度は NDIR 方式の堀場 500J を改造して用いた。 N_2O 濃度から瞬時排出量に変換する必要な瞬時排ガス流量は図 7 に示すごとく触媒差圧がガス流量に比例することを利用した。

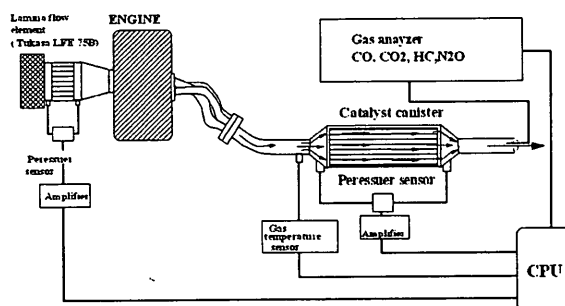


Fig. 6 Onboard N_2O mass emission measurement system

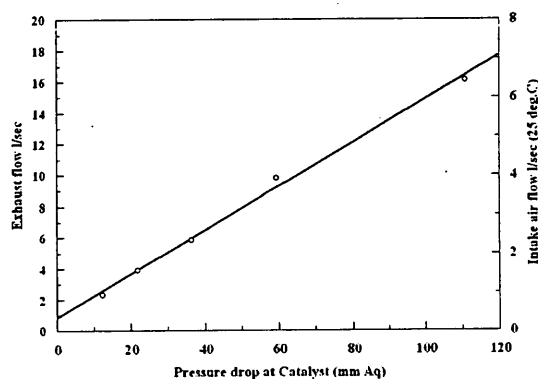


Fig. 7 Correlation between exhaust gas & intake air flow

排気系各部の排ガス温度は、図 2 に示す 8 点の位置に熱電対を挿入して計測した。車速は実験車の速度パルス信号を、F/V コンバータ (小野測器 FV-230) によりアナログ信号に変換し、前述の温度信号とともにデータレコーダへ記録した。

3. 6 N_2O 排出量に対する外気温度影響の調査方法

これまでに報告された N_2O 排出原単位は排出ガス試験法に定められた 25℃の試験環境温度で測定されたものである。しかし我が国は南北に長く位置し、その外気温度は前に示した表 1 のように地域、季節によって異なる。年間の平均外気温度を自動車保有台数の多い大都市間で比較すると、いずれの都市平均温度より排出ガス試験時の標準温度は高い。東京は 15.6℃であり、札幌市では 1 月の気温が -4.6℃まで下がり、外気温度と試験温度条件の違いが実路 N_2O 排出総量に及ぼす影響が懸念される。

外気温度を変えての排出ガス測定実験は試験設備が温度条件を変えて台上試験を行えない仕様

のために、外気温度の異なる季節、都市で実際に車を走らせ、外気温度に対する触媒温度変化から N_2O 排出量を推計することを試みた。低温条件の外気には冬季の寒冷地で実路走行実験を行い、外気温度が触媒温度に与える影響を調べた。また高温条件には盛夏の九州都市で実路走行時の触媒温度挙動を測定した。都市の選定は気温差と車両保有台数の大きい東京都、青森、盛岡、仙台、鹿児島、福岡、広島、神戸、新潟、金沢、名古屋市においても走行形態と触媒温度挙動を調査し解析を行った。しかし都市の構造からくる走行形態の違いにより生じる触媒温度変動と外気温度要因とを分離することが難しく、両者を分離する方法について幾つかの手法を検討した。

4. 実験結果と考察

触媒車の走行距離に対する N_2O 排出量増加係数、触媒位置による触媒温度の変化と N_2O 排出量への影響、外気温度による触媒温度変化と N_2O 排出量への影響について実験を行い、以下の結果を得た。

4. 1 車齢（走行距離）による N_2O 排出量の増加

自動車の N_2O 排出量を測定した例では、新車が少なく走行距離の高い車に排出量が多い傾向を示しており、触媒の劣化が N_2O 排出量を増加させると推定されている。

強制劣化触媒実験からも劣化が N_2O を増大させることは裏付けられているが³⁾・⁴⁾、排気対策方式による N_2O 排出量の違いも考えられ、必ずしも同一車両について走行距離と N_2O 排出量の比例関係が定量化されているわけではない。もし走行距離に対する N_2O 排出量の比例関係が存在すれば、保有車両の走行距離または年式台数比率から補正が可能となりより確実性の高い総排出量推計が可能となる。

そこで自家用乗用車の通常使用形態での走行距離増加に対する N_2O 排出量の変化を追跡調査した。4,000km、50,000km、85,000km 走行時点で各種の走行モードにおける N_2O 排出量を測定し、走行距離と N_2O 排出量を測定した。

図8は表1、D車の N_2O 排出量及び新車時との比較であり、走行距離に比例して N_2O 排出量は増加し、これまでに報告されているように触媒劣化が N_2O 排出量を増加させることを裏付けている。測定データでは4,000kmのデータが直線からはずれるがこれは初期の N_2O 分析法やシャシーダイナモメータ設備が他の測定条件と異なっていたためであり、85,000km 走行後、劣化した触媒を新品に交換して各種の走行モードで N_2O 排出量測定を行い、新車時の N_2O 排出量の基準として劣化係数を求めた。

N_2O 増加比率は走行モード種類により異なるが、およそ85,000km 走行で初期値の3倍～15倍と大幅に増加した。我が国の完全暖機で試験する10・15モードは85,000km 走行後の排出量が0.04g/km程度であり他の走行モードと大差はないが、初期の排出レベルが低いために増加率としては40倍を超える。

他の冷始動モードに比べて10・15モードやLA#4のフェーズⅡのような暖気始動モードの増加率が高いのは触媒が劣化すると N_2O 生成温度帯が高温側へ移動する性質があるためであり、

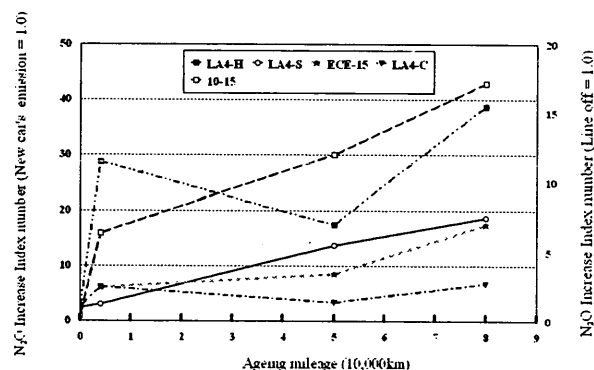


Fig. 8 N_2O increase index number (comparison mass emission with mileage)

高い触媒温度に分布を持つ走行モードほど触媒劣化影響が大きくなることによると考えられる。今回は 10・15 モードを除外し、各モードの平均値から劣化係数を求めると 10,000km 走行距離あたりの 1.25 倍の N_2O 排出量増加となった。実験した車はエキマニ型触媒であるが、触媒の劣化挙動は同一であり、床下型触媒でも劣化に対し同様の排出量増加傾向を示すと考えられる。

今回より多くの車両について同様の試験を行い、それぞれの劣化係数（加齢係数、マイレージ係数）から保有車両の車齢（走行距離）を補正することにより、より正確な総排出量推計が期待できる。

4. 2 触媒取り付け位置による N_2O 排出量の違い

これまでの三元触媒は一般的にアンダーフロア型(以下床下型と記す)と呼ばれている床下に取り付けられた形式である。しかし排ガス規制強化から、始動時の有害ガス浄化率を向上図ったクロズドカップル型(エキマニ型)が増加しつつある。現在では床下型とエキマニ型、または両者を組み合わせた触媒位置の形式が混在して存在する。

エキマニ型と床下型の N_2O 排出挙動を同じ走行モードで比べると図 9 に示すごとく、床下型C車はエキマニ型触媒車Aに比較して N_2O 排出濃度が非常に高い。三元触媒の N_2O の生成は図 4 に示した触媒反応炉実験での触媒温度に対する N_2O 生成強度から見ると狭い温度範囲内で起きる⁵⁾。

表 3 は各種走行モードの排気系各部の平均温度であり、11 モードについてみれば、エンジン排気出口のエキマニガス温度は排気管出口に至るまで 320℃ほど降下する。触媒が排気系のどの部分に触媒が取り付けられているかにより表 3 から触媒温度が推定でき、 N_2O 排出量を予測できる。触媒型式をエキマニ型と床下型に大別し、触媒位置による N_2O 排出量係数を N_2O 排出量比から試算すると 11 モードではエキマニ型 1.0 に対し床下型が 11.6 となる。11 モード以外のモードでもほぼ同様の傾向を示し平均では 9.3 となる。この係数を用いて保有車両の触媒型式による分布推移から、およそその過去および未来の年次ごと N_2O 総量が算出できる。

4. 3 触媒温度に及ぼす外気温度の影響

外気温度に対する N_2O 排出量の関係が分かれば標準温度と異なる季節や地域の N_2O 排出量を推計できる。外気温度と N_2O

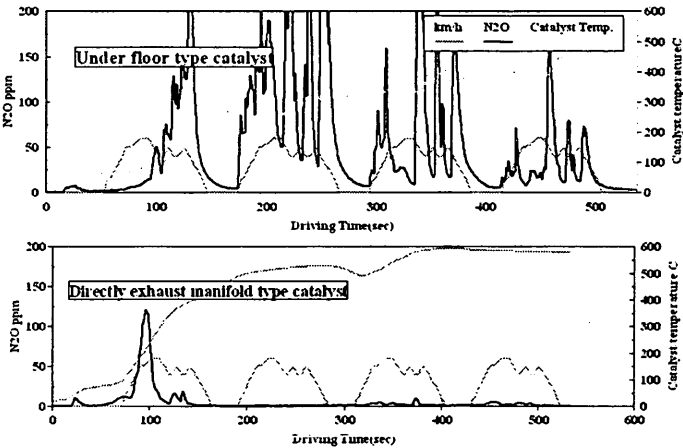


Fig. 9 Differential N_2O emission by catalyst fitting position (test mode by 11)

Table. 3 Average temperature of exhaust line for different emission test mode (deg. C)

Point \ Mode	LA=4 PH 1	LA=4 PH 2	LA=4 PH 3	ECE-15	10-15	11mode
A	451.7	428.7	427.5	411.3	421.8	444.2
B	445.1	438.9	440.1	401.4	442.9	429.8
C	521.4	558.4	537.0	478.9	564.3	503.2
D	351.4	395.9	354.3	332.2	388.9	340.9
E	193.4	296.4	232.8	202.4	287.4	169.1
F	240.5	285.9	247.1	228.7	276.6	223.3
G	27.2	27.6	27.9	24.2	25.4	24.3
H	87.1	114.3	94.4	79.1	104.3	73.1
km/h	41.3	25.8	42.7	18.7	24.1	30.7

排出量の関係は排出ガス試験設備が環境温度を大幅に変えられない仕様のため、実路走行実験から把握することにしたが、車載可能な N_2O 排出量測定装置が入手出来ないため、外気温に対する触媒温度変化から、 N_2O 排出量が推計出来ないかを図 5 の触媒温度に対する N_2O 生成特性から考察した。

触媒温度はエンジンの負荷によって決まる。したがって同一負荷であれば外気温度の低下はエンジン吸気温度の低下であり、筒内の燃焼に変化がなければエンジンの排気温度エキマニ温度は吸気温度が低下しただけ下がり、触媒温度も同様に外気温度の変化分だけ下がるはずである。排ガス試験時の標準温度 25°C から外気温度が -5°C まで下がった場合、触媒入り口温度は 30°C 低下するが、 NO_x 、 CO の浄化率は最大浄化率近くに達しており、触媒温度が 30°C 低下しても有害ガス浄化率の低下は僅かである。これから触媒温度が 350°C 以上の負荷条件では外気温度の低下影響は少ないといえる。とは言え 350°C 以下の運転条件ではわずかな温度低下でも浄化率が急激に低下することになり、外気温度の低下は負荷の低い運転条件、特に始動時の NO_x 、 CO 排出ガス量を増大させることは明らかである。 N_2O の排出についてみれば、触媒は高温側で N_2O を分解する性質があるため有害ガスと同様に触媒温度の高い 10・15 モード、FTP75 (LA#4、スタビライズフェーズ) では N_2O 排出量に与える外気温度の影響は少ない。しかし負荷の低い走行モードでは N_2O の生成が多くなり 280°C 付近の触媒温度使用頻度が多くなれば、 N_2O 排出量は増加することになる。したがって標準外気温度 25°C 時における 280°C 付近の触媒温度頻度分布を基準として比較することにより外気温度に対する N_2O 排出量が触媒温度から評価出来ると考えられる。

4. 3. 1 標準環境温度における排気系温度の挙動

まず 25°C の標準外気温度における定常走行下の触媒温度を測定した。測定は 25°C 環境におけるシャシーダイナモメータ上で、定常走行を行い、速度と触媒温度の関係を把握した。また同じ実験車の寒冷地走行実験から、定常走行に相当する部分の触媒温度を抽出し、両者を比較することにより外気温度が触媒温度におよぼす影響を明らかにすることを試みた。

4. 3. 2 外気温度が触媒の Light-off 温度に及ぼす影響

実走行時の区間平均車速と区間平均触媒温度から外気温度の影響を明らかにすることを試みた。走行区間平均の触媒温度には明確な外気温度影響が認められるものの、 N_2O 排出量に寄与率の

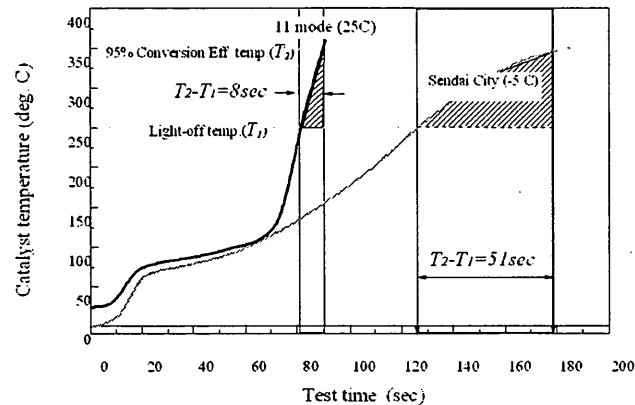


Fig. 10 Impact of ambient temperature on N_2O emission duration

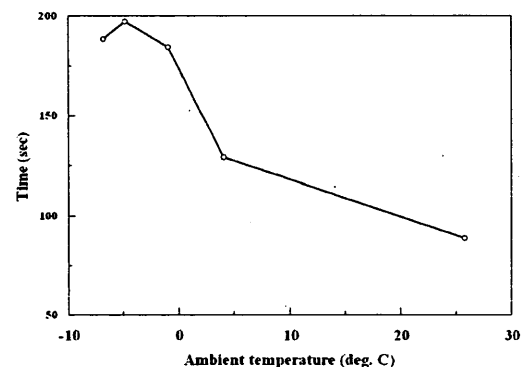


Fig. 11 Impact of ambient temperature on catalyst warm up time

高い冷始動時の触媒温度に及ぼす外気温度影響は不明瞭である。これは都市の実路走行が、地形や都市構造による地域固有の交通事情の影響を受けるため、排出ガス試験用走行モードと走行負荷が異なることによると考えられる。そこで触媒が活性化する温度（Light-off 温度）に着目し、エンジン始動から触媒が Light-off 温度に達するまでの時間長さから、外気温度影響が明らかに出来ないか試みた。図 10 に示すように N_2O が生成される触媒温度は Light-off 温度前後の 250°C から 350°C であり、この温度帯を通過する時間幅が始動時の N_2O 排出量を決定する。したがって全走行モード時間と Light-off 温度前後の 250°C から 350°C に達する時間幅の比から N_2O 排出量を推計することが可能と考える。

図 11 は冷始動走行時にエンジン始動後の触媒温度が Light-off 温度に達するまでの時間を外気温度条件から解析した例である。Light-off 時間は外気温度が低くなると増大し、 5°C 付近では標準温度 25°C 時の 2.2 倍まで増加する。しかしさらに外気温度が低下すると逆に Light-off 時間は減少に転ずる。これはエンジン制御が外気温度低下に応じ、始動性を高めるための燃料増量（Choking）を行う影響と考えられる。

4. 4 オンボード排出量測定装置の開発と N_2O 排出量測定

適用できる範囲の狭さはあるものの外気温度の N_2O 排出量に及ぼす影響を Light-off 温度時間幅で補正することは可能ではある。しかし、推計された外気温度に対する N_2O 排出量の正しいかを何らかの方法で確認する必要がある。また実際の日常生活、商業活動に使用される自動車の走行形態は様々であり、試験走行モードで評価出来ない運転領域で N_2O 排出が多量に排出されている可能性もあり、異なる外気温度、走行形態下の N_2O 排出量を測定する必要がある。

実路走行時の N_2O 排出挙動を観察した報告はほとんどが標準温度における台上試験によるものである。そこで図 6 に示したオンボード N_2O 排出量測定装置を試作し、Light-off 温度時間と N_2O 排出量の関係と実路の N_2O 排出挙動を明らかにすることを試みた。

オンボード分析計のガス成分は N_2O 以外に CO 、 CO_2 、 HC も分析

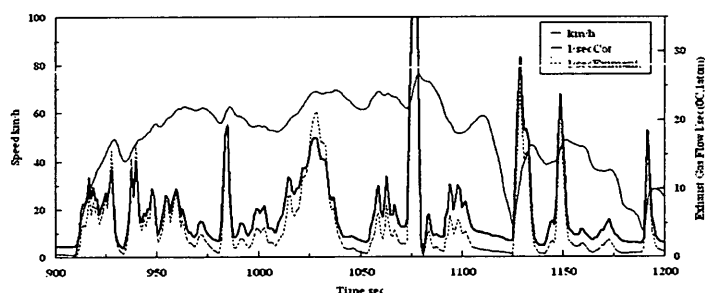


Fig. 12 Example of measured exhaust gas flow

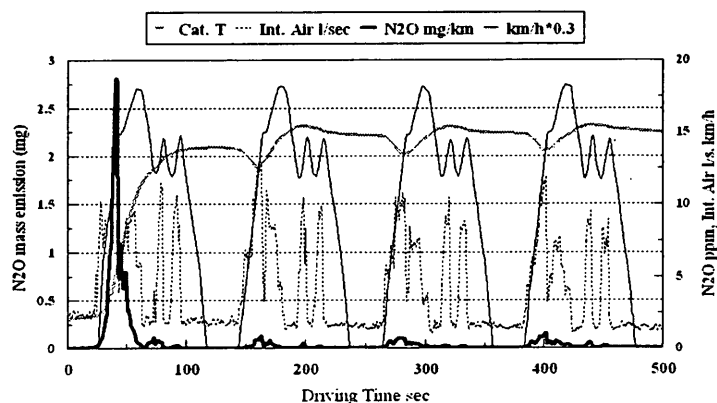


Fig. 13 Calculated result of N_2O mass emission for onboard measurement system

した。分析法はすべて NDIR 法であるため、 N_2O 計は吸収波長が近接している共存ガスの CO 、 CO_2 に強く干渉される。しかし始動時に高濃度で排出される CO は触媒が活性化すると急激に下がり CO 干渉は補正可能である。また CO_2 は触媒車の空燃比が一定であることから干渉値も一定であり、その影響も補正が可能である。次に N_2O ガス濃度を排出重量に換算するには瞬時排ガス量の測定が不可欠であるが、実路走行実験に必要な軽量、小消費電力でありかつ排気系に負荷を与えない流量測定方法が見あたらない。そこで車両に装着されている触媒に着目し、その前後差圧から瞬時排ガス流量を求める方法を検討した。自動車用触媒は微小な多数のセルから構成されている。この触媒セルを毛細管の集合と考えれば触媒を流れる排ガスは層流と見なせ、排ガス流量は触媒の前後差圧から測定出来ると考えられる。

図 12 は台上でモード走行をした際の车速、排ガス温度、触媒差圧と吸入空気量の測定例であり、吸入空気量と触媒差圧はよく一致しており触媒差圧から瞬時排ガス流量が算出できる。図 13 は台上で 11 走行モードを走行し、この瞬時排ガス流量とオンボード分析計の N_2O 濃度から N_2O 排出重量を算出した例であり、オンボード分析計の N_2O 排出重量と CVS 装置から求めた排出重量は幾つかの改善すべき問題点があるものの比較的よい一致を示した。

4. 5 再始動時の N_2O 排出挙動

オンボード N_2O 排出量測定装置を搭載した実験車の実路走行での N_2O 排出挙動観察から、冷始動時の N_2O 排出濃度より、再始動時の N_2O 排出濃度が 3 倍近くも高くなる

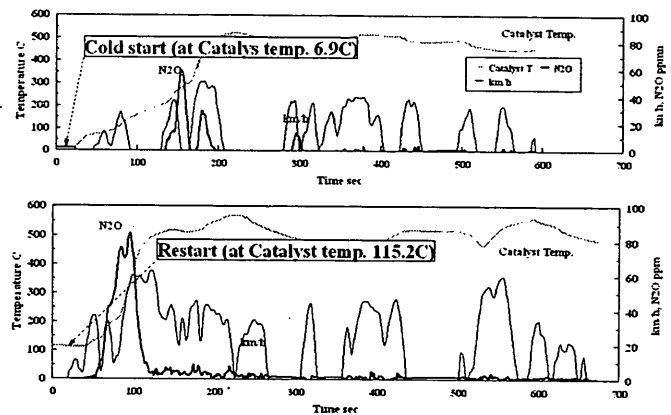


Fig. 14 N_2O emission behaviors at restart & cold start condition

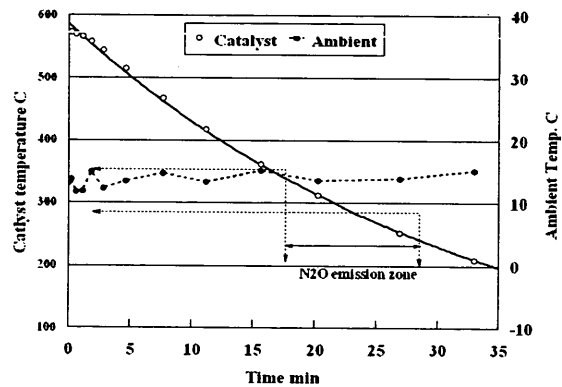


Fig. 15 Behavior of catalyst temperature and high N_2O emission period after engine off

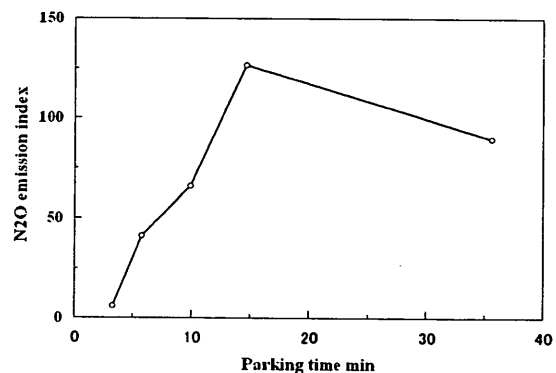


Fig. 16 Increase in N_2O emission with parking time (restart time)

ことが確認された (図 14)。これは走行モード触媒温度分布が高温であれば N_2O 排出量は低くなるとしたこれまでの概念に反しており、なぜ再始動時の N_2O 排出量が高くなるのかその原因について考察した。

これまでも既存の排ガス試験走行モードのなかで 10 分のエンジン停止期間を含んでいる LA#4 (USA、FTP75) 走行モード試験は触媒が完全に冷えた状態から走行する際に放出される N_2O 排出濃度より、触媒がまだ暖かい状態から走行する再始動走行時の N_2O 排出濃度が高くなることを経験している。これは触媒温度が N_2O を生成する触媒温度帯でエンジンを始動すると高濃度の N_2O が排出されることを示しており、エンジンを止めてからの低下していく触媒温度が N_2O 生成触媒温度帯まで低下に要する時間と、次に再始動するまでの放置時間が一致することにより N_2O 排出量が増加すると考えられる。図 15 はエキマニ触媒型 A 車の市内走行後にエンジン停止し、再始動するまでの放置時間に対する触媒温度変化である。触媒温度に対する N_2O 生成特性図からは触媒温度が $250^\circ\text{C} \sim 350^\circ\text{C}$ 間に N_2O を多く生成するから、この触媒温度幅まで低下した時点でエンジンを再始動すれば N_2O 排出量は多くなる。

図からは外気温度が 15°C の場合、エキマニ型ではエンジン停止後 16 分～28 分、床下型触媒は 40 分～120 分の間に再始動すると、 N_2O 排出量は増加することになる。

そこで実際に実路におけるエンジン停止時間と再始動 N_2O 排出量の関係を観察した。図 16 に示すごとくエンジンを止めてから再始動時に N_2O 排出が最大となる迄の停車時間は、ほぼ 30 分前後であり、排出量は冷始動時の 2.5 倍以上となる。この停車時間は、日常生活での買い物や、営業で使用する車両の停車時間に相当し頻度が高いと

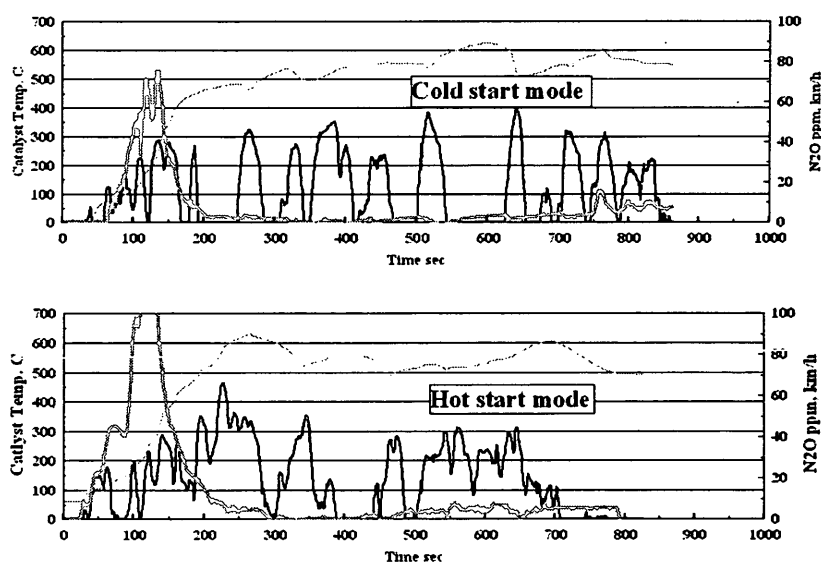


Fig. 17 For N_2O mass emission measurement new test mode

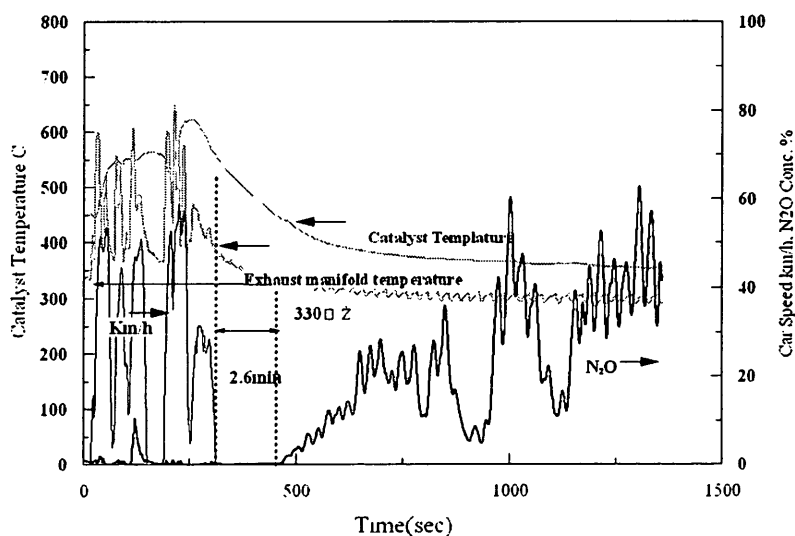


Fig. 18 Behavior of N_2O emission by light load operation with air conditioner

考えられる。したがって停車回数と停車時間の長さは N_2O 排出総量に大きく影響するから N_2O の排出原単位を求める排ガス試験モードの構築では、冷始動モード走行停車後、再始動走行するホット走行パターンの挿入が不可欠といえる。

4. 6 N_2O 走行モードの検討

N_2O 走行モードは1年間に1台の自動車から排出される N_2O 排出総量を把握することが目的である。これまでの検討結果から N_2O は NO_x や CO 等の有害ガス排出特性が異なり再始動時に多量に排出されることが明らかとなった。したがって狭い都市内の大気汚染防止目的から組み立てられた従来の排出ガス測定モードでは、全球に放出される年間の N_2O 排出量を正しく評価することが出来ない。そこでこれまでの実験結果から以下の条件で乗用車の日常使用形態を反映させた N_2O 走行モードを試作した。

- (1). 都市内の通勤、買い物に用いる車両を想定し、試験環境温度は東京の年平均温度 16°C とする。
- (2). 走行モードは冷始動型とし、触媒温度頻度分布を実路走行時と一致させる。
- (3). 走行モードに暖機が終了した条件で、エキマニ触媒車では 30 分、床下触媒車では 60 分間エンジン停止させ再び始動、走行する運転パターンを挿入する。
- (4). 再始動モードはエアコンデショナーを稼働させた状態で行う。
- (5). モード走行時間長さは放置時間を除き 30 分程度とする。

図 17 に試作した走行モードを示す。モードは都内の同じコースで冷始動走行を繰り返し、得られた触媒温度頻度分布平均に近い冷始動実走行車速パターンを選んだ。同様に暖機後、25 分の停車から再始動し走行するパターンを実走行例から抽出し、両者を組み合わせた走行モードとした。また試作した走行モードの N_2O 排出量を従来の排ガス試験である 11 モードの N_2O 排出量とを比較すると冷始動始動時モードは 11 モードの 1.4 倍、再始動モードは 2.3 倍の N_2O 排出量としては 24mg/km となり、11 モードの 3 倍以上となる。

次に夏季に限らず春、秋でも多用される車のエアーコンデショナ（エアコンと略記）使用時の N_2O 排出挙動を図 18 に示す。エアコンの使用は燃費の増加を招くから触媒温度頻度分布は高温側へ移動し、 N_2O 排出量は低下すると予測したが軽負荷時のエアコン使用は逆に増大する。この現象は再始動時の N_2O 排出量増大と同じく、触媒使用温度領域が N_2O 生成温度領域と一致するために起こると考えられ、夏季の渋滞した都市内の N_2O 排出総量に影響していると考えられる。

4. 7 総排出量推計計算手法の検討

N_2O 排出量のばらつきが我々のこれまでの研究から、 N_2O 排出量を測定する際の車両の走行条件、触媒の劣化度違いにより生じることを見いだしており、 N_2O も排出原単位に求められる統一された排出原単位ではなく、地域や季節を考慮した、走行形態、外気温度条件、車齢等により細分化した排出原単位から排出総量を推計すべきと考えられる。

本研究ではこれらの理由から、様々な条件で運行される自動車 N_2O 排出量を、地域、季節ごとに調査し、地球全体での排出総量をより正確に推計出来る手法を明らかにすることにした。温室効果ガスのインベントリー作成のための 1996 年 IPCC 改訂ガイドライン Tirc3 では次の式から年間に地球大気に放出される自動車 N_2O 総排出量を推計する事を定めている。1998 年の

IPCC が提案している排出量推計手法も同様であり、本項ではこれまでの総量排出推計式に、実験から得られた次の補正係数を式に加えることを提案する。

$$M_n = S (V_n * L * C) * 10^{-6} \quad (1)$$

ここに M_n = 自動車からの年間排出総量 (ton/年)

V_n = 自動車保有台数 (車種別保有台数)

L = 車種別年間走行距離 (km/年)

C = 車種別 N_2O 排出原単位 (g/km)

(1) 式に補正係数を加え、(2) 式に書き換える。

$$M_{N_2O} = SSi(V_n * L * G * a * b * c * d * f) * 10^{-6} \quad (2)$$

ここに M_{N_2O} = 自動車から大気に放出される年間 N_2O 排出総量 (ton/年)

V_n = 自動車保有台数 (車種別保有台数)

L = 車種別年間平均走行距離 (km/年)

G = 車種別 N_2O 排出原単位 (N_2O 排出量測定モードによる) (g/km)

a = 触媒型式による排出係数 (触媒組成 Pt/Rh 5:1、280℃条件時の N_2O 排出濃度を 1.0 とする。)

b = 触媒位置係数 (エキゾーストマニホールド直下型を 1.0、床下型を 9.0 とする)

c = 触媒劣化係数 (新車時の N_2O 排出量を 1.0 とし、走行距離 10,000km あたり 1.25 を乗ずる)

d = 年平均外気温度係数 (走行モード 11 の 25℃条件を 1.0 とする)

f = 走行モードの触媒温度頻度分布影響係数 (走行モード 11 試験時の N_2O 排出量を 1.0 とする)

S = 車種別の N_2O 年間排出量総和

5. まとめ

IPCC が提案する輸送分野の N_2O 排出総量推計方法*を補強し、より推計精度を高めるために、排出原単位の主変動要因である触媒温度に着目し、触媒位置、触媒劣化度 (加齢)、および季節や地域の違いによる触媒温度変化が N_2O 排出原単位に及ぼす影響を補正することで、地域、時間を考慮した、より現実に即した確度の高い我が国の自動車排出 N_2O 排出総量推計を明らかにすることを試みた。その結果以下の知見を得た。

(1). 外気温度の N_2O 排出量に及ぼす影響を、実路走行時の実車触媒の Light-off 時間 (N_2O 排出温度帯通過時間) で評価することを試みた。当初、冬季に N_2O 排出量が増加すると予測したが、実際には 5℃以下の低温になるとエンジン側で燃料増量を行うため Light-off 時間は逆に短くなり、燃費は悪化するものの N_2O 排出量は夏季に比べて低くなるという結果を得た。

(2). オンボード N_2O 測定装置の開発から、実車実路走行下での N_2O 排出量を観察した。その結果、従来の排出ガス試験法では評価されない再始動時に、高排出量領域が存在していることを見いだした。解析の結果、再始動時の N_2O 排出量は駐車時間に依存し、エキマニ触媒車では

30～60 分間の駐車が最も高い排出を示し、完全な冷始動時排出の 2.5 倍にも及んだ。

(3)．軽負荷時の冷房装置使用は N_2O 排出量を増大させることが分かった。触媒温度が N_2O 生成温度帯まで低下するアイドリング等の軽負荷運転時にエアコンを使用すると高濃度の N_2O が放出される。したがって夏季の都市内 N_2O 排出量は冬季より増大すると予測される。

(4)．日常生活に使用しているエキマニ触媒車の N_2O 排出量を長期に渡って調査した。その結果、85,000km 走行後の N_2O 排出量は新車の 3 倍から 15 倍増加した。走行距離に対する N_2O 排出量増加は直線的であり、車齢増加係数は 10,000km あたり 1.25 倍となる。車齢または走行距離に対する劣化係数を用いれば、保有車両の車齢分布からより確度の高い総排出量推計が行える。

(5)．自動車の排気対策に伴う触媒構造変化に伴い N_2O 排出量も変わっていることを見いだした。最近増加しつつあるエキマニ触媒車は従来の床下触媒車に比べて N_2O 排出量が少なく、両者の排出比係数は 1 : 9.3 を示した。したがってエキマニ触媒車の増加は自動車全体の N_2O 総排出量を減少させる。この触媒型式に依る N_2O 排出比率を用いれば、エキマニ触媒車と床下触媒車の保有車両総数、または保有車両の排ガス規制年次比率からより確度の高い総排出量推計が行える。

(6)．従来計測が困難とされていた自動車の瞬時排ガス流量を、触媒差圧を利用し計測する手法を開発した。これによりオンボードによる N_2O 排出量測定が可能となった。実路における N_2O 排出実態の解析結果から、これまで知られていなかった再始動時、およびエアコン使用時に N_2O 排出量が大幅に増加する現象を明らかにした。

(7)． N_2O 排出量測定走行モードを検討した。その結果、車速中心に組み立てられたこれまでの排出ガス試験モード評価では、正確な温室効果ガス排出量の評価が望めず、主要都市の実路走行調査を行い温室効果ガス測定に必要な要件を含んだ新たな走行モードの構築を試み、より現実に近い N_2O 総排出量が推計できると考えられる N_2O 排出量評価走行モードを、提案した。

従来の N_2O 総排出量推計手法に代えて、地域ごとの外気温度条件と車齢、走行形態の違いを補正した、より確度の高い N_2O 排出量推計手法として確立するには、今後さらにより広範な研究と追試を行う必要がある。しかし都市内の N_2O 濃度が高い事実から触媒車の N_2O 排出が大気中の消長に大きく寄与していることは疑いない。自動車の N_2O 排出の主な原因は触媒であり、現在、ガソリン機関の排ガス低減技術の主体として用いられている触媒は、温暖化防止の CO_2 抑制策としてますます使用が広がると予測される。現にディーゼル機関貨物自動車や二輪車などに触媒の採用が広がりつつあり、自動車の CO_2 排出抑制対策が逆に N_2O の放出量を増大させ、温暖化対策効果を減少させる可能性もあり、これからの自動車排出ガス対策は、大気汚染と温暖化の両者を同時に評価する総合的な技術評価の必要性が生じてきたといえる。

6. 引用文献

- 1) EPA Data indicates N_2O lower than estimated. Car Lines, 98-4. 1998.
- 2) 温室効果ガス世界資料センター (WDCGG) <http://gaw.kishou.go.jp/wdegg/pub/data/n2o> からデータダウンロード、作成
- 3) M. Prigent, et al. "Nitrous Oxide N_2O in Engines Exhaust Gases a First Appraisal of Catalyst Impact", SAE Paper 890492.1989.

4) S. SASAKI et al. "Nitrous Oxide Emissions from Automobiles", 5th International

7. 国際共同研究等の状況

U.S. Environmental Protection Agency (US EPA), Assessment and Standards Division (ASD)、Office of Transportation and Air Quality (OTAQ), National Vehicle and Fuel Emissions Laboratory (NVFEL) Office of Transportation and Air Quality (OTAQ) とプログラム ム MOBILE6 の実路走行時の N₂O 排出挙動、排出量予測について資料交換。

8. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表 (学術誌・書籍)

<学術誌 (査読あり)>

なし

<学術誌 (査読なし)>

① Odaka et al: "Influence of catalyst deactivation on N₂O emissions from automobiles",
Chemosphere-Global Change Science 2, pp. 414-423 (2000).

② Ishi, Odaka et al: "N₂O Emissions from Vehicles Equipped with Three-Way Catalysts in a
Cold Climate" SAE Technical Paper 2000-01-1081.

<書籍>

なし

<報告書類等>

なし

(2) 口頭発表

① 小池章介、鈴木央一、小高松男：自動車技術会 2000 年秋季学術講演、No. 137 (2000)

自動車から排出される N₂O 低減技術に関する研究 (三元触媒の N₂O 生成に及ぼす共存酸素の
影響)

② 小池章介、鈴木央一、後藤雄一：自動車技術会 2001 年秋季学術講演：No.79 (2001)

自動車から排出される N₂O 低減技術に関する研究 - 三報環境温度が N₂O 排出量に及ぼす影
響 -

(3) 出願特許

小池 章介 交通安全環境研究所

「排ガス流量測定方法」出願番号 2002-295921 平成 14 年 10 月 9 日

(4) 受賞等

なし

(5) 一般への公表・報道等

なし

9. 成果の策的な寄与・貢献について

環境省 H14 年度温室効果ガス排出算定方法検討会 (運輸部門委員会委員として参加)