

使用過程車からのアンモニア排出係数策定に関する検証

佐藤友規, 陸田雅彦*, 柳井孝一, 齊藤伸治
(*現所属: 環境局資源循環推進部)

【要約】使用過程車からのアンモニア(NH₃)排出係数策定について2つの方法を比較・検証した。吸収法による排出係数は積算法より過少であることが示され、これは気体捕集量が車両排出ガス流量に比例していないことが要因である。しかし係数が小さい領域(<50mg/km)は概ね1:1の関係にあり、使用過程車からの平均的な排出量を推計する目的であれば、排出係数の策定に吸収法を用いることができると考えられる。

【はじめに】アンモニア(NH₃)は塩基性物質であり、硫酸や硝酸と反応して粒子状物質であるアンモニウム塩を形成する。主要な発生源は農業・畜産由来であるが、火力発電や自動車等の非農業系からの排出も報告されており⁽¹⁾、使用過程車からの排出実態の把握が重要である。自動車の排出ガス計測は、定容量採取装置(CVS)による方法が一般的に用いられている⁽²⁾が、NH₃は水溶性、吸着性が非常に高いため適さない。そこでテールパイプ直下において、①瞬時濃度と排出ガス流量を計測して求める方法(Liu *et al.*,⁽³⁾ 菊田 他⁽⁴⁾など)、②排出ガスを直接採取する方法(齊藤 他⁽⁵⁾)が報告されている。本誌では以下、①を積算法、②を吸収法と記載する。吸収法は時間分解能の高いNH₃計を必要とせず、距離当たりの排出量(排出係数)を把握する目的において簡便な方法である。本調査は、両手法による排出係数策定における利点・課題について考察した。

【方法】本調査では、ディーゼル重量車(尿素SCR触媒搭載)の試験データを解析した。排出ガス計測はシャシダイナモメータに試験車両を設置(図1)し、過渡走行モード(法定、東京都実走行パターン)により実施した。表1に車両諸元を示す。

積算法では、NH₃等の瞬時濃度はFT-IR(堀場製作所MEXA-6000FT)で計測した。モード1走行ごとのNH₃排出質量は、計測の遅れを補正し、(1)式より求めた。排出ガス流量(質量)は小谷野 他⁽⁶⁾の方法を参考に、テールパイプの瞬時CO₂排出量(重量車排出ガスの測定方法⁽⁷⁾に基づく算出値)とFT-IR CO₂濃度から推定した。

吸収法では、200mLの超純水にテールパイプの排出ガスを一定流量(2L/min.)で吸引し、吸収液をメンブレンフィルターでろ過した後、イオンクロマトグラフによりNH₄-Nを定量した。NH₃排出質量は(2)式より求めた。(2)式の希釈率(DF)⁽⁷⁾はCVSによって得られた値、排出ガス量、捕集量はいずれも1走行毎の全量である。

$$\text{積算法 NH}_3 \text{ 質量 (mg/test)} = \Sigma(\text{テールパイプ瞬時 CO}_2 \text{ 排出量} \times \text{NH}_3 \text{ 濃度} / \text{CO}_2 \text{ 濃度}) \times 17/44 \quad \dots(1)$$

$$\text{吸収法 NH}_3 \text{ 質量 (mg/test)} = (\text{吸収液濃度} \times 0.2 \text{ L}) \times (\text{CVS 希釈排出ガス量} / \text{DF} / \text{吸収瓶捕集量}) \quad \dots(2)$$

排出係数[mg/km]は、(1)、(2)式で得られた排出質量を実験走行距離[km]で除して算出した。

【結果の概要】

1) 積算法と吸収法による排出係数の相関関係

積算法と吸収法による排出係数の相関関係を図2に示す。吸収法の係数は積算法の約1/2であり一致しない。これは、走行時のNH₃質量は排出ガス量と濃度の2つ要因によって決まるためである。そこで積算法の考えから、瞬時排出ガス体積をa_n、瞬時濃度をc_nとして過渡走行時の質量Mは(3)式で表される。

$$M = c_1 a_1 + c_2 a_2 + c_3 a_3 + \dots + c_n a_n \quad \dots(3)$$

テールパイプからの瞬時分割比β_n(瞬時捕集ガス量/瞬時テールパイプガス量)を定義すると、吸収瓶への捕集体積bはa_nとβ_nの積で表され、吸収法の実験条件における質量mは(4)式で表される。

$$m = c_1 b + c_2 b + c_3 b + \dots + c_n b = c_1 a_1 \beta_1 + c_2 a_2 \beta_2 + c_3 a_3 \beta_3 + \dots + c_n a_n \beta_n \quad \dots(4)$$

ここで、瞬時分割比βが一定であればmはMとβの積で求まる。しかし、本実験条件ではβが常に変動し、mとMの間に比例関係が成立しない。よって、吸収法で得た排出量から過渡走行時の排出量を求めることはできない。より正確な係数を策定するには、分流希釈装置等を用いてβを一定にすることが1つの解決策である。

ところが、排出係数が50 mg/km以下では概ね1:1の関係にある。これは排出量が少ない場合は、濃度変動も少ないためと想定される。よってディーゼル重量車では、様々な走行条件での排出係数をもとに平均的な排出量

を推計する目的であれば、係数の策定に吸収法を使用できると考えられる。今後、ガソリン車の計測においても両手法の相関関係が同様であるか、検証する必要がある。

2) 積算法による排出係数の誤差に関する考察

積算法による排出係数は、①NH₃計の応答遅れ、②排出ガス流量(質量)の正確性から、精度確認が重要である。そこで(4)式を用いて、FT-IRの瞬時濃度と瞬時分割比βからNH₃質量を求め(積算法)、イオンクロマトグラフで定量した結果(吸収法)と比較した(図3)。両者の相関は良好であるが、瞬時濃度から積算した係数の方が過少であった。これは、排出ガス質量の推定に用いたCO₂排出量の誤差が影響する。CO₂はCVSによる計測(Bag法)が一般的であるが、Bag法と比較しテールパイプのCO₂積算値は約10%少ない結果である(図4)。よって、排出ガス質量のずれにより係数が約10%過小になると推定される。さらに図3の回帰式から、(1)式によって求められる積算法の排出係数は20%程度の誤差を含むと考えられる。

【文献】(1)Osada *et al.*, Atmospheric Environment, 2019. (2)浅野, 日本マリンエンジニアリング学会誌, 2006. (3)Liu *et al.*, Journal of Environmental Sciences, 2021. (4)菊田 他, 自動車技術会論文集, 2022. (5)齊藤 他, 東京都環境科学研究所年報2022, 2022. (6)小谷野 他, 東京都環境科学研究所年報2010, 2010. (7)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(2024.1.5)別添41(重量車排出ガスの測定方法)

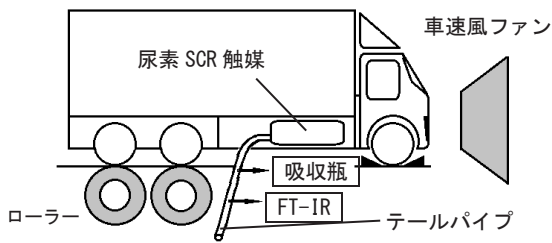


図1 シャンダイナモメータによる排出ガス試験

表1 車両諸元

車 両	A車	B車	C車
車体の形状	バン	バン	リヤエンジン
排出ガス規制区分	H28	H28	H21
排気量(L)	約10	約11	約13
車両総重量(kg)	24,940	24,960	15,905
初年登録年月	H29.12	R3.10	H24.4
搬入時走行距離(km)	383,708	128,841	445,221
NOx後処理装置	尿素SCR	尿素SCR	尿素SCR

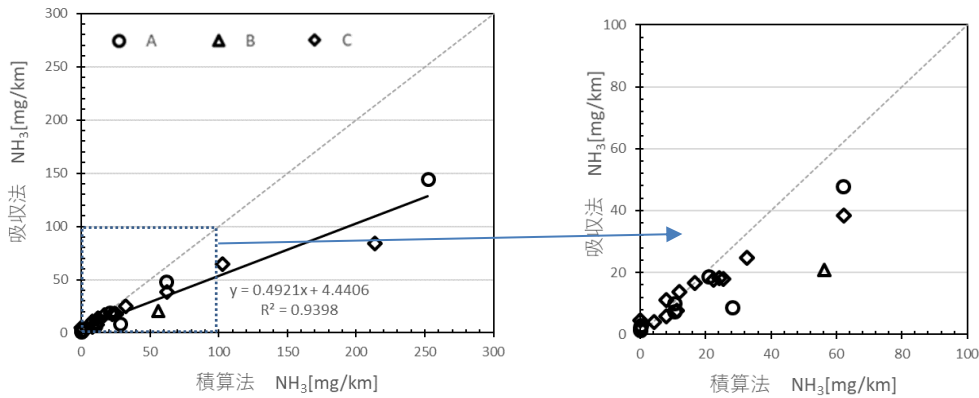


図2 積算法と吸収法によるNH₃排出係数の相関関係

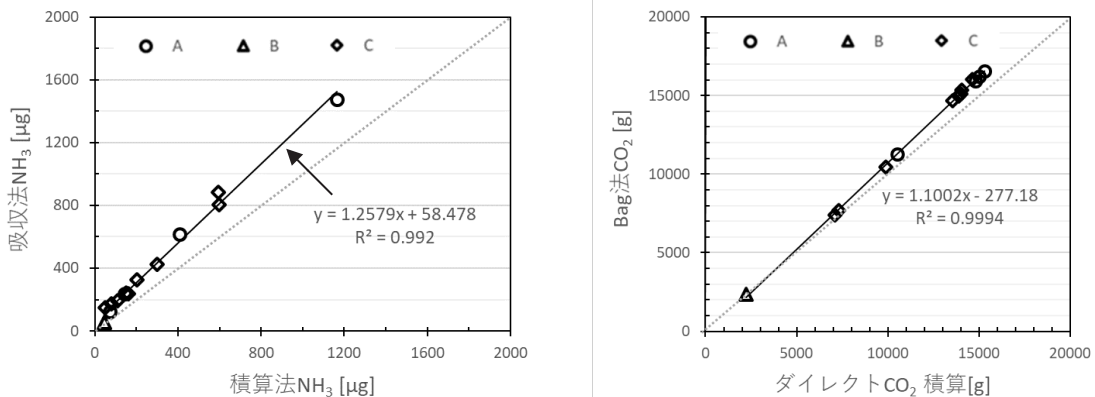


図3 瞬時分割比を合わせた場合のNH₃質量の比較

図4 CO₂質量(Bag法、ダイレクト)の比較