

学 位 論 文 題 名

メタノール自動車の環境影響評価

学位論文内容の要旨

現在の都市大気汚染は、排出された大気汚染物質に化学反応の影響が複雑に絡み、個々の汚染物質に対してそれらを単独に処理できる問題ではない。いうまでもなく、根本的な解決策は、大幅な汚染物質排出量の削減である。しかし、現状で可能な範囲には限界がある。したがって、実現可能な汚染物質排出削減策に、大気中における化学反応の影響を加味した対策が求められている。また、わが国の大都市では移動発生源すなわち自動車からの大気汚染物質排出量が大きく、発生源対策は移動発生源対策と同義であるといっても過言ではない。

低公害自動車の導入策は、現在の車社会を存続させつつ、排出源の形態を変えようとするものである。メタノール自動車は、排気ガス中の窒素酸化物(NO_x)が低く、パティキュレートが発生しない点、および排出される未燃成分も主に光化学反応性が低いメタノールであるという長所が注目され、低公害自動車として認識されてきた。いずれも現在都市大気汚染として問題となっている二酸化窒素、光化学オキシダントおよび浮遊粒子状物質に対して有効である。その一方で、メタノールの中間酸化物質であるホルムアルデヒド(HCHO)の排出は低公害性に相反するものであり、早急に解決しなくてはならない課題であった。また、 HCHO 以外にも微量成分ではあるが、メタノールと二酸化窒素の反応により生成する亜硝酸メチルという物質についても、メタノール自動車排気ガス中で確認されている。 HCHO および亜硝酸メチルの双方ともに、排出が微量であっても、人体への毒性およびその高い光化学反応性により、メタノール自動車の低公害という長所が損なわれてしまう。そのため特にこれらの物質の排出特性についての把握、低減策、および環境影響評価は、メタノール自動車を真に低公害自動車として位置づけていく上で必須であると考えられる。

メタノール自動車から排出される HCHO は、その大部分がエンジンの冷始動時に排出される。また、亜硝酸メチルは低温時に生成されやすい。そのため、本研究では、冷始動時の HCHO の排出量低減、および亜硝酸メチルの排出挙動について検討した。また、汚染物質は冷始動時に大量に排出されることに着目し、汚染物質が人体に与える影響について検討するため、車庫内における汚染物質濃度レベルについても検討した。

以上のような発生源としてのメタノール自動車個々の汚染物質排出挙動に加えて、メタノール自動車の大規模導入がおこなわれた場合、都市大気に与える効果・影響についての評価もおこなった。これは、現在の都市大気汚染は、発生源としての自動車の問題に、化学反応が複雑にからんだ複合汚染であり、地域や気象条件によって大気汚染の状況が大きく変わってくるためである。

本論文は、8章より構成されている。

第1章では、現在の大気汚染の状況から、低公害自動車としてのメタノール自動車導入の意義、解決すべき問題点、および大気環境影響予測の必要性を説き、本研究の目的および本論文の概要について述べている。

第2章では、都市大気汚染の実態調査として、大気中の低級炭化水素の成分別長期測定結果について述べた。これにより都市大気汚染物質におよぼす移動発生源の影響の大きさが改めて浮き彫りにされた。

第3章は、メタノール自動車冷始動時において、もっとも重要な課題であるHCHO低減策についての検討結果である。排気ガス浄化触媒によるHCHO浄化能力を高めるために、熱容量の小さい小型プリ触媒により、触媒活性温度に達する時間を短縮する方法を検討した。さらに電気ヒータによる予熱についても検討した。その結果、未燃分への低減効果が明確にあらわれ、HCHO排出量は従来の約半分まで低減できた。触媒の予熱ではさらに高い効果が示され、メタノール総排出量は3~7%に、HCHOは約2割まで低減できた。

第4章では、冷始動時における亜硝酸メチル排出挙動を把握した。亜硝酸メチルは通常の運転条件では排気ガス中に0~数ppmほどしか検出されないが、冷始動時においてはピーク濃度は約250ppmにもなった。特に外気温の影響を強く受け、-5~5℃の場合のピーク濃度は、20℃の場合の約5倍にも達した。亜硝酸メチルの大部分は、排気ガス触媒上で生成したものと考えられ、エンジン始動約4.5分後には、排気管出口における排出はなかった。

第5章では、メタノール自動車の始動が狭い車庫内でおこなわれる場合を想定し、車両一台用のモデル車庫内の汚染物質濃度レベルを三次元乱流数値解析により検討した。換気の有無についても考慮した。その結果、一酸化炭素濃度を許容値以下にするためにも換気は必要であるが、その場合もHCHOを許容値以下にするためには、排出ガス中のHCHOピーク濃度を従来の1/2以下におさえる必要があると考えられた。

第6章では、メタノールおよびNO_xから大気環境中で二次生成する亜硝酸メチルの可能性について検討した。表面反応による亜硝酸メチル生成量についても実験により推定したが、検討した固体材料上においては亜硝酸メチル吸着量は生成量を上回った。そのため気相反応のみを考慮し、第5章で検討した車庫において亜硝酸メチルの二次生成量を見積った。それによると、換気のない場合、亜硝酸メチルは、外気温20℃におけるエンジンから排出される亜硝酸メチル量を上回るほど生成されることがわかった。換気による汚染物質の濃度低下は亜硝酸メチルの二次生成の抑制にも効果があった。

第7章は、メタノール自動車の首都圏における大規模な導入を想定し、光化学オキシダントにおよぼす影響、複雑なNO_x生成機構および大気中HCHO濃度に対する影響をさまざまな気象条件下で数値解析した。その結果、普通貨物車およびバスをすべてメタノール自動車に転換した場合、NMOG組成の変化の影響は非常に小かったが、NO_x削減効果は光化学オキシダント低減に効果的であった。大気中のHCHO濃度は、HCHO排出量が増加してもメタノール自動車排気ガス全体の光化学反応性が低く、光化学反応によるHCHO生成が抑制されるため、夏期の晴天時においてはむしろ低くなった。しかし、冬期の曇天時のように光化学反応がおこりにくい条件ではHCHO濃度を上昇させないため排出量を下げることがある。また、NO_x削減効果については、冬期には、大気中HCHO濃度の増加が、過酸化物濃度を増加させるため、メタノール自動車導入による二酸化窒素濃度低減効果はなかった。一方、亜硝酸メチルは、メタノール濃度が低く、光化学大気汚染に影響をおよぼすほどの生成量はなかった。

第8章は結論であり、本研究において得られた結果を要約して述べている。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 伊 藤 献 一

副 査 教 授 宮 本 登

副 査 教 授 太 田 幸 雄

副 査 教 授 竹 澤 暢 恒

学 位 論 文 題 名

メタノール自動車の環境影響評価

メタノール自動車は低公害自動車として認識されているが、その排ガス中に含まれるホルムアルデヒドおよび亜硝酸メチルは、人体への毒性および高い光化学反応性により、それらの排出は微量であっても問題となる。

本論文は、メタノール自動車について、ホルムアルデヒドおよび亜硝酸メチルの排出特性の把握、低減策の検討、導入時の都市大気影響について評価したものである。まず、メタノール自動車冷始動時に有効なホルムアルデヒド低減装置の開発を行い、熱容量の小さい小型プリ触媒の装着が未燃メタノールおよびホルムアルデヒドの浄化に効果的であること、および、冷始動時に亜硝酸メチル排出量が多く、低温時ほど問題となることを明らかにしている。

さらに、閉鎖空間におけるエンジン始動時の汚染物質分布を三次元数値解析により求め、一酸化炭素濃度を規準とした従来の車庫設計ではホルムアルデヒド濃度に問題が生じる可能性があることを指摘している。また、車庫内で二次生成する亜硝酸メチル量は、換気のない場合には排出量を上回る可能性を明らかにしている。

一方、都市大気中の炭化水素成分別観測を長期間にわたり実施し、これにより成分ごとの発生源や反応性による挙動の違いを明らかにするとともに、成分別観測が、複雑な都市大気汚染の解明には不可欠であることを示している。首都圏普通貨物車およびバスをメタノール自動車に転換した場合の大量導入の影響を、ボックスモデルによる数値解析により様々な気象条件について検討した結果、非メタン炭化水素組成の組成変化の影響は非常に小さいが、NO_x 削減は光化学オキシダント低減に効果的であること、大気中のホルムアルデヒド濃度を上昇させずに窒素酸化物排出量の低減が可能であることを明らかにしている。

以上のように本論文は、メタノール自動車導入に際して解決すべき要件を明らかにするとともにホルムアルデヒド低減策を示すなど多くの新知見を得たものであり、環境工学および燃焼工学の進歩に寄与するところ大である。

よって、著者は北海道大学博士（工学）の学位を授与される資格あるものと認める。