

カーボン粒子を用いた DPF の捕集及び再生性能の評価*

鈴木 一也^{*1}, 山本 和弘^{*2}

Evaluation of Filtration and Regeneration Performances of DPF by Using Carbon Particles

Kazuya SUZUKI and Kazuhiro YAMAMOTO^{*2}

^{*2} Department of Mechanical Science and Engineering, Nagoya University
Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya-shi, Aichi, 464-8603 Japan

In many countries, stricter exhaust emissions regulations are being set, and diesel particulate filter (DPF) has been developed to reduce particulate matters (PM). So far, the experiments using engine test bench for the DPF development are conducted. It is expected that an engine test bench could be performed under nearly real condition, but it is affected by intake air, fuel properties, and engine condition. In this study, using carbon particles as model diesel particles, we evaluated the filtration and regeneration performances of SiC-DPF. In filtration test, we observed the transition between depth filtration to surface filtration. Based on the regeneration test, it is found that carbon particles are oxidized at 400 degree centigrade. At 600 degree centigrade, the filter regeneration is largely promoted, which is suitable temperature for practical purpose. Continuously regeneration is achieved at 550 degree centigrade, which is a balance point where the oxidation rate is equal to the inflow rate of the carbon particle.

Key Words : Diesel Engine, Solid Combustion, Combustion Products, Pollutant, Soot

1. 結 論

近年、化石燃料の枯渇や地球温暖化が世界的な問題として取り上げられている。バイオマスなどの新エネルギーの開発によりエネルギー源の分散が進められているが、依然として化石エネルギーに依るところが大きい。また地球温暖化に関しては、大気中の CO₂ の増加が主な原因とされている。こうした背景から、世界中で多く利用されている自動車の CO₂ 排出を抑えるため、ガソリン車よりも熱効率が優れるディーゼル車⁽¹⁾⁽³⁾が注目されている。

しかしながら、ディーゼル車の燃焼は主に拡散燃焼であると考えられるため、均一燃焼が不可能であり、人体への影響が懸念される粒子状物質 (Particle Matter, PM) を排出しやすいという問題を抱えている。尼崎公害や名古屋南部公害など、PM は実際に健康被害との因果関係が認定された例があり⁽⁴⁾、こうした背景から社会的にも自動車排ガスへの関心は高まり、PM の排出に関して規制が設けられるようになった。年々規制は厳しくなっており、ディーゼル車から排出される PM 対策が必要である。

現在、PM 対策は燃料の改質、エンジンの燃焼技術、後処理技術の三種類の対策に大別される⁽⁵⁾⁽⁷⁾。単に燃料の含有硫黄を低減しても、PM の発生を完全に抑えることはできない。また、エンジンの燃焼を改善しても、NO_x と PM の排出に相反関係があるためその対策には限界がある⁽⁸⁾⁽⁹⁾。そこで、排気ガスの後処理技術の一つである DPF を組み合わせた対策が必須となっている。

DPF に関してはこれまで、数値シミュレーションによる DPF 内の現象の模擬⁽¹⁰⁾⁽¹³⁾に加えて、エンジンベンチ

* 原稿受付 2013 年 00 月 00 日

^{*1} 名古屋大学大学院 (〒464-8603 愛知県名古屋市千種区不老町)

^{*2} 正員, 名古屋大学大学院工学研究科

E-mail: kazuhiro@mech.nagoya-u.ac.jp

による DPF の性能評価⁽¹⁴⁾⁽¹⁷⁾が報告されている。エンジンベンチ試験では実際のエンジンを使用することで、より現実に近い環境での評価が可能であるが、吸気雰囲気の状態、燃料の性状、エンジンの使用状況等の影響を受ける。

そこで本研究では、炭素粒子発生器を用いて発生させたカーボン粒子を用いてディーゼル微粒子を模擬し、現在主流となっている交互目封じ型のセラミックハニカム性能の評価試験を行った。今回使用した炭素粒子発生器は、発生させるカーボン粒子の再現性がよく、排ガスの温度、酸素濃度、流量、PM 濃度などをそれぞれ個別に着目して検討することが可能である。そこで、DPF の捕集性能と再生性能について検討した。

2. 実験装置及び方法

2・1 SiC-DPF

実験には、交互目封じ型のセラミックハニカムとして SiC-DPF (TYK 社製) を使用した。その写真を図 1 に示す。直径 26 mm、長さ 20 mm の円柱状であり、セル密度 300cps_i, 壁厚 0.25mm、空隙率 42%, 平均細孔径 11 μm である。よく知られているように、交互目封じ型のセラミックハニカムを使用した場合、排ガスが多孔質素材の DPF 隔壁を通過する際、PM がその内部で捕集される。

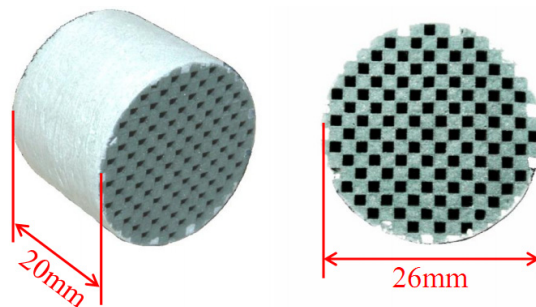


Fig. 1 Picture of SiC-DPF

2・2 カーボン粒子捕集試験

SiC-DPF の捕集性能を評価するためにカーボン粒子捕集試験を行った。図 2 に本実験の概要を示す。図には DPF の再生試験で使用する管状炉や酸素ボンベも装置の中に入れているが、炉の中にフィルターを設置するだけで加熱や酸素の供給は行っていない。捕集実験のときは温度をカーボン粒子の発生には炭素粒子発生器 (DNP 2000, PALAS 社製) を用いた。本装置で得られる粒子は、ディーゼル車から排出されるディーゼル微粒子と似ており⁽¹⁸⁾⁽²⁰⁾, 粒子数や粒径分布の再現性の優れた装置である。炭素粒子発生器により発生させたカーボン粒子の粒径分布の一例を図 3 に示す。粒径が約 100 nm にピークを持つ粒子となっており、この粒子を窒素ガスに添加して模擬排ガスとした。本実験の捕集時間は一律 30 分とした。粒径分布の測定は流路を流れるガスをサンプリングし、走査式モビリティパーティクルサイザー (SMPS (Model-3034D), TSI 社製) を使用して行った。サンプリング途中で粒子が凝集するのを抑え、粒子個数濃度を SMPS の測定レンジ内にするために自動車排ガス用希釈装置 (MD19-3E, Matter Engineering 社製) により粒子個数濃度を 100 倍に希釈して計測した。背圧は同種類の 2 つの圧力センサー (VHR3, VALCOM 社製) を用いて計測し、フィルターの上下側圧力と大気圧との差から求めた。圧力値の出力と記録にはデータロガー (NR-600, KEYENCE 社製) を使用した。

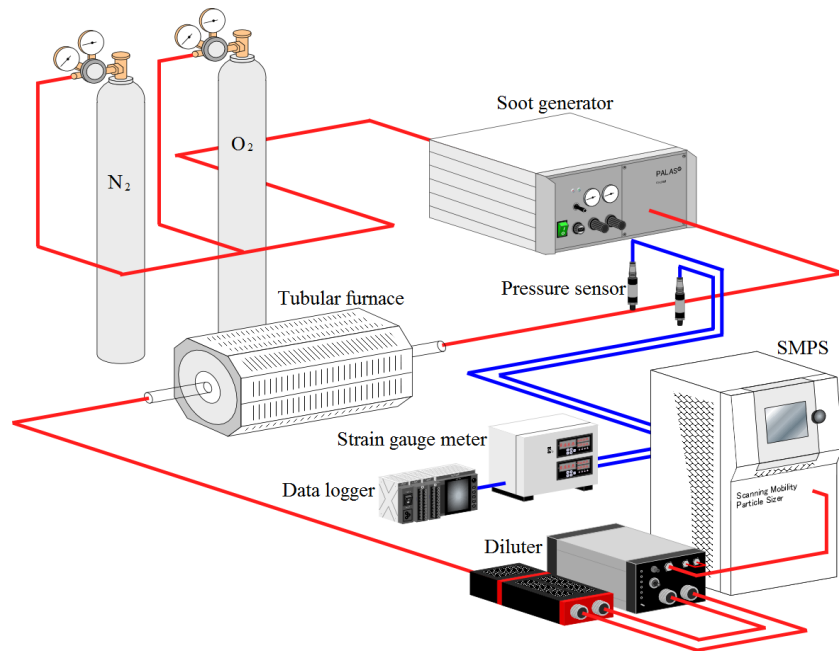


Fig. 2 Experimental setup for carbon particles filtration

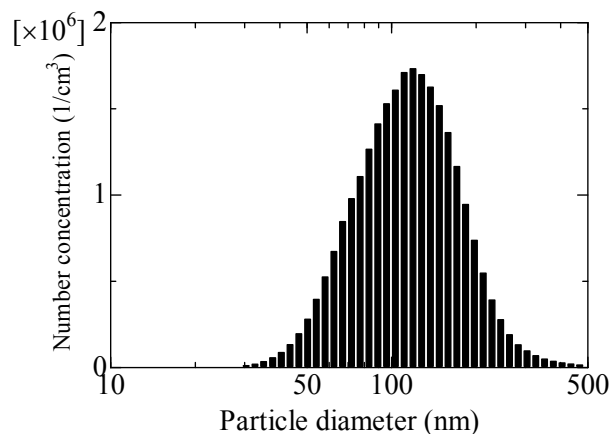


Fig. 3 Particle size distribution of the inflow side

2・3 DPF 再生試験

次に、DPF の再生試験について説明する。あらかじめカーボン粒子を 30 分間堆積させた DPF を用意し、捕集後の DPF を加熱して DPF 再生試験を行った。DPF の加熱には管状炉 (ARF-30MC, アサヒ理化社製) を使用した。管状炉の温度制御は温度コントローラー (AMF-S, アサヒ理化社製) を用いた。また、熱電対を用いて燃焼後の排ガスの温度を計測した。

カーボン粒子の酸化過程を調べるため CO と CO₂ の濃度を赤外線式ガス濃度測定装置 (CGT-7000, 島津製作所製) を用いて計測した。流路に流れるガスをサンプリングし、サンプルガス前処理装置 (CFP-8000, 島津製作所製) を用いてダストや水分を除去した後、赤外線式ガス濃度測定装置に送ってガス濃度の測定を行った。また、背圧も同時に測定した。

また実験手順を説明する。DPF 再生試験では、カーボン粒子の酸化開始温度を調べる実験と、堆積させたカーボン粒子が酸化する過程 (DPF の再生過程) を調べる実験の 2 種類を行った。管状炉の温度を上昇させて排ガス中の CO と CO₂ の濃度及び背圧を測定し、それらの変化からカーボン粒子の酸化開始温度を調べた。まず、あらかじめカーボン粒子を堆積させた DPF を管状炉内に設置し、窒素のみを 4.0 L/min 流し、設定温度まで昇温させる。設定温度到達後、窒素の流量を変えながら排ガスの全流量が一定となるよう調整して酸素の供給を開始する。設定温度での CO と CO₂ 濃度、背圧を記録した後、いったん酸素の供給を止めて窒素の流量を 4.0 L/min に戻し、

次の設定温度にまで昇温させてから再度酸素を供給する。昇温過程において酸素の供給を止めるのは、昇温中にカーボン粒子が酸化するのを防ぐためである。

2・4 連続再生試験

前節では、あらかじめ DPF 内に捕集しておいたカーボン粒子を燃焼させる再生試験であったが、本節では高温の状態でカーボン粒子の捕集と酸化を行う連続再生試験を行った。このときの流量は、窒素 4.05 L/min, 酸素 0.45 L/min であった。実験は 30 分間行った。

3. 実験結果及び考察

3・1 捕集試験における粒子個数と背圧

図 4 にカーボン粒子の捕集実験で測定した捕集率と背圧の結果を示す。捕集率 f_N の定義を次式に示す。

$$f_N = \frac{\sum N_0(d_i) - \sum N(d_i)}{\sum N_0(d_i)} \quad (1)$$

ここで、 d_i は SMPS により分級された各粒径、 $N_0(d_i)$ は DPF 通過前の粒径 d_i の粒子個数、 $N(d_i)$ は DPF 通過後の粒径 d_i の粒子個数である。捕集率は 3 分後で 97%，6 分後にはほぼ 100% となった。背圧は約 3 分まで大きく上昇し、その後上昇幅が緩やかになった。そして捕集率がほぼ 100% となる 6 分過ぎから背圧の上昇は直線的になっている。これまでの研究報告で、DPF 隔壁内部で粒子が捕集される深層ろ過から、DPF 隔壁表面に soot cake (煤ケーキ層) ができる表層ろ過へと遷移する際にこのような傾向を示すことが報告されており⁽⁶⁾⁽²¹⁾⁻⁽²⁵⁾、カーボン粒子を用いた本実験でも同じ結果が得られた。

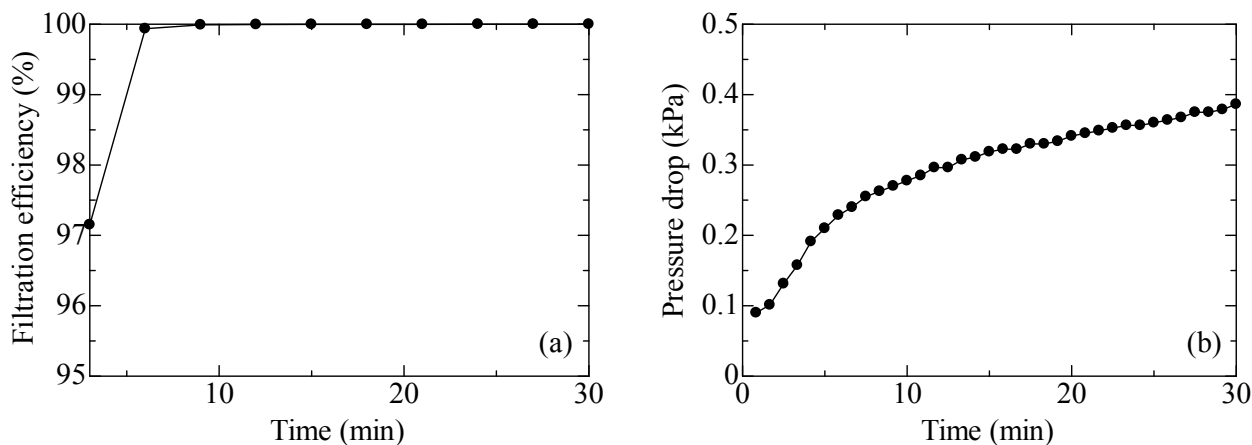


Fig. 4 (a) Filtration efficiency and (b) pressure drop

図 5 に DPF 内部に堆積したカーボン粒子の累積個数を示す。捕集率がほぼ 100% であるためほぼ直線的な増加を示している。なお、ハニカムにおいてカーボン粒子を捕集する前と捕集した後のハニカムの重量を分析天びん (ML104, METTLER TOLEDO 社製) を用いて測り、重量差から堆積したカーボン粒子の重量を求めたところ、約 0.003 g であった。図 5 の 30 分後のカーボン粒子の累積個数に対応しており、本実験で発生させたカーボン粒子については、累積個数が 3×10^{12} 個の重量が約 0.003 g であったことを示している。

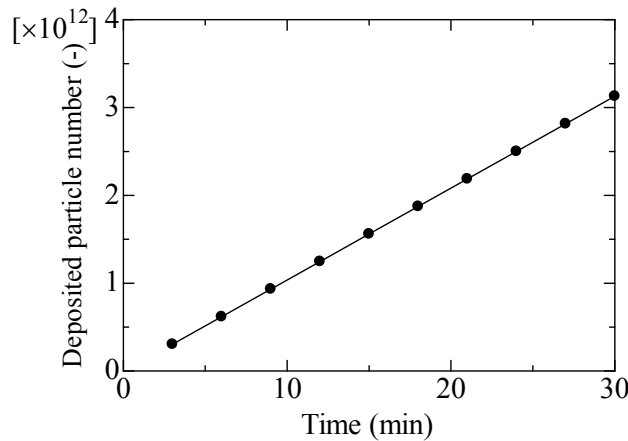


Fig. 5 Deposited particle number

3・2 DPF 再生試験におけるカーボン粒子の燃焼

まず、カーボン粒子が何℃から燃焼(酸化)し始めるかを調べた。図6に酸素濃度が10%と20%の場合のCO+CO₂濃度と背圧の結果を示す。背圧に関しては、酸素濃度が10%の場合と20%の場合で比較が行いやすいように最大値で正規化して示した。酸素濃度が10%の結果を見ると、COとCO₂が350~400℃あたりで発生している。ディーゼル微粒子の酸化開始温度は400℃程度⁽²⁶⁾⁻⁽²⁸⁾であることから、カーボン粒子の酸化開始温度も同程度であった。一方、背圧は450℃までは上昇し続けている。これは温度上昇により排ガスの流速が増加したことによるものである。さらに温度を上昇させると、約500℃で背圧が低下しはじめた。この背圧の低下はハニカムに堆積したカーボン粒子が酸化したことによるものである。

次に、酸素濃度20%の結果を見てみる。酸素濃度が高い方がCOとCO₂の濃度がやや高く、背圧の低下もより大きくなっている。ただし、酸化開始温度はやはり350~400℃であった。したがって、酸素濃度が高くなるとカーボン粒子の酸化が促進されるものの、酸素濃度を変化させても酸化開始温度は変わらない⁽²⁸⁾ことがわかった。

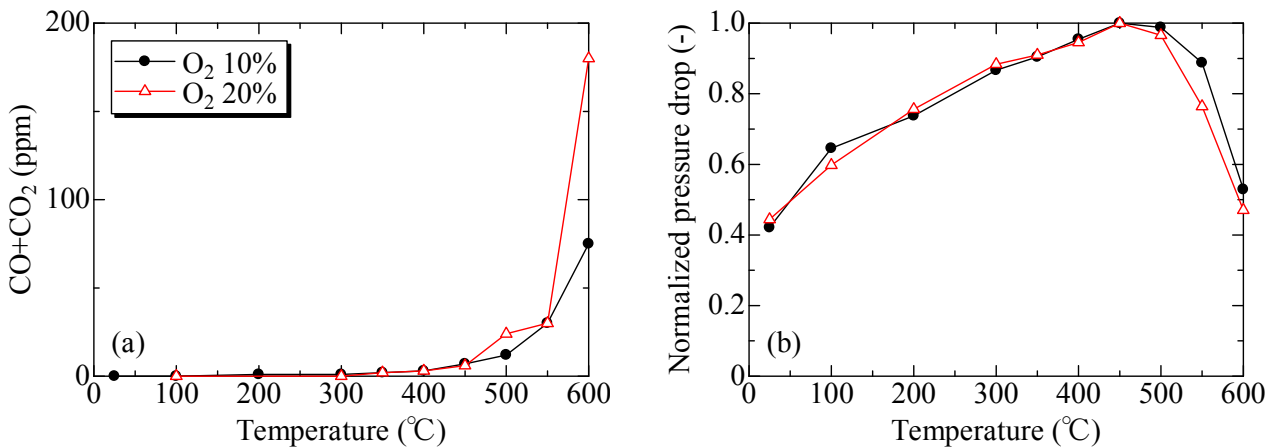


Fig. 6 (a) CO+CO₂ volume fraction and (b) pressure drop in regeneration test

次に、DPFの再生過程を調べた。管状炉の温度を500℃と600℃にして、あらかじめDPF内に堆積させたカーボン粒子を燃焼させる再生試験を行った。酸素濃度は10%で固定した。図7にCO+CO₂の濃度と背圧の時間変化を示す。ここで、図7(b)の破線で示した値は、カーボン粒子を堆積する前の500℃と600℃における背圧を示し、それぞれ ΔP_{500} 、 ΔP_{600} と表記した(初期背圧と呼ばれる)。背圧が初期背圧まで低下した時を再生完了の目安とした。再生開始直後にCO、CO₂の発生量が最も大きく、また背圧の低下も大きい。その後時間の経過とともにこれらの変化が緩やかになった。このことから、ハニカムの再生は再生開始直後が最も活発であるといえる。ただし、排ガス温度が500℃の場合よりも600℃の場合の方が再生開始直後のCO+CO₂濃度が高く、また

背圧が早く低下していた。したがって再生時の温度を上げることで再生が促進され、再生時間を短縮できることがわかった。ちなみに 500 °C では完全に再生が完了するのに 135 分を要したが、600 °C では 10 分足らずで再生が完了した。したがって、温度を 100 °C 上げて再生させることにより再生時間を 10 分の 1 以上に短縮できることを確認した。実際、DPF の再生には一般的に 600 °C 以上必要であると言われている⁽²³⁾。

次に、加熱温度を 600 °C に固定し、混合気中の酸素濃度を 15 % として酸素濃度 10 % の結果と比較した。その結果を図 8 に示す。これによると、酸素濃度が 10 % の場合よりも 15 % の場合の方が再生開始直後の CO+CO₂ 濃度が高く、また背圧が早く低下した。以上の結果から、排ガス中の酸素濃度を高くすると再生が促進され、再生時間の短縮が可能であることがわかった。

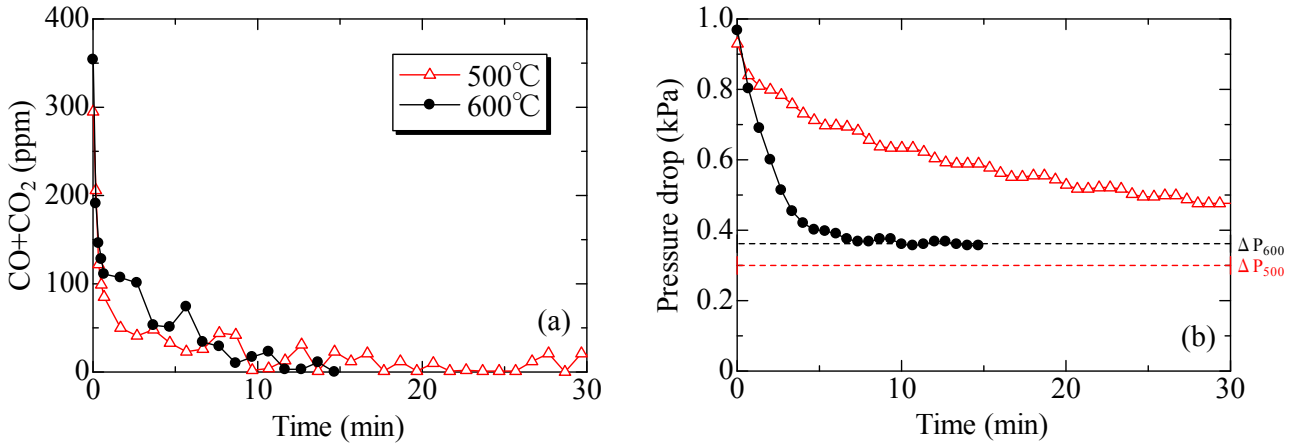


Fig. 7 (a) CO+CO₂ volume fraction and (b) pressure drop in regeneration test by changing regeneration temperature

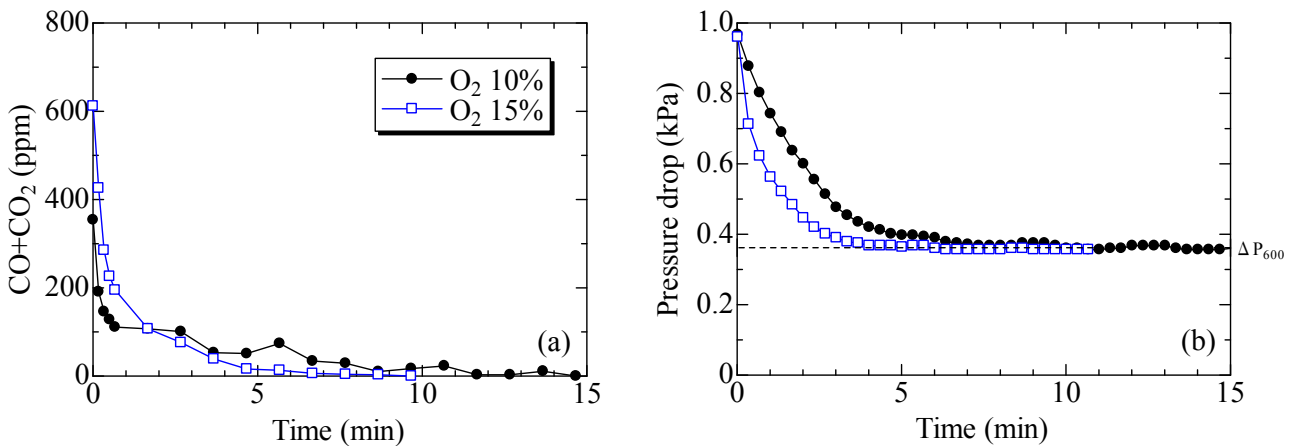


Fig. 8 (a) CO+CO₂ volume fraction and (b) pressure drop in regeneration test by changing oxygen concentration

3・3 連続再生試験におけるカーボン粒子の捕集と燃焼

加熱しながら捕集することで、カーボン粒子の捕集とハニカムの再生を同時に行い、連続再生を検討した。捕集率と背圧の時間変化の結果を図 9 に示す。連続再生試験は、加熱をしていない常温 (25 °C) と管状炉の温度を 500, 550, 600 °C とした結果を示した。連続再生の場合、流入する粒子が酸化することによって粒径が小さくなるが、式 (1) の粒子数に基づく捕集率 f_N では粒径が小さくなる影響を評価できない。そこで、体積ベースの捕集率 f_V を用いた。その定義を次式に示す。

$$f_V = \frac{\sum N_0(d_i) \cdot d_i^3 - \sum N(d_i) \cdot d_i^3}{\sum N_0(d_i) \cdot d_i^3} \quad (2)$$

ここで、 d_i はSMPSにより分級された各粒径、 $N_0(d_i)$ はDPF通過前の粒径 d_i の粒子個数、 $N(d_i)$ はDPF通過後の粒径 d_i の粒子個数である。一方背圧に関しては、カーボン粒子を捕集していない状態のハニカムにおける各温度での背圧(初期背圧)を引いた値を示しており、カーボン粒子が堆積することによる背圧の上昇を表している。

まず、常温(25℃)での結果を見ると、捕集実験で得られた図4(a)の捕集率とほぼ同じような傾向を示した。すなわち、捕集率が6分後以降ではほぼ100%となり、背圧は上昇し続ける。次に500℃の結果を見てみると、カーボン粒子が酸化するため、捕集初期から非常に捕集率が高くなっている。これは、カーボン粒子がDPF内で捕集されることに加えて酸化されることから、粒子数の低下だけでなく粒径も小さくなるためである。背圧についても酸化するカーボン粒子が存在する効果により、背圧の上昇が小さくなっている。しかし、カーボン粒子の流入量の方がカーボン粒子の酸化量よりも大きい状況であり、背圧の上昇は止まっていない。

連続再生の温度がより高い550℃の結果では、初期の捕集率が高く、かつ、10分を経過すると背圧の上昇が止まった。これはカーボン粒子の流入量と酸化量が釣り合った状況にあるといえる。さらに高温にすると背圧は小さくなったが、捕集率も95%程度と小さくなった。これは、カーボン粒子の酸化量が大きすぎ、DPF内に堆積したカーボン粒子が少なくなったため、表層ろ過が十分ではないためであると思われる。したがって今回の条件では、カーボン粒子の流入量と酸化量が釣り合うバランスポイントは550℃であることがわかった。

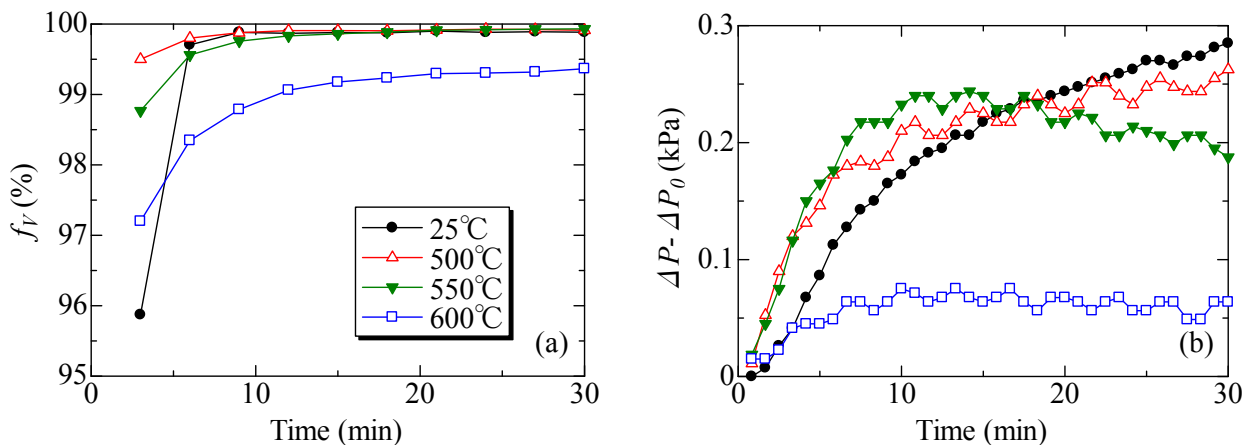


Fig. 9 (a) Filtration efficiency and (b) pressure drop in continuously regeneration test by changing temperature

4. 結 論

本研究ではカーボン粒子を模擬PMとして使用することで、SiCセラミック製交互目封じ型ハニカム(ハニカム)について捕集試験、再生試験、連続再生試験を行った。その結果、以下の結論を得た。

1. カーボン粒子を捕集すると6分後には捕集率が100%になる。背圧は3分後までは大きく上昇するが、その後の背圧の上昇は緩やかになっていき、捕集率が100%になる6分後以降は直線的である。実際のディーゼル微粒子を用いた実験において、深層ろ過から表層ろ過へと遷移する際にこのような背圧の変化を示すことから、カーボン粒子を用いた本実験でも同じ傾向が得られた。
2. カーボン粒子の酸化開始温度は約400℃である。DPFを再生するときの温度を500℃から600℃に変更すると、再生時間を10分の1以上に短縮できる。したがって、DPFの再生温度は600℃程度が実用的であることを確認した。また、酸素濃度を上げることでDPFの再生が促進される。
3. 連続再生では、捕集初期から非常に捕集率が高くなるが、これは、カーボン粒子が捕集されるだけでなく酸化されることから、粒子数の低下だけでなく粒径も小さくなるためである。連続再生の温度が低いとDPF内のカーボン粒子の堆積量が増え続けるため圧損がどんどん上昇するが、逆に高すぎると捕集率はかえって低くなる。今回の条件では、カーボン粒子の流入量と酸化量が釣り合うバランスポイントは550℃であった。

謝 辞

本研究の一部は(独)新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)希少金属代替プロジェクト/排ガス浄化向け白金族使用量低減技術開発及び代替材料開発の助成により行われたものである。ここに記して謝意を表す。

文 献

- (1) Yezerets, A., Currier, W. N., Kim, D. H., Eadler, H. A., Epling, W. S., Peden, C. H. F., "Differential kinetic analysis of diesel particulate matter (soon) oxidation by using a step-response technique", *Applied Catalyst B*, Vol. 61, (2005), pp.120-129.
- (2) Johnson, T. V., "Review of Diesel Emissions and Control, *SAE Technical Paper*, 2010-01-0301.
- (3) 藤田秀臣, 加藤征三著, "熱エネルギーシステム", (1999), pp.137-139., 共立出版.
- (4) 梶原鳴雪著, "ディーゼル車排ガスの浄化技術", (2006), pp.37-54., シーエムシー出版.
- (5) 梶原鳴雪著, "ディーゼル車排ガスの浄化技術", (2006), pp.57-69., シーエムシー出版.
- (6) 久保修一, 蔵菌功一, 林秀光, 浅野明彦, "DPFにおける粒子捕集メカニズム", *日本機械学会論文集B編*, Vol. 72, No. 721 (2006), pp.21-26.
- (7) 斉藤敬三, "ディーゼル粒子フィルターの最近の動向", *エアロゾル研究*, Vol. 24(1) (2009), pp.18-23.
- (8) 中田輝男, "自動車用ディーゼルエンジンの燃焼改善", *日本機械学会誌*, Vol. 111, No. 1075, (2008), p.76.
- (9) 李鉄, 小川英之, "ディーゼル燃焼におけるすすと窒素酸化物のトレードオフに関する反応速度論的考察", *日本機械学会論文集B編*, Vol. 76, No. 772, (2010), pp.286-291.
- (10) Yamamoto, K., Nakamura, M., Yane, H., Yamashita, H., "Simulation on Catalytic Reaction in Diesel Particulate Filter", *Catalysis Today*, Vol.153, (2010), pp.118-124.
- (11) Yamamoto, K., Nakamura, M., "Simulation of Flow and Heat Transfer in Diesel Particulate Filter", *ASME Journal of Heat Transfer*, Vol. 133, Issue 6, (2011), 060901.
- (12) Yamamoto, K., Nakamura, M., "Conjugate Simulation of Flow and Heat Transfer in Diesel Particulate Filter", *Progress in Computational Fluid Dynamics (PCFD)*, Vol. 12, No. 4, (2012), pp.286-292.
- (13) Yamamoto, K., Yamauchi, K., "Numerical Simulation of Continuously Regenerating Diesel Particulate Filter", *Proceedings of the Combustion Institute*, Vol. 34, (2013), pp.3083-3090.
- (14) 常吉孝治, 高木修, 山本和弘, "DPFの初期PM捕集性能と表面粗度の影響", *日本機械学会論文集B編*, Vol. 76, No. 767, (2010), pp.1110-1117.
- (15) 常吉孝治, 高木修, 山本和弘, "SiC-Diesel Particulate Filterのウオッシュコート処理による初期PM捕集性能への影響", *日本自動車技術会論文集*, Vol. 41, No.6, (2011), pp.1365-1370.
- (16) Tsuneyoshi, K., Takagi, O., Yamamoto, K., "Effects of Washcoat on Initial PM Filtration Efficiency and Pressure Drop in SiC DPF", *SAE Technical Paper*, 2011-01-0817
- (17) Tsuneyoshi, K., Yamamoto, K., "Effects of Cell Geometry on PM Filtration Efficiency and Regeneration Rate", *Energy*, Vol. 48, (2012), pp.492-499.
- (18) Lorentzou, A., Pagkoura, C., Konstandopoulos, A. G., "Advanced Catalyst Coatings for Diesel Particulate Filters", *SAE Technical Paper*, 2008-01-0483.
- (19) Zarvalis, D., Lorentzou, S., Konstandopoulos, A. G., "A Methodology for the Fast Evaluation of the Effect of Ash Aging on the Diesel Particulate Filter Performance", *SAE Technical Paper*, 2009-01-0630.
- (20) Oki, H., Karin, P., Hanamura, K., "Visualization of Oxidation of Soot Nanoparticles Trapped on a Diesel Particulate Membrane Filter", *SAE Technical Paper*, 2011-01-0602.
- (21) Wirojsakunchai, E., Schroeder, E., Kolodziej, C., Foster, D. E., Schmidt, N., Root, T., Kawai, T., Suga, T., Nevius, T., Kusaka, T., "Detailed diesel exhaust particulate characterization and real-time DPF filtration efficiency measurements during PM filling process", *SAE Technical Paper*, 2007-01-0320.
- (22) 大堀晋也, 山本和弘, 山下博史, 大道重樹, "DPF内のすす堆積を考慮した流れの数値解析", *日本機械学会論文集B編*, Vol. 75, No. 750, (2009), pp.371-377.

- (23) Karin, P., Cui, L., Rubio, P., Tsuruta, T., Hanamura, K., “Microscopic Visualization of PM Trapping and Regeneration in Micro-Structural Pores of a DPF Wall”, *SAE Technical Paper*, 2009-01-1476.
- (24) Yamamoto, K., Ohori, S., “Simulation on Flow and Soot Deposition in Diesel Particulate Filter”, *International Journal of Engine Research*, Vol. 13, No.5, (2012), pp.1-8.
- (25) 近藤真一, 山本和弘, 常吉孝治, “LII 法によるディーゼル微粒子の計測と DPF の評価”, 日本機械学会論文集 B 編, Vol. 78, No. 789, (2012), pp.1143-1150.
- (26) Ogyu, K., Oya, T., Ohno, K., “Improving of the Filtration and Regeneration Performance by the SiC-DPF with the Layer Coating of PM Oxidation Catalyst”, *SAE Technical Paper*, 2008-01-0621.
- (27) Kandylas, I. P., Koltsakis, G. C., “NO₂-Assisted Regeneration of Diesel Particulate Filters: A Modeling Study”, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, Vol. 41, No. 9, (2002), pp.2115-2123.
- (28) Ahlstrom, A. F., Odenbrand, C. U. I., “Combustion Characteristics of Soot Deposits from Diesel Engines”, *Carbon*, Vol. 27, No. 3, (1989), pp.475-483.