

SiC-Diesel Particulate Filter のウォッシュコート処理による 初期 PM 捕集性能への影響^{*}

常吉 孝治¹⁾ 高木 修²⁾ 山本 和弘³⁾

Washcoat Effect of SiC-Diesel Particulate Filter on Initial PM Filtration Efficiency

Koji Tsuneyoshi Osamu Takagi Kazuhiro Yamamoto

To evaluate effect of washcoat in SiC-Diesel Particulate Filter (DPF) on the initial PM filtration efficiency, we measured particle number concentration in diesel exhaust gas downstream of SiC-DPF by EEPs. The amount of washcoat materials was changed. Results show that the particle number concentration is largely reduced in washcoated DPF. Thus, it is considered that soot layer is easily formed during initial filtration process. Depending on PM diameter, different effects of washcoat are observed. This is because PM filtration mechanism is different in the range of PM size.

Key Words: Heat engine, Particulate filter, Measurement/Washcoat, (A1)

1. はじめに

ディーゼルエンジンは高い熱効率を持ち、ガソリンエンジンと比較して燃費に優れ CO₂ 排出量が少ないという特徴を持つ。しかし、排出ガスに含まれるスス粒子 (Particulate Matters, PM) は健康面や環境面への問題があり⁽¹⁾、車の排出ガス規制は年々厳しいものとなっている⁽²⁾。このような厳しい規制をクリアする重要な技術の一つに、ディーゼル微粒子除去フィルタ (Diesel Particulate Filter, DPF) が挙げられる。DPF はススの捕集により圧力損失が増大し、エンジンに負担になると共に燃費悪化や故障の恐れがあるため、定期的にススを燃焼除去する再生を行う必要がある。

再生方式は大きく二つに分けられる。一つはアクティブ再生と呼ばれ、ススが蓄積され圧力損失が一定の値になると、ススを燃焼除去する方法である。アクティブ再生の問題点の一例を挙げると、ススの燃焼再生のために余分に燃料を消費する。また、堆積したススが連鎖的に燃焼し、過剰に温度上昇した場合に、DPF が熱衝撃により破損するおそれがある等の問題がある。もう一つはパッシブ再生または連続再生とも呼ばれ、触媒によりススの酸化燃焼温度を下げることで、

DPF に堆積するススを連続的に再生する方法である。パッシブ再生は圧力損失の増加を抑えながら DPF を再生でき、スス燃焼時の熱衝撃が小さいというメリットがある。ススの堆積による圧力損失の増大を抑えることが出来れば、燃費の悪化を抑制することができる⁽³⁾。

DPF に直接触媒をコートする場合、アルミナ粒子等でウォッシュコート (以下 W/C と記す) 処理を行った上で白金等を担持させる方法がある。この場合、DPF の細孔特性が大きく変化し、捕集性能や圧力損失が変わることになる。

DPF 使用初期の捕集メカニズムにおいて、隔壁表面に付着したススにより薄いススの層 (Soot layer) が形成され、これによりスス漏れが減少していくことが報告されている⁽⁴⁾⁽⁵⁾。ここで、DPF に W/C 処理、あるいは W/C 処理に加え触媒担持したことによる捕集性能への影響は、これまでいくつか報告されている^{(6)~(8)}。しかしながら、これらは酸化処理されたセラミックやブロードな細孔分布を有するコーゼライトを担体として用いており、例えば桑島らは、W/C 処理をすることで PM 捕集に有効な 10-20 μ m の細孔割合を増やすことが高捕集性能を実現させるとしている⁽⁹⁾。これに対し、担体に SiC を用いた DPF では、PM 捕集初期のスス漏れを早期に低減させるために、W/C 処理をしない状態で緻密な細孔分布の制御が行うことが可能である⁽⁹⁾。このような高い捕集性能を持つ SiC-DPF について、その W/C 量を段階的に変化した場合に、スス層形成に伴うスス漏れの減少がどのように変化するかについては報告されていない。

そこで本報では、SiC-DPF にアルミナ層を W/C することが、初期の PM 捕集性能にどのような影響を及ぼすかについ

^{*}2010 年 5 月 21 日受理。2010 年 5 月 21 日自動車技術会春季学術講演会において発表。

1)・2) ㈱TYK 環境材料研究所 (507-8607 岐阜県多治見市大畑町 3-1)

1)・3) 名古屋大学大学院工学研究科 (464-8603 名古屋市千種区不老町)

(E-mail: ku.tsuneyoshi@tyk.jp)

て調べた。具体的には、W/C 量を段階的に変化させた DPF を用意し、それぞれの DPF 下流の PM 粒子個数濃度を計測することで、スス層形成に伴うスス漏れの減少度合いを比較した。また、PM 粒径ごとの捕集率の結果から PM を 3 つのグループに分け、各グループの捕集メカニズムの違いに W/C 処理が及ぼす影響を調べた。

2. 実験装置及び実験方法

2.1. DPF の特性

実験用の DPF として、サイズ $\Phi 144\text{mm} \times L153\text{mm}$ 、セル密度 300 cpsi (cell per square inch)、壁厚み 10 mil (0.25mm) の SiC から成るセラミック DPF を用いた。水銀圧入法により計測したところ、フィルタ隔壁の気孔率は 47%、平均細孔径は $19\mu\text{m}$ であった。SiC-DPF は耐久性に優れ、狭い細孔径分布を有するという特徴を持つ。この DPF にアルミナの W/C 処理を行い、W/C 量の異なる 5 つの DPF を用意した。表 1 に、それぞれの DPF の W/C 量の関係を示した。サンプル A は W/C 処理を行っていない DPF であり、サンプル B～E は W/C 処理を行った DPF である。サンプル B の W/C 量を x とした場合、C はその 40wt%、D は 70wt%、E は 110wt% W/C 量が多いことを示している。また、フィルタ隔壁表面の SEM 画像を図 1 に示した。図 1 (a) は W/C 処理を行っていないサンプル A の隔壁表面を拡大したものであり、図 1 (b) は W/C 処理を行ったサンプル B の隔壁表面を拡大したものである。

DPF を排気管路中に装着する際には、セラミックファイバーから成るマット材にて外周部を覆い、管路に圧入して保持した後、マット材の有機分を除去するために 850°C で加熱処理した。

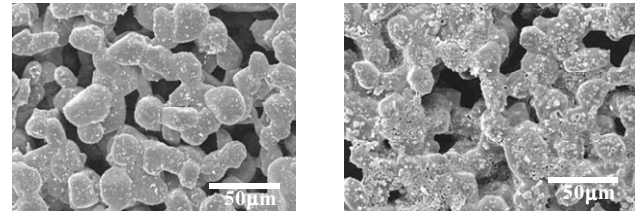
2.2. DPF の性能評価方法

DPF の捕集性能を評価するため、スス発生装置として日産キャラバン搭載 QD32 エンジン（排出ガス長期規制-1997 年規制適合）を用いた。表 2 にエンジン諸元を示す。エンジンをエンジンベンチ室にて稼働させ、渦電流式動力計（東京ブラント製 ED-150）にて負荷をかけることにより運転条件を設定した。運転条件は回転数 1400 rpm、負荷 190 Nm とした。各機器の接続状態を図 2 に示す。DPF 上流には酸化触媒である DOC（ACR 株式会社製 ACR EXCAT C15）を配置した。

DPF を装着した場合、負荷によりススの量や性状なども変化する。よって、DPF を装着しない場合は DPF の代わりに図 3 に示すオリフィスを持つフランジを装着し、DPF 装着時の背圧と同等の状態にしたデータをリファレンスとして用いた⁽¹⁰⁾。なお、実験に当たっては安定した運転状態を得るために、アイドリング状態で充分暖機した後に実験を行った。

Table.1 Washcoat amount of each DPF

Sample	A	B	C	D	E
Al_2O_3 coat (g/L)	0	x	$x+40\%$	$x+70\%$	$x+110\%$



(a) (b)

Fig.1 SEM image of samples

(a) is wall surface of uncoated DPF, (b) is wall surface of W/C DPF.

Table.2 Engine Specifications

Model	NISSAN QD32
Engine Type	4 stroke, swirl chamber type diesel
Cylinders	4, in-line
Valve mechanism	OHV
Displacement	3.153 L
Rated Power	72 kW @3600 rpm
Peak Torque	216 Nm @2000 rpm
EGR System	none
Turbocharger	none (NA)

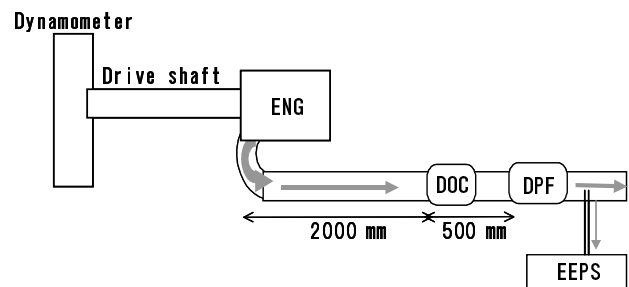


Fig.2 Experimental scheme



Fig.3 Flange with orifice

2.3. スス粒子の個数濃度測定

スス粒子の個数濃度測定には、粒子カウンター（東京ダイレック・TSI 製 EEPS 3090）を用いた。DPF 通過後の排ガスを採取し、捕集率を求めて DPF の性能評価を行った。採取した排ガスは希釈装置にて 350℃に加熱されたエアにより 120 倍に希釈される。この際、排気ガス中の揮発成分が気化されることにより、固体粒子のみを計測している。350℃の希釈エア温度を保ち、安定した計測データを得るため装置全体の暖機を十分行った。

3. 実験結果及び考察

3.1. 総粒子個数濃度の推移

DPF 使用初期の PM 粒子個数濃度の時間変化を図 4 に示す。横軸に時間を取っているが、アクセルを開けた直後の PM 粒子個数濃度が最も多くなる時刻を 0 秒としている。PM 粒子個数濃度は 0 秒をピークとして、その後速やかに減少していることがわかる。また、W/C 処理を行っていないサンプル A は 120 秒後もはっきりとスス漏れが確認できるのに対し、W/C 処理を行ったサンプル B, C, D, E は 120 秒後の PM 粒子個数濃度が $10^5/\text{cm}^3$ 程度に減少しており、殆どスス漏れがなくなっていることが分かる。このことから、W/C 処理を行った DPF では、使用初期における薄いスス層の形成が早期に行われると考えられる。さらに、W/C 量が多いほど $10^5/\text{cm}^3$ 程度に減少するまでの時間が短く、速やかに高い捕集率を発揮していることが分かる。このことから、W/C の量が多いほど速やかにスス層が形成されていると考えられる。

一方で、アクセルを開いた際、スス漏れが最も多くなる山

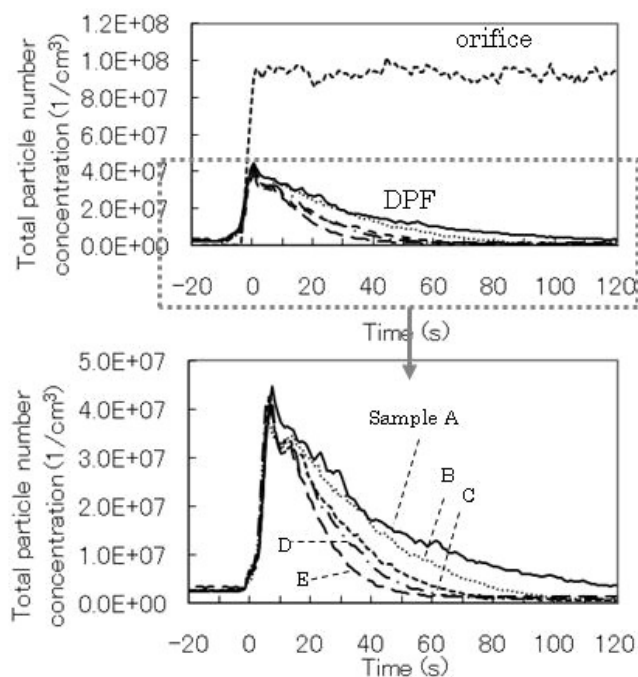


Fig.4 Total particle number concentration

のピーク高さはどの DPF でも同じであった。これは、素材自体はどの DPF も同じであり、隔壁厚さやセル密度等のスペックが同等であるためと考えられる。つまり、捕集開始直後の初期捕集率は、隔壁厚さやセル密度といった素材の性質そのものに影響されることが考えられる。

したがって、スス層を早期に形成して捕集初期のスス漏れを減少させるためには、適切な W/C 処理が必要である。さらに、DPF の素材自体の設計を最適化することにより、捕集開始直後のスス漏れ個数濃度のピークを減らすことができるものと思われる。

3.2. PM 粒径ごとの粒子個数濃度の推移

PM 粒径ごとの粒子個数濃度の変化を比較するため、サン

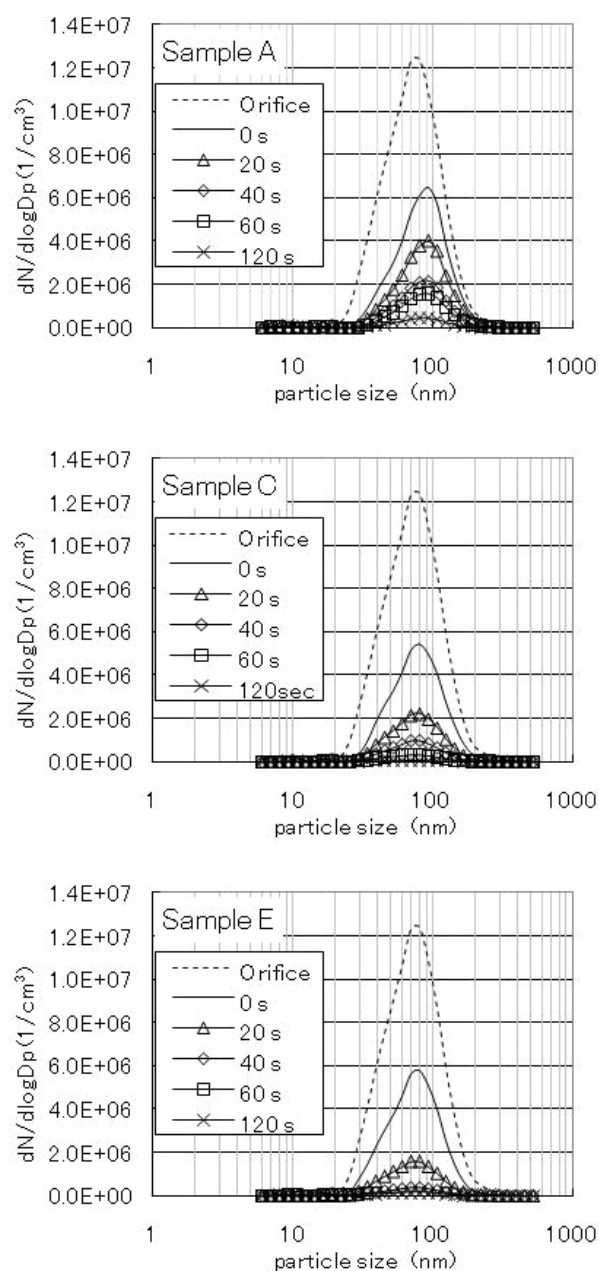


Fig. 5 Soot distribution passing through DPF

プル A, C, E について, PM の粒径を横軸に取り, 粒子個数濃度を縦軸に取ったものを図 5 に示す. A, C, E とともに捕集開始直後から全ての粒径域において粒子個数濃度が減少しているが, サンプルにより減少の速さが異なることが分かる. W/C 処理を行っていないサンプル A では 120 秒後も粒子個数濃度分布を表す山が残っているのに対し, W/C 処理を行ったサンプル C, E では 60 秒後には全ての粒径域において PM がほぼ完全に捕集されている. 特に, W/C 量の最も多いサンプル E は, 40 秒後には全ての粒径域で PM がほぼ完全に捕集されている.

次に捕集率を調べた. 捕集率は, オリフィスフランジを装着した際の排ガス中の PM 粒子個数濃度を α , DPF 後の排ガス中の PM 粒子個数濃度を β とした時, 次式により求めた.

$$\text{Filtration efficiency} = (\alpha - \beta) / \alpha \cdots \cdots (1)$$

サンプル A, C, E について, 横軸に時間を取り, 縦軸に捕集率を求めた結果を図 6 に示す. 図 4 と同様に, W/C 処理を行っていないサンプル A は捕集開始から 120 秒後も捕集率が 90% 後半に留まるが, W/C 処理を行ったサンプル C, E は 60 秒後にはほぼ 100% の捕集率になった. さらに W/C 量の多いサンプル E は, サンプル C より早い段階で捕集率がほぼ 100% になった.

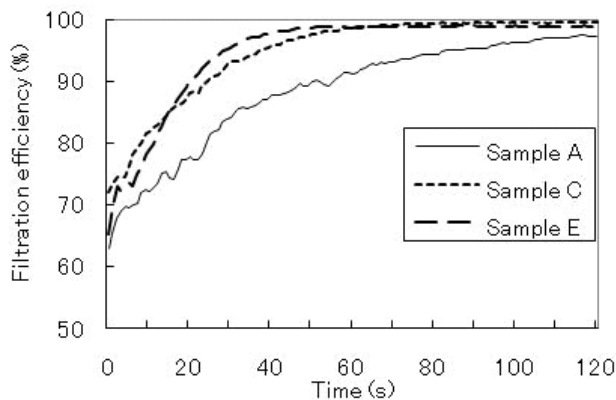


Fig. 6 Filtration efficiency of initial DPF usage

また, PM 粒径ごとの捕集率について調べるため, W/C 処理を行っていないサンプル A について, PM の粒径を横軸に取り, 捕集率を縦軸に取ったものを図 7 に示す. 久保らは, DPF による粒子捕集において, 粒子の大きさにより隔壁における捕集メカニズムが異なることを報告している⁽¹¹⁾. それによれば, PM を大きく 3 つのグループに分けて考えることができる. 1 つは 30nm 以下の超微細粒子のグループである. 2 つめは 30~200nm の粒子であり, PM 中における割合が最も多いグループである. 3 つめは 200nm 以上の比較的大きな粒子のグループである. 図 7 においても, 捕集率の分布が, 30nm 以下, 30~200nm, 200nm 以上, と大きく 3 つ

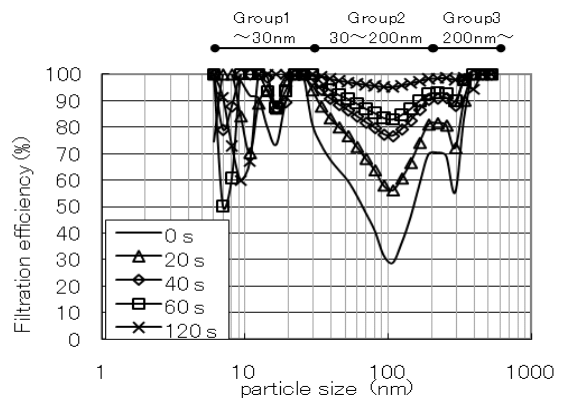
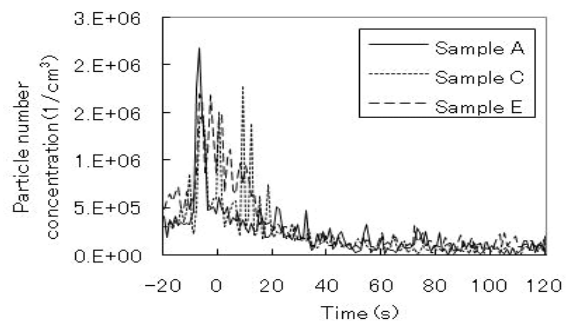
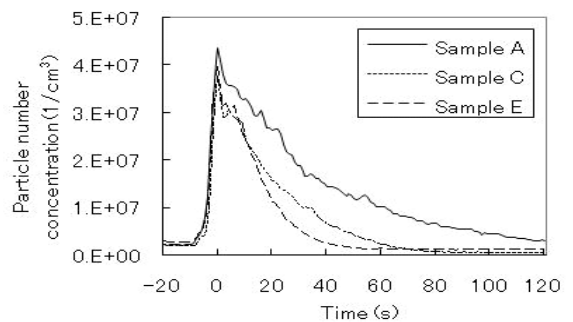


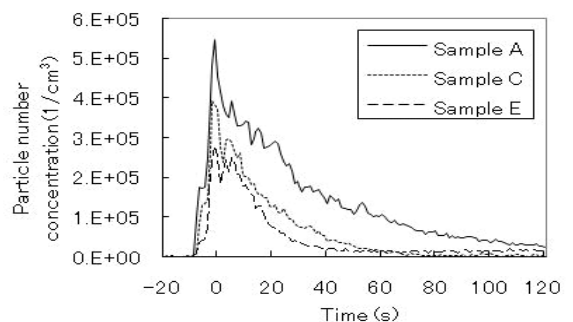
Fig. 7 Variations of filtration efficiency with particle size (about Sample A)



(a) group1 (~30nm)



(b) group2 (30~200nm)



(c) group3 (200nm~)

Fig. 8 Time variation of particle number concentration for each PM range

に分かれていることから、この 3 つのグループに分けて検討することができると考えられる。

ここで、W/C 処理を行うことが、それぞれの PM 粒径グループの減少度合いにどのように影響を及ぼすかを調べた。サンプル A, C, E について、粒径グループごとに粒子個数濃度の推移を調べた結果を図 8 に示す。また、グループ 1, 2, 3 の捕集メカニズムを図 9 に示し、W/C 処理の有無によって受ける捕集性能の違いを、それぞれ検討する。

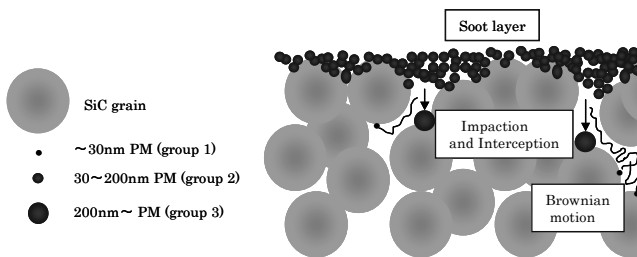


Fig. 9 Mechanism of soot trap for each PM group

まず、最も粒子径の小さなグループ 1 においては、どの DPF でも似た粒子個数濃度の変化が見られた。このことから、W/C 処理を行って隔壁表面の細孔が小さくなった場合でも、30nm 以下の超微細粒子に関しては影響を殆ど受けないことが分かった。これは、W/C の有無に係らず 30nm 以下という粒子の大きさが隔壁空孔に対して十分に小さいためだと思われる。30nm 以下の超微細粒子の捕集は、ブラウン運動により説明される。W/C 処理を行って隔壁の細孔形状が変化した場合においても、超微細粒子のブラウン運動による吸着が、殆ど変わらなかったと言える。

粒子個数濃度において大半を占めるグループ 2 については、総粒子個数濃度の推移を表した図 4 とほぼ同様の結果となった。アクセルを開いた際の最もスス漏れが多くなっているピーク部分が、W/C 処理の有無に係らず同等になっている。また、W/C 処理の量が多いサンプル E については、速やかにスス漏れが減少し、粒子個数濃度が $10^5/\text{cm}^3$ 程度に達している。これは、PM 全体の粒子個数濃度に対してグループ 2 の占める割合が最も高く、早い段階で隔壁表面における薄いスス層が形成されると、粒子の捕集率も高くなるためであると考えられる。

大きな粒子径を持つグループ 3 については、W/C 処理を行った DPF が速やかにスス漏れが減少し、よりコート量の多いサンプル E が最も早く粒子個数濃度が $10^5/\text{cm}^3$ 以下に下がっている点は、グループ 2 と同様である。一方で、スス漏れピーク部分について W/C 処理の量が多い DPF ほど捕集された粒子が多くなっている点で、グループ 2 とは異なる。この点について、以下のように考えることができる。グループ 3 の 200nm 以上の大きな粒子は質量が大きいため、グループ 1, 2 のような小さな粒子と比較して大きな慣性力を持つ。そのため、隔壁中のセラミックス粒子による流路の分岐に衝

突する「さえぎり効果」の影響を大きく受けると考えられる。W/C 処理によってセラミック粒子表面の凹凸が増え、比表面積が増加し、「さえぎり効果」が起こりやすい隔壁状態に変化する。その結果、スス層の形成されていない捕集初期の状態でも、W/C 処理を行った DPF は、大きな PM を捕集しやすいと考えられる。

4. ま と め

SiC-DPF に W/C 処理を行った場合の初期 PM 捕集性能への影響を確認するため、W/C 量を段階的に増加させ、EEPS により PM 粒子個数濃度の減少度合いの計測を行った。その結果、以下のことがわかった。

(1) W/C 量を増加した DPF ほど粒子個数濃度が速やかに減少していくことを確認した。このことから、W/C 処理を行うことで隔壁表面にスス層が早期に形成されていることが示唆された。

(2) PM 粒径ごとの粒子個数濃度は、W/C 処理を行ったサンプル C, E では 60 秒後には全ての粒径域において PM がほぼ完全に捕集される。また、W/C 量が多いものほど早い段階で捕集率がほぼ 100%になる。

(3) PM は大きさによって捕集メカニズムが異なるが、PM の粒径ごとに捕集率を求めた場合、粒径ごとに捕集率の時間変化が異なることがわかった。

(4) 30nm 以下の超微細粒子では W/C による影響を殆ど受けないが、個数濃度において大部分を占める 30~200nm の PM では、W/C 量が多いほど隔壁をすり抜けた PM 粒子個数濃度が速やかに減少した。また、200nm 以上の大きな PM については、W/C 量が多いほど捕集開始直後の PM 漏れも少なく、粒子個数濃度の減少も早かった。

参 考 文 献

- (1) 古山昭子ほか：ナノ粒子の沈着、体内動態、自動車排出ナノ粒子および DEP の測定と生態影響評価、東京、株式会社エヌ・ティー・エス、2005、p.159-164.
- (2) 自動車排ガス規制値、社団法人自動車技術会、www.jama.or.jp/eco/exhaust/table_02.html
- (3) 尾久和丈、大矢智一、大野一茂：SiC-DPF を使った触媒化 DPF の連続再生効果、自動車技術会学術講演会前刷集、No.52-07、20075332、(2007)。
- (4) Tsuruta, T. and Hanamura, K. : Visualization Study of PM Trapping and Reaction Phenomena in Micro-structural Pores through Cross Section of DPF Wall, SAE paper, 2007-01-0917 (2007)。
- (5) Daido, S. and Takagi, N : Visualization of the PM Deposition and Oxidation Behavior Inside the DPF Wall, SAE paper, 2009-01-1473 (2009)。

- (6) Wirojsakunchai, E. et al : Detailed Diesel Exhaust Particulate Characterization and Real-Time DPF Filtration Efficiency Measurements During PM Filling Process, SAE paper, 2007-01-0320 (2007).
- (7) Kuwajima, M. et al : Analysis of Sophisticated DPNR Catalyst, Focused on PM Particle Number Emissions, SAE paper, 2009-01-0290, p.175-181 (2009).
- (8) Souza Lorentzou. et al : Advanced Catalyst Coatings for Diesel Particulate Filters, SAE paper, 2008-01-0143, p. 233-239 (2008).
- (9) 常吉孝治, 高木修 : ハニカム構造体, 特許 第 4130216 号, (2008).
- (10) 山本和弘ほか : LII 法によるすす計測とディーゼル排気ガスへの適用, 日本機械学会論文集, B 編, 74 巻, 738 号, pp.244-250 (2008).
- (11) 久保修一ほか : DPF における捕集メカニズム, 日本機械学会論文集 B 編, 72 巻, 721 号, p.21-26 (2006).