

DPF の初期PM 捕集性能に対する表面粗さの影響*

常吉 孝治^{*1}, 高木 修^{*2}, 山本 和弘^{*3}

Effect of Surface Roughness on Initial PM Filtration Efficiency of DPF

Koji TSUNEYOSHI^{*4}, Osamu TAKAGI and Kazuhiro YAMAMOTO

^{*4} TYK Corporation Environmental R&D Center
3-1 Ohbata-cho, Tajimi-shi, Gifu, 507-8607 Japan

^{*4} Department of Mechanical Science and Engineering, Nagoya University,
Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya-shi, Aichi, 464-8603 Japan

In recent years, environmental regulation tends to become strict rapidly, and the further highly performance of DPF is demanded, which mainly consists of surface filtration and depth filtration. Generally, if the wall thickness is thin, the soot in diesel exhaust gas may break through and leak the filter, because the depth filtration doesn't work enough. However, most of filtration efficiency depends on surface filtration, because the soot cake forms on the surface of ceramic filter, and the soot cake takes part in highly performance of the filter. Therefore, the most important thing is how to make the soot cake rapidly. In this study, we pay attention to the surface roughness of ceramic filter. We observed the micro-porous structure of the filter based on SEM images. Also, we measured soot diameter and particle number concentration using different filters. Results show that, when too big open and too deep pore exist on the filter surface, the soot leakage occurs easily. In this case, it's hard to make soot layer rapidly and the soot leaks during initial DPF usage. Once the soot layer is formed, the filtration efficiency becomes high, and small particulates called SPM are caught effectively. Thus, it is important to control surface roughness for making soot layer rapidly.

Key Words : Diesel Engine, Combustion Products, Porous Media, Ceramics, Surface roughness, DPF

1. 緒 言

ディーゼル車の排ガス規制は益々厳しいものとなっている。例えば排ガス中の粒子 (Particulate Matters, PM) に関しては、2009 年以降のポスト新長期, EURO5, Tier2Bin5 などにおいて、その排出量は 1km あたり 5mg 以下が要求されている⁽¹⁾。これは 1994 年と比較して、40 分の 1 という非常に高いレベルの排ガス規制となっている。

粒子の排出量は、近年の各メーカーや研究機関等におけるエンジン開発やディーゼル微粒子除去フィルタ (DPF) 等の後処理技術の進歩によって、極めて少なくなっている。それに伴い、ディーゼル車はかつての環境に悪いイメージから、燃費が良く環境にやさしいイメージへと見直されつつある。現状では、これらは厳しい排ガス規制をクリアしているが、環境面や生態面への負荷

を考えると、排ガス処理技術のさらなる改善が望まれる。

ディーゼル排ガス処理において重要な役割をする DPF の問題点として、使用初期において若干のスス漏れが起こるという現象が挙げられる⁽²⁾。このようなスス漏れはフィルタ部の細孔よりも小さな粒子、特にナノサイズの SPM (Suspended Particulate Matter) に多く見られる。ナノサイズの SPM は重量的には極めて軽いために規制の対象とはなり難いが、気管支や肺胞への沈着によりぜんそく等の健康障害を引き起こす原因となる^{(3)~(5)}。よって、これらナノサイズの SPM も捕集できるフィルタの開発が必要とされている。

これまでは、一定以上の捕集性能を確保するために、フィルタ壁の厚みを厚くして PM のすり抜けを防ぐことが効果的と考えられ、隔壁が薄い場合は PM のすり抜けが起こるとされていた⁽⁶⁾。しかし、十分な捕集性能を得るために壁厚みを厚くすると、排気ガスがフィルタ壁を通過する際の抵抗が大きくなり、圧力損失が増大して燃費悪化の原因にもなるため、壁厚みをできる限り薄くする必要がある。

*原稿受付 2009 年 11 月 30 日

^{*1} 正員, (株)TYK 環境材料研究所 (〒507-8607 岐阜県多治見市大畑町 3-1)。

^{*2} (株)TYK 環境材料研究所。

^{*3} 正員, 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

久保⁷⁾らは、セラミックDPFの捕集メカニズムは表層濾過 (surface filtration) と深層濾過 (depth filtration) に分類され、PM 堆積初期では多孔体内部の深層濾過が中心であり、PM 堆積の部位が多孔体内部から多孔体表面へと移行していくことを報告した。また、鶴田ら^{8) 9)}は、隔壁表面に付着したススが形成する Soot cake によってさらにススが捕集されるため、Soot cake が形成されると隔壁内部の深層濾過よりもむしろ Soot cake を伴う表層濾過に捕集性能が大きく依存することを報告した。

そこで筆者らは、いち早く Soot cake を形成して高捕集性能を実現するため、フィルタの隔壁の表面に着目した。例えば SiC を用いた多孔質セラミックをフィルタ基材として使用した場合、初期使用状態で薄いススの層 (Soot layer) を形成させることができれば、フィルタ隔壁の表面に堆積した Soot layer がよりきめ細かなフィルタの役目を果たすために、高捕集性能フィルタが実現できる。

Soot layer の形成はフィルタ基材の表面状態 (表面に開いた細孔の大きさや分岐までの深さ) に大きく依存する。そこで本報では、セラミック基材の表面粗さを変えて、Soot layer の形成されていない未使用状態からの PM 捕集挙動の時間変化について調べ、初期捕集性能に及ぼすフィルタ基材の表面状態と Soot layer の形成の影響について検討した。

2. 実験装置及び実験方法

2・1 DPF 押出成形の条件を変えることにより、フィルタ隔壁内部の気孔率と平均細孔径は同等で、フィルタ面の表面粗さの異なる 2 種類の SiC-DPF を作製した (Sample A と Sample B)。なお今回は触媒をコーティングしていない。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。それぞれの DPF について水銀ポロシメーター (Micromeritics 製、オートポア IV9500) を使用し、水銀圧入法により測定した気孔率と平均細孔径 (体積基準メディアン径)、およびレーザ顕微鏡 (キーエンス製、VK-8500) にて計測した表面粗さ (Ra) を表 1 に示した。

表面粗さとは固体表面の凹凸度合いを表す言葉であり、定義上、中心線平均粗さ (Ra)、最大高さ (Rmax)、十点平均粗さ (Rz) などの種類がある。本報で求めた中心線平均粗さ (Ra) は、次のように求められる。

$$Ra(\mu\text{m}) = S / L \quad \dots\dots (1)$$

S は粗さ曲線を中心線から折り返し、その粗さ曲線と中心線によって得られた面積であり、L は測定長さである。

Table 1 Filter properties

Sample	A	B
Porosity (%)	42	42
Pore size (μm)	12	11
Surface roughness (μmRa)	9.0	7.2

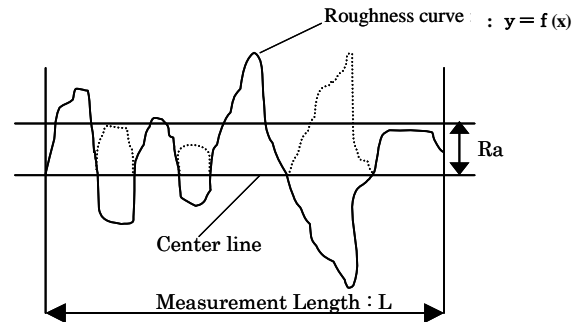


Fig. 1 Image of surface roughness (Ra)

また、中心線を x 軸、縦方向を y 軸とし、粗さ曲線を $y = f(x)$ で表した時、図 1 のように表すことができる。

$$Ra(\mu\text{m}) = \frac{1}{L} \int_0^L |f(x)| dx \quad \dots\dots (2)$$

Ra が大きい場合、測定長さ L に対して粗さ曲線と中心線によって得られる面積 S が大きいということである。即ち SiC ハニカムの壁面で考えれば、Ra が大きい場合は、SiC 粒子間の空隙によって形成される開口部の径が大きい、または開口部が深さ方向に長く孔が開いているということを意味する。逆に、Ra が小さい場合、セラミックのフィルタを構成する SiC の粒子が表面に密に配置されているため、表面状態は凹凸が少ない。即ち、開口部の径が小さく、開口部の孔はフィルタの内部で SiC 粒子により遮られて分岐していることを意味する。これにより、フィルタ壁の表面粗さ Ra が小さい場合は、「さえぎり効果」によるススの捕集性能に優れ、早期に Soot Layer が形成されることが期待できる。

DPF のサイズは $\phi 144\text{mm} \times L153\text{mm}$ 、セル密度は 200 cpsi (cell per square inch) とし、壁厚み 16 mil (0.4mm) で統一した。また、DPF を排気管路中に装着する際に、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 スス発生装置 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 QD32 エンジン (ディーゼル車、排気量 3.153L) を用いた。エンジンを

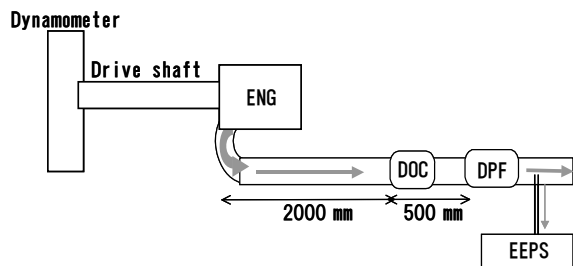


Fig.2 Experimental Setup



Fig.3 Flange with orifice

エンジンベンチ室にて稼働させ、渦電流式動力計（東京プラント製、ED150）にて負荷をかけることにより運転条件を設定した。各機器の接続状態を図2に示す。運転条件は回転数1400rpm、負荷200Nmとした。

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ため、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⁽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。

2.3 捕集性能評価装置 DPFの捕集性能を評価するため、粒子カウンター（TSI製、EEPS3090）にてDPF通過後の排ガスを採取した。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。捕集性能評価装置に関しても、350℃の希釈エア温度を保つため装置全体の暖機を行った上で、正確な計測ができるよう留意した。

3. 実験結果及び考察

3.1 表面状態の観察 DPFに使用したフィルタ基材の隔壁表面を走査型電子顕微鏡（日本電子株式会社製SEM、JXA-840）で観察した。その結果を図4に示す。Sample AとSample Bの表面状態を比較すると、Sample Bの表面は、SiCの粒子の隙間により形成される開口部が

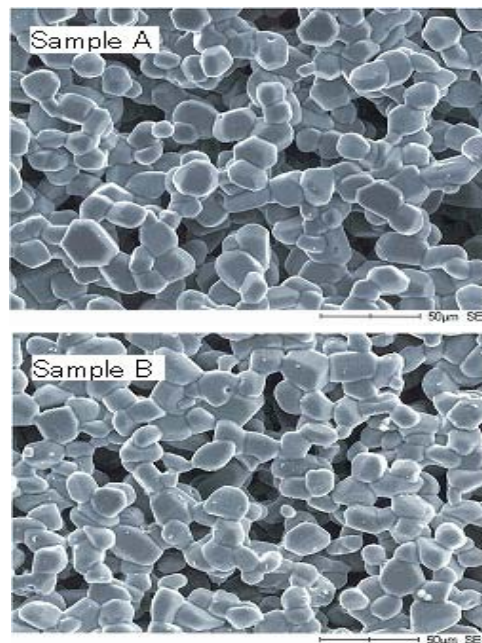


Fig. 4 SEM image of samples A and B

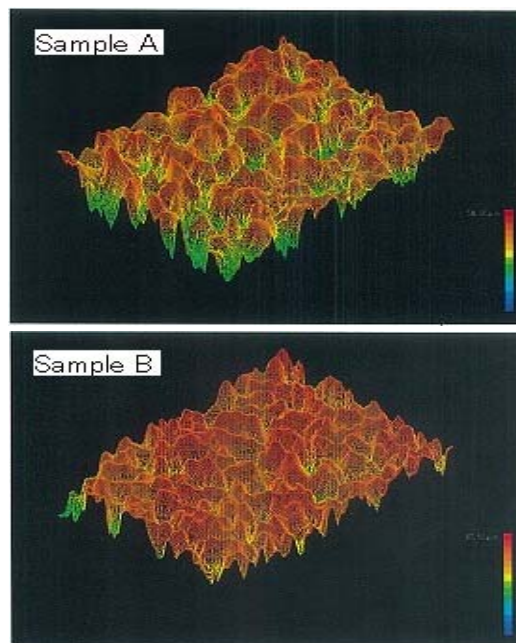


Fig. 5 Surface configuration image of samples A and B

浅く、開口部の大きさ（径）もSample Aより小さいことが確認できる。

表面粗さの測定は、隔壁表面の高さをレーザー顕微鏡を用いて非接触で行った。この際、焦点深度を0.02µmずつ移動させ、3次元の表面形状を求めた。まず、1つの画像で得られた表面の高さ情報をもとに、式(2)を用いて平均表面粗さを算出した。次に、異なる6箇所の位置で画像を撮影して同様の作業を行い、その平均値をSample

A,B の表面粗さとした。レーザー顕微鏡で得られた各フィルタの表面形状を図5に示す。これによると、Sample A は起伏が大きく中心より高い位置と低い位置の差が大きいこと、また、起伏の間に形成される開口部が目立つことがわかる。これに対し、Sample B は中心よりも比較的起伏の差が小さく、開口部も目立たない。つまり、Sample B は凹凸が小さく滑らかな表面を持つため、表面粗さが小さいことがわかった。

3.2 捕集性能の評価 表面粗さの違いによる、Soot layer の形成及び初期 PM 捕集性能を比較するため、Sample A,B を実際の排気ガスの管路中に配置し、DPF によりスス捕集後の粒子の数密度を測定した。

オリフィスフランジによりDPF配置時と同様の圧力に調整した排ガスの粒子数の計測結果、及び2種類のDPFを装着した場合のPM粒子数密度を図6に示す。DPFを装着しない場合の結果から、排出される粒子特性がわかるが、今回は粒子計測開始から約10秒後にアクセルを開いたため、その直後が最も粒子数密度が多く、その後、粒子数密度が下がっていくことがわかる。DPFを装着した場合、粒子数密度の減少の仕方はSample A と Sample B で大きく異なる。Sample A では粒子数密度のピークからゆるやかに減少し、120秒後でもスス漏れが確認された。これに対し、Sample B では粒子数密度がピークを示した後急激に減少し、60秒後にはほぼ0となった。

また、オリフィスフランジ装着時の粒子数密度と、DPF装着時の粒子数密度の減少から捕集率を求めた。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粒子数密度を α 、DPF後の排ガス中のPM粒子数密度を β とした時、次式により求められる。その結果を図7に示す。

$$\text{Filtration efficiency } [\%] = (\alpha - \beta) / \alpha \cdots \cdots (3)$$

ただし図7は、図6における山のピーク時、つまり最も排ガス粒子個数が多く検出された時点を0秒とした。

これによると、Sample A, B ともにアクセルを開いたスス漏れピーク時の初期捕集率は80%代後半の値を示したことから、新品の状態での捕集率（初期捕集率）はほぼ同等であることがわかる。しかしながら、その後の粒子数密度の減少度合いは全く異なる。Sample A は計測粒子数密度が緩やかに減少し、60秒後の捕集率は96%程度、120秒後は98%程度であるが、Sample B の捕集率は60秒後に急激に減少し、ほぼ100%に達している。これはおそらく、Sample B ではフィルタ壁表面に早い段階でSoot layer が形成されたために、Soot layer がフィルタリン

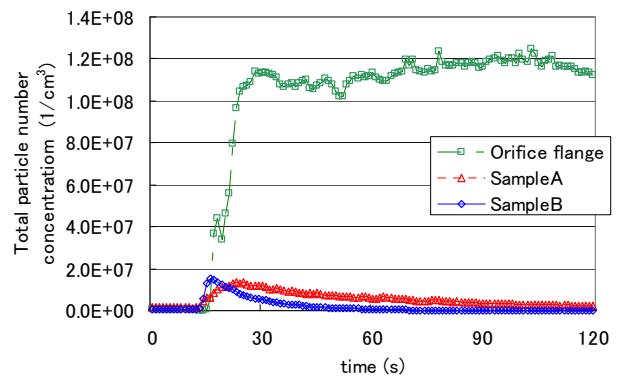


Fig. 6 Total particle number concentration

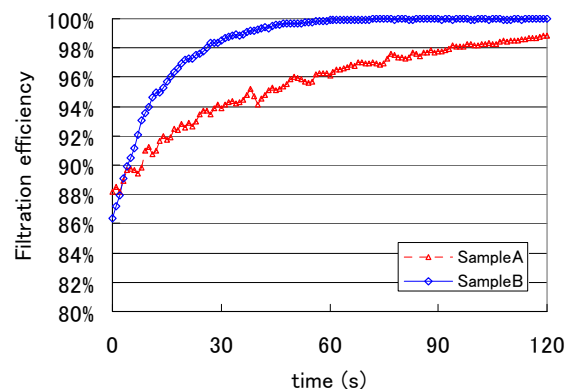


Fig. 7 Filtration efficiency

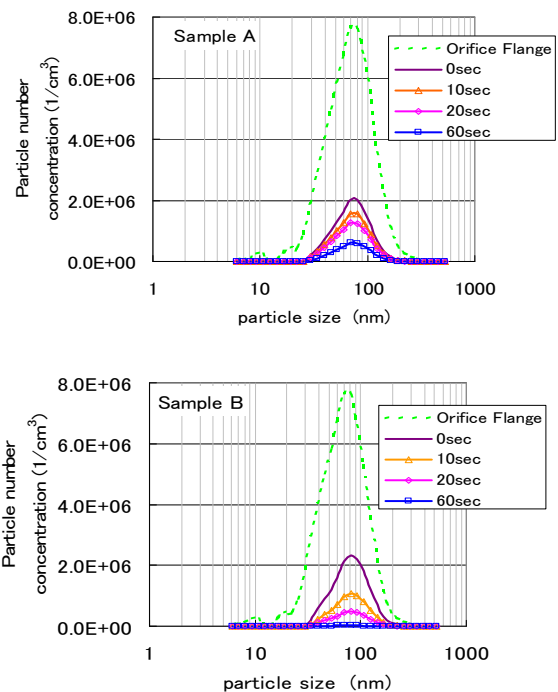


Fig. 8 Soot distribution after DPF

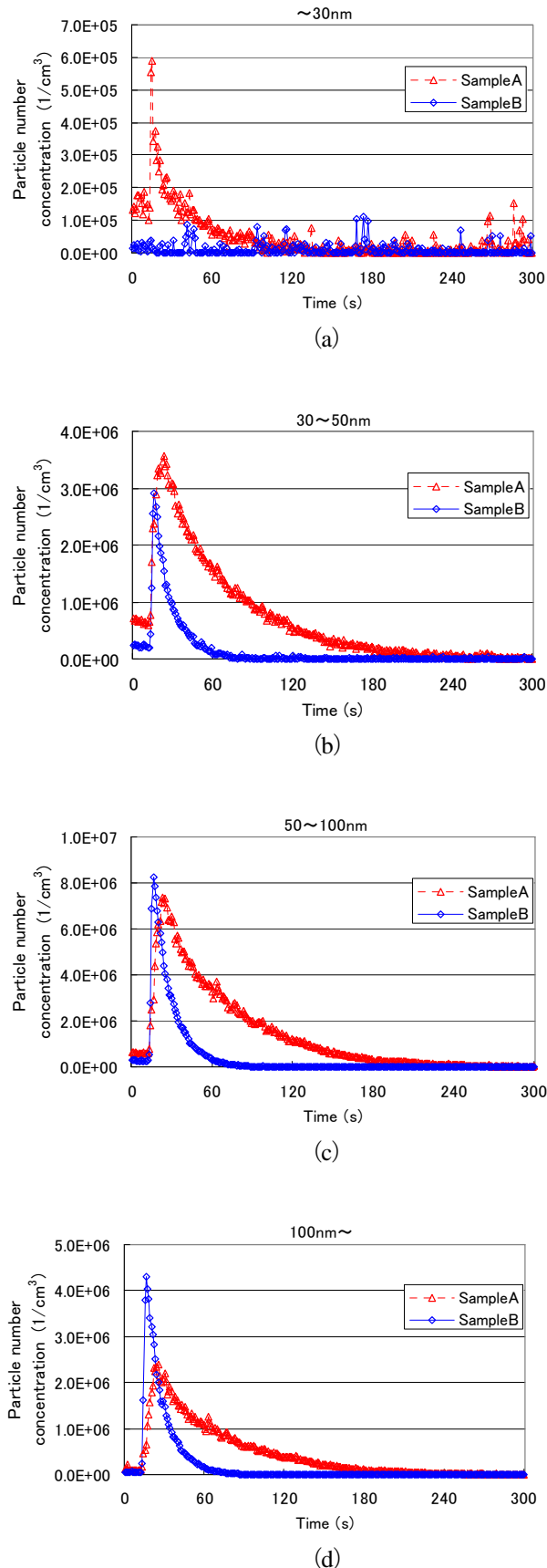


Fig. 9 Time variation of particle number concentration for each PM range

グを行う表層濾過に速やかに移行したものと推測される。これについては次節で検討する。

また、PM の粒径別の初期捕集性能を比較するために、横軸を PM 粒径とした DPF 後の排ガス中の PM 粒径分布を図 8 に示した。DPF の代わりにオリフィスフランジを装着した場合の結果も比較のため示しているが、この場合は 70~80nm をピークにもつ山形の分布を持っている。一方、DPF を装着した場合、全ての粒径域で PM は捕集され、時間と共に山が平坦になっていく様子がわかる。ここでも、Sample A は徐々に PM 粒径分布が小さくなっていくのに対し、Sample B は 60 秒後には PM 粒径分布が全粒径域に渡って小さくなっていることがわかる。

さらに、粒度分布をいくつかの粒径範囲に分けて検討した。横軸を時間軸とした DPF 後の数密度の変化を図 9 に示す。これによると、特に微細な粒子である 30nm 以下の PM が、Sample B を装着した場合の排ガスからは検出されておらず、このフィルタが高い初期捕集性能を持つことが分かる。また、粒径が 30~50nm の領域でも、Sample A では緩やかに粒子数密度が下がって行くのに対し、Sample B は速やかに 0 に近い領域にまで PM 粒子数密度が下がっている。粒径分布で最も粒子数の多い領域である 50~100nm の領域でも同様の結果となった。ここで、図 6 及び図 9 では横軸を時間とし、縦軸を粒子数密度としているため、粒子数密度の推移によって形成される面積が、計測開始から捕集されなかった総粒子数を表す。面積を求めて、捕集されなかった総粒子数を比較した場合でも、Sample B のほうが全粒径域にわたって Sample A よりも高い初期捕集性能を持つことが分かった。

3.3 捕集初期の PM 捕集メカニズムの確認 2つのフィルタの初期捕集性能の差が、Soot layer の早期形成により説明できることを確認するため、捕集性能評価試験を 2 分間行った後、DPF を管路から取り外し、切断して断面を観察した。切断はフィルタ壁面に付着したススが落ちない様に電動ノコギリを用いて行ったが、ノコギリによりスス層が一部破壊される恐れがあるため、切断面を直接 SEM 観察するのではなく、棒状のサンプルを切り出してサンプルを折り、その破断面を観察した。このようにして得られた 2 つのサンプルのフィルタ隔壁表面の写真を比較して図 10 に示す。また、破断面の隔壁内部の写真を図 11 に示した。図 11 では右側が捕集表面であり、左側に向けて排気ガスの流れがある。

図 10 から、Sample A ではフィルタ奥へと続く孔が残り、表面にススがまばらに付着しているのに対し、Sample B では、2 分間ススを捕集するとフィルタ壁表面に薄い Soot layer が形成され、フィルタ奥へと続く孔は Soot によ

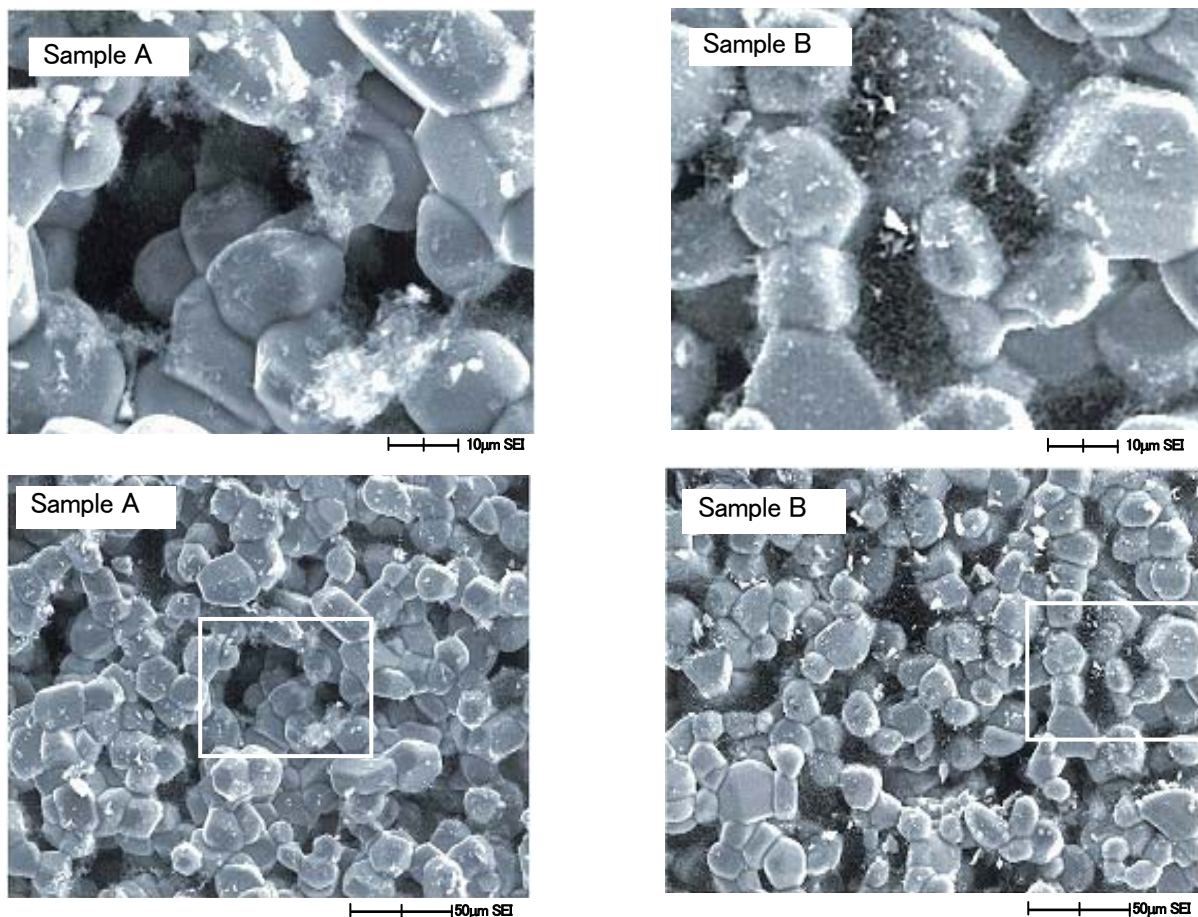


Fig. 10 Surface image of soot layer

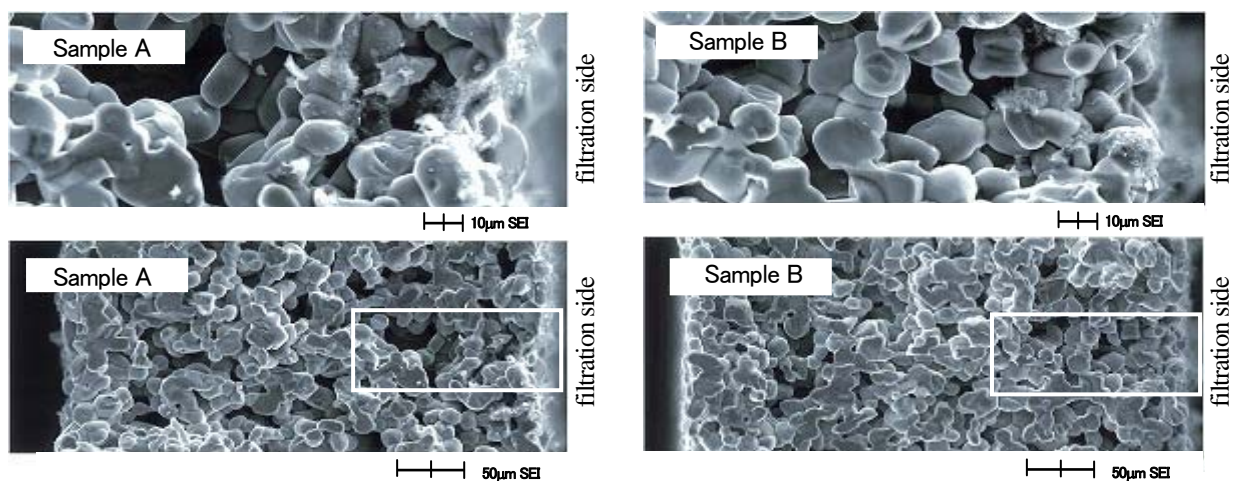


Fig. 11 Inside of the ceramic wall

り塞がれている様子が観察できる。即ち、Sample B の高い初期捕集性能は、フィルタの表面粗さが小さく、Soot layer が速やかに形成されたことによることが確認できた。また、図6～9で捕集されなかったススがすり抜けていること、および図11でフィルタ表面近くのみススが附着している結果から、Soot はフィルタの表面から 50μm 程

度の範囲でほぼ捕集され、でそれより深い位置には留まらずに抜けていることが推察される。

ここで、フィルタの構造とススの初期捕集性能について考察する。表面の開口部の径を小さくするだけでは、表面のセラミック粒子に衝突することなく内部に侵入したススが次の衝突点（分岐点）に達するまでに時間が掛

かり、Soot layer を速やかに形成することは困難になる。また、開口部をすり抜けたススが次に衝突する分岐点までの距離を短くしても、開口部の径の制御がなされず大開口径が多数存在する場合、Soot layer を速やかに形成することは困難になる。

Sample A と Sample B のように表面粗さが異なる場合の Soot layer の形成の違いを図 12 を用いて説明する。表面粗さが小さいフィルタでは、隔壁表面のセラミック粒子の配列が密であるため、表面の大開口径が小さく、スス漏れの原因となる直線的な孔が少ない。これにより、ススはフィルタを構成するセラミック粒子に衝突し、「さえぎり効果」によりススはトラップされていく。この結果、Soot layer が形成され、この Soot layer も、よりきめ細かいフィルタとなり次々にススをトラップしていく。これにより高捕集性能のフィルタが実現される。

このことを確認するため、ススを 19.8g (DPF 容積が 2.47L のため、8g/L) まで堆積させた Sample B のスス堆積の様子を SEM により観察した。その結果を図 13 に示す。隔壁内部へのスス堆積はほとんど確認されず、ススは隔壁表面に形成された Soot layer で捕集され、厚いスス堆積層 (Soot cake) が形成されていることが分かる。つまりこの段階では、フィルタの捕集性能は、深層ろ過よりも表層ろ過に大きく依存していることが分かる⁽¹¹⁾。したがって、開口部をすり抜けたススが次に衝突する分岐点までの距離と開口部の径の両方を同時に制御することで、早期に Soot layer を形成させる理想的なフィルタを作りだすことができるものと思われる。

今回の実験では、気孔率と平均細孔径は同等で、Ra が $9.0\mu\text{m}$ および $7.2\mu\text{m}$ と異なる 2 つの DPF を用いて比較した。この結果から、より Ra の小さい DPF を実現すれば、使用初期のスス漏れ個数密度をより速やかに減少させることができると考えられる。

4. 結 論

DPF の初期 PM 捕集性能について検討するため、DPF 表面の形状、特に表面粗さに着目し、捕集された粒径分布とフィルタの捕集率を調べ、Soot layer が形成される過程について検討した。これにより、以下のことがわかった。

- (1) フィルタによる PM 捕集初期の状態を SEM により観察したところ、フィルタ奥へと続く孔は次第に Soot により塞がれ、隔壁表面に

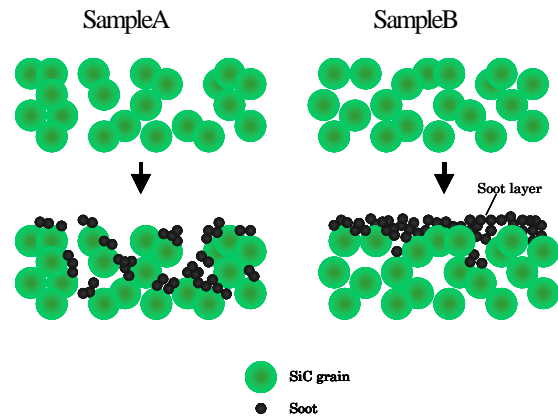


Fig. 12 Mechanism of soot trap and soot layer formation

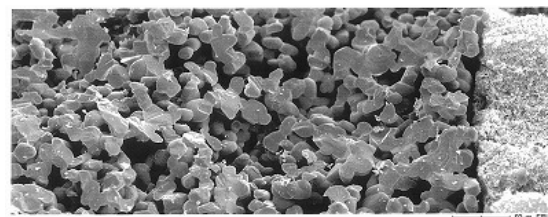


Fig. 13 Inside of the ceramic wall after 8g/L Soot Load

Soot layer が形成されていた。この Soot layer が形成されると、捕集率は高い値を示す。

- (2) フィルタ隔壁の気孔率および平均細孔径が同等で、隔壁の表面粗さの異なる DPF では、新品の状態での初期捕集率はほぼ同等であった。しかし、その後の粒子数密度の減少度合いは全く異なり、表面粗さが小さいほうが初期捕集性能は高く、特に微細な粒子である 30nm 以下の PM が有効に捕集されることを確認した。
- (3) 8g/L までススの捕集をしたフィルタを調べたところ、隔壁内部へのスス堆積はほとんど起こらず、ススは隔壁表面に形成された Soot layer で捕集され、厚い Soot cake が形成されていることを確認した。

文 献

- (1) “Comparison of Diesel exhaust regulation among Japan and USA and EU”. JAMA exhaust gas standard. (online), available from <http://www.jama.or.jp/eco/exhaust/table_02.html>, (accessed 2009-10-01).
- (2) “The Status Quo of New DPF Technologies”. Measures of Diesel Regulation. (online), available

from<<http://www.twinland.co.jp/dpf2.html>> ,
(accessed 2009-10-01).

- (3) Furuyama, A., Composed of nano-particulate matter and the movement in the body, Automobile exhaust (*nano-particulate matter and DEP measuring and the estimation effect of a living body*) (2005), pp.159-164.
- (4) Aoshiba, K., Health Effects of Particulate Matter on Chronic Respiratory Diseases, *Transactions of Society of Automotive Engineers of Japan Symposium*, No.15-07 (2008.2.12), pp. 1-3.
- (5) Suzuki, A., Effects of Diesel Particles with High Concentration Nanoparticles on Living Body, *Transactions of Society of Automotive Engineers of Japan Symposium*, No.15-07 (2008.2.12), pp. 4-7.
- (6) Ishihara, M and Nishimura, Y., "Honeycomb filter for clarifying exhaust gas and Method for manufacture thereof" Japanese patent Disclosure 2004-154768 (2004)
- (7) Kubo, T. et al., Particle Filtration Mechanism in Diesel Particulate Filter, *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol. 72, No.721 (2006-9), pp. 21-26.
- (8) Tsuruta, T. and Hanamura, K., Observation of PM trapping and DPF Regeneration Processes through Cross-sectional Visualization of DPF Walls, *Proceedings of Thermal Engineering Conference*, Vol. 2006 (20061123), pp. 145- 146.
- (9) Tsuruta, T. and Hanamura, K., Visualization Study of PM Trapping and Reaction Phenomena in Micro-structural Pores through Cross Section of DPF Wall, *Transactions of Society of Automotive Engineers of Japan*, No.2007-01-0917 (2007).
- (10) Yamamoto, K. et al., Soot Measurement and Application on Diesel Exhaust Gas Using Laser-Induced Incandescence, *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol. 74, No.738 (2008), pp. 498-504.
- (11) Wirojsakunchai, E. et al., Detailed Diesel Exhaust Particulate Characterization and Real-Time DPF Filtration Efficiency Measurements During PM Filling Process, *Proceedings of 2007 Society of Automotive Engineering Conference*, No.2007-01-0320 (2007).