

特集 コージェライトDPFの新細孔制御技術*

New Technology for Controlling Micro-pores in Cordierite Diesel Particulate Filters

石原 幹男

Mikio ISHIHARA

高木 信行

Nobuyuki TAKAGI

平塚 裕一

Yuichi HIRATSUKA

太田 光紀

Mitsunori OHTA

鈴木 重治

Juji SUZUKI

The DPF (Diesel Particulate Filter), which simultaneously removes PM (Particulate Matter) and NO_x from the exhaust of diesel vehicles, is required in order to achieve high PM filtering efficiency and meet diesel emission regulations as well as to realize low back pressure and reduce power loss. However, these requirements come at the expense of a trade-off between filtering efficiency and low back pressure. Therefore, it is necessary to optimize the pore distribution in the walls of the DPF in order to satisfy both characteristics. This paper will explain how optimized control of pore distribution enables both high PM filtering efficiency and low back pressure.

Key words : Particulate trap, Catalyst, Ceramic, Controlling micro-pore, Diesel Particulate Filter

1. はじめに

近年燃費、効率の面からディーゼル車市場が急速に拡大してきており、特に欧州ではその数量増加が著しい状況である。一方、欧州でのディーゼル排出ガス規制は段階的に厳しくなっており、そのためカーメーカーでは排出ガス規制に対応する後処理システムの開発が活発になっている。しかし、ディーゼル車のエミッションはPM（粒子状物質）とNO_xが相反関係にあるところに課題がある。すなわち、エンジン制御によりPMを減少させようとするするとNO_x発生量が増加し、NO_xを減少させようとするするとPM発生量が増加する。そこで、PMとNO_xを同時に浄化できる後処理システムが必要となってきており、各社ともその開発にしのぎを削っている。その中で著者らのカーメーカーはPMとNO_xを同時に浄化するシステムを開発した。

このシステムは、従来のコモンレールシステムをベースにDPF (Fig. 1) をはじめとする基材・触媒・各種センサ等の新技術、構造・構成の最適化から成っている。このシステムで用いられているDPFはコージェライト製であり、高PM捕集率と低圧力損失（以下、圧損）が要求される。しかし、これらの特性は相反関係にある。というのはPM捕集率を高くすると圧損が上昇し、一方圧損を低くすると、PM捕集率が低下するのである。この相反する両特性を満足するには基材壁内の細孔分布を最適化させる必要があるが、著者らはこの細孔分布を最適制御し、高PM捕集率と圧損を達成したので以下報告する。

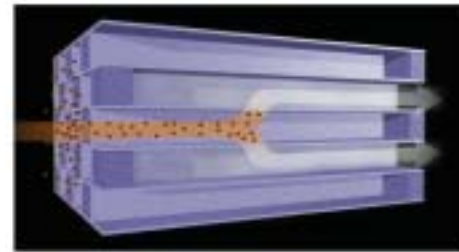


Fig. 1 Diesel particulate filter

2. 細孔制御の考え方

高PM捕集率と圧損を実現する重要なパラメータとして、気孔率と平均細孔径がある。そこで、以下のようなステップで高PM捕集率と圧損を両立するDPFを実現した。

Step1: 気孔率、平均細孔径の決定

- (1) PM捕集率測定評価による平均細孔径上下限決定
- (2) 強度計算による気孔率上限算出
- (3) 圧損計算による気孔率下限算出

Step2: 原料系の適正化による仕様達成

- (1) 原料粒子径変更による気孔率、平均細孔径増加
- (2) 造孔材添加による目標仕様の達成

Step3: 実機による評価

Step4: 改良、評価

次章より各項目について詳細に説明する。

* (社)自動車技術会の了解を得て、「2004年春季大会学術講演会前刷集」No. 23-04, 114より転載

3. 気孔率, 平均細孔径の決定

3.1 PM捕集率測定評価による平均細孔径上下限決定

平均細孔径と気孔率を変化させたサンプルを作製し, PM捕集率の実機評価を行った. 評価結果をFig. 2に示す.

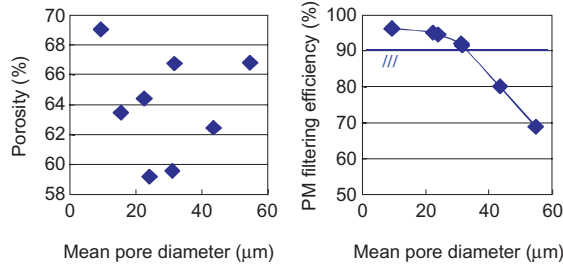


Fig. 2 Behavior of the mean pore diameter vs. PM filtering efficiency

これより, PM捕集率は平均細孔径の影響のみを大きく受けることが分かる. よって, 目標PM捕集率90%以上を達成 (EURO5値クリア) するためには, 平均細孔径が30 μm以下であることが分かった. ここで, 製造上のバラツキ範囲を10 μm以下とすることで下限値を20 μmとした.

3.2 強度計算による気孔率上限算出

下記にDuckworthの強度式を示す. この式に実測値を合わせ込み, 係数を決定し, 可変の気孔率, 平均細孔径を入力した計算結果をFig. 3に示す.

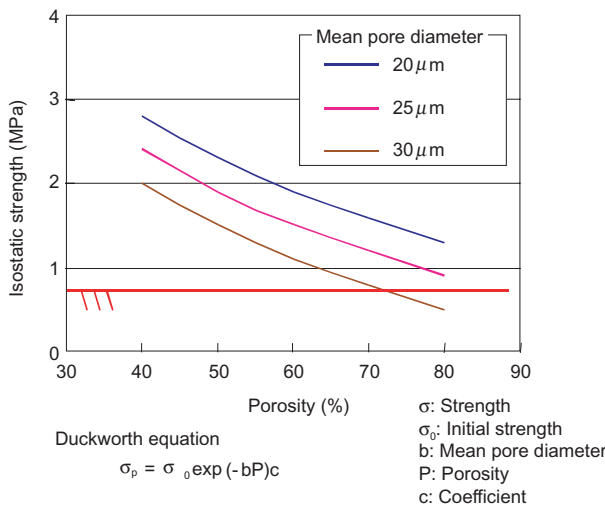


Fig. 3 Behavior of porosity vs. isostatic strength

ここで, 強度下限値はキャニング強度を考慮した値である. 以上の検討結果より, キャニング時に耐える強度を有するためには気孔率70%以下であることが分かった.

3.3 圧損計算による気孔率下限算出

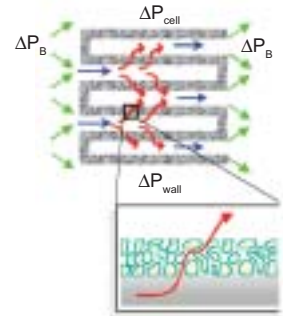
Fig. 4にDPFの圧損式を示す. (Fig. 4: 圧損式, 断面図)

$$\Delta P = \Delta P_B + \Delta P_{cell} + \Delta P_{wall}$$

$$\Delta P_B = \zeta_B \rho \frac{Q^2}{2} = \Delta P - \Delta P_{cell} - \Delta P_{wall}$$

$$\Delta P_{cell} = \zeta_{cell} \rho \frac{Q}{2} = \frac{128\mu QL}{\pi D^4}$$

$$\Delta P_{wall} = \zeta_{wall} \rho \frac{Q}{2} = f(P, b, t) \rho \frac{Q}{2}$$



- ζ : Loss coefficient
- ρ : Density
- Q : Flow rate
- μ : Viscosity
- L : DPF length
- D : DPF diameter
- P : Porosity
- b : Mean pore diameter
- t : Wall thickness

Fig. 4 Back pressure equations of DPF

DPFの圧損は, ボルダ圧損 ΔP_B , セル通過圧損 ΔP_{cell} , セル壁内通過圧損 ΔP_{wall} の三つの圧損和から成っており, その中のセル壁内通過圧損 ΔP_{wall} が気孔率と平均細孔径に依存する. このセル壁圧損式に実測値を合わせ込み係数を決定し求めることで, 残りの圧損が計算できる.

気孔率, 平均細孔径を入力した全圧損 ΔP の計算結果をFig. 5に示す.

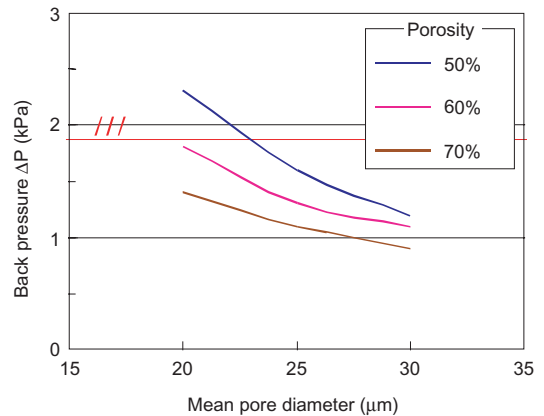


Fig. 5 Behavior of mean pore diameter vs. back pressure

圧損上限値は燃費とエンジン出力の要求より決定されたものである。これより、目標圧損1.8kPa以下を達成するためには、気孔率60%以上が必要であることが分かった。

4. 原料系の適正化による仕様達成

気孔率と平均細孔径を変化させるには、原料種、原料粒子径、原料粒度分布を変更する方法がある。原料種においては、セラミック原料系はコーゼライト組成を保つためにその配合比を変更できない。しかし、それ以外に造孔材を添加すると気孔率が大幅に増し、フィルタとして良好な作用効果をもつ。粒子径は、大きいほど気孔率、平均細孔径が大きくなる。また、粒度分布は、微小部が少なく、粗大部が多いものほど気孔率、平均細孔径が大きくなる。我々はガソリン用セラミックフィルタで実績のあるモノリス原料をベースに目標とする気孔率、平均細孔径を実現することにした。

4.1 原料粒子径変更による気孔率、平均細孔径増大

まず、モノリスを構成するセラミック原料A, B, Cの平均粒子径を増大させ、気孔率、平均細孔径が共に最大となる各原料粒子径を求めた。Fig. 6は原料Aの特性を示す。粒径比はモノリス原料粒子径を1としてその比を示す。原料Aは、粒子径を増大させると気孔率は減少、平均細孔径は増大、熱膨張係数は増大する。気孔率が減少するのは焼成パターンを固定しているために起こっている。というのは、粒子径が大きいほど反応性が悪化し、コーゼライト化が抑制されるからである。よって、熱膨張係数を抑え、気孔率、平均細孔径が両立できる粒子径比を1.7と決定した (Fig. 6)。

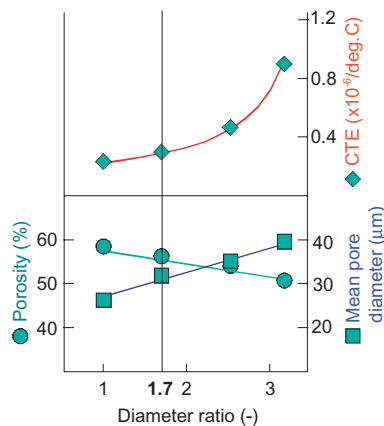


Fig. 6 Characteristics of material A

原料Bは粒子径を増大させると気孔率は減少、平均細孔径は増大、セル壁破壊発生率(不良率)が増加する。よって、不良率を抑え、気孔率、平均細孔径が両立できる粒子径比を1.5と決定した (Fig. 7)。

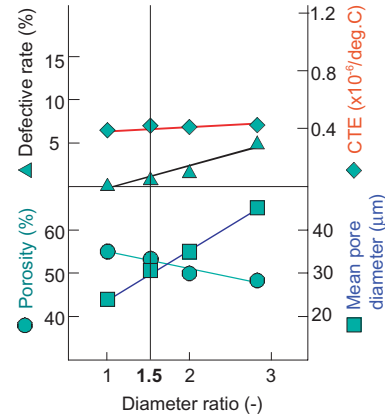


Fig. 7 Characteristics of material B

原料Cは粒子径を増大させると、気孔率は減少、平均細孔径は増大、セル壁破壊発生率(不良率)増加する。よって、不良率を抑え、気孔率、平均細孔径が両立できる粒子径比を2.0と決定した (Fig. 8)。

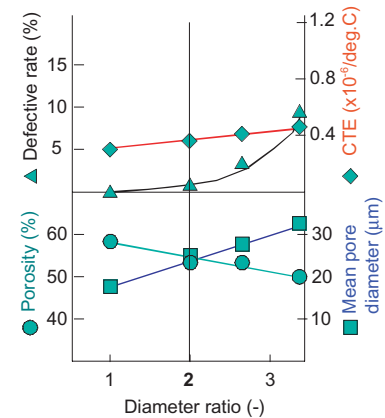


Fig. 8 Characteristics of material C

以上より決定した粒子径を基に試作品を作製し、気孔率と平均細孔径を測定したところ、気孔率50%、平均細孔径25 μmとなった。

4.2 造孔材添加による目標仕様の達成

気孔率が目標を満たしていないため、次に造孔材D, Eを添加した。Fig. 9, Fig. 10に造孔材D, Eの特性を示す。

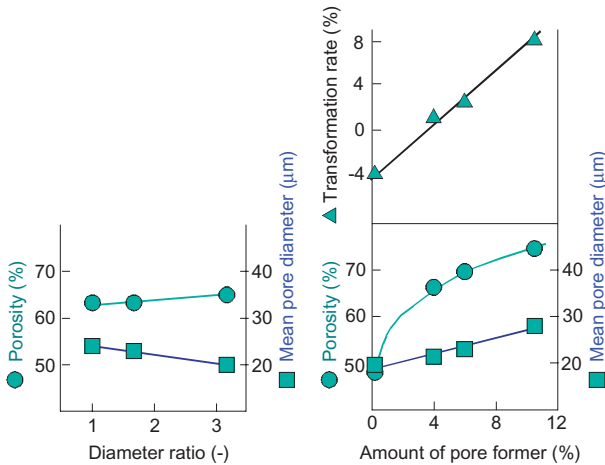


Fig. 9 Characteristics of material D

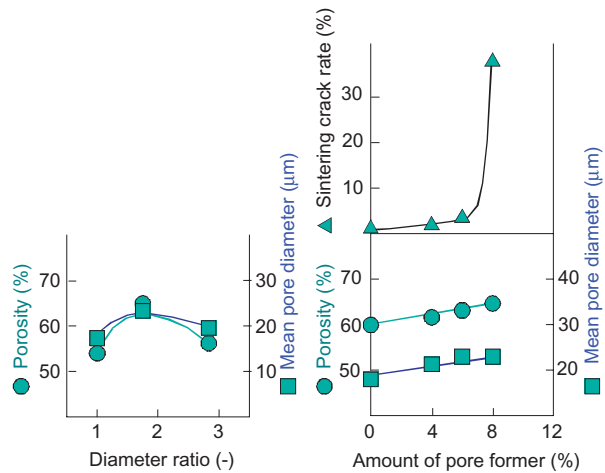


Fig. 10 Characteristics of material E

造孔材Dは、粒子径を増大させると気孔率は増大、平均細孔径は減少する。ただし、両パラメータ共に変化量が小さいので、粒子径比は1のままとした。造孔材Dは、熱を加えることにより膨張するため、基材を成形し、乾燥する際の熱により基材自身も膨張してしまう。つまり、直径寸法の変形が発生する。添加量が4%以上になると変形が増大するため、添加量を2%とした。その結果、造孔材Dのみでは、気孔率が下限値の60%となり、余裕度を増すために、造孔材Eを添加することにした。

造孔材Eは、気孔率と平均細孔径は、粒子径に対する部分でピークを迎えるため、ピークの部分にて粒子径を決定した。造孔材Eは、添加量が6%を超えると焼成時の割れが起りやすくなる特徴があるため、これを抑えるために添加量を4%とした。

以上よりモノリス原料をベースとし、原料粒子径の

最適化と造孔材の添加することで目標とする気孔率、平均細孔径を達成した。

5. 実機による評価

上述検討による試作品をエンジンベンチ評価にてPM捕集率を測定した。壁厚さは共に12mil、セル数は300cpsで触媒が担持されている。評価エンジンは、2.0Lエンジンにて行った。Fig. 11にPM堆積量と捕集率の関係を示す。

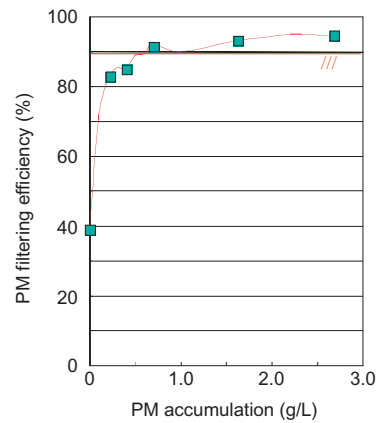


Fig. 11 PM filtering efficiency

PM捕集率は1.0g/L以下での捕集率が目標値より低い結果となった。

6. 改良, 評価

決定した気孔率、平均細孔径では初期PM捕集率が低かったので、圧損を上昇させることなくPM捕集率を向上させる方法を検討した。具体的には、我々は各原料の粒度分布に着目した。PM捕集率を向上させるためには、PMのすり抜けを起こす粗大細孔部を削除する方法が有効であるが、その影響で圧損が上昇する。というのも、粗大細孔低減により平均細孔径自体が小さくなってしまふからである。すなわち、粗大細孔を低減しながら圧損上昇を抑制するには、微小細孔も同時に低減する必要がある。言い換えれば、細孔分布をシャープにする必要がある。

よって各原料A～Eの粒度分布の半値幅を3段階に変化させ、最適値を求めた。半値幅とは粒度分布の50%ピーク高さの幅を意味している。この半値幅を現状のままをd100、平均細孔径を変えずに半値幅を90%にしたものをd90、平均細孔径を変えずに半値幅を

75%にしたものをd75としている。Fig. 12に半値幅の一例を示す。

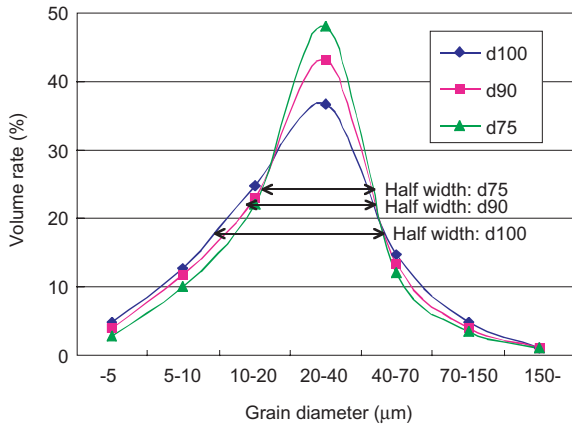


Fig. 12 Half width of DPF materials

Fig. 13は原料Aの半値幅を変化させた粗大，微小細孔の割合を示す。これより，半値幅を減少させるほど，粗大，微小細孔カットに有効であることを確認した (Fig. 12)。

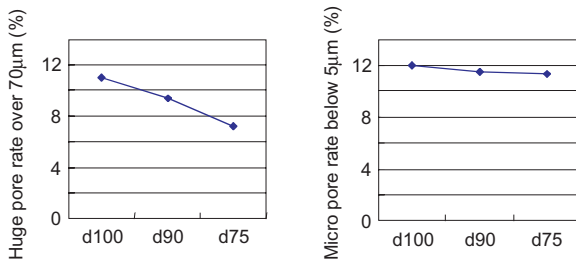


Fig. 13 Behavior of the half width vs. huge and micro pore rate

同様の手法により他原料においても最適な粒度を見出した。Fig. 14に改良後の基材の細孔分布を示す。これより，粗大，微小細孔が減少していることが分かる。

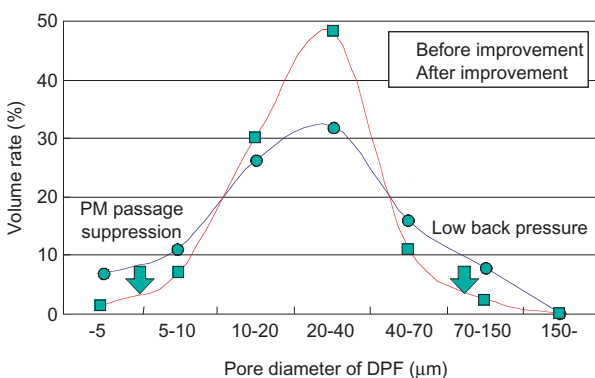


Fig. 14 Pore size distribution after improvement

7. 改良品の評価

Fig. 15, Fig. 16に改良品のエンジンベンチでのPM捕集率とPM堆積圧損の結果を示す。

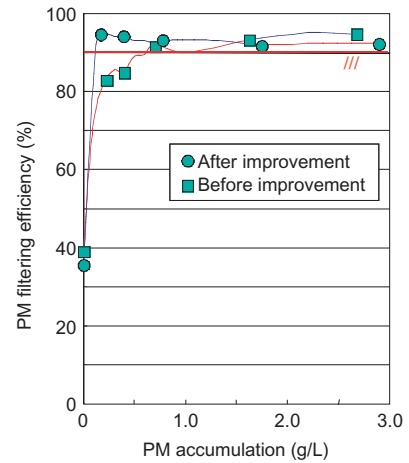


Fig. 15 PM Filtering efficiency after improvement

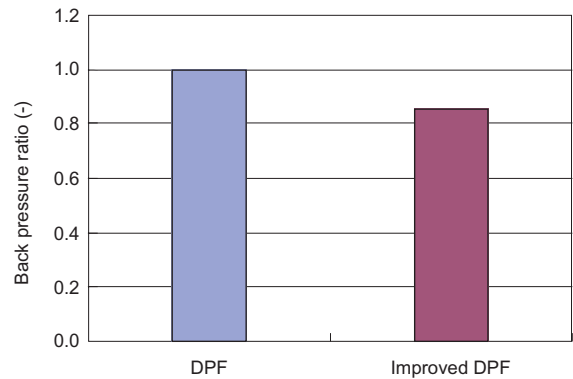


Fig. 16 Back pressure after improvement

評価結果より，改良品は初期捕集率が改善された。これは粗大細孔をカットした効果である。圧損に関しては，PM堆積に伴う圧損上昇が減少した。これは微小細孔をカットした効果である。Fig. 17には改良後のアイソスタティック強度測定結果を示すが，改良前と同等の強度を有していることが分かる。

これにより高PM捕集率と圧損を両立し，キャニング時の強度にも十分耐えうるDPFを開発できた。

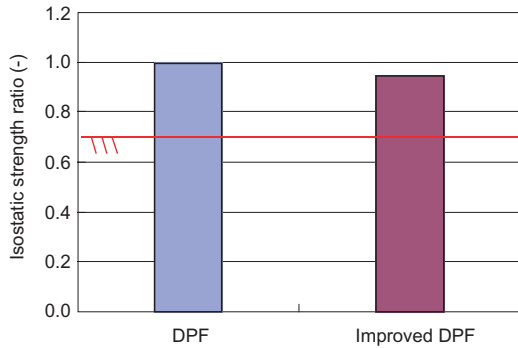


Fig. 17 Isostatic strength after improvement

8. まとめ

基材原料系の粒子径，粒度分布を適正化し，基材の細孔分布の粗大，微小細孔を減少することにより，高PM捕集，圧損を両立するDPF開発に成功した。

<参考文献>

- 1) M. Masoudi, et. al., "Predicting Pressure Drop of Wall-Flow Diesel Particulate Filters Theory and Experiment" SAE paper No. 2000-01-0184
- 2) K. Ohno, et. al., "Characterization of SiC-DPF for Passenger Car" SAE paper No. 2000-01-0185
- 3) A. G. Konstandopoulos, et. al., "Inertial Contributions to the Pressure Drop of Diesel Particulate Filters" SAE paper No. 2001-01-0909
- 4) G. A. Merkel, et. al., "Effects of Microstructure and Cell Geometry on Performance of Cordierite Diesel Particulate Filters" SAE paper No. 2001-01-0193



<著者>



石原 幹男
(いしはら みきお)
セラミック技術部
DPFの開発・設計に従事



平塚 裕一
(ひらつか ゆういち)
DNDE EU Product Engineering
DPFの営業技術に従事



太田 光紀
(おおた みつなり)
セラミック技術部
DPFの開発・設計に従事



鈴木 重治
(すずき じゅうじ)
トヨタ自動車 (株)
第1材料技術部
DPNR触媒の開発に従事



高木 信行
(たかぎ のぶゆき)
トヨタ自動車 (株)
車両技術本部 第3材料技術部
DPNR触媒の開発に従事