

TED Plaza

Diesel Particulate Filter に堆積した Ash 構造に関する研究



中村 圭介

株式会社いすゞ中央研究所
研究第二部 主任研究員
nakamura@iaec.isuzu.co.jp

1. はじめに

ディーゼルエンジンはその熱効率の高さから各種動力源として主に用いられているが、排出ガスに含まれる粒子状物質(Particulate Matter, 以下 PM と略記)を低減するため、それらの排気システムの多くに DPF(Diesel Particulate Filter)が装着されている。図 1 に示されるように、DPF は排出ガスが流入する入口側のセルは下流端、流出する出口側のセルは上流端が交互に目封じされており、排出ガスに含まれる PM は多孔質セラミックの壁を通過する際に捕集される。一定量の PM が堆積した時点で燃焼除去(DPF 再生)が行われるが、この際、DPF に堆積した PM 堆積量は DPF 前後の差圧により推定されている。PM 中に含まれるエンジンオイル等由来の金属成分は DPF 再生後に燃え残り、DPF 内に Ash として堆積する場合がある(Ishizawa, et al., 2009)。Ash の堆積形態としては図 2 に示す様に Wall Ash と Plug Ash の二種類に大別される。これらの堆積形態は DPF の再生方法や頻度により異なるが、DPF の壁表面に堆積する Wall Ash から、Plug 状にセルを閉塞するように堆積する Plug Ash へ Ash の形態が変化することが知られている。Wall / Plug Ash のガス透過性が異なるため、Ash の堆積形態によって PM 堆積時の DPF 前後差圧が変動する。Wall / Plug Ash が堆積した際の PM 堆積に伴う圧力損失の上昇挙動を図 3 に示す。これより DPF 前後差圧に基づく PM 堆積量の予測精度が低下する(Sappok, et al., 2009)ことが分かる。DPF 前後差圧による PM 堆積量が実際よりも多く見積もられた場合には、再生回数が増加し、再生に伴う燃料消費量が増加する。一方、実際よりも少なく見積もられた場合には PM の過剰堆積による再生が DPF 破損の一因となる。PM 堆積量推定精度の低下起因による燃料消費量の悪化や DPF 破損を抑制するためには、Ash が DPF 前後差圧に及ぼす影響を見積もる必要がある。

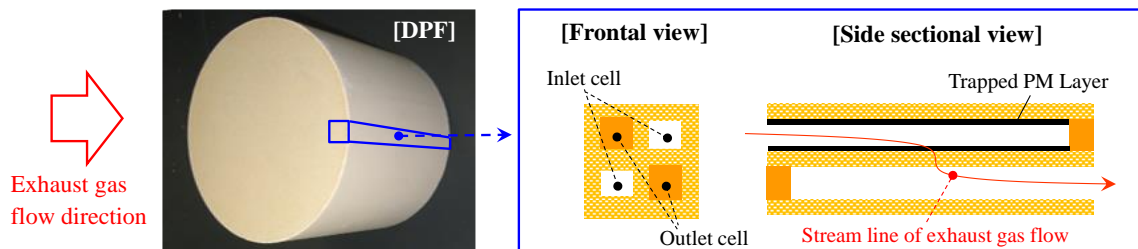


Fig. 1 Schematic image of DPF structure

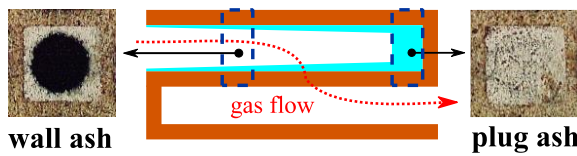


Fig. 2 Schematic image of Ash morphology in DPF

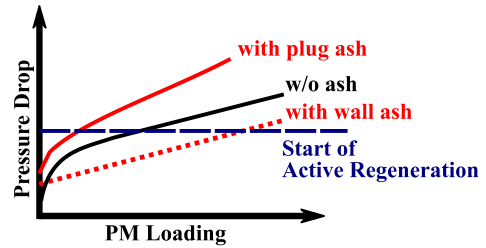


Fig. 3 Conceptual diagram of Wall and Plug Ash accumulation effect for pressure drop of DPF

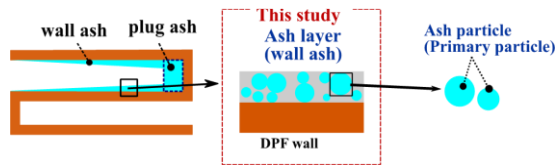


Fig. 4 Cross sectional image of DPF and Ash structures (Plug/Wall Ash, Ash layer, Ash particles)

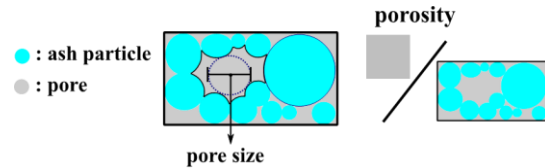


Fig. 5 Schematic image of particle size, pore size, and porosity

Ash の DPF 前後差圧に及ぼす影響を見積もるためには、Plug Ash や Wall Ash のような形態だけでなく、図 4 に示すような Wall Ash 層の構造を把握 (Latella, et al., 2006) する必要があると考えられる。Ash 層の構造とは、図 5 に示す Ash 粒径、空隙率および空隙径分布を指す。しかしながら、これまでの Ash に関する研究では、このような Ash 層の構造と差圧との関係について報告された例はない。

我々は、効率が高く、故障の少ない DPF システムを目指して研究を進めている。DPF 前後差圧による PM 堆積量推定精度を向上させることは燃料消費量の悪化や DPF 破損の抑制につながる。本研究では、市場走行車から回収した Ash が堆積した状態の DPF を対象とし、DPF 流れ方向の部位に対する差圧特性を調べた。さらに Ash 層の気孔構造に関する解析を行い、DPF 再生方法が Ash 層構造に与える影響について考察を試みた。

2. 実験手順

2・1 Ash 堆積 DPF 市場回収品の仕様

本研究では、市場を走行していた Heavy Duty Truck (HD Truck) に搭載された DPF を回収して用いた。供試 DPF の仕様を表 1 に示す。供試 DPF は、洗浄による Ash 除去を約 20 万 km および 40 万 km 走行後に 2 回行っている。供試 DPF を搭載していた車両は一般道の走行が中心であり、平均車速は 30 km/h 程度であった。供試 DPF より採取した Ash 粉末の XRD 分析を行った結果を図 6 に示す。XRD 分析より本報告において用いた市場回収品 DPF に堆積した Ash の主成分は CaSO_4 であり、既報(Sappok, et al., 2010)の Ash 含有成分と同様であった。

2・2 Wall Ash 層の厚さが異なる DPF 各所の前後差圧測定方法

DPF 前後差圧への影響が大きいと考えられる Wall Ash が堆積した部分の DPF 前後差圧の測定を行った。図 7 に示す Wall Ash 形成が確認された上端面から 60, 100 および 160 mm の箇所から Ash の堆積した部分を切り出し、DPF 前後差圧測定に供した。差圧測定用試料は、直径 30 mm × 長さ 40 mm の円柱状に DPF 片を切り出し、DPF と同様の Wall Through 構造となる様に目封じを施して作製された。以後、各供試試料を上流側から Sample1, Sample2 および Sample3 と称する。差圧測定装置の概要図を図 8 に示す。DPF 試料を装置の試料ホルダー部分に装着し、試料の上流側から窒素ガスを 20°C にて流通させ、流量 20~100 L/min の範囲における試料前後の差圧を測定した。流量計は、東京メータ製 QFS-400 (最大レンジ 400 L/min)、差圧センサーは GE 製 UNIK 5000 (測定精度 2.8 Pa) を使用した。

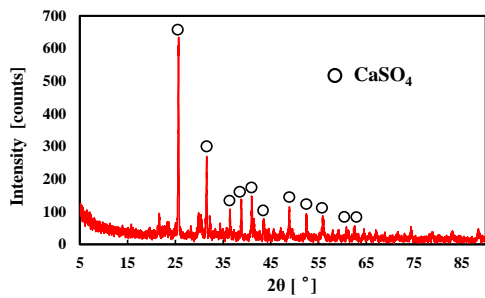


Fig. 6 Ash compositional analysis via XRD

Table 1 Specifications of DPF installed on a Heavy Duty Truck

Engine	Heavy duty (HD) diesel engine
Emission regulation	PNLT
DPF diameter [mm]	266.7 (10.5 inch)
DPF length [mm]	304.8 (12 inch)
DPF substrate	Cordierite (with PGM loading)
cell number [cpsi]	200
wall thickness [mm]	0.3048 (12 mil)
mileage [km]	550,000
DPF cleaning [km]	200,000 and 400,000
Average speed [km/h]	30

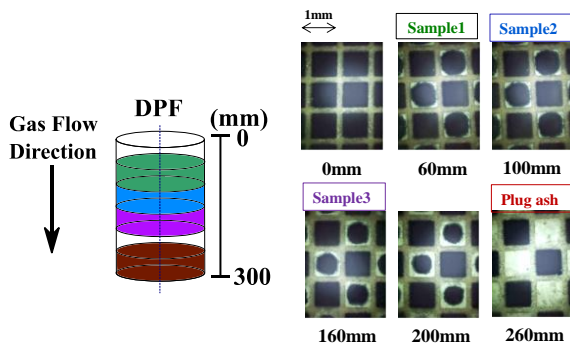


Fig. 7 Optical image of DPF inlet faces at each samples (Sample1, 2, 3, and Plug Ash)

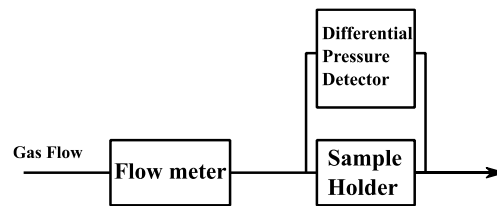


Fig. 8 Schematic layout of the measuring device for DPF pressure drop

2・3 Ash 層の厚さの測定方法

DPF に堆積した Wall Ash 層の厚さは DPF 前後差圧に影響すると予測されるため、2.2 で使用した試料における Wall Ash 層の厚さを測定した。試料に堆積した Ash 層の厚さを測定するため、試料の前端面 5 箇所、後端面 5 箇所、計 10 箇所のセルを光学顕微鏡で観察した。図 9 は直径 30 mm、長さ 40 mm に切り出した試料と光学顕微鏡による観察箇所の模式図を示す。光学顕微鏡を用いた観察により、図 10 のような画像が得られた。得られたセル断面の画像中、図 10 で示すようなセルの角 (Corner) および辺 (Side) 各 4 箇所、合計 8 箇所の線分の長さを測定して、8 箇所の線分の長さの平均値をそのセルに堆積した Wall Ash 層の平均の厚さとした。

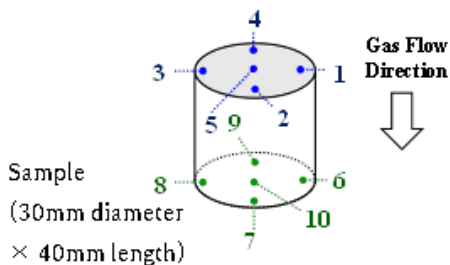


Fig. 9 Observation points at sample inlet and outlet face

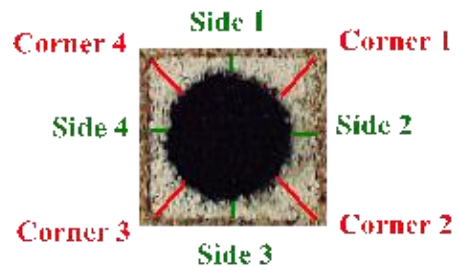


Fig. 10 Measurement points of Ash layer thickness at a DPF channel

2・4 Ash 層構造の解析方法

DPFはその構造から、Ashが堆積したDPF壁をガスが通過するため、Ash層の構造はDPF前後差圧に影響すると考えられる。そこでAsh層の粒径分布、空隙率、空隙径分布を算出し、各所のAsh層の構造解析を行った。既報(Merkel, et al., 2001)におけるAsh層の構造解析では、Ash層の空隙率算出過程において構成成分の密度を仮定している。さらに、空隙径分布は導出できていない。ゆえに、DPFに堆積した状態でのAsh層構造は不明であった。

本研究では、走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope, 以下 SEM と略記) を用いて DPF に堆積した Ash 層を撮影した SEM 画像を解析する事により、Ash 層の粒径分布、平均空隙率、および空隙径分布の算出を試みた。Ash 層構造解析用試料は、SEM 前後差圧測定用の試料 (Sample1, 2, および 3) 近傍および最下流の Plug Ash 堆積部 (Plug Ash と称する) から、図 11 の左の図に示すようなセル断面を含む任意の部分をそれぞれ約 5 mm 角に切断することで作製された。Ash 層は非常に脆く、通常の研磨手法を用いた場合、物理的な力により構造が変化すると考えられる。そこで本研究では DPF + Ash 片の断面をイオンビーム (日立ハイテクノロジーズ製 IM-4000PLUS) を用いて研磨を行い、構造を破壊しない状態の Ash 層の SEM 像を測定した。図 11 の左側、枠で強調させた DPF 壁と Ash の両方を含む箇所を SEM で観察した。図 11 の右側に得られた SEM 像の一例を示す。各試料に堆積した Ash 層の粒径分布、平均空隙率、および空隙径分布は断面 SEM 画像の画像解析により導出した。画像解析は画像解析ソフト ImageJ (Schneider, et al., 2012)を使用した。

Ash 層の粒径分布は、SEM 像 (10000 倍) における Ash 粒子を識別してランダムに色をつけた解析用画像を作成し、解析用画像において Ash 粒子の面積分率のヒストグラムを作成することで算出した。図 13 には SEM 画像と解析した画像の一例を示す。Ash 層の平均空隙率は、図 13 の左に示す SEM 像 (5000 倍) を、ImageJ により図 13 の中央に示す 2 値化像に変換し、2 値化像における空隙部分の面積割合より算出した。ここで、2 値化像とは、濃淡のある画像の明るさ(輝度)に閾値を設定し、閾値より明るい箇所と暗い箇所を白と黒の 2 色に塗り分けるよう変換した画像を指す。本研究では、撮影された SEM 像を目視しながら研磨面にある Ash 粒子と空隙を識別し、Ash と空隙の境界が SEM 像と同様になるよう、SEM 像毎に手動で輝度の閾値を決定し、Ash 粒子を黒、空隙を白で表すように変換処理を行った。断面 Ash 層の空隙径分布は、図 13 中央の平均空隙率算出時に使用した SEM 像の 2 値化像より、図 13 右に示すように解析用画像における Ash 層空隙に内接する円の直径を空隙径と定義し、画像中の空隙径を横軸にヒストグラムを作成すること

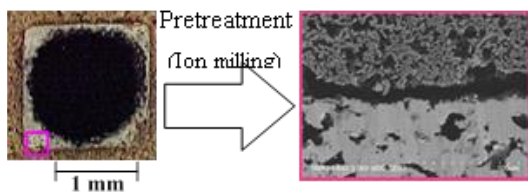


Fig. 11 SEM measuring point and SEM image of Ash and DPF wall

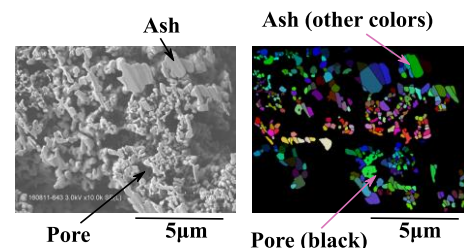


Fig. 12 SEM image (×10000) and analysis image to calculate Ash particle size

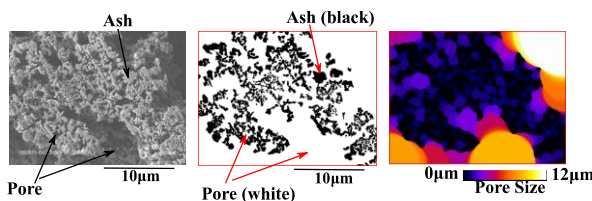


Fig. 13 SEM image (×5000) and analysis image to calculate porosity and pore size in Ash layer

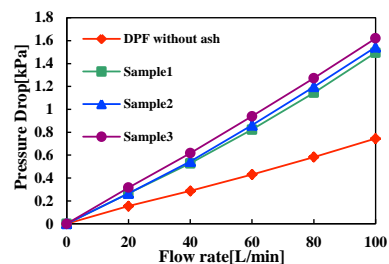


Fig. 14 DPF pressure drop with and without Ash at each Nitrogen gas flow rate

で算出した。粒子径，空隙率，空隙径算出の際，研磨面の奥や画像の境界部にある粒子および空隙は，粒子および空隙の正確な境界が不明瞭なため解析対象から除外した。

3. 実験結果および考察

3・1 Wall Ash 堆積試料の前後差圧測定結果

窒素ガス流量に対する各試料の前後差圧測定値の変化を図 14 に示す。Ash 堆積のない試料と比較して，Wall Ash が堆積した試料の前後差圧は高く，差圧の値は Sample1, Sample2, Sample3 の順で高くなり，Ash 層厚さの大きい下流の試料ほど試料の前後差圧が高い傾向が見られた。

3・2 Wall Ash 層の厚さ測定結果

各試料の前端面 5 セルおよび後端面 5 セルの計 10 セルそれぞれにおいて，セルあたり 8 箇所の Ash 層厚さを測定し，セルごとの Ash 層平均厚さを算出した。測定結果の一例として，Sample2 の各セルにおける Ash 層平均厚さ(前端面: 図 15, 後端面: 図 16) を示す。エラーバーは各セル内の Wall Ash 層厚さのバラつきを示す。図 15 に示すように，Ash の堆積が確認できず Ash 層の厚さが測定できなかった箇所が存在した(前端面セル 2 参照)。一方で，下流の Sample3 の後端面には，セル 5 箇所中 3 箇所に Plug Ash が堆積していた(図 17 参照)。図 15 と 16 より，同一試料においては下流ほど Ash 層の厚さが大きくなる傾向がある事がわかった。一方で，図 15, 16, および 17 より，各セルの Ash 堆積状態は同一試料においても異なっており，Ash の堆積状態は不均一である事がわかった。

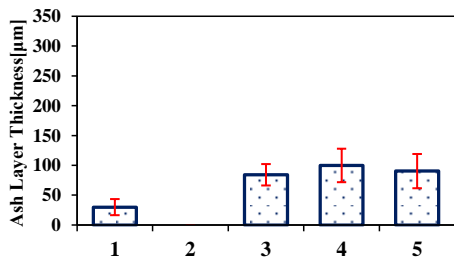


Fig. 15 Average Ash layer thickness of each cells (Sample2, Inlet)

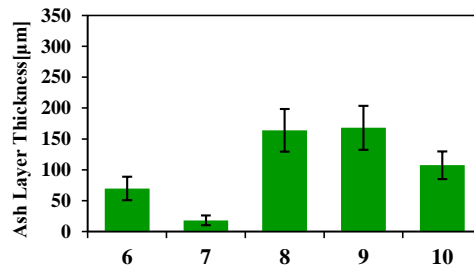


Fig. 16 Average Ash layer thickness of each cells (Sample2, Outlet)

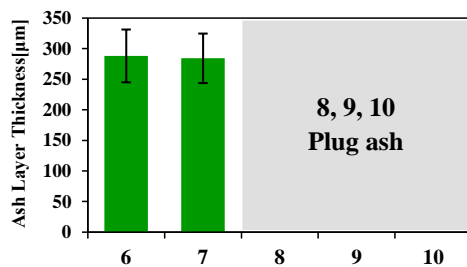


Fig.17 Average Ash layer thickness of each cells (Sample3, Outlet)

Table 2 Particle size, porosity and pore size of Ash layer calculated by SEM image analysis

	*Particle size [μm]	Porosity [%]	*Pore size [μm]
Sample1	0.48	74	1.9
Sample2	0.45	75	2.1
Sample3	0.36	70	1.4
Plug Ash	0.39	60	1.4

*Median

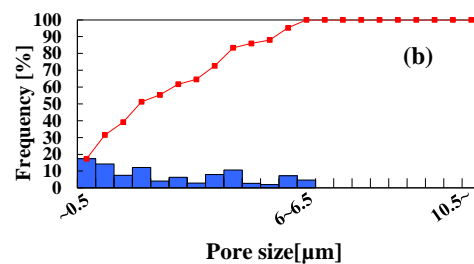
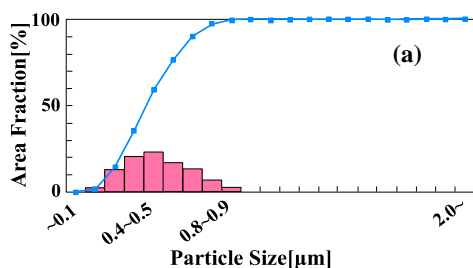


Fig.18 (a) Ash particle size distribution, (b) Pore size distribution calculated by SEM image analysis (Sample 1)

Table 3 Ash particle size reported by previous and this study

	Particle size	Ash loading process
SAE Technical Paper 2001-01-0190	0.1–0.5 μm (Primary) –50μm (Agglomerates)	Field (HD truck)
SAE Technical Paper 2005-01-3716	0.4–1 μm (Primary) 8–100 μm (Agglomerates)	Accelerated (HD truck)
SAE Technical Paper 2006-01-0874	About 1 μm	Accelerated (Burner)
This study*	0.36–0.48 μm	Field (HD truck)

3・3 Ash 層構造解析結果

図 18 は、SEM 画像解析より得られた粒径分布および空隙径分布の一例として、Sample 1 の粒径分布と空隙径分布を示す。最大粒径および空隙径には試料ごとにばらつきがあるものの、粒径および空隙径分布の形状は試料によらずほぼ同じで、粒径および空隙径分布のピーク位置は図 18 と比較して大きく変わらなかった。また、表 2 は、SEM 画像解析で得られた各試料の Ash 層の構造 (粒径の中央値、平均空隙率、空隙径の中央値) を示す。表 2 より、Ash 層の粒径、空隙率および空隙径はいずれも DPF 下流の試料ほど小さくなる傾向が確認された。

3・4 市場回収 DPF の Ash 粒径

表 3 に、SEM 画像解析より得られた市場回収品に堆積した Ash 粒径と既報(Merkel, et al., 2001), (McGeehan, et al., 2005), (Konstandopoulos, et al., 2006)の Ash 粒径の比較を示す。表 3 に示すような Ash 加速堆積試験および本研究と同様に HD truck を使用した実路走行試験により得られた既報の Ash 粒径と比較すると、本測定結果で得られた Ash 粒子径は、既報の Ash 一次粒子径と同程度であると考えられる。ただし、本研究では SEM 画像解析を用いて Ash 粒径を算出しているため、SEM の画像で確認できる範囲より大きな粒径(10 μm 以上) を持つ Ash 粒子は解析対象とされていない。そのため、凝集粒子については、粒子径の評価が行われていない。また、二次元の構造情報に基づく解析であり、三次元的な構造情報は得られない。今後、複数の試料および視野で Ash 層の SEM 観察および構造解析を行い、Ash 粒径の取りうる値の範囲や凝集粒子の存在有無、存在程度を確認する必要がある。

3・5 DPF 内 Ash 空隙率の変化と DPF 再生方法

既報(Sappok, et al., 2014c)では、Ash を含む PM 層が強制再生により DPF 下流へ輸送されると言われている。DPF の下流で PM 層の PM が酸化、除去されることにより、より密度の高い Plug Ash 層が形成すると考えられている。本研究で得られた DPF 各所の空隙率は、DPF 下流ほど小さくなっており、既報と同様の現象が起こっていると推測される。また、供試 DPF を搭載していた車両の平均車速等の履歴からも、供試 DPF は強制再生の影響を強く受けていたと考えられる。

4. まとめ

本研究では、市場回収された DPF を用いて、Ash 堆積時の DPF 前後差圧と Ash 層構造(粒径、空隙率および空隙径)を調査し、以下の結果を得た。

- (1)Wall Ash のみが DPF に堆積しているとき、DPF の前後差圧は DPF 上流から下流にかけて増加していた。
- (2)DPF のセルにおいて、Ash は不均一な堆積分布を持っていた。
- (3)本報告の手法(SEM 画像解析)を用いることにより、実際の Ash 層構造に基づいた構造情報を得ることができる。
- (4)Ash の粒径、空隙率および空隙径は、いずれも DPF の上流から下流にかけて小さくなっていった。

今後の課題として、サンプル数を増やして同様に Ash 層の構造解析を行い、搭載車両の車速や DPF 再生頻度など DPF の使用状況と Ash 層構造から、Ash 堆積時の DPF 前後差圧をモデルにより予測することが挙げられる。構築されたモデルは DPF システムをはじめとする排出ガス後処理システムの開発に有効なツールとなり、今後もこれらの構築を継続して行っていく。

本内容は自動車技術会論文集 Vol.49, No.6, p.1187-1192(2018)に掲載されたものを承諾を得た上で加筆修正の上報告するものである。

文献

- Ishizawa, T., Yamane, H., Satoh, H., Sekiguchi, K., Arai, M., Yoshimoto, N. and Inoue, T., Investigation into Ash Loading and Its Relationship to DPF Regeneration Methods, SAE Technical Paper, 2009-01-2882 (2009).
- Konstandopoulos, A. G., Zarvalis, D., Kladopoulou, E. and Dolios, I., A Multi-Reactor Assembly for Screening of Diesel Particulate Filters, SAE Technical Paper, 2006-01-0874 (2006).
- Latella, B. A., Henkel, L. and Mehrrens, E. G., Permeability and high temperature strength of porous mullite-alumina ceramics for hot gas filtration, Journal of materials science, Vol.41, No.2, p.423-430 (2006).
- McGeehan, J. A. et al., On The Road to 2010 Emissions: Field Test Results and Analysis with DPF-SCR System and Ultra Low Sulfur Diesel Fuel, SAE Technical Paper, 2005-01-3716 (2005).
- Merkel, G. A., Cutler, W. A. and Warren, C. J., Thermal Durability of Wall-Flow Ceramic Diesel Particulate Filters, SAE Technical Paper, 2001-01-0190 (2001).
- Sappok, A., Santlago, M., Vlanna, T. and Wang, V., Characteristics and Effects of Ash Accumulation on Diesel Particulate Filter Performance: Rapidly Aged and Field Aged Results, SAE Technical Paper, 2009-01-1086 (2009a).
- Sappok, A. et al., Characteristics and Effects of Lubricant Additive Chemistry on Ash Properties Impacting Diesel Particulate Filter Service Life, SAE Technical Paper, 2010-01-1213 (2010b).
- Sappok, A., Wang, Y., Wang, R., Kamp, C. et al., Theoretical and Experimental Analysis of Ash Accumulation and Mobility in Ceramic Exhaust Particulate Filters and Potential for Improved Ash Management, SAE Technical Paper, 2014-01-1517 (2014c).
- Schneider, C. A., Rasband, W. S. and Kevin, W. E., NIH Image to ImageJ: 25 years of image analysis, Nature methods Vol. 9, No. 7, p. 671-675 (2012).