

会報順番番号V-2

化学部門  
イビデンエンジニアリング株式会社  
環境技術事業部  
事業部長 大矢 智一



ススを速く燃やすには？ ～触媒化 DPF の反応速度論～

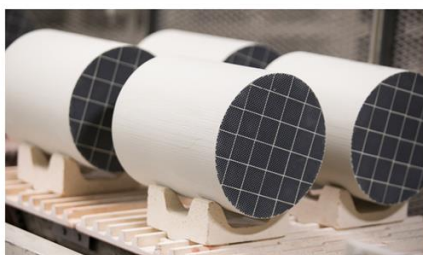
はじめに

2003年にイビデン株式会社に入社し、3年目となる2006年から2010年までの4年間、ギリシャ共和国に赴任した。ギリシャで支店/研究所を立ち上げ、触媒化DPF<sup>\*</sup>の共同研究をギリシャ人技術者で行う機会をいただいた。今回は、触媒化DPFにおけるススの酸化促進について得られた知見を紹介する。

<sup>\*</sup>DPF：ディーゼルパーティキュレートフィルター

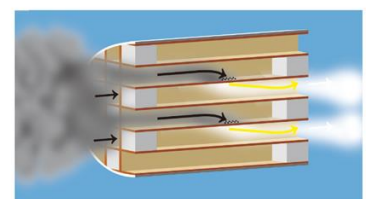
DPF とスス酸化触媒について

DPFは、ディーゼルエンジンの排気ラインに配置される(図1)。ディーゼル車から排出されるPM(粒子状物質：主成分スス)が、排気ガスとともに大気中に放出されないよう、ススをろ過する役割を担っている。しかし、フィルター内に捕捉したススが堆積してしまうため、間欠的にDPFの温度を650℃近くまで上げて、ススを酸化除去する必要がある。温度を上げるために、燃料を余分に消費する。燃費悪化を最小限にするため、少しでも低温で、あるいは短時間で酸化させることが求められる。その手段として、スス酸化触媒をDPF内にコートした触媒化DPFや、触媒成分を燃料に添加してススを燃えやすくするシステムが採用されている。



DPFが使われている場所

エンジンとマフラーの間に装着し、ディーゼルエンジンの燃焼ガスに含まれるSPM(浮遊粒子状物質)を除去します。



DPFの浄化の仕組み

DPFは、隣り合う通気孔が交互に閉じられたハニカム構造。しかも排ガスの入り口側と出口側では別の孔が閉じられているため、排ガスはSICのろ過によって浄化され、クリーンなガスとなって排出されます。

図1 DPF 概要(出展：イビデン株式会社ホームページ<sup>1)</sup>)

### 触媒化 DPF におけるススと触媒の位置関係

触媒化 DPF では、多孔質なる過壁上に触媒がコートされている。DPF 中のススは、フィルター壁に沿って層状に堆積する（図 2）<sup>2</sup>。よって、触媒化 DPF では、触媒とススが直接接触する部分（Layer I）と、触媒とススが接触しない部分（Layer II）が存在する（図 3）。これを二層モデルと呼ぶ。式(1)は Layer I、式(2)は Layer II におけるススの酸化反応速度式である。ここで、 $m$  はスス質量、 $t$  は時間、 $k_{cat}$ 、 $k_{th}$  は、それぞれ触媒酸化の速度定数、熱酸化の速度定数である。Layer I では、ススの酸化は、触媒により酸化する割合（ $\beta$ ）と、熱により酸化する割合（ $1-\beta$ ）からなる。Layer II は、はじめのうちは触媒と接触しないため、熱による酸化のみが起こる。Layer I でススが酸化して消失した後、Layer II から Layer I に移動して、触媒で酸化する割合（ $\xi$ ）を想定している。スス層が下に落ちて、消失する挙動は、ゲーム“ぷよぷよ”に似ていることから、ギリシャ人技術者との間では“ぷよぷよモデル”と呼んでいた。

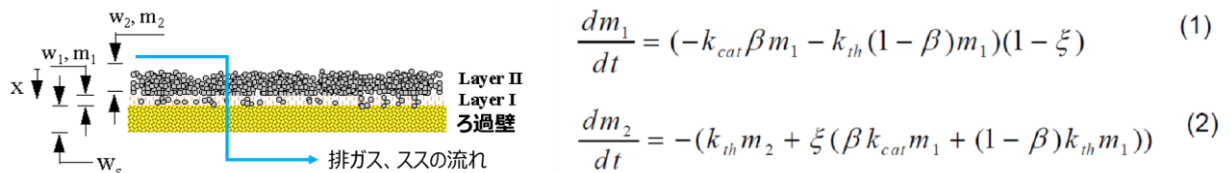


図 3 二層モデルとその反応速度式

図 4 に温度に対するススの酸化挙動を示す。実際のディーゼルススを、触媒化されたフィルターに捕集、堆積させた。排ガス流量、ススの量、温度、酸素濃度を制御し、酸化によって発生する CO 及び CO<sub>2</sub> 量から算出したスス酸化速度結果と、二層モデルのシミュレーション結果を合わせて示す。ススは、異なる温度領域で 2 つの大きな酸化が起きていることがわかる。また、シミュレーション結果から、低温側の酸化が、触媒と接触している Layer I によるもの、高温側が Layer II のものであることがわかる。Layer II においても 450℃～500℃あたりで酸化が起きていることから、触媒による酸化が起こり、実際に“ぷよぷよ”現象が起きていることが示唆された。

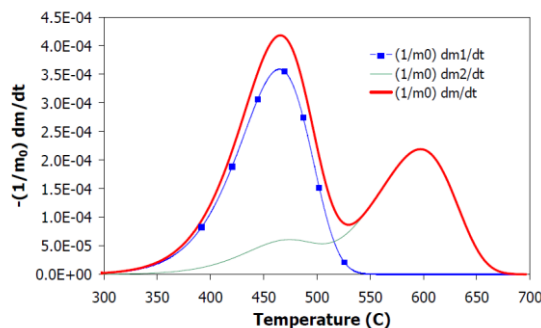


図 4 触媒化 DPF のスス酸化燃焼挙動と二層モデルフィッティング

### “ぷよぷよ”現象を起こすには？

ポイントは、Layer Iで触媒による酸化割合をいかに増やすかであり、それはスス/触媒の接触・接点をいかに増やすかということである。一般に、スス酸化触媒の探索を実験室的に行うときには、様々な触媒組成で、ススと触媒を乳鉢で混ぜてほぼ理想的な接触状況を作って行われる（タイトコンタクトという）。そうすると、かなり低温でススを酸化させることができる。しかし、実際の触媒化 DPF 内では、これほどのスス/触媒接触状況を作り出すことができないため、触媒の性能をフルに発揮することは困難である。

そこで、ギリシャ技術者が開発した触媒コーティング手法（Advanced coating）を採用し、触媒コーティングの微構造を変えた。図5にその微構造の効果を示す。横軸は、初期スス量に対する酸化割合で、縦軸は酸化速度である。従来型のコートは、反応初期だけが活性ですぐに酸化が起こらなくなるのに対して、Advanced coating は、ススの酸化速度が高いまま維持されていることから、“ぷよぷよ現象”が継続して起こっていることを示している。

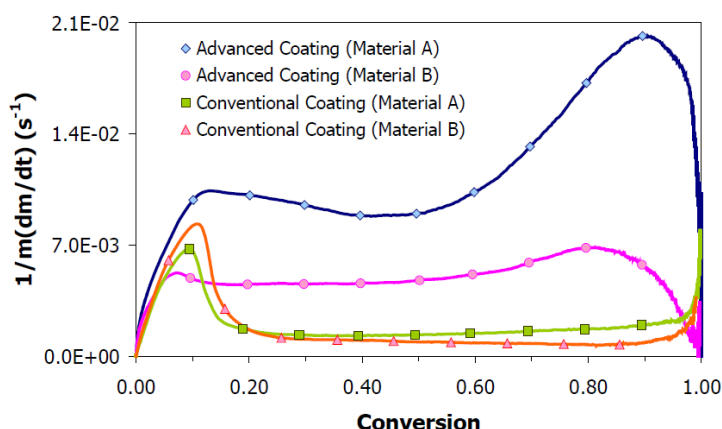


図5 触媒コート微構造の効果（620℃）

### まとめ

触媒化 DPF では、触媒成分だけでなく、あるいは触媒成分よりも、そのコートの微構造が重要である。ススと触媒の接触を高める形状とすることで、スス酸化速度を高められることを示した。ススの酸化挙動について、アレニウスプロットを用いた理解にとどまっていたが、ギリシャ人技術者の指導の下、触媒化 DPF 内のススと触媒との位置関係まで考えることにより、より詳細に現象を理解することができた。

1. イビデン株式会社ホームページ  
<https://www.ibiden.co.jp/product/ceramics/merchandise/dpf/>
2. Konstandopoulos A.G., Kostoglou M., Lorentzou S., Pagkoura C., Papaioannou E., Ohno K., Ogyu K., Oya T., "Soot oxidation kinetics in diesel particulate filters", SAE Tech. Paper No. 2007-01-1129, 2007.