ハニカム内に発生させた非熱プラズマによる
ディーゼル微粒子フィルタの低温燃焼再生*大久保 雅章^{*1}, 三 輪 真 一^{*2}
黒 木 智 之^{*1}, 山 本 俊 昭^{*1}Low Temperature Soot Incineration of Diesel Particulate Filter
Using Honeycomb Nonthermal PlasmaMasaaki OKUBO^{*3}, Shinichi MIWA,
Tomoyuki KUROKI and Toshiaki YAMAMOTO^{*3} Department of Energy Systems Engineering, Osaka Prefecture University,
1-1 Gakuen-cho, Sakai-shi, Osaka, 599-8531 Japan

The regulation for the automotive diesel engine emission becomes severe every year, and more effective post-processing technology is desired especially on particulate matter (PM), such as carbon soots. Although the use of ceramic diesel particulate filter (DPF) is now a leading technology for PM removal, the problem exists on the soot incineration or regeneration at low temperature, especially at the cold start. In the present study, a regeneration of DPF was investigated using the low temperature atmospheric pressure nonthermal plasma. The method is to use the NO₂ and radicals induced by the plasma reactor to burn carbon soots deposited on DPF. First, three types of DPF plasma reactors were constructed and the performance on the conversion of NO to NO₂ was evaluated on various conditions. Regeneration experiment was further carried out using a DPF honeycomb nonthermal plasma reactor. As a result, it was confirmed that the pressure drop decreased only when the plasma was turned on and the regeneration temperature of DPF was less than 200°C.

Key Words: Diesel Engine, Plasma, Chemical Reaction, Particulate Matter, Soot, NO_x, Honeycomb, Nonthermal Plasma, DPF, Regeneration

1. 緒 言

ディーゼルエンジンの排ガス浄化規制は、年々厳しくなり、燃焼改善⁽¹⁾などのエンジン側での改良だけでは限界に近づきつつある。そのため、触媒^{(2),(3)}あるいは非熱プラズマ⁽⁴⁾⁻⁽¹⁰⁾を利用した窒素酸化物(NO_x)に代表される有害ガス状物質に対する後処理技術が提案、検討されているが、すすなどの有害粒子状物質(PM)に関しても効果的な後処理技術が必要とされている。

現在、すすの捕集にはSiCやコーゼライトなどを材質とする図1に示すようなDPF(Diesel Particulate Filter)が用いられているが⁽¹¹⁾⁻⁽¹⁴⁾、すす捕集後のフィルタの再生に関して問題を抱えている。一般的な再生法は、図2(a)に示す電気ヒータやアフターバーナによる酸素中での直接燃焼方式であるが、約600°C以上という高温を必要とし、DPFの溶損やエンジン始動時、エンジンプレーキ作動時の低温再生に問題がある。

Fig. 1 Structure of the Diesel particulate filter (DPF)

最近、注目されている方法は図2(b)に示す排ガス中のNO₂を用いた再生燃焼方式である⁽¹³⁾⁻⁽¹⁵⁾。NO₂存在下では200°Cの低温から、すすの燃焼が始まる。これを利用して、酸化触媒で、排ガスNO_xの大部分を占めるNOをNO₂に酸化し、NO₂が後段のDPFで捕集されたPMを燃焼する。しかし酸化触媒活性化のため温度300~400°Cの高温を必要とし、現状では効率も最大50%程度である。

さらに最近、図2(c)に示す非熱プラズマを使用する新しい再生方法が提案された⁽¹⁶⁾⁻⁽¹⁸⁾。この方法では図2(b)の酸化触媒は、低温で優れたNO酸化特性^{(6),(7)}を示す非

* 原稿受付 2002年12月24日。

^{*1} 正員、大阪府立大学大学院工学研究科(〒599-8531 堺市学園町1-1)。^{*2} 日本ガイシ(株)セラミックス事業部(〒467-8530 名古屋市瑞穂区須田町2-56)。

E-mail: mokubo@energy.osakafu-u.ac.jp

Fig. 2 Methods of DPF regeneration

熱プラズマリアクタ⁽¹⁹⁾⁻⁽²¹⁾に置換される。前報^{(17),(18)}では発生した NO_2 と酸素ラジカルにより、DPF に捕集された、すすの 300°C 以下の低温での燃焼除去を確認した。

本研究では、図 2(c)の方法を一步進め、DPF のハニカム内部で非熱プラズマを形成し、再生を行う図 2(d)の方法を提案する。この方法は DPF 非熱プラズマリアクタの使用を特徴とする。成功すれば、DPF とその再生用プラズマリアクタを一体化できるコンパクトなシステムが構築できる。初めに 3 種類の DPF プラズマリアクタを試作し、半導体式極短パルス高電圧電源を用いて NO 酸化性能を評価した。次に最も性能の高い形式の DPF リアクタを用いて再生実験を行い、すすの蓄積した DPF が 200°C の低温でプラズマにより再生燃焼することを確認した。

2. 実験装置と実験方法

2.1 DPF プラズマリアクタの性能評価

2.1.1 DPF プラズマリアクタ NO 酸化と PM 除去を同時に行う目的で図 3 に示す 3 種類の、製品として使用されている DPF を用いたプラズマリアクタを製作した。

図 3(a)は Needle to SiC DPF-type プラズマリアクタである。これを Type A と名付ける。アクリル流路に SiC を材質とする導電性の高い DPF を挿入し、アース電極とした。DPF から電極間距離 $L=15\text{ mm}$ または 20 mm 離れた位置において、多孔性アクリル板に固定した長さ 30 mm 、直径 2 mm の鉄針 4 本が等間隔に正電極として取り付け

Fig. 3 Three types of nonthermal plasma reactors for NO oxidation using DPFs

られている。鉄針と DPF を半導体式高電圧パルス電源と接続し、その間で非平衡プラズマを発生させる。DPF の寸法は幅×高×長= $33\text{ mm} \times 33\text{ mm} \times 152\text{ mm}$ 、セル密度 $200/\text{inch}^2=200\text{ cpsi}$ 、壁厚= 12 mil である。

図 3(b)は流れに垂直な 2 枚の金属網を電極とするリアクタの概略図である。これを Type B と名付ける。抵抗率($\approx 10^{12}\ \Omega \cdot \text{cm}$)の高いコージェライト製 DPF (100 cpsi , 17 mil)の両端面に電極としてステンレス網を貼り付けてある。アース側のメッシュはステンレス網(メッシュサイズ $2.6 \times 2.6\text{ mm}$)にテフロン系の絶縁物質を溶射コーティングしたバリア式のものである(直流連続耐圧約 20 kV)。上流電極に正の高電圧を印加し、下流電極を接地した。DPF の寸法は幅×高= $48\text{ mm} \times 48\text{ mm}$ であり、長さ、すなわち電極間距離は $L=15\text{ mm}$ 、または 26 mm である。

図 3(c)は流れに平行な 2 枚の電極により、コージェライト DPF (100 cpsi , 17 mil)を挟んだ型のプラズマリアクタの概略図である。これを Type C と名付ける。DPF の

Fig. 4 Schematics of the experimental setup for NO oxidation using DPFs

Fig. 5 Nonthermal plasma DPF

寸法は幅×長=48 mm×152 mmである。高さあるいは電極間距離は $L=24$ mm または $L=48$ mm とした。

2・1・2 DPF プラズマリアクタ評価の実験装置 装置概略を図4に示す。外部空気をコンプレッサで圧縮し、フィルタで微粒子、乾燥剤で水分を除去し、乾燥空気(相対湿度 10%, 20°C)にする。そして、その乾燥空気と NO ボンベからの NO ガスとをマスフローコントローラを用いて流量を調節し、所定の濃度と流量を得た模擬排ガスを作る。得られた模擬ガスを室温でプラズマリアクタに通し、高電圧パルス電源で電圧を印加してプラズマ処理を行った後、オゾン除去用ヒータに通して、NO, NO_x, CO, N₂O の濃度をガス分析計(堀場製作所製 PG-235, VIA-510)を用いて測定し、屋外へ排出した。

高電圧パルス電源は、スイッチング素子として SI サイリスタを用いたものを使用した(日本ガイシ製、電圧立ち上がり 100 ns, パルス幅 600 ns)。定格負荷に最大約 45 kV 電圧を印加することが可能である。最大周波数は 500 Hz である。印加電圧と電流をオシロスコープ(横河電機, DL1740-1GS/s)と高電圧プローブと電流プローブ(ソニーテクトロニクス, P6015A, P6021)を用いて測定した。放電電力は、オシロスコープで電圧と電流波形の積の波形の正の面積にパルス周波数を掛けることで求めた。

2・2 ハニカム内非熱プラズマによる DPF の再生実験

2・2・1 DPF 再生のためのプラズマリアクタ 次に、図5に示すハニカム内部で非熱プラズマを形成するための DPF プラズマリアクタにより、排ガス中の NO を NO₂ に酸化し、すすがトラップされた DPF を低温で再生する実験を行った。使用した DPF プラズマリアクタは針対多孔性平板型で、針と多孔性平板までの距離は 33 mm, 針の長さは 7 mm である。コージェライト製セラミックス DPF (直径 50 mm, 長さ 25 mm, 体積抵抗率 $\approx 10^{12} \Omega \cdot \text{cm}$,

セル密度 100 cpsi, 壁厚さ 17 mil) が針-平板間に挿入されている。コージェライトの体積抵抗率がガスに比べて十分大きいので、極短パルス高電圧を電極間に印加することによりプラズマは DPF 内部のハニカム状流路内に形成される。室温における目視観察により、プラズマがハニカム内で均一に形成されることを確認した。

再生実験に先立って、このプラズマリアクタの NO 酸化能力を試験した。NO_x 標準ガスを乾燥空気(R.H.=10%, 20°C)で希釈した試料ガス(NO=320 ppm, NO_x=349 ppm)を用いて酸化試験を行った。流量は $Q=3$ NL/min, 印加電圧 45 kV, 周波数 15 Hz, 消費電力 1.4 W である。ガス温度 200°C の条件では電圧周波数の増加に伴って NO_x の濃度が増加する。そのため、増加がほとんど無い低い周波数で試験した。結果は NO=201 ppm, NO_x=349 ppm, CO=11 ppm, O₂=20.83%, CO₂=410 ppm, N₂O=1.5 ppm となった。すなわち 320 ppm の NO の 40% を NO₂ に酸化できる。

2・2・2 DPF 再生の実験装置 図6に、DPF 非熱プラズマリアクタを使用した、DPF 再生用の実験装置の概略を示す。リアクタは中央に2個対向させて設置されている。ガスは DPF プラズマ装置を通過し、NO₂ およびラジカル(O, N, OH)が形成される。励起されたガスは下流の、すす捕集済み DPF(コージェライト製、外径 46 mm, 長さ 50 mm, 100 cpsi)に流れ込み、すすの燃焼が起こる。電気炉の温度は 200°C に保たれ、その温度は DPF の近傍に挿入された高温光ファイバ温度計(安立計器 AMOTH FL-2000)により測定した。この温度計は光ファイバー式であり、高電圧パルス放電の雑音の影響をほとんど受けない。

再生の対象とする下流の DPF には単位 DPF 体積あたり、密度 4.1 g/L, 実質量 0.33 g のすすがあらかじめ捕集されている。本来ならプラズマリアクタと再生の対象

Fig. 6 Apparatus for regeneration test of DPF

Fig. 7 Typical waveforms of voltage and current for nonthermal plasma DPF for regeneration

Fig. 8 Gas concentrations vs. discharge power (Type A reactor, $Q = 1.5$ L/min, $L = 15$ mm, $f = 420$ Hz, $V_{pmax} = 26$ kV)

とする DPF は同じにすることが望ましいが、装置の都合上、今回は別々とした。DPF 前後の差圧の時間変化を半導体式微差圧変換器（共和電業，PDV-25GA）とデジタルレコーダ（横河電気，OR100E）により長時間記録し，すすの減り具合を検討した。さらにプラズマリアクタの電流電圧波形を図 7 に示す。

3. 実験結果ならびに考察

3.1 ハニカム DPF プラズマリアクタの性能について
図 3 に示したりアクタを用いて，電極間距離 L と電源周波数 f を色々と変化させて NO の酸化実験を行った。ガス流量の増加に伴って効率は減少するので流量は $Q = 1.5$ L/min の条件で行った。結果の一例を図 8 に示す。

Type A のリアクタに関しては NO の最大減少は図 8 の場合に得られ，81% の NO が酸化された。図から放電は 0～0.6 W の場合には発生せず，電圧の上昇に伴い 0.6 W を超えると発生する。副生成物の CO および N_2O の濃度は小さく 10 ppm 程度である。

図 8 の場合の電流電圧波形を図 9 に示す。電圧が最大を超えた直後に ns オーダ周期をもつマイクロ放電の波形が，電流波形に観察される。

3.2 3 種類のプラズマリアクタの性能比較
3 つのタイプのプラズマリアクタ性能を比較するため，SED (Specific Energy Density) と NO 除去量の値をグラフ化した。これを図 10 に示す。SED は

$$SED = 60 P/Q \text{ (J/L)} \quad (1)$$

Fig. 9 Voltage and current waveforms (the conditions are the same as those in Fig. 8)

Fig. 10 Amount of NO removal vs. SED for three types of DPF nonthermal plasma reactors

により定義され、 P (W)は電力、 Q (L/min)は流量であり、単位体積ガスを処理するための電力として定義される。グラフから、Type A, Cのリアクタが最も多くNOを除去することができ、低濃度のガスにおいてもSEDの値が小さい。従って次に述べるDPFの再生実験では、Type Aリアクタに類似の針対平板型リアクタを採用した。

3.3 DPF 再生実験の結果 図11に圧力の時間経過の実験結果を示す。圧力損失の低下速度は前報^{(17),(18)}に比べ60%程度であるが、プラズマON時に圧力損失が確かに低下し、再生が行われている。DPF側面の温度は光ファイバ温度計で測定し、200°Cであった。再生速度が低下した理由は、高温でのプラズマのNO酸化効率が低下したためであると考えられる。

図12に同時に測定したガス濃度の時間変化を示す。時間 $t=0$ には室温でプラズマ印加時の単独のリアクタ性能を示した。再生は $t=1$ hourに開始し、燃焼によりCO₂およびCOガス濃度が急に増加する。プラズマリアクタ

Fig. 11 Pressure drop vs. elapsed time for DPF regeneration using honeycomb nonthermal plasma

Fig. 12 Gas concentrations during DPF regeneration using honeycomb nonthermal plasma

により発生したNO₂および酸素ラジカルによりDPF内部に捕集されたすすが燃焼除去される。特に発生したNO₂は、ほぼ100%がCの燃焼に使用され、以下の反応のようにNOに還元されている。

図13に再生前後のDPFの側面写真を示し、すすが燃焼され、白くなっており、DPF再生の確証を得た。再生前後の炭素質量バランスを検討したところ、6.6時間でおおよそ76%のすすが除去されていた。

3.4 再生のためのエネルギー効率 本再生実験ではエネルギー効率あるいはSEDに関しては前報^{(17),(18)}より性能が向上した。SEDの値は28 J/NLと見積もられ、これは通常のディーゼル自動車の出力のおおよそ9%に相当する。実車搭載のためには、SED=10 J/NLを達成する必要があると言われているが、リアクタの電極の形状や配置の工夫により可能になるものと思われる。

(a) Before regeneration (elapsed time=0)

(b) After regeneration (elapsed time=10 hours)

Fig. 13 Photographs of DPF before and after regeneration

4. 結 論

DPFの低温再生を目的とし、NOの酸化能力に優れた非平衡プラズマに着目し、DPFを用いたプラズマリアクタを試作して性能を評価した。さらに、DPFとプラズマリアクタを一体化して、再生を行うコンパクトな無触媒低温再生方式を提案し、実際に再生試験を行った。主要な結果は以下のようにまとめられる。

(1) DPFを用いたプラズマリアクタを3種類製作、試験し、効率よくNOからNO₂への酸化を行えるプラズマリアクタの形式について検討した。その結果、Type A, CのプラズマリアクタはType Bに比べ効率が良く、同じSEDで多くのNOをNO₂へ酸化できることがわかった。

(2) DPFのハニカム内に形成した非熱プラズマにより微粒子の蓄積したDPFを再生する実験を行い、プラズマ印加時に圧力損失が低下し、200°Cの低温で再生が行われていることが確かめられた。

(3) DPFの再生開始直後にCO₂とCOの濃度が急激に上がり、プラズマによるNO₂と酸素ラジカルによりすすの低温燃焼が生じる。特にNO₂は100%還元されNOに戻る。

(4) 再生実験におけるSEDの値は28 J/NLであり、再生速度は劣るものの、前報(SED=50 J/NL)に比べSEDは

56%となり、より良い性能を得た。なお、本方法はエンジン始動時あるいはエンジンブレーキ作動時などの排ガス低温時でのDPF再生において有望な方法である。

実験結果に関する討論、高電圧電源の試作、設定をして頂いた今西雄一郎氏、佐久間健氏(共に日本ガイシ㈱)に深く感謝する。本研究の一部は日本学術振興会科学研究費補助金基盤研究(B)の援助を受けている。

文 献

- (1) 村山・常本, 自動車エンジン工学, 山海堂 (1997).
- (2) 三好・ほか 2 名, *TOYOTA Technical Review*, **50**, 2 (2000), 28.
- (3) 平山・植草, エンジンテクノロジー, **2**, 2 (2000), 13.
- (4) Thomas, S. E., ほか 5 名, *Preprint Int. Spring Fuels & Lubricants Meeting & Exposition*, Paris, France, June 19-22 (2000) 1.
- (5) 藤井, プラズマ核融合学会誌, **74-2** (1998), 151.
- (6) 山本・ほか 3 名, 機論, **67-663**, B (2001), 2891.
- (7) Kuroki, T., ほか 5 名, *IEEE Trans. Ind. Appl.* **38-5** (2002), 1204.
- (8) Mizuno, A., ほか 6 名, *Proc. 1996 IEEE-IAS Annual Meeting*, San Diego, CA, **3** (1996), 1808.
- (9) Oda, T., ほか 3 名, *Proc. 1996 IEEE-IAS Annual Meeting*, San Diego, CA, **3** (1996), 1803.
- (10) Locke, B. R. ほか 3 名, *IEEE Trans. Ind. Appl.*, (1999), 1111.
- (11) 山田, 日本セラミックス協会, 第27回高温材料技術講習会資料 (1995) 1.
- (12) 小川・小笠原, 工業と製品, **27-81**, (1999), 219-224.
- (13) 中田, 自動車技術, **56-1** (2002), 49.
- (14) 小高, 機誌, **105-1007**(2002), 661.
- (15) 梶原(監修), 角屋, 村木, ディーゼル車排ガスの微粒子除去技術, シーエムシー出版 (2001), pp.203.
- (16) Kupe, J., ほか 10 名, *Preprints of Diesel Engine Emission Reduction 2000 Workshop*, San Diego, CA., Aug. 20-24 (2000) no page number.
- (17) Okubo, M., ほか 4 名, *Proc. 2002 IEEE/IAS Annual Meeting* (2002), CD-ROM, total 8 pages.
- (18) Yamamoto, T., ほか 3 名, *SAE paper*, No.2003-01-1182 (2003) total 8 pages.
- (19) Okubo, M., ほか 3 名, *IEEE Trans. Ind. Appl.*, **37-5** (2001), 1447.
- (20) Okubo, M., ほか 3 名, *ibid.* **37-5**, (2001), 1505.
- (21) Okubo, M., ほか 3 名, *ibid.* **38-5** (2002), 1196.