

Metal Supported Particulate Matter-Cat, A Low Impact and Cost Effective Solution for a 1.3 Euro IV Diesel Engine

メタル担体を使用した PM 触媒による Euro IV 適合 1.3 リッターディーゼルエンジンへ影響を及ぼさない低コスト化への解決法

Lorenzo Pace, Roman Konieczny, Manuel Presti
EMITEC GmbH

概要

最新のディーゼルエンジンではコモンレール型直接噴射インジェクション、EGR そして最適なエンジン燃焼技術により、エンジンより排出される排ガスの NOx 及び PM は劇的に減少していることが認められている。

実際には近年発表された FIAT 社の 1.3 リッター JTD 4 気筒エンジンは、従来の 2 ウェイ型酸化触媒により Euro4 規制値をクリアしている。しかしながらいくつかの特別な適用車両（例：車両重量の比較的重い車両）などは PM の問題が取り上げられている。

本論文では、ディーゼルエンジン用後処理システムの開発を通して、低コストによる PM 低減を達成した研究結果について報告する。その開発プログラムでの大きい制約としては、大胆な挑戦であるパッケージング状態であり、他のシステムに影響を与えないシステムデザインであった。

その課題に対して、フロースルー型メタル担体“PM フィルタ触媒” (PMFC) を装着し、ローラーベンチにて特定の車両への適応を広範囲に試験実施し、部分負荷による soot 堆積、連続酸化および長時間による soot 捕集効率の結果を示す。

はじめに

ディーゼル排ガス法規は、現在、最も議論されている議題である。特に高出力ディーゼル車の実現によるディーゼル市場の大規模な増加は、微粒子に関連した健康問題を引き起こしており、最も重要な話題の一つである。

近年ではウォールフロー型PMトラップが法規的にも政治的にも議論され、適合し得るたった一つの方法として検討されている。それ故にいくつかの自動車メーカーは特別な注意を払いつつ、Euro4規制をクリア出来ない重量車両に対してウォールフロー型PMトラップを純正仕様として採用している。

その一方で、様々な設計のおよび工学的挑戦として、次から次へとたくさんの後処理システムも現れている。また今後は特に小型乗用車のコスト削減目標が厳しくなっている。それ故にいくつかの自動車メーカーは、代替方法（例えばフロースルー型PM フィルタ）を調査している。

本論文では、フロースルー型メタル担体“PM フィルタ触媒 (PMFC)” を適用した1.3リッター、4気筒ディーゼルエンジンでの検討を実施した。この結果より、現在のコスト低減および現在の排気システムへの影響を最小にして簡易に装着できることが検証された。

PM フィルタ触媒 – 基本原理

PM フィルタ触媒は、メタル担体を使用している。構造は波板とフリースで構成されており、よく知られているメタル触媒に類似している。しかしながら幾つかの明らかな相違点もある。その波板は、ブレード、またはショベルによりガス流れを拡散させ、平板層（フリース）へ流れ込むように導いている。これらの構成による多孔体金属フリースにより実際の排ガスからPMを捕集している。その一時的に捕集された微粒子がその後 NO₂ により酸化される (Fig. 1, Fig. 2, Fig. 3)。その動作原理の詳細は既に PM フィルタ触媒として過去の論文で発表されている[1, 2, 3]。

そのデザインのために PM フィルタ触媒は、部分的なオープン構造となっており、soot が堆積量を超過しても詰まることがない。よってウォールフロー型 PM 捕集では大きな問題になる比較的低温における適用でも使用することが可能である。更にフロースルー機構である PM フィルタ触媒では、アッシュ堆積問題についてもさほど敏感になる必要はない。



Fig. 1: PM フィルタ触媒用波板

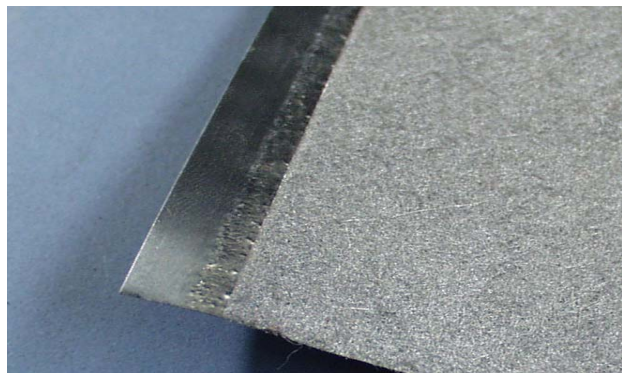


Fig. 2: PM フィルタ触媒用平板（多孔性フリース）

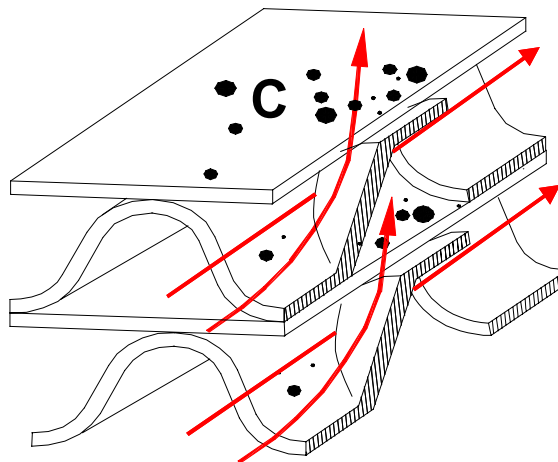


Fig. 3: PM フィルタ触媒の作用原理

実験装置

PM フィルタ触媒は、既に様々な試験が実施されており、いくつかの中重量サイズでの車両から商業用重量トラック用エンジンの適用で良好な結果が得られている [4, 5].

近年では、欧州における一つの市場傾向である、非常に小型のディーゼルエンジン（1500cc 以下）を使用した比較的幅広い範囲での乗用車への導入がますます成功している。それら最新のエンジンは、EGR や高圧噴射タイプのインジェクターにより、HC や CO のみならず NOx や PM も容易に Euro4 規制値に適合している。しかしながら高出力および高トルク仕様車や比較的車重の重い多人数乗用車両などについては、全体的に PM 排出増大の可能性が示唆されている。

それらへの PM フィルタ触媒による車両適用を検証するため、FIAT 社 Doblo' JTD（ディーゼルエンジン排気量：1300cc）によるローラーベンチ試験を実施した。CVS によるバッグ測定とモーダルベンチによるダイレクト測定によって欧州モードサイクル中の NO₂/soot 比率、PM 捕集率および soot の堆積安定性について焦点を当てた。

その試験用エンジン仕様は Euro3 適合エンジンであり、基本的な排ガス後処理システムは、エンジン直下のセラミック担体（サイズ：4.66"x5"/350 セル/5.5 ミル）に白金触媒（Pt=70gr/ft³）を担持させている。

試験方法

それぞれの触媒システムは、試験前に車両認証と同じくプレコンディショニング・サイクル（EUDC 部分を 3 回連続走行）を経ている。この方法により試験毎の PM フィルター触媒中の soot 残留を防止している。

その後、各触媒システムは完全な欧州モード（ECE + EUDC）により試験実施されている。更に有意性を確実にするため、各試験は 3 回繰り返されている。これらの試験結果は、soot の堆積されていない状態での代表結果である。次に soot を堆積させる方法として欧州試験モードの ECE 部分（低速モード）を 12 時間走行させることに

より実施した。この低速モード中の排ガス温度は非常に低く (< 170°C), PM フィルタ触媒の多孔フリースへ堆積される殆どの soot は, NO₂ による再生燃焼は行なわれていない。この soot 堆積状態での試験についても試験毎にプレコンディショニング・サイクル (EUDC 部分を 3 回連続走行) を実施している。

各触媒システムによる試験結果

PM フィルタ触媒 (触媒コート無し) 床下設置

基本システムである床下位置に PM フィルタ触媒 (98.4mmx150mm/200cps) を後付けした概略図を Fig. 4 に示す。

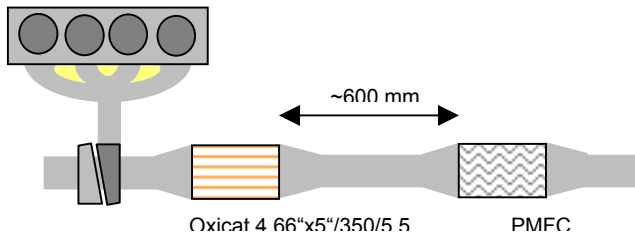


Fig. 4: 後付けによる PM フィルタ触媒基本システム

Fig. 5 に示す通り, PMFC の床下への設置による HC, CO そして NO_x 排出量への影響は無いと言える。このことは PMFC を後付けとした場合に, 最適なエンジン・マネジメントの改造が不要となるため, 当システムの大きな優位性であると考えられる。

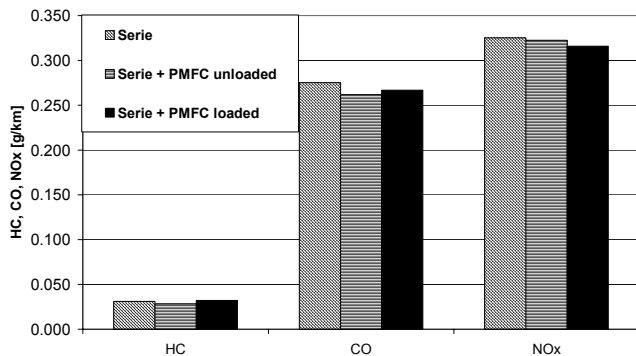


Fig. 5: 基本量産システムと PMFC を装着したシステムによる HC, CO 及び NO_x のバッグ測定によるテールパイプ排ガス比較

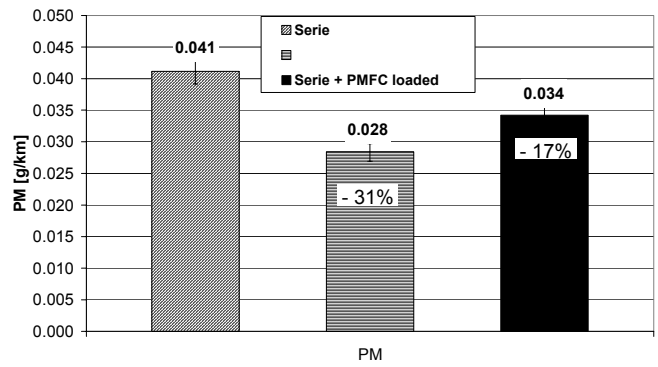


Fig. 6: 基本量産システムと PMFC を装着したシステムによる PM 測定によるテールパイプ排ガス比較

それらと異なり, テールパイプからの soot 排出は PMFC により削減され, その結果は 5%の誤差範囲内とかなり安定している。新品の PMFC は, soot 削減率が 31%程度であるが, 長時間耐久 (12 時間) による soot 堆積後の捕集効率, 17%程度まで低下する。Fig. 7 に示す通り, その試験中では極端な低温での排ガスが要因になっている。しかしながら更なる最適化は容易に達成することができる。

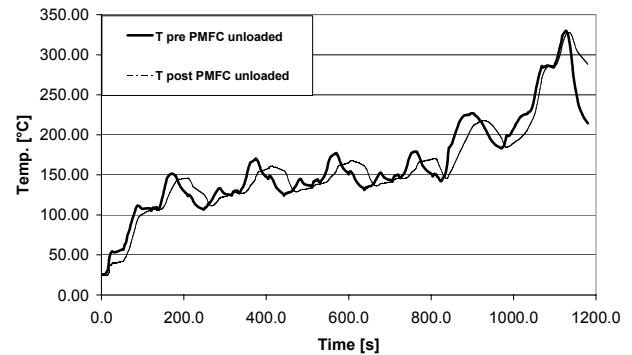


Fig. 7: MVEG サイクル中での排ガス温度特性

PM フィルタ触媒 (触媒コート有り) 床下設置

Fig. 8 に触媒コーティングした場合の影響を調査するために, 同じ PMFC 担体に Pt=30gr/ft³ による触媒コートを実施した。

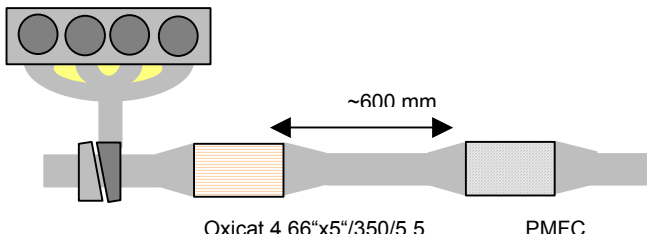


Fig. 8: 後付けによる PM フィルタ触媒（触媒コート有り）基本システム

テールパイプからの HC 排出への大きな影響は無く、有利な点として触媒を床下位置の PMFC に追加することで最大 20% 程度のテールパイプからの CO 排出の削減が達成できた。

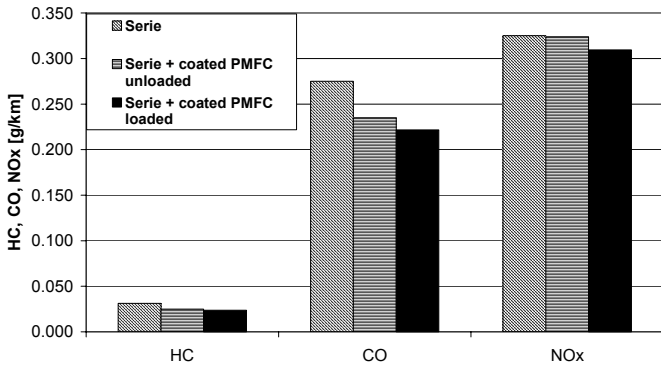


Fig. 9: 基本量産システムと PMFC（触媒コート有り）を装着したシステムによる HC, CO 及び NOx のテールパイプ排ガス比較

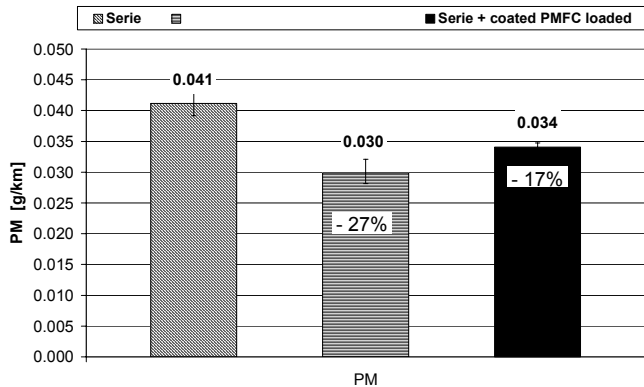


Fig. 10: 基本量産システムと PMFC（触媒コート有り）を装着したシステムによる PM 測定によるテールパイプ排ガス比較

Fig. 10 に示す通り、床下に設置している触媒コート有り PMFC は、当初予想されていた捕集効率を最大に高める訳ではなく、その酸化特性を全体の NO₂ 生成に寄与させることにより安定した PM 捕集効率を得られる。その理由として、この現象は二つの異なったメカニズムによる。その一つは、NO と Pt の間よりも強い CO と Pt の高い結合性である。これにより NO→NO₂ の酸化限界が生じ、要求される安定した PM 捕集効率が難しくなる。もう一方は、残留 CO と NO₂ による NO₂ + CO → CO₂ + NO となる CO₂ と NO の生成である。従って、たとえ貴金属を高めに担持したとしても、全体的には NO₂ が関連する長時間での PM 捕集効率では限界があると思われる。そのためにも更なる PMFC によるシステムの最適化方法としては、CO と NO₂ 間の酸化反応による干渉を排除するために、酸化触媒の直下に PMFC を設置させることであり、排ガス中の CO 削減に劇的な効果を得ることが出来る。その目的である排ガス流動性を得るために、LS 技術という立体的なフォイル構造を持つ専用酸化触媒にて強化促進させている。

床下位置での最適化によるシステム：床下位置でのコート付き酸化触媒（LS 技術）+ PM フィルタ触媒（触媒コート無し）

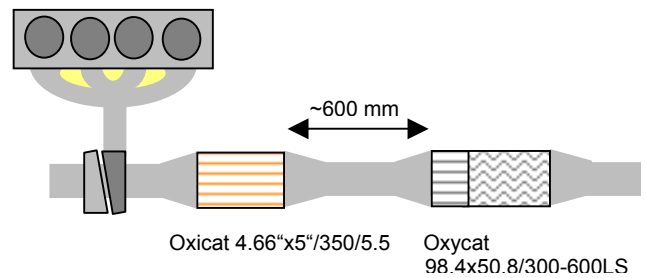


Fig. 11: 後付けによる LS 構造の酸化触媒+PM フィルタ触媒（触媒コート無し）基本システム

Fig. 12 に示す通り、PMFC 直上への LS 酸化触媒設置により全体の CO 転換効率はかなり改善 (=約 47%) されている。これは前項で議論された触媒コート付き PMFC の Pt 含有量よりも少ない酸化触媒の Pt 含有量 (LS 触媒は 1.09 g, 触媒コート付き PMFC は 1.2g) であり、また温度の低い床下位置を考慮に入れると大変良好な結果である。従って、向上した CO 転換効率は LS 担体の高い物質伝達特性が関連している (Fig. 13)。

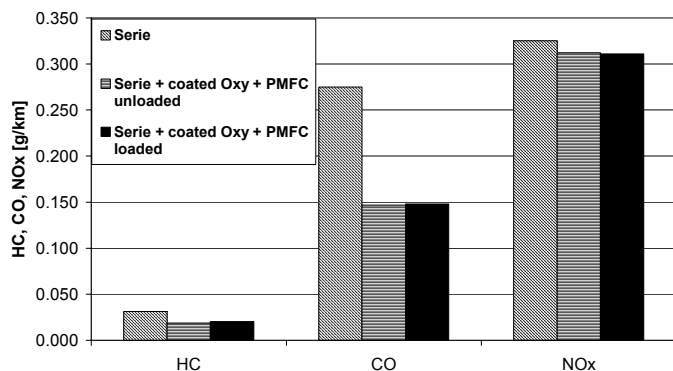


Fig. 12: 基本量産システムとコート付き LS 酸化触媒と PMFC (触媒コート無し) を装着したシステムによる HC, CO および NOx のテールパイプ排ガス比較

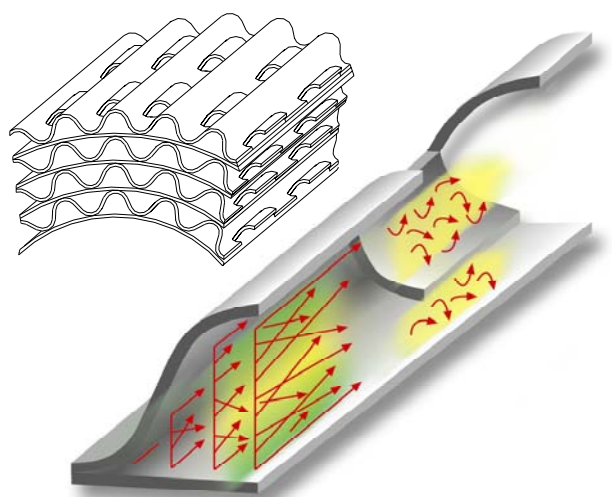


Fig. 13: LS 構造による作用原理. 乱流様流れがチャンネル軸方向に作り出され、物質伝達特性が向上する。

この理由は二つの要素からなる：その一つは、LS の切り欠き部分が第二のセルを作り、担体全体としてのセル数を増加させている。そしてもう一つは、十分に発達した層流での流れを何度も遮断する。ガス流れは通常、層流であり拡散による物質伝達が支配的であるが、乱流様流れにより、結果的に対流による物質伝達による支配が可能になる。

CO 排出量が著しく減少してくると、最も重要な排ガス中の NO₂ 増加による長時間での PM 捕集効率を確実にする。

Fig. 15 で明らかなように LS 酸化触媒 (300 セル) は NO₂ 濃度を 16%まで増加させており、付け加えて CO 転換効率も極めて向上させている。

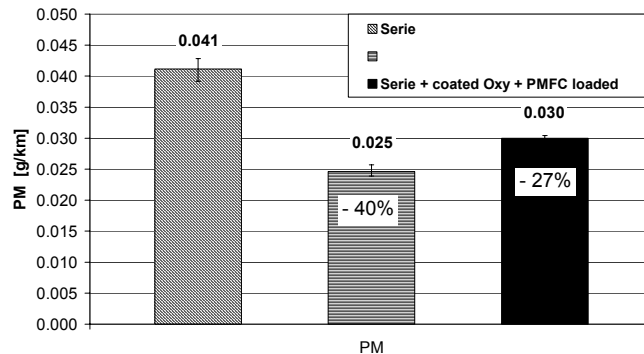


Fig. 14: 基本量産システムと PMFC (触媒コート有り) を装着したシステムによる PM 測定によるテールパイプ排ガス比較

結果として新品状態では~40%、堆積状態では~27% の PM 捕集効率の改善が見られる。

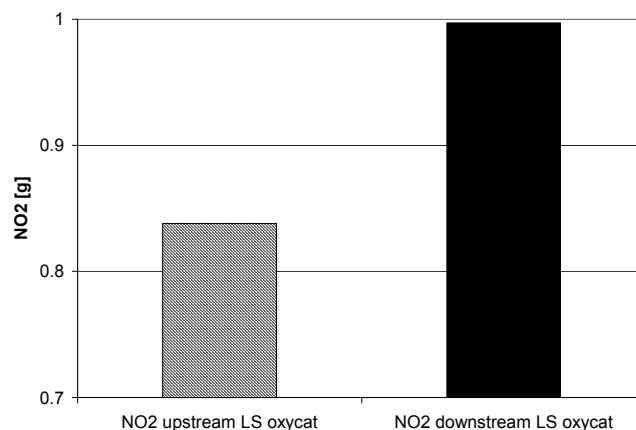


Fig. 15: PMFC 直上位置への LS 酸化触媒 (300 セル) による NO₂ 生成改善

エンジン直下位置での酸化触媒及び PM フィルタ触媒によるシステム

この項では、エンジン直下位置による LS 酸化触媒 (300 セル) と PMFC の組み合わせによるハイブリッドシステムを量産システムの酸化触媒と交換している。

基本量産システムであるエンジン直下位置での酸化触媒 (350 セル) は、1.4 リッターの容量で Pt =70 gr/ft³ であるが LS 酸化触媒 (300 セル) と PMFC のシステムは個々に Pt =100 gr/ft³, Pt =30 gr/ft³ である。その LS 酸化触媒のサイズは 127 x 50.8mm であり、PMFC は 127 x 74.5mm の担体である。よって合計の Pt 担持量は新しいシステムの方が量産基本システムと比べ少ない。PGM 担持を削減してもシステムの転換効率は変化していない。基本量産システムの 350 セルの酸化触媒と 200 セルの PMFC を考えてみると、触媒コート付きの PMFC は高い

酸化効率を持つ酸化触媒であり (Fig. 16) 且つかなりの PM 捕集能力を維持している (Fig. 17) .

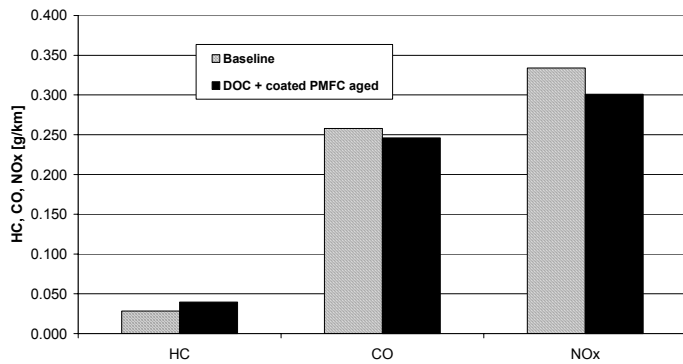


Fig. 16: 量産基本システムと LS 酸化触媒/PMFC (触媒コート有り) システムによる転換効率比較

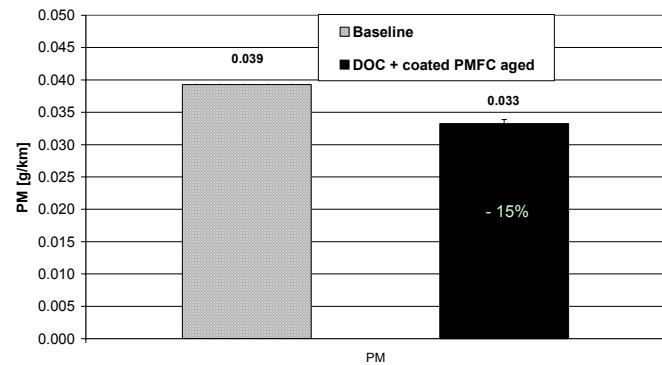


Fig. 17: 量産基本システムと LS 酸化触媒/PMFC (触媒コート有り) システムによる PM 捕集効率比較

床下位置での PMFC システムに比べ、エンジン直下位置での PMFC は比較的低い PM 捕集効率になっているが、エンジン直下での PMFC 容量が 15%減少しており、直径/長さ比率が床下位置での PMFC と異なるためと考えられる。その一因として小さい直径の方が、高い捕集効率になる傾向が確認されている。更にウォッシュコートによるコーティングも気孔率の面からはマイナスに働いている可能性もある。加えてもう一つのエンジン直下の酸化触媒/PMFC システムとして LS 触媒 (300 セル) と PMFC (触媒コート無し) での検証も実施した。このシステムでは PMFC の捕集能力として ~ 25% を達成することができるが (Fig. 18) , PMFC のコーティング・プロセスが若干の最適化を必要とすることも証明している。

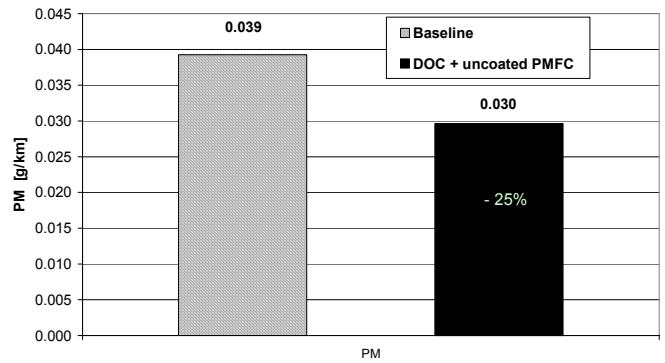


Fig. 18: 量産基本システムと LS 酸化触媒/PMFC (触媒コート無し) システムによる PM 捕集効率比較

興味ある結果として、LS 酸化触媒による突出した高い CO 転換効率を得られた。実際にはその酸化触媒は、量産基本システムの酸化触媒 (350 セル) と比較して 54% の容量削減および 34% の Pt 担持量削減をしている。にもかかわらず新品状態での CO 転換効率は、量産基本システムと比べて著しく向上している (Fig. 19) 。この結果は従来の担体と比較して、LS 担体の排ガス流れ特性によるものと説明することができる。前者は層流による拡散物質伝達が極めて支配的なメカニズムに依るものであるが、後者は、乱流様流れによる触媒壁面への対流物質伝達による (Fig. 13) 。

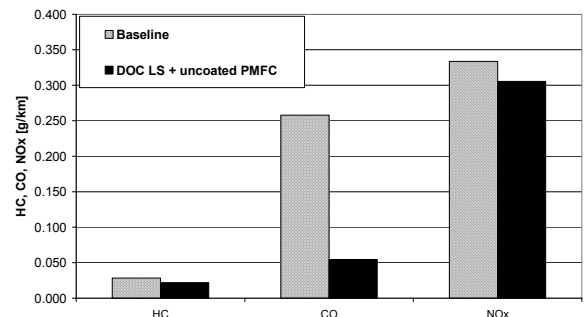


Fig.19: 量産基本システムと新品状態での LS 酸化触媒/PMFC (触媒コート無し) システムによる転換効率比較

結論

4 気筒 1.3 リッターの量産エンジンを使用した Euro 3 規制適合車両による検証がローラーベンチで実施された。

特に、PM 削減によって主な目的であるヨーロッパでの報奨取得の可能性を証明するために、エンジン直下に設置された酸化触媒からなる基本排ガス後処理システムに、PM フィルタ触媒の床下位置への後付けを実施した。

PMFC は、触媒コート付きと無しの二パターンを、予め準備された状態にして試験実施した。その後、それぞれ

のシステムは、新品状態にてベースラインの値を定義するための試験が実施された。

市場で最も重要である PM 削減装置の適合性のために、PM を堆積させる手順として 12 時間の ECE サイクル（低い負荷と低い排ガス温度）を実施した。

その後、その手順を繰り返し、それに続いて各システムは EC ドライビングサイクルによって長時間 PM 捕集効率を堆積した状態にて試験が実施された。

その結果から、触媒コート無し PMFC では HC/CO および NOx 排出への悪影響は無く、加えて PM のテールパイプからの排ガスは、新品状態では~ 31%まで、堆積した状態では~ 17%まで削減される。これらの比較的低い値は、後付けシステムの更なる最適化が必要という結論が導かれる。

最初の改良である触媒コート付き PMFC では、CO 排出が~20%まで向上した。しかし一方では、PM 捕集効率がコーティングしていない PMFC より減少している。PM 捕集効率は、PMFC への入りガス内 NO₂ に強く依存している。更なる最適化への階段として、床下位置での LS 技術による酸化触媒を上段に設置した触媒コート無し PMFC の開発を実施した。

CO 排出は 47% まで著しく改善されており、加えて PM 排出は新品状態で 40%、堆積状態で 27%削減されている。これらの結果より PMFC は現行のシステムには負荷をあまり与えず、簡単に排ガス後処理システムとして取り付ける事ができる。特に Euro3 規制値適合エンジン・キャリブレーションで考えると、わずかなキャリブレーション調整であれば、現状のエンジンでも実施可能であるため、Euro4 規制値適合達成への最適システムであると言える。

これは EC 諸国で増加しているディーゼルエンジンを搭載した車両に対して、Euro4 適合による税制上の優遇措置を考慮に入れた意義深い成果である。後処理システムの場合、車両の大きなコスト増加なしに最適の解決方法になる可能性がある。

更に、今後要求されるシステムコストの課題であるパッケージングを考慮に入れた調査も実施した。特に床下位置に設置するキャニングを取り除くため、エンジン直下位置による LS 酸化触媒と PMFC で構成されるシステムが検証された。

しかしながら、突出した CO 排ガス転換効率が確認されているものの、PM 捕集効率は、PMFC 自体（以前の床下位置システムと比較した大きい直径）による様々な流量特性により改善されなかった。

全体の効率としては、明らかに酸化触媒内の LS 構造体の乱流様流れが影響しており、非常に重要な結果と考えられる。それ故に基本システムと比較して触媒容量が 54%、Pt 担持量が 34%削減可能となった。

参考文献

- [1] „Metal Supported Flow-Through Particulate Trap; a Non-Blocking Solution“; Rolf Brück, Peter Hirth, Meike Reizig, Peter Treiber, Jürgen Breuer, Emitec GmbH; SAE 2001-01-1950
- [2] „Neue Dieselmotorsysteme zur Erreichung der europäischen Grenzwerte 2005 – Getestet an einem Volvo S60 Personenkraftwagen“; F. Diefke, M. Lundgren, P. Nilsson, Volvo Car Corporation; R. Brück, C. Kruse, S. Schaper, Emitec GmbH; 24. Internationales Wiener Motorensymposium
- [3] „PM-Kat: Nichtblockierende Lösung zur Minderung von Dieselmotoren für Euro IV-Nutzfahrzeugmotoren“; Dr. E. Jacob, Dr. N. D’Alfonso, A. Döring, S. Reisch, D. Rothe, MAN Nutzfahrzeuge AG Nürnberg; R. Brück, Dr. P. Treiber, Emitec GmbH Lohmar; 23. Internationales Wiener Motorensymposium April 2002
- [4] „PTC-Oxidationkatalysatoren als effektive Systembausteine in der Abgasnachbehandlung bei zukünftigen Pkw- und Nfz-Dieselmotoren“; Joachim Diringer, Oswald Holz, Friedrich-Wilhelm Kaiser, Peter Treiber, Emitec GmbH; Technische Akademie Esslingen, 9. Symposium Dez. 2003
- [5] Gianpiero Saroglia, Giovanni Basso, Fiat-GM Powertrain Italia, Manuel Presti, Meike Reizig, Holger Stock, Emitec GmbH: „Application of New Diesel Aftertreatment Strategies on a Production 1.9 L Common-Rail Turbocharged Engine“, SAE Paper No. 2002-01-13-13, 2002
- [6] „Zukünftige Konzepte im NFz“, E. Jacob MAN Nutzfahrzeuggruppe; IIR Konferenz Stuttgart 2003
- [8] „Regeneration eines Diesel-Partikelfilters mit NO₂/H₂O_(g) im Temperaturbereich zwischen 225 und 300 °C“; B. J. Cooper, H. J. Jung, J. E. Thoss, Johnson Matthey Inc.
- [9] „A Photo Acoustic Sensor System for Time Resolved Quantification of Diesel Soot Emission“; Wolfgang Schindler et.al.; SAE 2004-01-968
- [10] „New Approaches in Particle Size and Morphology Measurement“; Thomas Cartus, Alf Wewerka, AVL List GmbH, Austria 5th ETH Conference on Nanoparticle Measurement Zürich, 6th of August 2001