

博士学位論文

Diesel Particulate Filter 内  
アッシュ堆積層形成過程のモデリングと  
圧損予測精度の向上

Modeling on Ash Layer Formation  
to Improve Pressure Drop Prediction  
in a Diesel Particulate Filter

2022 年 2 月

宮原 哲順  
Akikazu MIYAHARA

博士学位論文

Diesel Particulate Filter 内  
アッシュ堆積層形成過程のモデリングと  
圧損予測精度の向上

Modeling on Ash Layer Formation  
to Improve Pressure Drop Prediction  
in a Diesel Particulate Filter

2022 年 2 月

早稲田大学大学院 創造理工学研究科  
総合機械工学専攻 熱エネルギー反応工学研究

宮原 哲順  
Akikazu MIYAHARA

# 目次

|                                     |           |
|-------------------------------------|-----------|
| <b>第1章 序論</b>                       | <b>1</b>  |
| 1.1 研究背景                            | 1         |
| 1.1.1 内燃機関を取り巻く環境                   | 1         |
| 1.1.2 内燃機関の排出ガス規制動向                 | 6         |
| 1.1.3 排出ガス後処理装置技術の概要                | 15        |
| 1.1.4 粒子捕集フィルタ(PF/DPF)の概要と課題        | 17        |
| 1.2 先行研究                            | 20        |
| 1.2.1 DPF 堆積アッシュの形成過程               | 20        |
| 1.2.2 DPF 堆積アッシュの堆積形態と圧損影響          | 28        |
| 1.3 本研究の目的                          | 36        |
| 1.4 本論文の構成                          | 37        |
| <b>第2章 DPF 流路内堆積アッシュの構造解析とモデリング</b> | <b>40</b> |
| 2.1 まえがき                            | 40        |
| 2.2 DPG での堆積アッシュの構造調査               | 40        |
| 2.2.1 実験方法                          | 40        |
| 2.2.2 実験結果の解析                       | 45        |
| 2.3 流通場でのスート燃焼によるアッシュ層形成の調査         | 69        |
| 2.3.1 実験目的と実験方法                     | 69        |
| 2.3.2 実験結果の解析                       | 75        |
| 2.4 モデル構築                           | 78        |
| 2.4.1 アッシュ2次粒子モデル                   | 78        |
| 2.4.2 アッシュ層空隙率モデル                   | 81        |
| 2.4.3 アッシュ堆積層モデル                    | 83        |
| 2.5 まとめ                             | 84        |
| <b>第3章 DPF 流路内アッシュ移動現象のモデリング</b>    | <b>85</b> |
| 3.1 まえがき                            | 85        |
| 3.2 モデル構築                           | 85        |
| 3.2.1 DPF 流路内流れ場の計算モデル              | 85        |
| 3.2.2 アッシュ移動モデル                     | 87        |
| 3.2.3 臨界せん断応力モデル                    | 99        |
| 3.2.4 粒子径, 空隙率に対する臨界せん断応力の変化        | 107       |
| 3.3 まとめ                             | 108       |

|   |            |
|---|------------|
| <b>第4章 DPF 流路内堆積アッシュによる圧損影響のモデリングとモデル検証</b> | <b>109</b> |
| 4.1 まえがき                                    | 109        |
| 4.2 DPF 全体の数値計算モデル                          | 109        |
| 4.3 モデル精度検証                                 | 114        |
| 4.3.1 低 S/A 比条件でのフィッティングと, 計算結果の検証          | 114        |
| 4.3.2 高 S/A 比条件での計算結果と検証                    | 132        |
| 4.4 モデル有効性検証                                | 141        |
| 4.4.1 DPF サイズ違いの計算条件と計算結果                   | 141        |
| 4.5 まとめ                                     | 150        |
| <b>第5章 結論及び今後の研究の展望</b>                     | <b>152</b> |
| 5.1 結論                                      | 152        |
| 5.2 今後の研究の展望                                | 155        |
| <b>参考文献</b>                                 | <b>157</b> |
| <b>謝 辞</b>                                  | <b>168</b> |
| <b>研究業績</b>                                 | <b>170</b> |

# 第1章 序論

## 1.1 研究背景

### 1.1.1 内燃機関を取り巻く環境

地球全体の平均気温は、太陽活動の影響や地球の公転軌道と自転軸の変化の影響を受けて、過去に何度も変動を繰り返してきたと考えられるが、20世紀に入ってから急激な気温変化は、それら自然起源の要因では説明が出来ないほどに大きく、人為起源の要因による可能性が極めて大きい、と考えられている<sup>(1-1), (1-2), (1-3), (1-4)</sup>。IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change) 第6次評価報告書のSPM (Summary for policymakers/2021年8月に公表)より、気候記録から復元(シミュレーション)した世界平均気温の変化と、最近の観測による世界平均気温の変化を図1.1に示す。

Changes in global surface temperature relative to 1850-1900

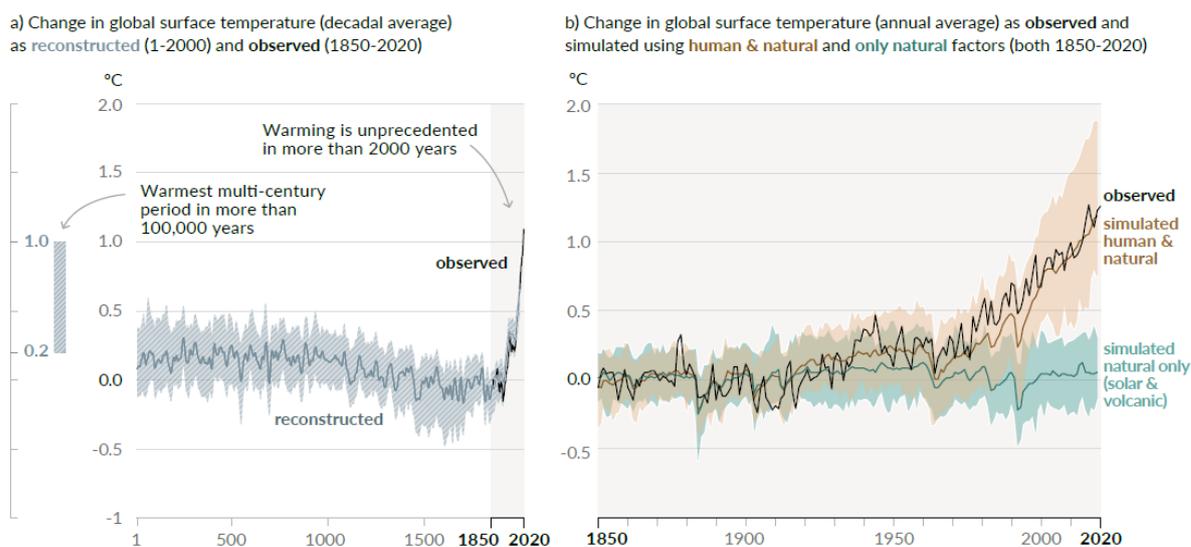


Fig. 1.1 History of global temperature change and causes of recent warming <sup>(1-3)</sup>

地球全体の平均気温の上昇は、人為起源による温室効果ガス(Green House Gas / GHG)の影響が大きく、なかでも二酸化炭素(CO<sub>2</sub>)の排出増加の影響が大きい、と考えられている<sup>(1-5), (1-6)</sup>。図1.2に、世界のCO<sub>2</sub>排出量の変化とその内訳を示す。これより、人為起源のCO<sub>2</sub>排出は、産業革命以降の工業化によると考えられ、特に1950年以降で顕著に増加していることが分かる。

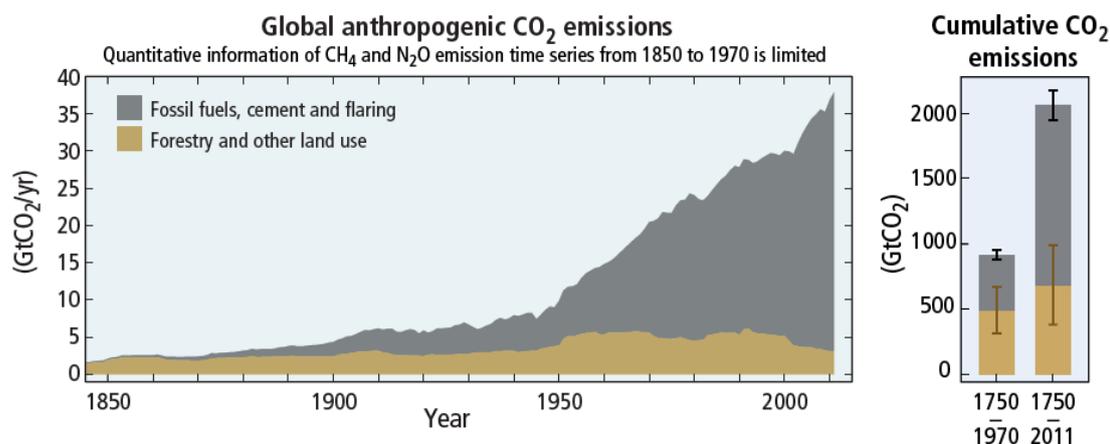


Fig. 1.2 Globally anthropogenic CO<sub>2</sub> emissions and cumulative CO<sub>2</sub> emissions (1-5)

世界の CO<sub>2</sub> 排出量に占める、部門毎の排出割合を図 1.3 に示す。これより、運輸部門の寄与度は総排出量の 4 分の 1 ほどを占めており、影響度が大きいことが分かる。

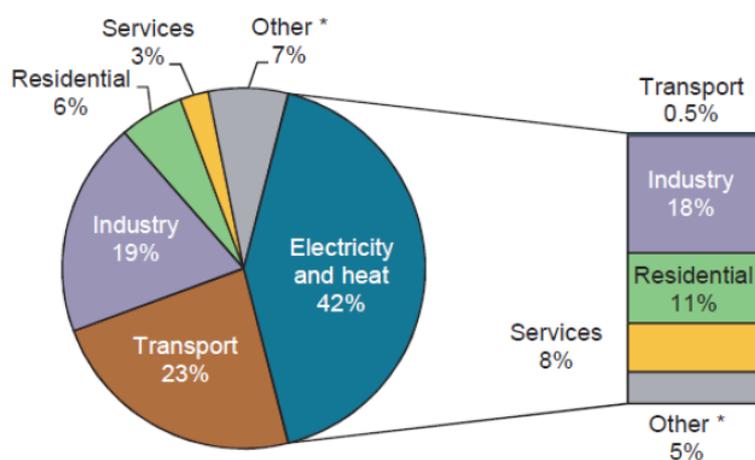


Fig. 1.3 CO<sub>2</sub> emissions from fuel combustion, IEA/OECD, 2016 (1-7)

現時点において、世の中を走行している自動車(乗用車・商用車含む)の大多数は、ガソリンや軽油を燃料とする内燃機関(ICE; Internal Combustion Engine)を動力源としており、これら自動車による道路輸送に起因するものが、運輸部門からの排出の 5 分の 4 以上を占める<sup>(1-8)</sup> ことから、運輸部門からの排出 CO<sub>2</sub> は主にこれら自動車 ICE からの排出によるものである、と言える。

近年の異常気象による災害の増加により、CO<sub>2</sub> など温室効果ガスの排出を、森林での吸収などを加味し総量としてゼロを目指す、カーボンニュートラル(Carbon Neutral / CN)の早期実現が、いまや世界全体の共通目標であり、自動車も動力源の CN 化が急務となっている。

動力源のCN化実現に向けて、特に乗用車などのLDV(Light Duty Vehicle)においては、何らかの電動化技術の採用による、動力源の電動化(xEV化)が必須と考えられている<sup>(1-9), (1-10)</sup>。図1.4に、電動車(xEV)の種類を示す。

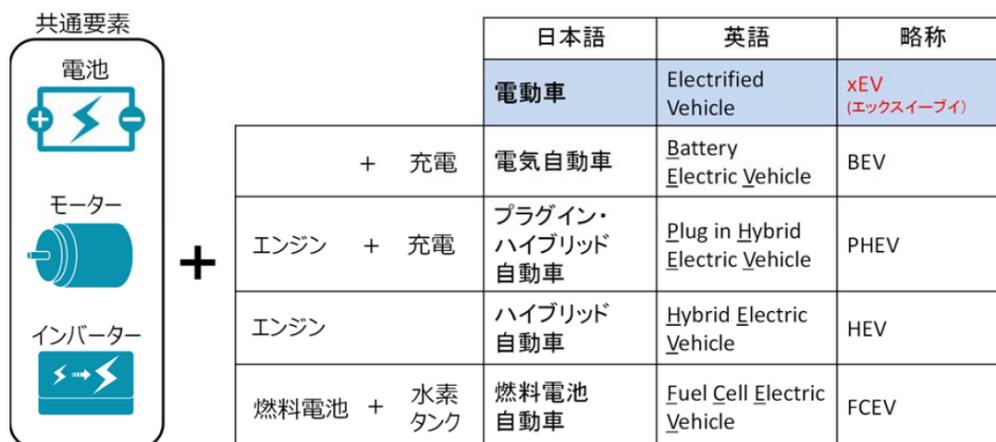


Fig. 1.4 Variation of Electrified Vehicle (xEV) <sup>(1-9)</sup>

近年急速に進歩する電動化技術は、Tank-to-Wheel(燃料タンクから車輪まで)でのCO<sub>2</sub>排出を削減するには有効な手段であり、走行中のCO<sub>2</sub>排出低減効果は大きい<sup>(1-9), (1-10)</sup>ものの、発電段階での化石燃料への依存度を考慮したWell-to-Wheel(油田から車輪まで)基準でCO<sub>2</sub>排出量を評価した場合、必ずしも100%電気自動車(BEV)が有効な解とはならない。一例として、経済産業省が試算したWell-to-Wheelでの各種自動車のCO<sub>2</sub>排出量の評価結果を、図1.5に示す。

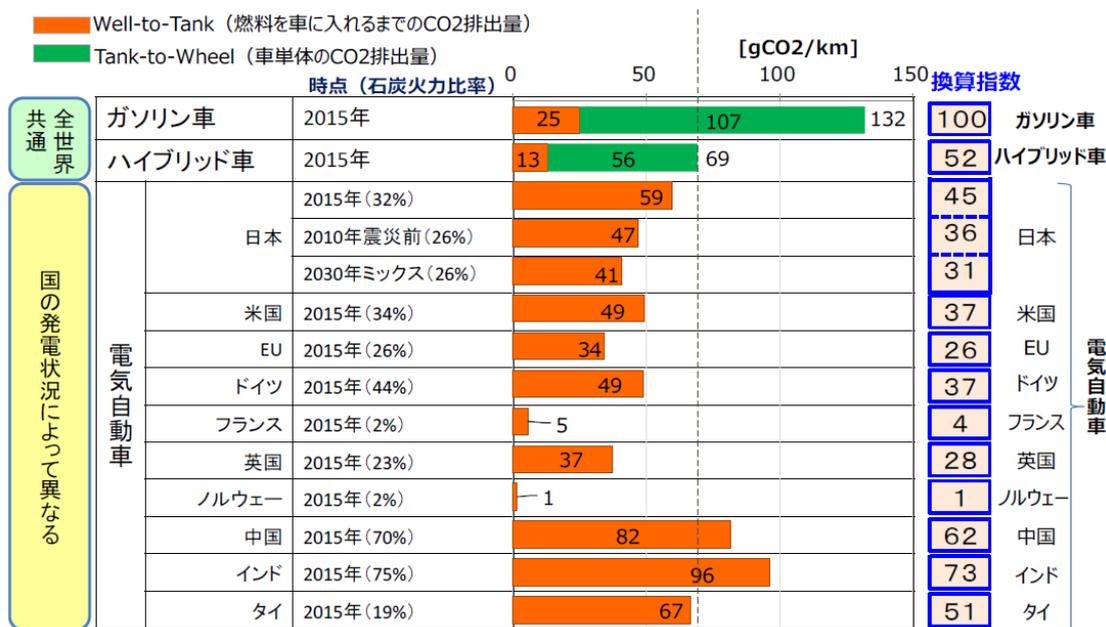
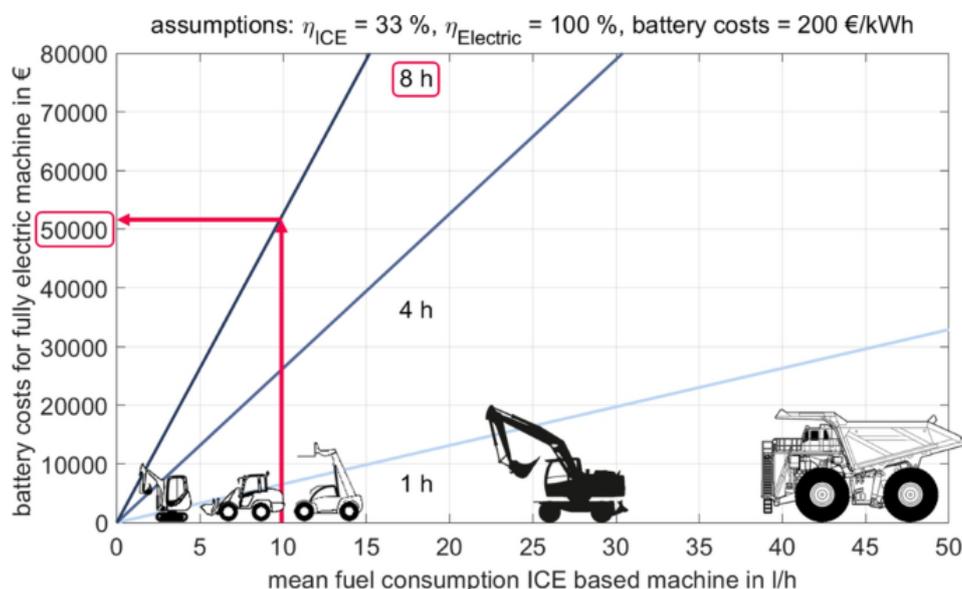


Fig. 1.5 Assessment result of "Well-to-Wheel" CO<sub>2</sub> emission <sup>(1-9)</sup>

国全体の発電を、水力発電で多く賄っているノルウェーや、原子力発電で賄っているフランスにおいては、BEVのCO<sub>2</sub>排出量が圧倒的に低い一方、インド、中国のようにCO<sub>2</sub>排出の多い石炭火力発電で多くを賄っている国においては、電動化技術をICEと組み合わせたハイブリッド車の方が、CO<sub>2</sub>排出が少ないと試算されている<sup>(1-9), (1-11)</sup>。また、製品の製造から廃棄までを考慮するLife Cycle Assessment (LCA) 基準でCO<sub>2</sub>排出量を評価した場合も、BEVの優位性は国の電源構成に大きく左右されることが指摘されている<sup>(1-12)</sup>。

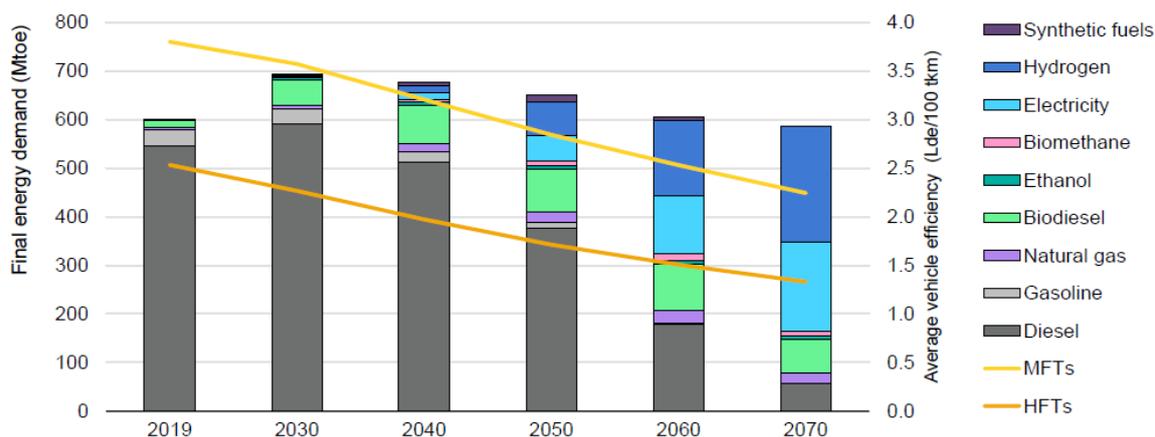
大型トラックなど Heavy-Duty Vehicle (HDV) や、オフロード車両 (Non-Road Mobile Machinery; NRMM) においては、乗用車など Light-Duty Vehicle (LDV) と比較して、出力や稼働継続時間の確保が一層重要となる。図 1.6 は、現状のバッテリー価格から、内燃機関車両を完全電動化した場合のバッテリー価格を稼働時間毎に示したものであるが、これより、例えば平均燃費 10 L/h クラスの車両を 8 h 連続稼働させようとする、バッテリーコストは 50000 ユーロとなることが分かるが、これはこのクラスの車両価格の半分以上となる。これよりコストの観点からも、大型車両ほど完全電動化はハードルが高く、ICE 技術の活用が引き続き必要であると言える。



**Fig. 1.6 Battery price for replacing the ICE with an electric machine and a battery depending on the operating time <sup>(1-11)(1-13)</sup>**

2020年にIEA(International Energy Agency)より公表された、持続可能な開発シナリオ(世界的な気候とエネルギーの目標達成に向けて、2070年までにエネルギーシステム全体のエミッション

net-zero を達成するためのシナリオ)に必要な, Heavy-duty トラックの将来のエネルギー需要予測を図 1.7 に示す. これより, Heavy-duty トラックでは, バイオ燃料(Biodiesel)や合成燃料(Synthetic fuels), 水素燃料(Hydrogen)などの代替燃料の使用が徐々に拡大すると考えられるものの, 2050 年時点においても, 依然としてディーゼル燃料を用いる内燃機関車が半分以上を占める, という予測となっている.



IEA 2020. All rights reserved.

Notes: Lde = litres of diesel equivalent; tkm = tonne-kilometres; MFTs = medium-freight trucks (3.5-15 tonnes GVW); HFTs = heavy-freight trucks (> 15 tonnes GVW). Efficiency improvements more than offset activity growth in the 2030-60 time period, but after 2060 activity demand growth overwhelms efficiency improvements, leading to increases in final energy demand.

**Fig. 1.7 Global heavy-duty trucking energy demand by fuel and average vehicle efficiency in the Sustainable Development Scenario, 2019-2070<sup>(1-14)</sup>**

HDV や NRMM などの動力源としては, 液体燃料の高いエネルギー密度や利便性から容易に置き換えが効かず, ICE が引き続き重要な動力源であり続けると考えられる. また液体燃料の CN 化の研究開発も進められており, e-fuel<sup>(1-15), (1-16), (1-17)</sup> などの CN 燃料が実用化されれば, ICE も EV,FCV と同様の CN な動力源として, 重要な選択肢の一つになると考えられる.

以上より, ICE は引き続き重要な動力源と考えられるが, これを社会で活用し続けるためには, 燃料コストの増加が見込まれる<sup>(1-15), (1-16)</sup> ことから, 熱効率を改善し低燃費技術を磨き続けることと, 燃焼により生成され排ガスとして排出される有害エミッションをゼロに漸近させること, 即ちゼロエミッションを実現させることが, 大きな鍵になる<sup>(1-18)</sup> と考えられる.

### 1.1.2 内燃機関の排出ガス規制動向

世界で最初の排出ガス規制は、1962年に米国カリフォルニア州で制定された。当時ロサンゼルスではスモッグによる大気汚染が問題となっており、1962年にクランクケース・エミッション規制が、1965年には排出ガス中の一酸化炭素(CO)と炭化水素(HC)に関する規制が、連邦政府に先駆けて開始された<sup>(1-19), (1-20)</sup>。全米としての規制は、1963年に大気清浄法が制定され、1968年に全米排気規制が施行された。1970年には、規制対象として窒素酸化物(NO<sub>x</sub>)が加わった、それまでの規制より格段に厳しい大気清浄法(マスキー法)が成立、その後、自動車の排気浄化技術の開発が本格化していった<sup>(1-19), (1-20)</sup>。排出ガス規制は、これまで米国、欧州、日本などの先進国を中心に、歩調を合わせながらそれぞれ制定され、また段階的に強化されてきている。さらに新興国においても、同様の規制が少し遅れる形で順次開始されており、世界中で排出ガス規制が導入される動きとなっている。例として図 1.8 に乗用車に対する主要各国の規制動向を示す。

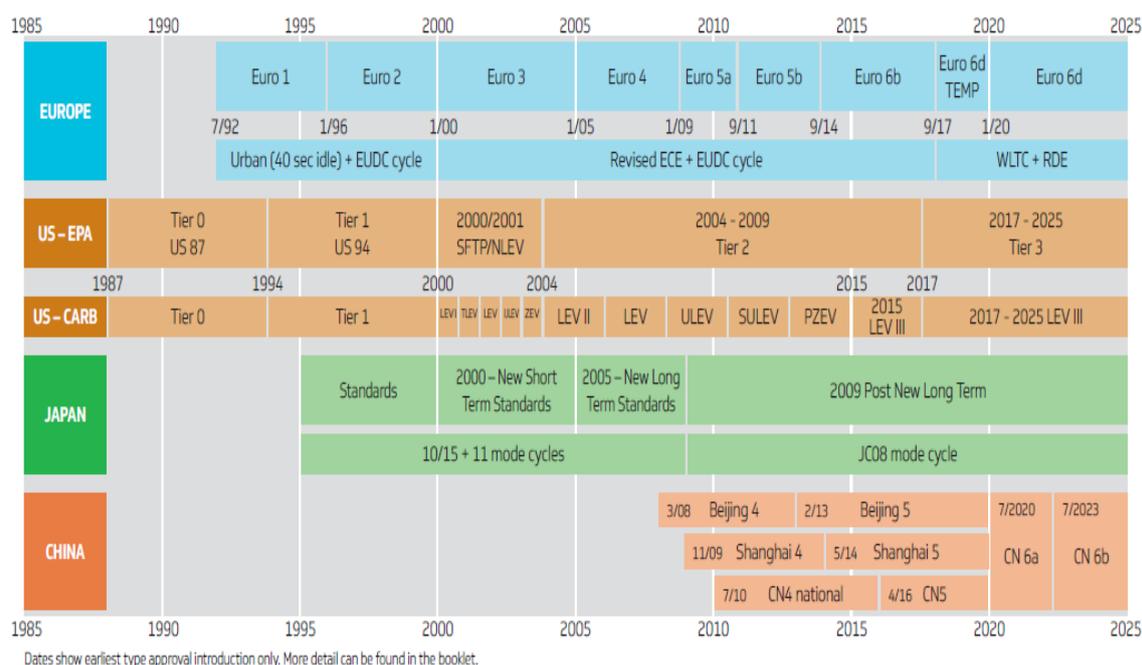


Fig. 1.8 Toxic emissions standards passenger vehicles standards <sup>(1-21)</sup>

自動車の排出ガス規制は、これまで日米欧を中心に、一酸化炭素(CO)、未燃の炭化水素(HC)、窒素酸化物(NO<sub>x</sub>)、粒子状物質(PM)を対象として、各成分の排出量に規制を設け、それを段階的に強化することで大気質を改善してきた。図 1.9 に、ディーゼルエンジンとガソリンエンジンの規制対象物質とそれに対する欧州と米国の規制動向を、それぞれ示す。

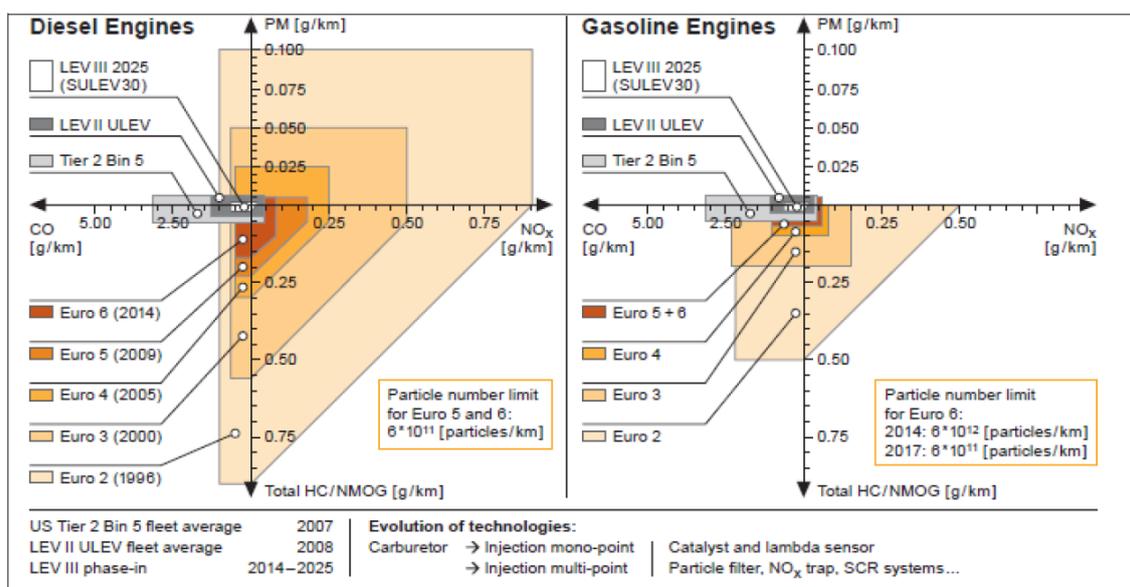


Fig. 1.9 Historical evolution of European emission limits for Diesel and gasoline engines and some US references (1-8)

以下、各々の規制対象物質について、生成起源と影響の観点での、各々の特質を述べる。

(1) 一酸化炭素 / Carbon Monoxide (CO)

内燃機関における一酸化炭素の生成は、空燃比に大きく依存する。空気が少なく燃料が濃い状態でエンジンが稼働している場合、燃焼室内の空気不足により燃料の燃焼(酸化)が不完全となり、一酸化炭素が生成しやすい。また逆に、空気が多く燃料が希薄なところで、火炎が消えてしまう場合(消炎)にも生じる(1-22), (1-23)。一酸化炭素は無臭無色の気体であり、吸入すると血液中のヘモグロビンと結合し、血液の酸素運搬機能を阻害する。そのためさまざまな臓器の機能に影響を及ぼし、頭痛や立ちくらみを引き起こす。高濃度の一酸化炭素を吸引した場合は死に至ることもある(1-22), (1-23), (1-24), (1-25)。

## (2) 炭化水素 / Hydrocarbon (HC)

内燃機関から発生する炭化水素は、CO と同じく燃料の不完全燃焼の結果として生成するものが主だが、エンジンのクランクケースや燃料システムからの、蒸気としての発生もある<sup>(1-22), (1-23)</sup>。炭化水素は定義された単一の化合物を指すものではなく、アルカン( $C_nH_{2n+2}$ )、アルケン( $C_nH_{2n}$ )、芳香族炭化水素(Aromatic Hydrocarbons)など、炭素数の異なる複数の化学種の総称であるため、濃度を扱う際は炭素数1のメタン( $CH_4$ )に換算して示される<sup>(1-22), (1-23), (1-26)</sup>。これら炭化水素のうち、いくつかの化学種は非常に反応性が高く、太陽の紫外線により光化学反応を起こして光化学オキシダント(Ox)に変質することから、光化学スモッグを発生させる原因物質とされている<sup>(1-27), (1-28)</sup>。また多環芳香族炭化水素(Polycyclic Aromatic Hydrocarbons; PAH)は、特に人体への影響が懸念されており、気道の炎症を引き起こす可能性や、がんとの因果関係が懸念されている<sup>(1-22), (1-23), (1-25)</sup>。

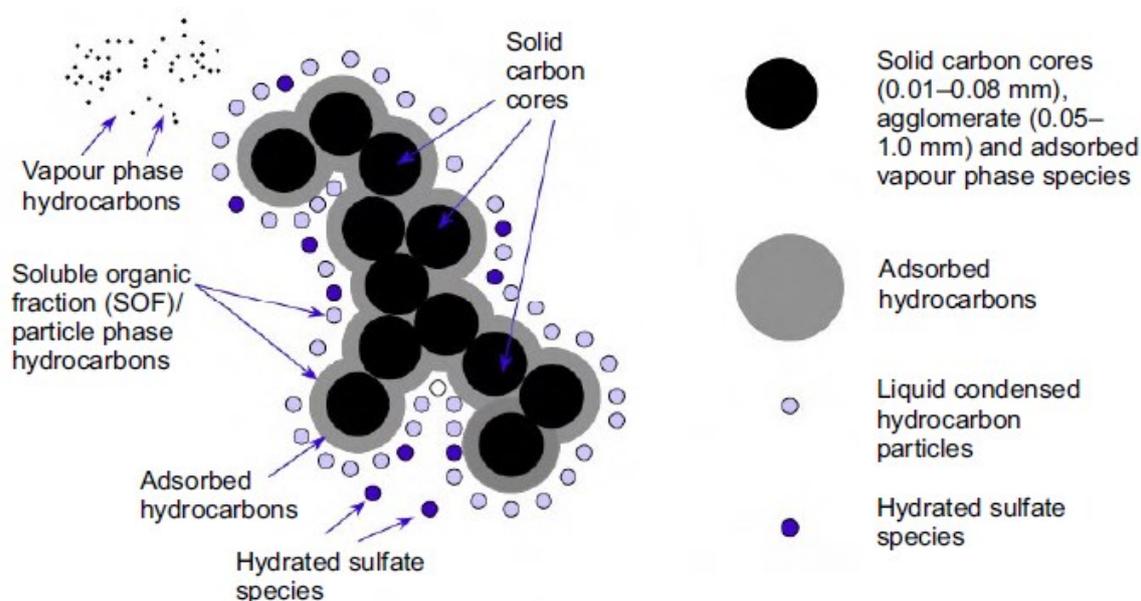
(3) 窒素酸化物 / Nitric Oxide (NO<sub>x</sub>)

一酸化窒素(NO)や二酸化窒素(NO<sub>2</sub>)、亜酸化窒素(N<sub>2</sub>O)など、窒素と酸素の化合物を総称して窒素酸化物(NO<sub>x</sub>)と呼称される。発生源は工場や事業場、自動車、家庭等多種多様ではあるが、基本的にモノの燃焼や化学反応によって生成される。発生源からは大部分が NO としてまず排出され、大気中で酸化されてNO<sub>2</sub>になる場合が多い。NOは無色無臭のガスだが、NO<sub>2</sub>は赤褐色で刺激臭がある<sup>(1-22), (1-23)</sup>。内燃機関で生成されるNO<sub>x</sub>の量は、シリンダー内の最高温度、酸素濃度、および滞留時間に大きく依存する。通常、窒素は燃焼プロセスに関与せず、燃焼プロセス全体を通して未反応のまま排出されるが、シリンダー内の温度が約 1600 °Cを超えると、窒素が酸素と反応してNO<sub>x</sub>が生成される。ほとんどのNO<sub>x</sub>は火炎温度が最大となる燃焼プロセスの初期段階で生成される。NO<sub>x</sub>生成量は燃焼室内の温度と関係があり、100 °C燃焼温度が上昇すると、NO<sub>x</sub>の生成量は3倍増加する<sup>(1-22), (1-23)</sup>。世界の主要都市において、NO<sub>x</sub>排出の主な原因は自動車による道路輸送であり、NO<sub>x</sub>排出量の40~70%を占めている。中でもディーゼルエンジン車が、圧縮点火のためにより高い温度が必要なため、NO<sub>x</sub>排出の主な原因となっている。ディーゼルエンジン起因のNO<sub>x</sub>は、すべての自動車からのNO<sub>x</sub>排出量の約85%を占めている<sup>(1-22)</sup>。これら自動車から排出される大量のNO<sub>x</sub>は、地球環境および健康上の悪影響が顕在化したため種々の対策が取られてきた。NO<sub>x</sub>の排出は、酸性雨、オゾン層の破壊、光化学スモッグの形成に寄与しており、これらは世界のほとんどの主要都市で大きな問題となった。NO<sub>x</sub>は、大気中で他の汚染物質と化学反応を生じ、対流圏オゾン(光化学スモッグの主成分)や他の有毒汚染物質を形成す

る。NOとNO<sub>2</sub>は共に有毒と見なされるが、人間の肺疾患への直接的な影響が懸念されていることから、NO<sub>2</sub>はNOの5倍の毒性とされている。NO<sub>2</sub>は肺を刺激し、インフルエンザなどの呼吸器感染症に対する抵抗力を低下させる可能性がある。またNO<sub>x</sub>は、陸域と水域の両方の生態系に影響を与える可能性がある、酸性雨の重要な前駆物質である<sup>(1-22), (1-23)</sup>。

#### (4) 粒子状物質 / Particulate Matter (PM)

粒子状物質(PM)は、空気中に浮遊する非常に小さな粒子と液滴の複雑な混合物で、内燃機関においては、燃料と潤滑油の不完全燃焼に起因し、燃焼室で生成される。ガソリンエンジンよりも、ディーゼルエンジンからの排出が支配的であり、ガソリンエンジンの10倍となる場合もある<sup>(1-22)</sup>。PMは固体炭素(C)の他に、未燃の燃料や潤滑油に由来する有機溶媒可溶分(SOF)、硫酸塩や硝酸塩、水分、またエンジンオイル添加剤やエンジン摩耗粉などに由来する灰分(アッシュ)、で構成されている<sup>(1-22), (1-29), (1-30)</sup>。エンジンから排出されるPMは、**図 1.10**に示すように、固体炭素の微小粒子がブドウの房状に凝集したものを核として、高沸点のHCなど液体成分が凝縮したもの、として説明される場合が多い<sup>(1-30)</sup>。核を構成する固体炭素は球形粒子で、直径は15~40 nm程度であり、またPMは、90%以上が直径(長さ)1 μm未満と考えられている<sup>(1-22)</sup>。PMの性状は、燃料の品質、筒内での燃焼温度、潤滑油の品質と消費量、排気ガスによる冷却過程、などの要因に影響される<sup>(1-22)</sup>。



**Fig. 1.10 Schematic representation of diesel Particulate Matter (PM) formed during combustion of atomized fuel droplets** <sup>(1-29)</sup>

PM の核となる固体炭素(スート)の形成過程については、いまだに不明な点が多いものの、近年の研究でその一端が明らかになってきている。図 1.11 にその概念図を示す。

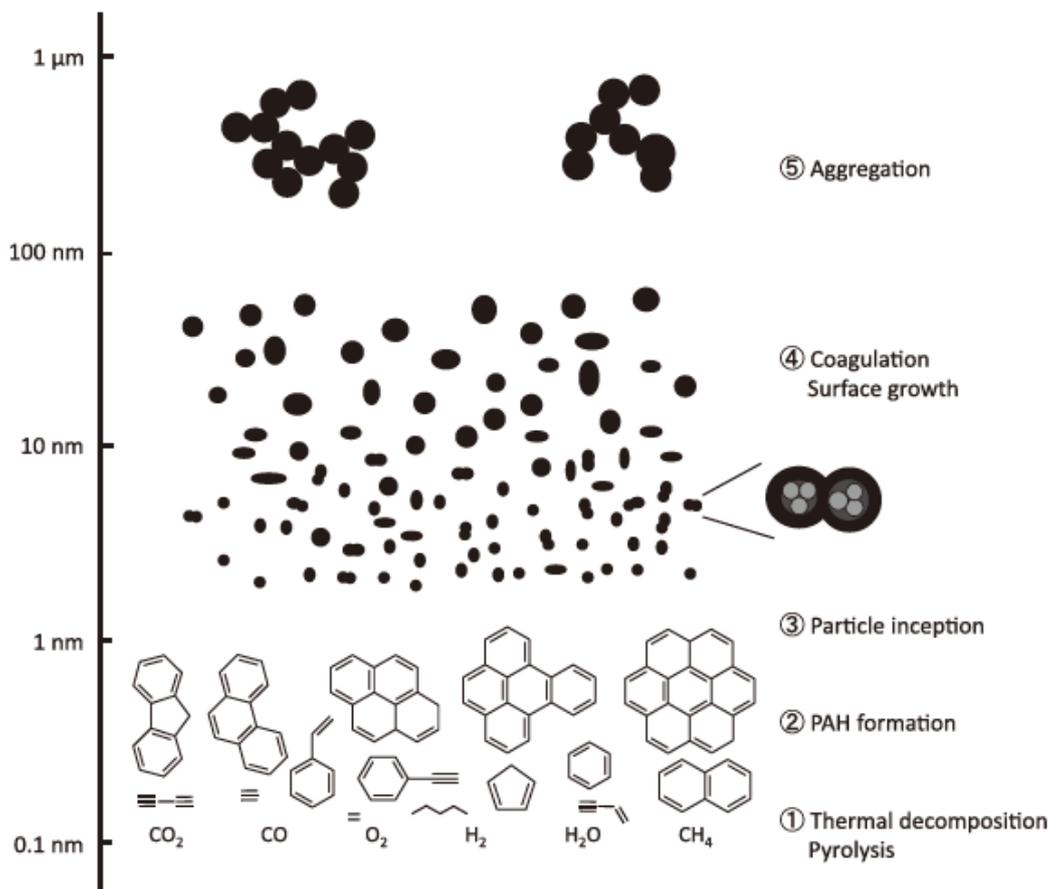


Fig. 1.11 Schematic diagram for soot formation in premixed flames (1-31)

スートの形成過程は、①酸素不足の高温場において、炭化水素燃料が熱分解し、アセチレンなどの低級炭化水素を生成、②それが高温反応場で芳香環を形成、さらに多環化し、多環芳香族炭化水素 (PAH; Polycyclic Aromatic Hydrocarbons) を生成、③サブ nm サイズの核形成 (Particle Inception)、④表面成長や脱水素反応が進行することで固体化し (Coagulation)、数 nm サイズの粒子を形成、それらが付着していき、数十 nm サイズの粒子を形成、⑤それら球状粒子が凝集 (aggregation) し、ブドウの房状のサブ  $\mu\text{m}$  サイズの粒子が生成する、というような過程で説明されている(1-31)。

上記スートを核として形成される PM は、地球環境への影響や、またこれら微粒子を吸い込むことによる人体へ悪影響 (喘息, 肺がんなど) を及ぼす可能性がある、として懸念されている(1-22)。

PM の中でも、特にマイクロメートルオーダー以下の微小粒子は大気中に長時間浮遊し続ける傾

向があるため、呼吸により体内に侵入し、深刻な肺機能障害や、肺気道内への沈着による各種呼吸循環器疾患、および細胞のがん化などとして、人体に悪影響を及ぼす可能性が指摘されている<sup>(1-32)</sup>。また小粒径ほど体内の奥深くへ侵入しやすく、特にナノオーダーの極微小粒子は肺の深部にまで到達しうることが指摘されている<sup>(1-33)</sup>。図 1.12 に、ディーゼルエンジンから排出される PM の典型的な粒子径分布を示す。

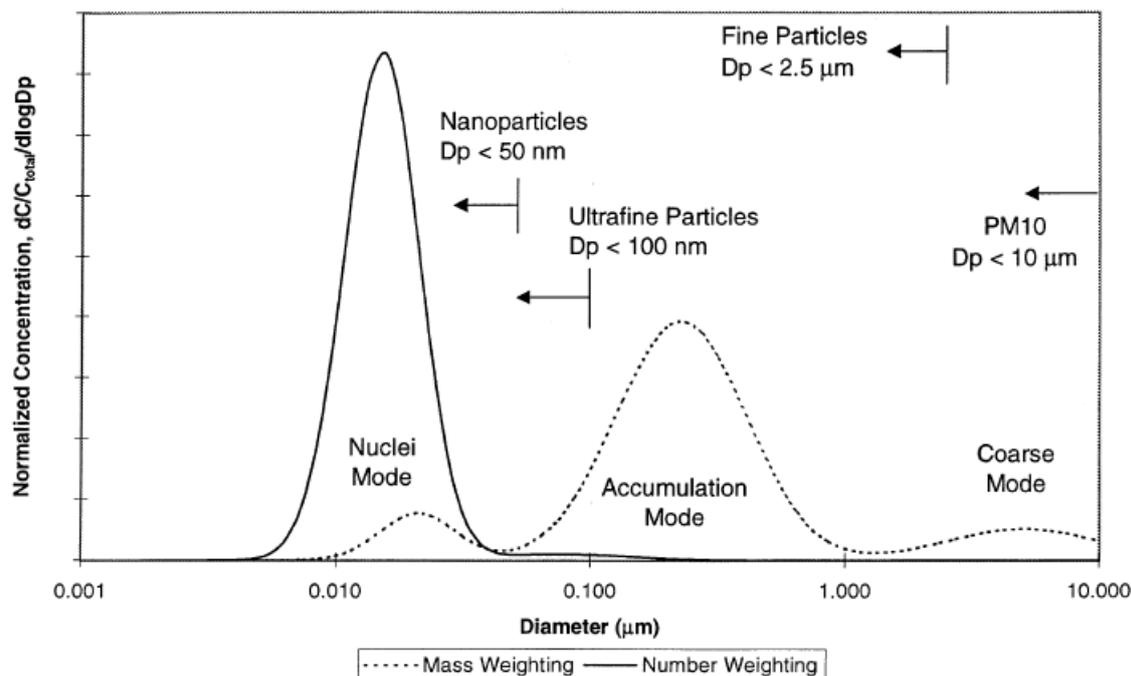


Fig. 1.12 Typical engine exhaust size distribution both mass and number weightings <sup>(1-34)</sup>

PM は平均粒径と分布幅が異なる 3 つの分布の複合粒子群であり、それぞれの分布は対数正規分布に近い形をとる。それぞれの分布はその形成過程から、小粒径側から順に、それぞれ核生成モード(Nuclei Mode)、凝集モード(Accumulation Mode)、粗大モード(Coarse Mode)と呼ばれる<sup>(1-34)</sup>。核生成モードは通常、粒径が 5~50 nm の粒子で構成されており、その成分は金属化合物(アッシュ分)、固体炭素、エンジン排出ガスの希釈及び冷却過程で形成される揮発性有機物およびサルフェートである。またこのモードの粒子は、質量ベースでは全体の 20%以下の割合に過ぎないものの、粒子数ベースでは全体の 90%以上を占めている。一方凝集モードは通常、粒径が 100~300 nm 程とされており、図 1.10 のような PM およびその吸着物質で構成される。また質量ベースで見た場合、大部分がこの凝集モードの粒子となる。また 2.5 μm 超の粗大モードには粒子質量の 5~20%が含まれるが、これはシリンダーや排気システムの配管内壁などに一度堆積し、その後再飛散した粒子で構成される<sup>(1-34)</sup>。

内燃機関から排出されるPMは、1990年代より、主に排出量の多いディーゼルエンジン車を対象に規制され、また段階的に規制レベルが強化されてきた。それに伴い、内燃機関排出後の微粒子を浄化する後処理装置、微粒子捕集フィルタ(Particulate Filter; PF)が、規制対応技術として開発され、普及してきた。ディーゼルエンジン車からの(テールパイプ出口での)PM排出量は、ディーゼル車用の微粒子捕集フィルタ(Diesel Particulate Filter; DPF)の普及とともに大幅に減少し、むしろ車両単体では直噴型のガソリンエンジン車の方が相対的に多くなってきているため、近年ではガソリン車のPM排出実態が注目されている<sup>(1-35)</sup>。

大気汚染の分野では、50%分離径 $10\ \mu\text{m}$ 以下の粒子をPM10、50%分離径 $2.5\ \mu\text{m}$ 以下の粒子をPM2.5と呼ばれており、年代を追って順に制定されてきた。国内ではPM10の制定よりも古くから、粒径 $10\ \mu\text{m}$ 以下の粒子をSPM(Suspended Particulate Matter; 浮遊粒子状物質)として、PM10に代わって環境基準が制定されていた<sup>(1-36)</sup>。近年、PM2.5の中でも特に粒子径が $100\ \text{nm}$ 以下の粒子(ナノ粒子)に注目が集まっている。ナノ粒子は一度呼吸などで体内に侵入すると、肺胞に沈着する割合が高く、なかなか排出されないことや、肺胞より血液へ取り込まれ全身に運ばれうるため、その健康影響が懸念されている<sup>(1-36)</sup>。

PMは、他の規制対象のガス成分と異なり、物性が特定できる標準物質が存在しない。したがってPMに対する規制は、計測技術の開発とともに、計測の対象と方法が規定され、規制レベルが強化されてきた<sup>(1-37)</sup>。最初は排出粒子の質量(Particle Mass)を規制対象とした。これはPMを、既定の専用設備において、希釈したエンジン排出ガスを $47\pm 5\ ^\circ\text{C}$ で専用フィルタに通したときに捕集される物質、として定義し、規制対象としたものである<sup>(1-37)</sup>。図1.13に計測に用いる設備の模式図を示す。

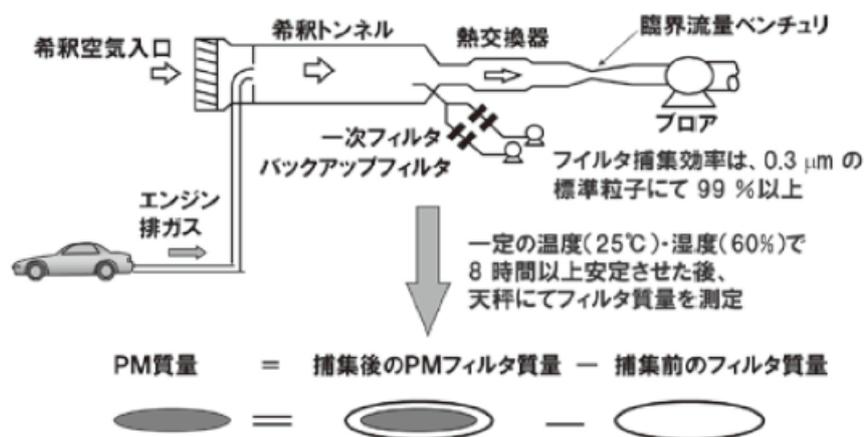


Fig. 1.13 Schematic diagram of Particulate Mass (PM) measurement system <sup>(1-37)</sup>

ディーゼル車の排気中の微粒子の量(質量)は、上記重量規制により劇的に改善されたものの、今度は欧州を中心に、より人体への影響度が大きい超微小粒子(Ultrafine Particle)の排出抑制を図るため、粒子径の視点を規制に加味すべき、との意見が聞かれるようになった<sup>(1-37)</sup>。これが背景となり、国連の欧州経済委員会(UN-ECE)の下に PMP(Particle Measurement Programme)が組織され、その活動の結果として提案されたのが、固体粒子数(Particle Number; PN)計測システムである。図 1.14 に、PMP 法による固体粒子数計測システムの概略図を示す<sup>(1-37)</sup>。

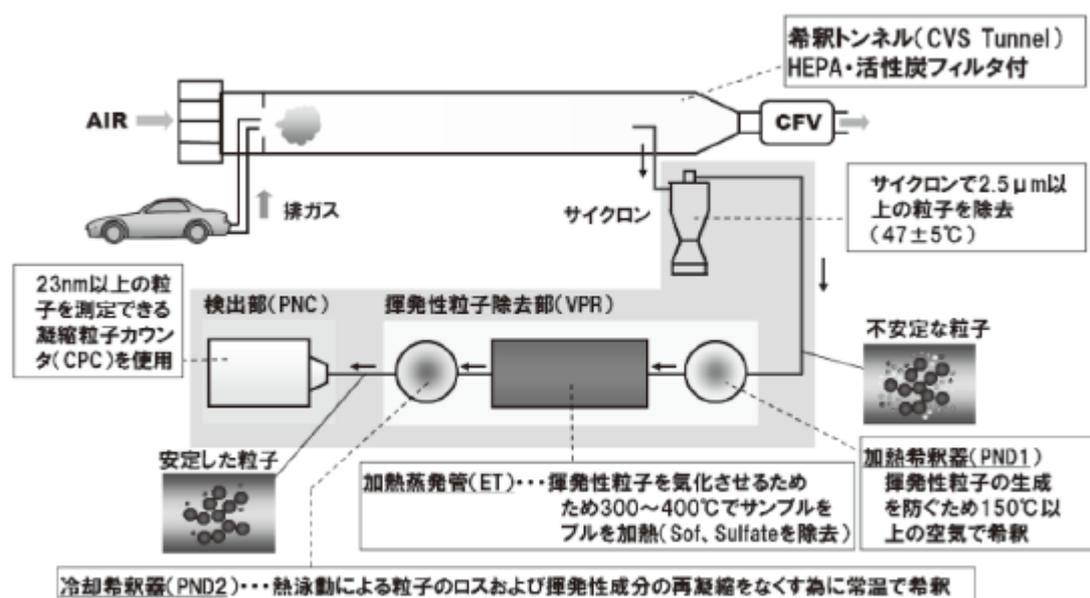


Fig. 1.14 Schematic diagram of Particulate Number (PN) measurement system <sup>(1-37)</sup>

粒子状物質(PM)に対する規制は、現在、欧州を中心に粒子数(PN)に対しても規制が掛けられるようになってきており、また欧州以外でもPN規制の導入の動きが広がっている。またディーゼル車だけでなく、ガソリン車へも規制が掛けられるようになってきており、ガソリン車用のPFであるGPF(Gasoline Particle Filter)の採用も増えてきている。

上記のPN計測システムは、前段の分級器で2.5 μm以上の粗大粒子を取り除き、蒸発管で揮発成分を蒸発させた後、残った固体粒子を検出下限23 nmの凝集粒子カウンタ(Condensation Particle Counter; CPC)で計数している<sup>(1-37)</sup>。したがって、粒子径23 nm以上(～2.5 μm以下)の固体粒子に焦点を当てたもの、と言える。一方で近年、23 nm以下のさらに微小な固体粒子に対する規制方法の議論もなされており<sup>(1-35)</sup>、今後の動向が注目される。

ここまで、内燃機関に対する排ガス規制の動向と、規制対象物質の特質を述べてきたが、電動化の流れの中で、Tank-to-Wheel ではあるものの、BEV や FCEV は有害物質を排出しない、といった点を考慮すると、同等にクリーンなレベルが内燃機関に対しても求められてくる、と想定される。

動力源として引き続き内燃機関が優位、あるいは置き換え困難な用途も想定されることから、適材適所の有効な選択肢として内燃機関を手札とし続けるためには、ゼロエミッション実現が非常に重要となる。そこで次項では、その実現に重要な排出ガス後処理装置の技術について述べる。

### 1.1.3 排出ガス後処理装置技術の概要

内燃機関の排出ガス後処理技術は、1970年代のガソリンエンジン車に対する排出ガス規制の導入に端を発し、自動車の排出ガス規制に合わせて進化してきた。規制が設定された当初はCOとHCのみが規制対象であったため、白金(Pt)やパラジウム(Pd)等の貴金属を用いた酸化触媒や、サーマルリアクターによる2次燃焼装置などが開発され、使用された<sup>(1-19), (1-20)</sup>。その後NO<sub>x</sub>が規制対象に加えられ、希薄燃焼などで対応してきたが、北米で企業別平均燃費規制(CAFE規制)が開始されると、エミッション性能と燃費性能の両立が困難となり、結果ガソリン車の排出ガス処理装置は、理論空燃比付近で十分な触媒温度を維持して作動させられる限りCO, HC, NO<sub>x</sub>を同時に浄化でき、かつ燃費も犠牲とならない、優れた性能を持つ三元触媒(Three Way Catalyst: TWC)に収束していった<sup>(1-19), (1-20)</sup>。

一方でディーゼルエンジン車は、希薄燃焼のため三元触媒を使うことができない<sup>(1-23), (1-38)</sup>。そのため、ディーゼルエンジン車に対しては長らくNO<sub>x</sub>排出量の規制値がガソリンエンジン車と比較して高く設定されてきた。NO<sub>x</sub>排出量の低減はエンジン本体側の改良で対応しつつ、排出ガス後処理装置としてHC, COを低減する酸化触媒(Diesel Oxidation Catalyst; DOC)及び、PMを捕集除去する粒子捕集フィルタ(Diesel Particulate Filter; DPF)の開発が進められた。その後、ディーゼルエンジン車に対するNO<sub>x</sub>排出量の規制値も段階的に強化され、対応して車載用のNO<sub>x</sub>選択還元浄化装置(Selective Catalytic Reduction; SCR)が開発され、適用されてきた<sup>(1-23), (1-38)</sup>。図1.15に、典型的なディーゼルエンジン車用の後処理装置システムのレイアウトを示す。排ガス規制対応に多様な装置が必要のため、複雑なシステム構成となっており、システムのコンパクト化が求められている。

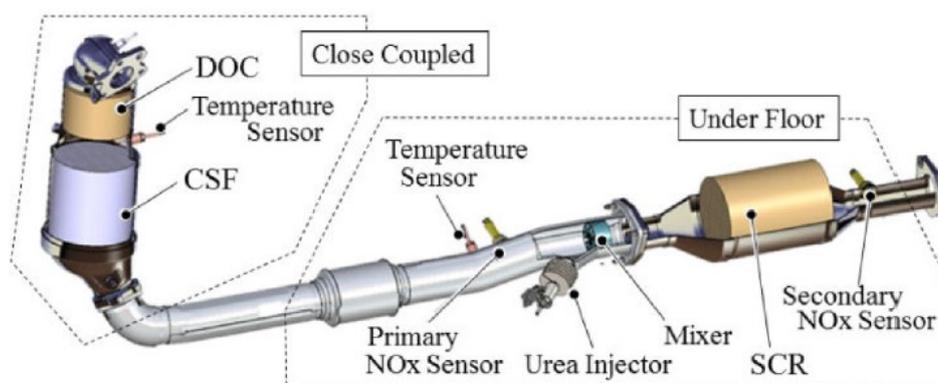


Fig. 1.15 Typical layout of after-treatment system for diesel engine  
(CSF; Catalyzed Soot Filter) <sup>(1-39)</sup>

本論文では、後処理システム全体のコンパクト化を考える際に、単一で大きな容積を占めることと、SCR との機能統合など多機能化の余地を持つことから、その影響度が大きいと考えられる粒子捕集フィルタ (Particulate Filter; PF) に着目し、その技術課題である PF へのアッシュ堆積を、特に研究対象とした。次項より、粒子捕集フィルタの概要と課題について述べる。

### 1.1.4 粒子捕集フィルタ(PF/DPF)の概要と課題

粒子捕集フィルタ(Particulate Filter; PF)は、内燃機関からの排出ガスに含まれる粒子状物質(PM)を捕集除去するための、排出ガス後処理装置である。PF はセラミック製の多孔質ハニカム構造体で、入口と出口が交互に目封じされ、PM を含むガスが多孔質の基材 Wall 部を通過(透過)するようになっており、その際に排出ガスに含まれる PM が捕集される。通常運転中は排出ガス中に含まれる PM を濾し取って捕集する一方で、PF 前後差圧等により一定量 PM が堆積したと判断すると、PF を昇温し、高温酸化雰囲気にて堆積した PM を酸化除去する(再生運転)。PM に含まれる固体炭素(カーボン)の酸化には一般に 600 °C前後の高温が必要となるため、PF には高い耐熱性が求められる。PF の基材材料は、耐熱性が高いものから、炭化ケイ素(Silicon Carbide; SiC)、チタン酸アルミニウム(Aluminum titanate; AT)、コーゼライト(Cordierite; Cd)などがあり、各社のシステムに応じてそれぞれ採用されている。図 1.16 に粒子捕集フィルタの概略を示す。

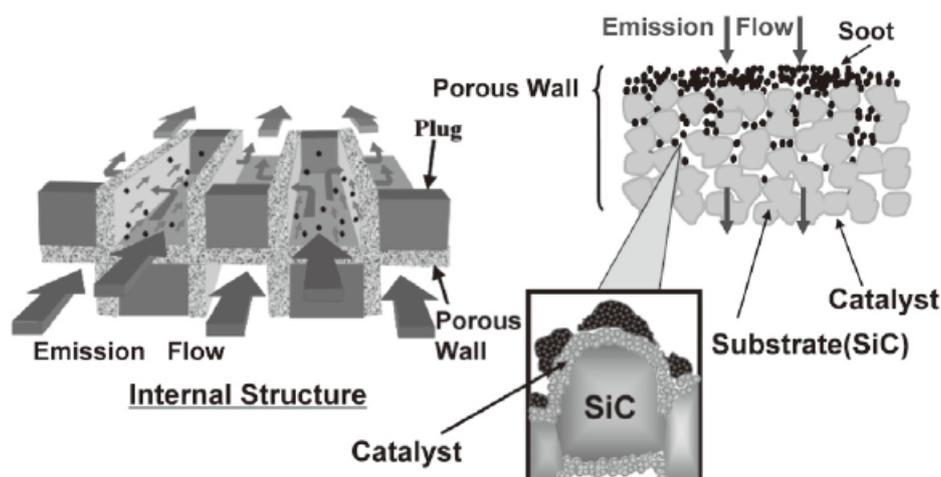


Fig. 1.16 Schematic representation of Particulate Filter <sup>(1-40)</sup>

ディーゼルエンジン用の粒子捕集フィルタ(PF), DPF(Diesel Particulate Filter)は、ガソリン車と比較して寄与度が大きかったディーゼル車のPM排出削減を目的に各国で導入されたPM規制対応のために開発され、搭載されるようになった。基材にはPM酸化を促進するため、Ptを主な活性成分とする触媒が担持される場合が多い。最近ではDPF基材にSCR触媒を担持し、一部NO<sub>x</sub>の浄化も担うシステムも開発されているが、NO<sub>x</sub>浄化に対するPM堆積の影響など未解明な部分も多く、引き続き研究開発が続けられている。図 1.17 に DPF を搭載したディーゼル(CI)エンジンシステムの例を示す。

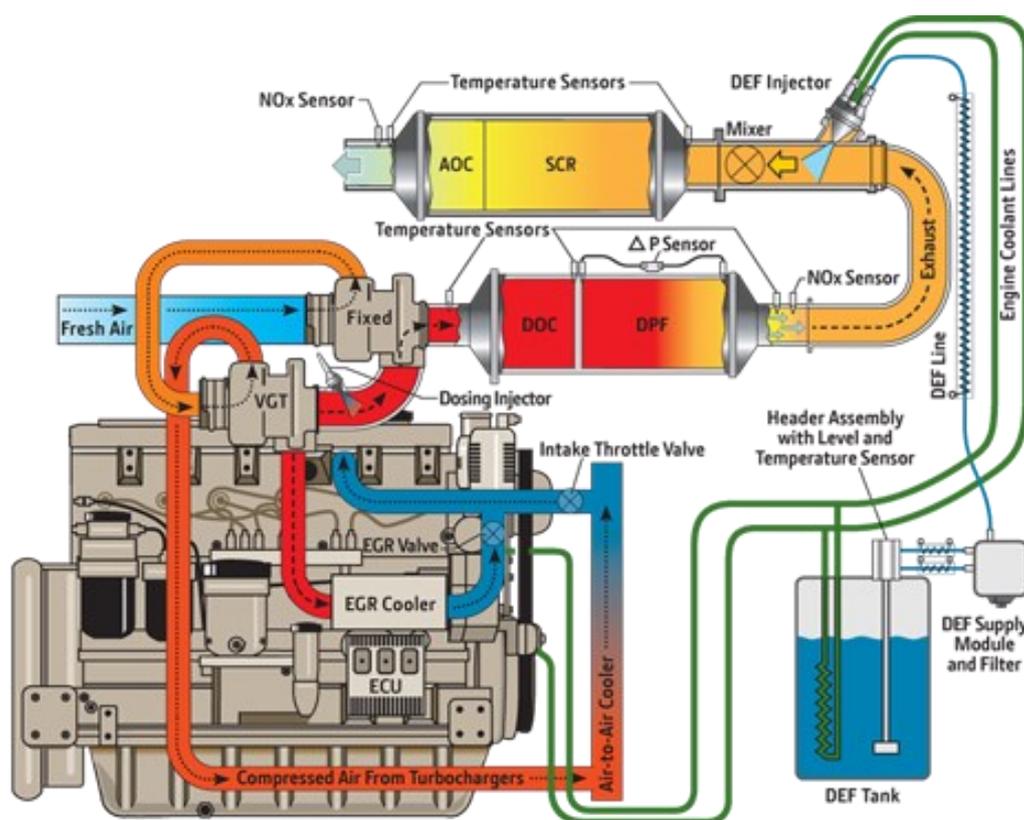


Fig. 1.17 Schematic representation of Particulate Filter system installed on CI engine <sup>(1-41)</sup>

DPF 内に堆積したスート(固体炭素)は、連続再生(Passive regeneration),あるいは強制再生(Active regeneration)のいずれかにより酸化除去される。ここで連続再生は、低温(200 °C~)での NO<sub>2</sub> によるスート酸化を意味し、強制再生は高温(500 °C~)での O<sub>2</sub> によるスート酸化を意味する<sup>(1-22), (1-23), (1-38), (1-42)</sup>。NO<sub>2</sub> によるスート(C)酸化反応と O<sub>2</sub> によるスート(C)酸化反応は、以下の総括反応式で表される。



この DPF の再生(スート酸化)を促進するため、一般的なシステムでは DPF の上流側には酸化触媒(DOC)が設置されており、ここに HC(燃料)を供給することで、ガス温度を昇温する。DOC への HC の供給は、エンジン筒内のインジェクタ,あるいは排気管に設置したインジェクタから排ガス中へ噴霧することで実施される。また連続再生に必要な NO<sub>2</sub> の生成を DOC が担っている場合が多い。

ガソリンエンジン車に対しては、粒子捕集フィルタ(PF)を要する規制は長らく設定されていなかったが、直噴ガソリンエンジンが登場すると共に設定されるようになった<sup>(1-43), (1-44)</sup>。2014年に施行された欧州 Euro6b 規制にて、ガソリンエンジン車に対する粒子数(PN)規制が初めて導入されたが、エンジン側のみでの対応が困難であり、ガソリン車用の PF, Gasoline Particulate Filter (GPF)が開発された。現在、中国やインドにおいても PN 規制の導入が検討されており<sup>(1-8)</sup>、今後も内燃機関への PF の搭載割合は増加していくと予想されるが、理論空燃比付近で運転されるガソリンエンジンにおいては、排出ガス中に酸素がほとんど存在しないため、堆積 PM をいかに酸化除去するかが、課題の一つとなっている。

PF へ流入する PM には、主成分となるスート(固体炭素)の他に、未燃の燃料や潤滑油に由来する有機溶媒可溶分(SOF)、硫酸塩や硝酸塩、水分、またエンジンオイル添加剤やエンジン摩耗粉などに由来する灰分(アッシュ)があることは既に述べたが、このうち不燃性の金属成分残留物であるアッシュは、PF の再生運転では除去できない。クリーニングや交換をしない限り、エンジンの稼働時間が進むにつれて不可逆的に蓄積されていき、PF の性能変化や圧損上昇を引き起こす。一般的な DPF システムでは、PF への PM 堆積量を PF 前後の圧力損失から推定している場合が多いが、この場合 PF へのアッシュ堆積による圧損上昇は、外乱因子として PM 堆積量の推定を誤認識させる可能性があり、その場合、強制再生の頻発に繋がり得る。また、PF の圧力損失上昇は、エンジン排圧を上昇させ、出力・燃費の低下を引き起こす。このため、アッシュ堆積が PF の性能や圧損に及ぼす影響を制御し軽減するための方法を理解しておくことは、システムのロバスト性確保や、システムのコンパクト化を考えるうえで不可欠と考えられる。しかしながら、アッシュは堆積に非常に長い時間がかかり、またその間の運転条件で堆積形態が大きく変化するうえに、加速堆積させるとそれによる堆積形態の変化も考慮が必要のため<sup>(1-42)</sup>、これまでに多くの研究がなされてきたにも関わらず、まだまだ不明な点が多い。したがって、ディーゼルエンジン用の DPF、ガソリンエンジン用の GPF 共に、アッシュ堆積の現象解明と、堆積影響の把握は、引き続き重要な研究課題となっている。

以上より本論文では、今後も重要な技術と考えられる PF に着目し、その技術課題であるアッシュ堆積の現象解明とモデリングを、研究の主題とすることとした。

## 1.2 先行研究

本節では、PF (Particulate Filter), 特に市場実績や研究開発が先行している、DPF (Diesel Particle Filter) 堆積アッシュの生成過程とその堆積影響に関する先行研究について述べる。

### 1.2.1 DPF 堆積アッシュの形成過程

#### (1) アッシュの供給源

図 1.18 に、DPF 堆積アッシュの典型的な供給源と各寄与率を概念的に示したフローチャートを示す。API CJ-4 エンジンオイルで、US-LSD 燃料を使用するディーゼルエンジンを想定している。

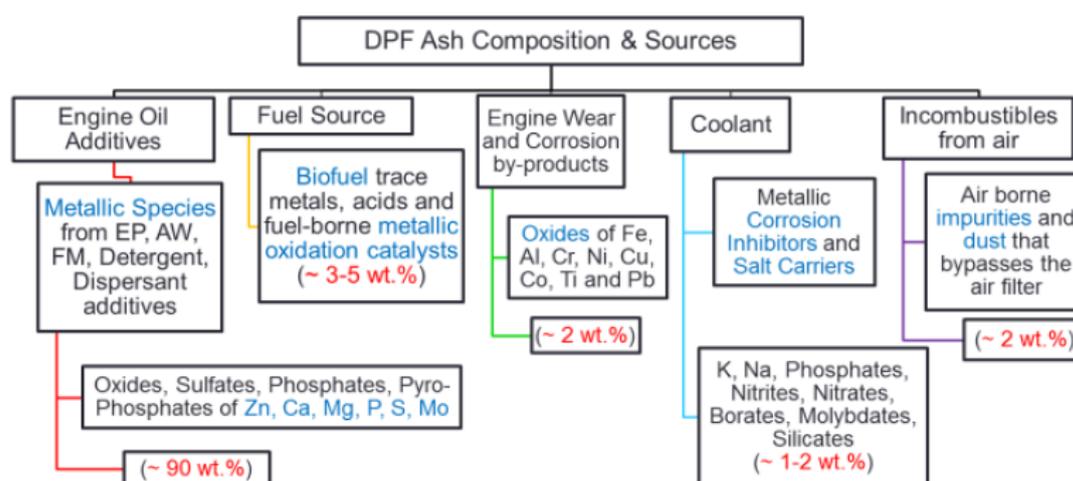


Fig. 1.18 Flowchart representing the origin of DPF ash sources (1-45)

通常、アッシュはそのほとんどがエンジンオイル中の金属成分、具体的には清浄分散剤として添加されている Ca および Mg 化合物や、耐摩耗性向上・極圧剤・酸化防止剤として添加されている Zn 化合物 (Zn-DTP) など、に由来すると考えられている<sup>(1-42), (1-45)</sup>。エンジンの摩耗や腐食による副生成物、燃料中の金属成分、クーラントやその他吸気中のダストなどの寄与度は一般的には低いと考えられているが、燃料添加触媒 (FBC; Fuel Born Catalyst) など燃料中に金属成分が含まれている場合や、またバイオディーゼル燃料の場合には、燃料の消費量はオイルの消費量と比べて格段に多いため、仮に含有量がわずかであっても、アッシュ生成への寄与度が大きくなる可能性がある<sup>(1-42), (1-45)</sup>。

エンジンオイル中の金属成分は、オイル消費のメカニズムによって排気系へ排出され、PF へ流入すると考えられる。エンジンでのオイル消費の主要メカニズムを図 1.19 に示す。(a)ピストンリ

ング周りからの油滴の輸送, (b)シリンダーライナー壁面の残存油膜からの蒸発, (c)ブローバイガスとしての排出, の3つと考えられている<sup>(1-42)</sup>.

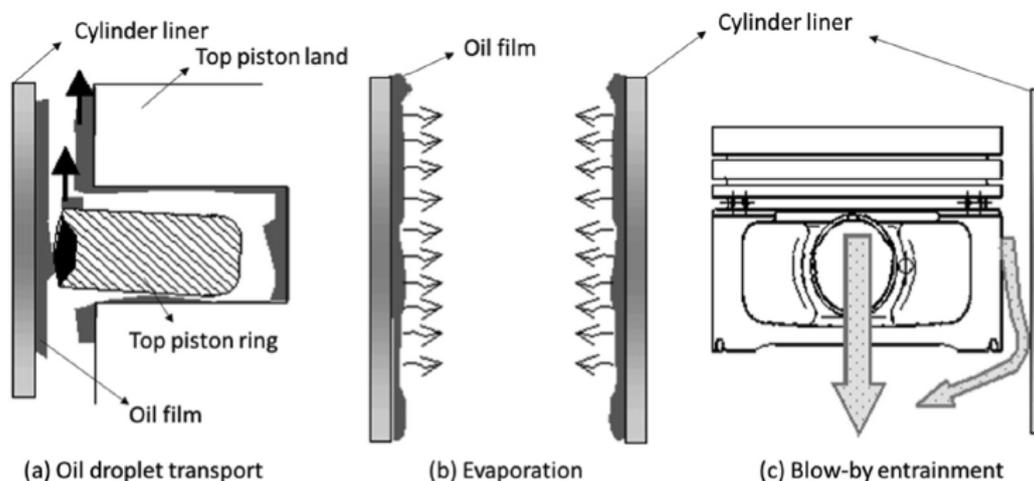


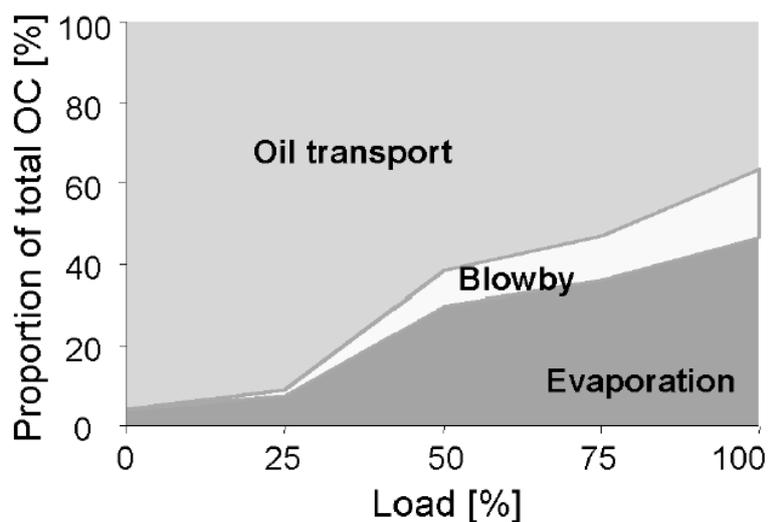
Fig. 1.19 Predominant lubrication consumption mechanisms in an engine <sup>(1-42)</sup>

(a)の油滴の輸送は, ピストンランドと燃焼室との間の圧力差に起因して発生すると考えられている. 圧力差が大きい場合にオイルミストが燃焼室に噴射され, そこで金属成分を含む油滴が燃焼し, アッシュの前駆体を生成する. これが排出ガスの流れに乗って燃焼室から排出され, PF へ流入することになる<sup>(1-42)</sup>.

(b)の蒸発メカニズムは, シリンダーライナー壁面上の薄い油膜からの蒸発を指す. オイル中の金属成分はほとんど蒸発しないため, このメカニズムで排気系へ排出されるアッシュ分は非常に少ないと考えられている<sup>(1-42)</sup>.

(c)のブローバイによる排出メカニズムは, ピストンリングの合口隙間等からクランクケース室に漏れ出てきたオイルミストを含むブローバイガスを, 吸気マニフォールドに再循環させた場合, 燃焼室で燃焼してから排気系へ排出されるため, (a)のメカニズムと同様に, アッシュの前駆体を生成する<sup>(1-42)</sup>. しかしながら, ブローバイガスそのものの量は一般的に低くなるように設計されることから, このメカニズムで排気系へ供給されるアッシュ分はそれほど多くないと考えられる.

図 1.20 に, ガソリンエンジンにおける, エンジン負荷とオイル消費に占める各メカニズムの寄与度の解析結果<sup>(1-46)</sup>を示す.



**Fig. 1.20 Effect of engine load on the different oil consumption sources to total oil consumption at 3500 rpm for the baseline oil <sup>(1-46)</sup>**

これよりエンジン負荷が低いほど、(a)の液滴輸送が支配的になることが分かる。液滴輸送の場合、排気系へのアッシュ分の排出が多くなると考えられることから、この解析結果より軽負荷運転ほどオイル消費量に対するアッシュ分の排出量の割合は多くなる、と考えられる。これは硫酸灰分から計算される Sulfated Ash 量に対する実際に PF へ堆積していたアッシュ量の比、Ash Finding Ratio が、アイドル運転時は高く、高負荷運転時は低い、という観察結果とも一致している<sup>(1-46)</sup>。

## (2) アッシュ 1 次粒子の形成過程

排気系へ排出されるアッシュの主要な生成メカニズムは、ここまで述べてきた通りエンジンオイル中の金属系添加剤に由来し、主にピストンリング周りから燃焼室へ放出された金属成分(アッシュ分)を含む油滴の燃焼によるもの、と考えられる。

油滴の燃焼からアッシュの 1 次粒子を形成するまでのメカニズムは、未だに不明な点が多いが、油滴の燃焼に伴いアッシュ分が気相化合物へ変換され、排気工程で希釈及び冷却される過程で 5~50 nm の核形成モード(図 1.12 参照)の粒子を形成し、それが単独で浮遊、または周囲のスート粒子に凝集する、という可能性が考えられている。核形成モードの粒子形成は、核形成種の濃度とその過飽和度に影響されるため、排出ガスが希釈及び冷却される際に、十分な濃度で存在する揮発性前駆体が過飽和となり、核形成および成長する可能性がある」と指摘されている<sup>(1-47)</sup>。多くの場合、排出ガス中にはスート粒子が含まれているため、アッシュはスート粒子に凝集する形で排出されるが、スートに対してアッシュ分の比率が十分に高い場合は、凝集表面がないため、スート粒子へ凝集せず、アッシュ単独でナノ粒子を形成する<sup>(1-47)</sup>。エンジンの摩耗や腐食による金属ナノ粒子は、通常(アイドル状態ではない)エンジンの運転条件においては、スートとは別にアッシュ単独で粒子を形成しているという報告もある<sup>(1-48)</sup>。

アッシュ単独で粒子を形成している場合と、スート粒子と共に凝集体を構成している場合の DPF 上流側でのアッシュの様子(TEM 画像)の例を、図 1.21 に示す。

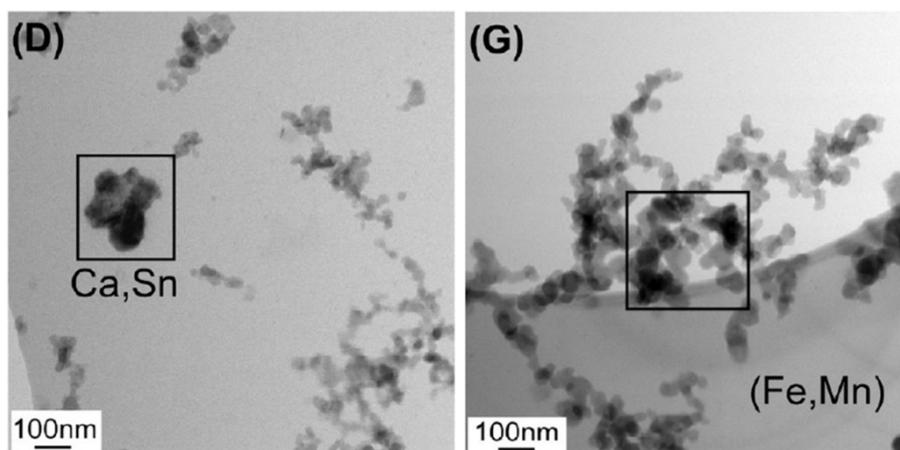


Fig. 1.21 Bright-Field STEM images of upstream of the DPF showing thin soot agglomerates with no (D) or very little (G) ash <sup>(1-49)</sup>

また、エンジン排出粒子の粒子径分布の例を図 1.22 に示す。アッシュ分を主とする濃度ピークと、スート分を主とする濃度ピークを持つ双峰性分布となっており、アッシュ分を主とする濃度ピークは、ディーゼル・ガソリン共におよそ 10 nm となっている。

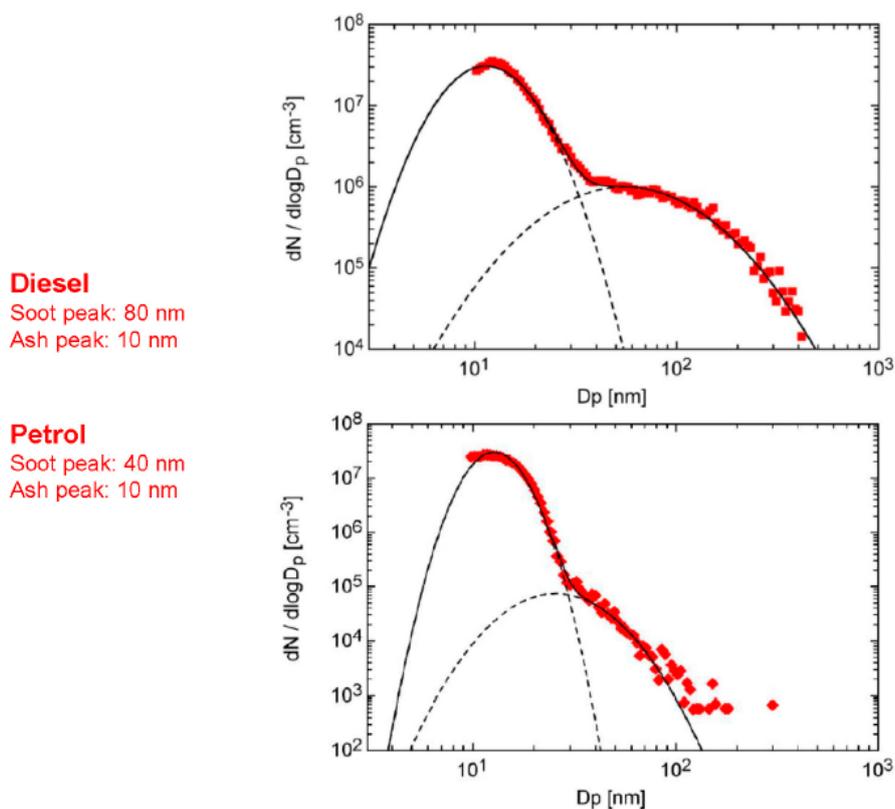


Fig. 1.22 Particle emissions from ICE; Diesel (top) and Petrol (bottom) engine (1-50)

また、アッシュ分を主とする濃度ピークの粒子径は、運転条件によって変化することも指摘されている。図 1.23 に、50 km/h 走行時とアイドル運転時におけるエンジン排出粒子の粒子径分布の例を示す。50 km/h 走行時はアッシュ粒子径 10 nm 程度であったものが、アイドル運転時には 30 nm 程度に変化していることが分かる(1-51)。

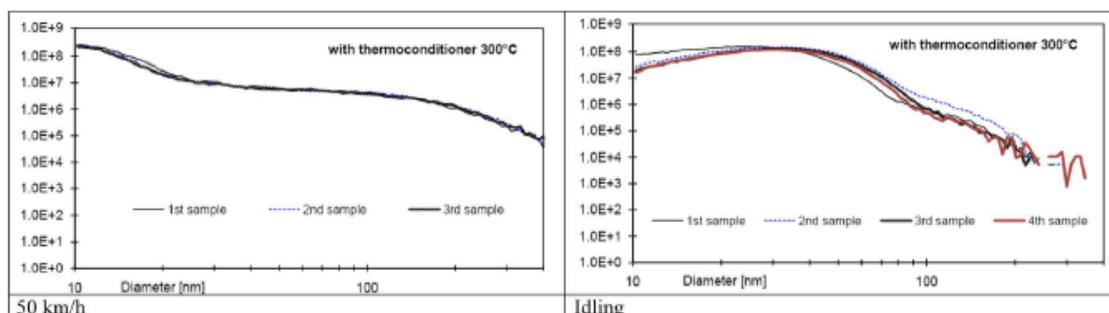
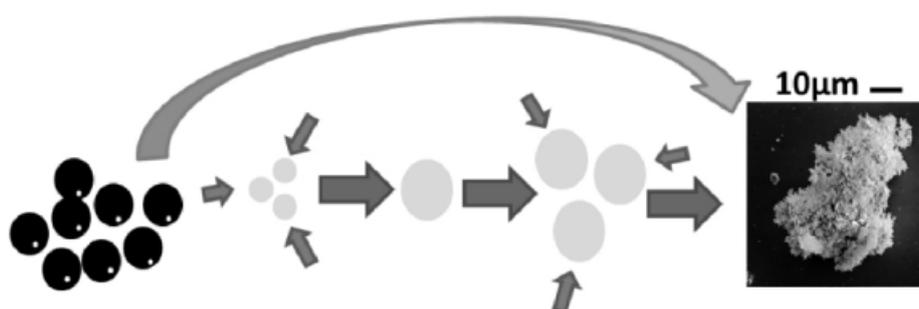


Fig. 1.23 Particle emissions from Car; Renault R18 (1-51)

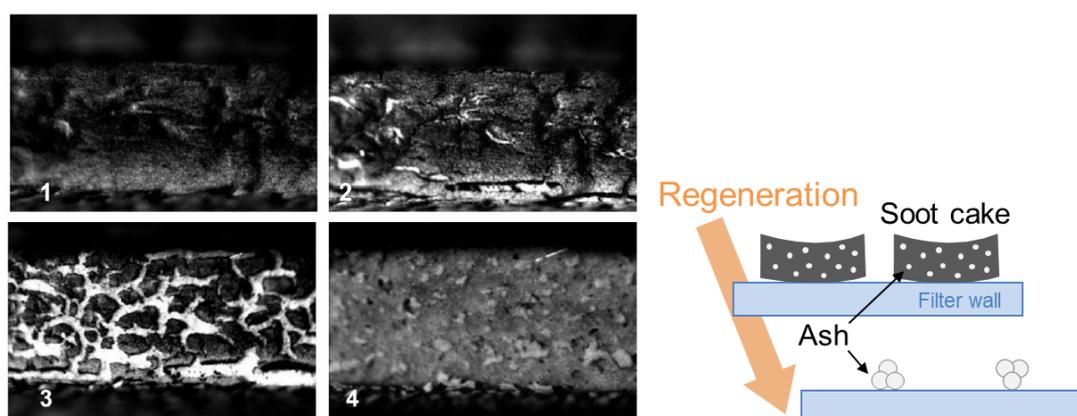
## (3) アッシュ 2 次粒子の形成過程

DPF 流入段階のアッシュは、多くはスート 2 次粒子に付着する形で流入し、先に述べた通りその粒子径(1 次粒子径)は 10~30 nm 程度、と考えられる。一方、長時間稼働後の DPF へ堆積している再生履歴を経たアッシュは、DPF 再生等でスートが酸化消失する際に、スートに付着していた 1 次粒子同士が、スートの収縮と酸化熱の影響で凝集・焼結し、形成されていると考えられる<sup>(1-52), (1-53)</sup>。DPF 上でのアッシュ粒子成長過程の模式図を図 1.24 に示す。



**Fig. 1.24 Schematic diagram depicting the growth process of ash particles and agglomerates (Black: Soot agglomerates, Gray: Ash particle)**<sup>(1-52)</sup>

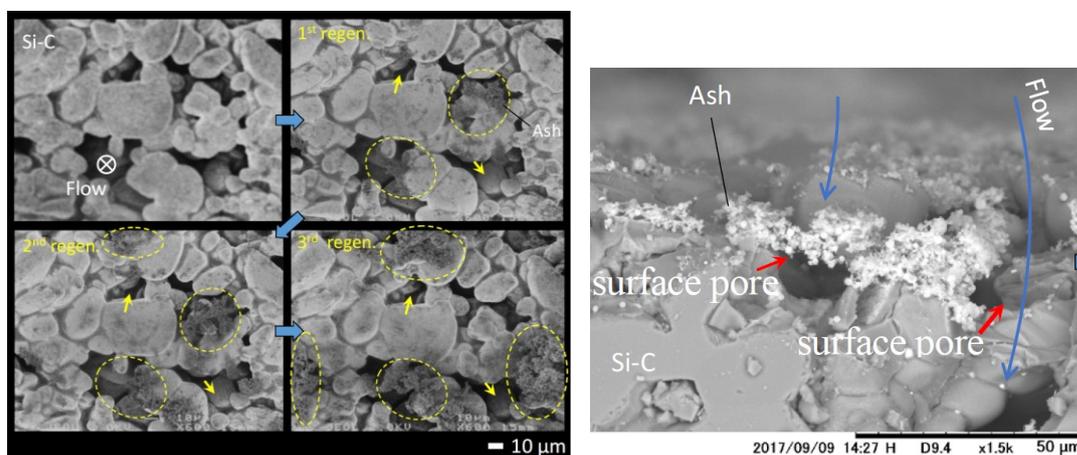
DPF 再生時の、アッシュ 1 次粒子を含むスート堆積層の酸化消失と、スート消失後に Wall 上に残存するアッシュ 2 次粒子の様子を、図 1.25 に示す。



**Fig. 1.25 Time lapse images of soot cake oxidation and ash agglomeration phenomena on DPF wall (Left<sup>(1-53)</sup>) and schematic representation of ash formation (Right)**

DPF 再生時、スート堆積層は、その酸化収縮の進行に伴いひび割れが生じて分割され、収縮していく。この収縮していくスート堆積層には、その形成過程からアッシュの 1 次粒子が含まれて

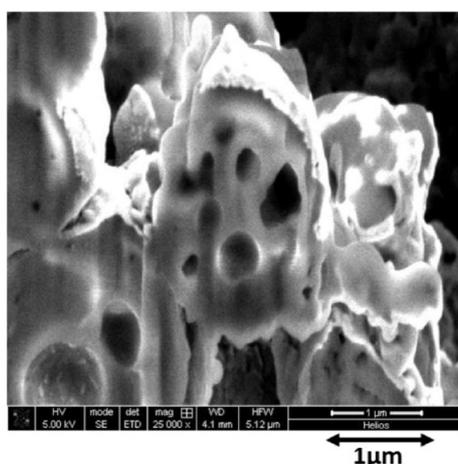
おり、アッシュもまたスート2次粒子の酸化収縮により高温に晒されながら凝集していく。最終的にスートが酸化消失した後は、アッシュ2次粒子の堆積層(凝集体)がDPFのろ過壁面上に残存する<sup>(1-53), (1-54)</sup>。DPF再生毎のアッシュ堆積層の成長の様子を、**図 1.26**に示す。



**Fig. 1.26** Surface view of time-lapse FE-SEM images of ash deposition on SiC DPF wall after each regeneration (Left) and cross-sectional view of fourth lapse FE-SEM image (Right) <sup>(1-54)</sup>

アッシュ2次粒子がSiC基材に空いた細孔のふち付近より堆積をはじめ、それがDPF再生毎に成長していく様子が分かる<sup>(1-54)</sup>。また、細孔内部へのアッシュの侵入はあまり見られないことも分かる。細孔に入り込んだアッシュは、スート酸化収縮時に細孔のふち付近に引き寄せられることが指摘されており<sup>(1-54)</sup>、この影響によるものと考えられる。

スートの収縮と酸化熱により1次粒子が凝集・焼結し形成されたアッシュ2次粒子の内部の様子を**図 1.27**に示す。このように、スートの酸化収縮で形成されるアッシュの2次粒子の内部には、空隙が存在している可能性が高いと考えられる。



**Fig. 1.27** SEM images of FIB milled ash particles (Lab-made Calcium-based ash) <sup>(1-55)</sup>

(4) アッシュの構成成分

アッシュ 2 次粒子を構成する主な成分は、**図 1.28** に示すように、エンジンオイル添加剤に由来するカルシウム(Ca), 亜鉛(Zn), マグネシウム(Mg)などの金属成分が、リン酸塩や硫酸塩として存在していると考えられている<sup>(1-42), (1-45), (1-56), (1-57), (1-58)</sup>.

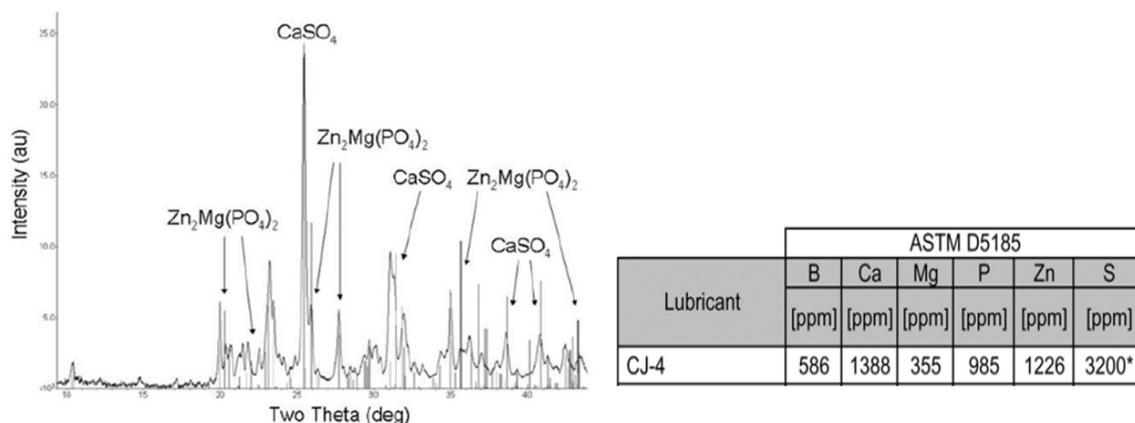
| Zn   | Ca   | Mg   |
|--|--|--|
| $Zn_2P_2O_7^*$<br>$Zn_2P_2O_7^\dagger$                           | $CaSO_4$<br>$Ca_3(PO_4)_2$   | $Mg_3(PO_4)_2$<br>$MgSO_4$   |
| CaZn   | CJ4  | Field  |
| $CaSO_4$<br>$Zn_3(PO_4)_2$<br>$Ca_3(PO_4)_2$<br>$CaZn_2(PO_4)_2$ | $CaSO_4$<br>$Zn_3(PO_4)_2$<br>$Ca_3(PO_4)_2$<br>$CaZn_2(PO_4)_2$<br>$Ca_{2.6}Mg_{0.9}(PO_4)_2$ | $CaSO_4$<br>$Zn_3(PO_4)_2$<br>$Ca_3(PO_4)_2$<br>$CaZn_2(PO_4)_2$<br>$Mg(PO_3)_2$<br>$Fe_3O_4$<br>$ZnO$ |

|  |  |  |
|--|--|--|
| $Ca_3(PO_4)_2$<br>$\rho = 3.14g/cm^3$<br>$T_{melt} = 1394^\circ C$ | $Zn_3(PO_4)_2$<br>$\rho = 3.998g/cm^3$<br>$T_{melt} = 900^\circ C$ | $Mg_3(PO_4)_2$<br>$\rho = 2.74g/cm^3$<br>$T_{melt} = 1353^\circ C$ |
| $CaSO_4$<br>$\rho = 2.96g/cm^3$<br>$T_{melt} = 1460^\circ C$       | $ZnSO_4$<br>$\rho = 3.54g/cm^3$<br>$T_{melt} = 680^\circ C$        | $MgSO_4$<br>$\rho = 2.66g/cm^3$<br>$T_{melt} = 1124^\circ C$       |
| $CaO$<br>$\rho = 3.35g/cm^3$<br>$T_{melt} = 2572^\circ C$          | $ZnO$<br>$\rho = 5.61g/cm^3$<br>$T_{melt} = 1975^\circ C$          | $MgO$<br>$\rho = 3.58g/cm^3$<br>$T_{melt} = 2852^\circ C$          |

**Fig. 1.28** Expected lubrication-derived ash composition and property <sup>(1-58)</sup>

例として、市販 CJ-4 オイルを用いてエンジン実機により生成したアッシュの XRD 分析結果を**図 1.29** に示す。硫酸カルシウム( $CaSO_4$ )や、亜鉛とマグネシウムのリン酸化合物( $Zn_2Mg(PO_4)_2$ )が検出されていることが分かる。



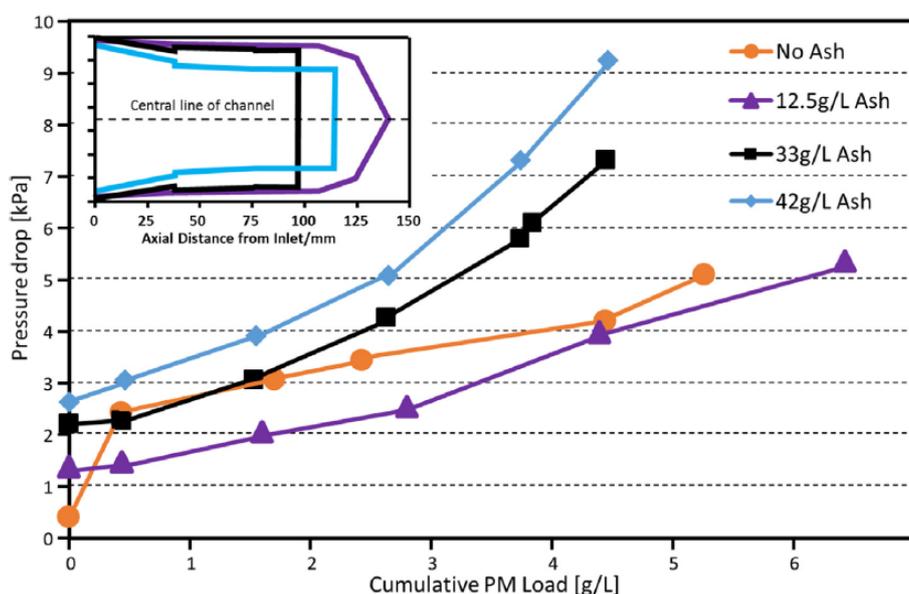
**Fig. 1.29** Ash compositional analysis via XRD generated from commercial CJ-4 oil <sup>(1-57)</sup>

### 1.2.2 DPF 堆積アッシュの堆積形態と圧損影響

#### (1) 堆積アッシュの分布と圧損影響

アッシュは、主にスート 2 次粒子に付着する形で PF へ流入し、スートと共に PF 流路内の多孔質ろ過壁(Wall)上にまず堆積する。一方、フィールドより回収した長時間稼働後の PF では、アッシュは流路内に分布しており、Wall 上だけではなく、流路後端の Plug 部への堆積も多くみられる。また場合によっては Plug 部のみに堆積していて、Wall 部にはほとんど見られない場合もある<sup>(1-59)</sup>、<sup>(1-60)</sup>。このような長期稼働後の PF に見られるアッシュ堆積分布の差異については、連続再生( $\text{NO}_2$ による低温/350 °C程度でのスート再生)メインで稼働しているか、強制再生( $\text{O}_2$ による高温/600 °C程度でのスート再生)メインで稼働しているかで分布が異なり、強制再生メインでは比較的 Plug 部への堆積が多くなることが報告されている<sup>(1-42)</sup>。

図 1.30 に、PM(スート+アッシュ)堆積と、強制再生による定期的なスート酸化除去を繰り返し実施しながら、徐々にアッシュを堆積させていった場合の、アッシュ堆積量に対するアッシュ堆積分布と、PM 堆積時 DPF 圧損特性の変化を示す。



**Fig. 1.30 Measured ash distribution profiles and pressure-drop as a function of soot accumulation on DPF at various ash loading measured at  $20,000 \text{ h}^{-1}$  space velocity with CJ-4 oil and periodic active regeneration <sup>(1-42)</sup>**

DPF にアッシュ堆積がない場合、上図 No Ash のラインが示すように、PM 堆積初期に大きな圧損上昇が生じ、0.5 g/L 付近で緩慢な圧損上昇に切り替わる、という圧損特性を示す。このアッシ

アッシュ堆積がない場合に生じるPM堆積初期の大きな圧損上昇は、Wall内部の細孔へPMが侵入し、細孔流路の狭小部で架橋を形成、流路を閉塞させることにより生じる。また細孔へのPM侵入と同時に、Wall上にも徐々にPM堆積が進行するため、やがて細孔入口がPM堆積層で覆われる。すると細孔への新たなPM侵入が無くなるため、以降大きな圧損上昇は生じず、PM堆積層厚さの増加に比例した、主に堆積層通過圧損の増加に起因する緩慢な圧損上昇へと切り替わる。

その後強制再生を繰り返しながらアッシュ堆積量を増加させていき、12.5 g/L時点では、PM堆積初期に見られた大きな圧損上昇が見られなくなっている。これはアッシュがWall上へ堆積し細孔入口を覆ったため、細孔へのPM侵入が無くなるために生じる。その後アッシュ堆積量を増加させていくと(12.5→33→42 g/L)、Wall上への堆積アッシュ(Wallアッシュ)とPlug端部への堆積アッシュ(Plugアッシュ)がそれぞれ増加していき、それに伴って、圧損特性が大きく変化していく様子が分かる。

このように、PF前後の圧力損失挙動は、長期的にはスートよりもむしろアッシュの堆積量と堆積状態に大きく依存し、またスート堆積時の圧損特性も大きく変化させることから<sup>(1-42), (1-61)</sup>、DPF前後差圧ベースでスート量を推定する一般的なDPFシステムにおいては、アッシュの堆積がスート量推定の最も大きな外乱要因となる。そのためアッシュ堆積状態を精度よく予測するモデルが求められているが、PF堆積後に流路内で発生するアッシュ移動のメカニズムや、Wallアッシュの粒子径や空隙率など堆積構造が決定されるメカニズムが解明されていないため、これまでの所、汎用的なモデル化には至っていない。

(2) 堆積アッシュの移動メカニズム

Sappok らは、強制再生による堆積スートの酸化消失後、DPF の流路壁面上の堆積アッシュ層に作用するガス流れによるせん断応力を求め、それが臨界値を超えたときにアッシュが堆積層から剥離し移動する、としたせん断剥離モデルを提案、アッシュ堆積形態の実験結果をモデル計算で再現できることを報告している<sup>(1-62)</sup>。本モデルで考慮した流路モデル概略図を図 1.31 に示す。

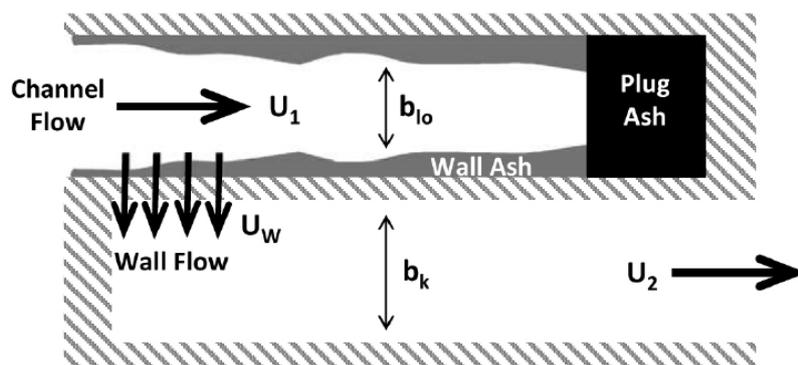


Fig. 1.31 Illustration of geometry and parameters considered in one-dimensional ash transport model in DPF channel <sup>(1-62)</sup>

堆積アッシュ層に作用するせん断応力算出式を次式に示す。またこれにより計算した、アッシュ堆積が無い場合での、流路内壁面に作用するせん断応力分布の例を、図 1.32 に示す。

$$\tau = \frac{F \cdot \mu \cdot U_1}{4b_{lo}} \tag{1.3}$$

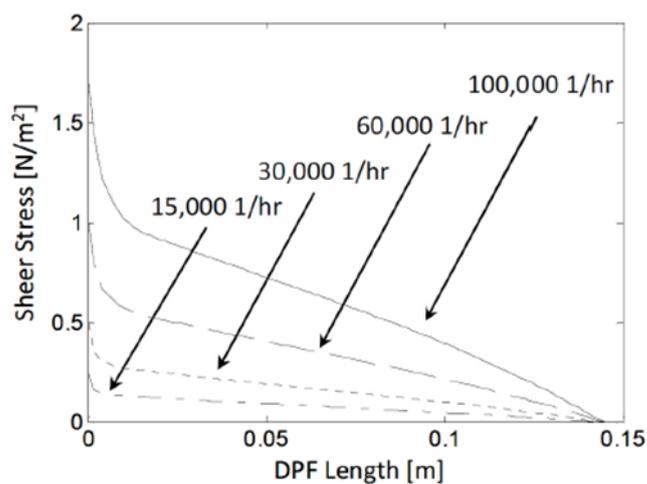
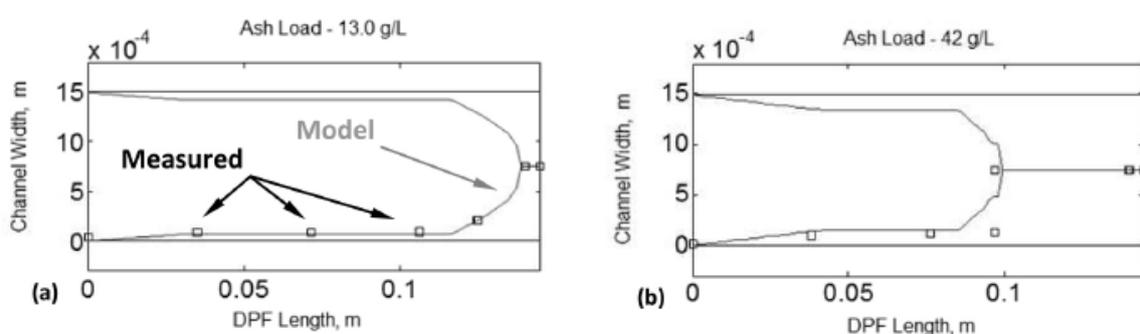


Fig. 1.32 Axial variation of shear stress close to the filter wall for a range of typical DPF flow conditions computed from the CFD analysis <sup>(1-62)</sup>

ここで、 $\tau$ はガス流れによりアッシュ堆積層が受けるせん断応力[N/m<sup>2</sup>],  $F$ は Bissett の摩擦係数(ここでは 28.454),  $\mu$ は粘性係数[Pa·s],  $U_1$ は流路内の軸方向平均流速[m/s],  $b_{lo}$ はアッシュ層の厚みを考慮した開口流路幅[m]である。

流路内の軸方向平均流速は、流路入口が最も大きく、流路後端に行くにしたがって低下していき、後端 Plug 部でゼロとなる分布を持つが、図 1.32 に示す通り、せん断応力分布も基本的にこの流速分布と対応しており、流路入口が最も大きく、流路後端に行くにしたがって低下していき、後端 Plug 部でゼロとなるような分布をとる。

臨界値を 0.35 N/m と設定して計算した、本モデルによるアッシュ堆積形態の予測値と実験値の比較結果を図 1.33 に示す。



**Fig. 1.33 Predicted ash distribution profile and experimentally measured distribution on DPF at periodic active regeneration with an ash load of 13 g/L (Left) and 42 g/L (Right) <sup>(1-62)</sup>**

Sappok らによって提案された本モデルにおいては、アッシュ移動を左右するせん断応力の臨界値自体はフィッティングパラメータであり、この臨界値のモデル化には至っていない。Kamp らの研究<sup>(1-62)</sup>を参照し、ファンデルワールス力が最も臨界値に対し支配的と指摘してはいるものの、本モデルは堆積アッシュ層の性状が異なる場合、都度せん断応力の臨界値をフィッティングする必要があるモデルであった。

Sappok らは上記モデルの提案と同時に、DPF 強制再生中に見られるスートケーキの剥離移動が、流路内のアッシュ移動に影響していることも指摘している<sup>(1-62)</sup>。これはスートケーキが剥離し移動するときに、スートケーキに含まれるアッシュやスートと接している付着アッシュが同時に輸送されるというものであり、このメカニズムにおいてアッシュ移動を左右するのは、スートケーキの剥離臨界値であると考えられる。強制再生中のスートケーキの剥離移動の様子と、それによるアッシュ輸送の概念図を図 1.34 に示す。

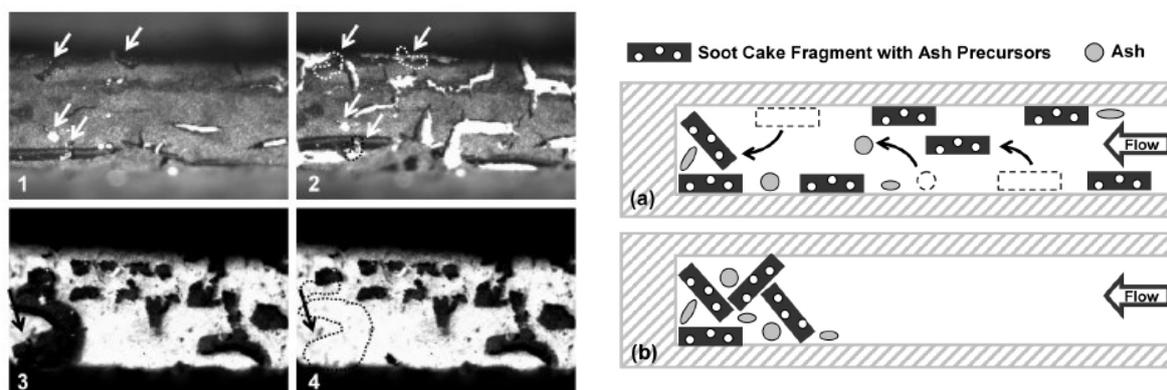


Fig. 1.34 Image sequence showing soot and ash transport at  $20,000 \text{ h}^{-1}$  space velocity during active regeneration (Left), and conceptual representation of transport mechanism (Right) <sup>(1-62)</sup>

Sappokらは、この臨界値を左右する因子としてスート酸化によるスートケーキと流路壁面間の付着面積の減少を挙げている<sup>(1-62)</sup>が、実験観察結果の考察にとどまっており、本メカニズムのモデル化には至っていない。

松野らは、流路内のアッシュ堆積形態が、再生時にDPF内に堆積しているスート量に強く影響されていることを報告しており<sup>(1-60)</sup>、再生時のスート量が多いほど、アッシュがWallからPlug側へ移動しPlugアッシュが多くなることを、実験的に明らかにした。再生時にDPF内に堆積しているスート量と、最終的なPlugアッシュ長さの観察結果を、図1.35に示す。

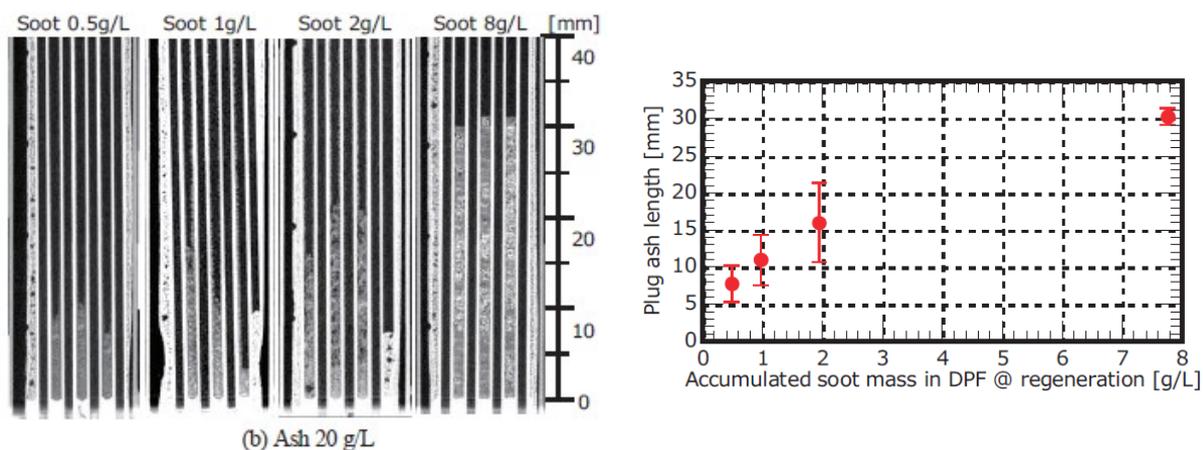
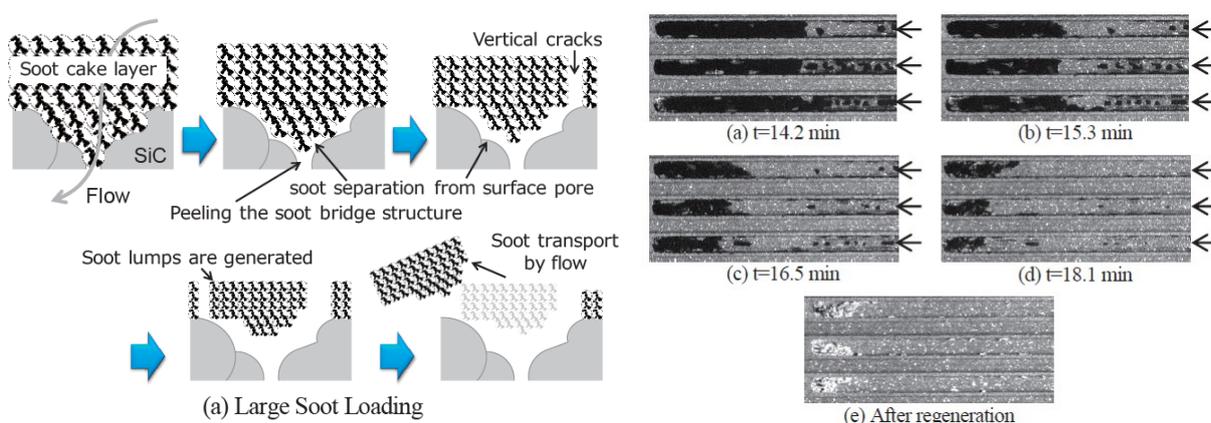


Fig. 1.35 Experimental results of plug ash length on each soot load condition, X-ray CT images (Left) and plug ash length results (Right) <sup>(1-60)</sup>

松野らはまた、スート堆積量が 5~6 g/L 以上ある高スート堆積量条件において、DPF 強制再生中にスートケーキの剥離移動が生じること、それが流路内のアッシュ移動に影響していることを、可視化実験において明らかにしている。また既に Wall アッシュの堆積が生じている場合には、スート堆積量が 1 g/L 程度の低スート堆積量条件においても、スートケーキの剥離移動が生じることも報告している。強制再生中のスートケーキの剥離移動の推定メカニズムと、可視化実験の結果を図 1.36 に示す。



**Fig. 1.36 Soot cake transportation during active regeneration, estimated mechanism (Left) and experimental results (Right) (1-60)**

特に高スート堆積量条件において、このようにスートが言わばキャリアとなってアッシュを輸送するメカニズムが存在することは実験的には明らかであり、スート堆積量や Wall アッシュの有無が影響していることも示されてはいるが、輸送の発生有無を判定する際に考慮すべき因子が特定できず、モデル化には至っていない。これまでのところ、流路内アッシュ移動現象のモデリングに一応の成功を見ているのは、図 1.33 に示す結果が得られている Sappok らのせん断剥離モデル<sup>(1-62)</sup>のみである。しかしながらこのモデルも、先に述べた通りアッシュ移動を左右するせん断応力の臨界値自体はフィッティングパラメータであり、この臨界値のモデル化が課題となっている。

## (3) 堆積アッシュの物性 (粒子径/空隙率/透過率)

堆積アッシュの大まかな物性範囲に関しては、フィールドやベンチ試験でDPFへ堆積させたアッシュの調査結果がこれまでに多数報告されている。先行研究で報告されている堆積アッシュの物性を、表 1.1 にまとめて記載する。

Table 1.1 Ash properties reported in previous study<sup>(1-42)</sup>

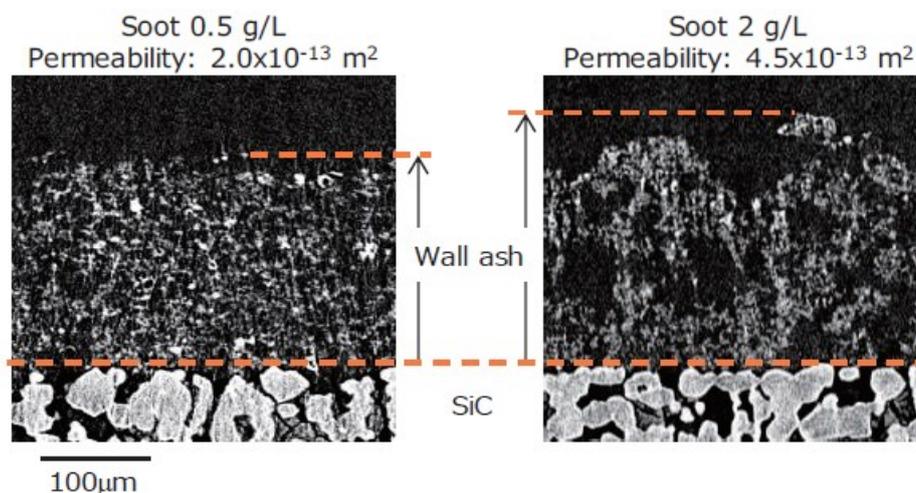
| Particle Size | Porosity    | Permeability                | Reference              |
|---------------|-------------|-----------------------------|------------------------|
| $\mu\text{m}$ | -           | $\text{m}^2$                | -                      |
| 0.5 – 1.0     |             | $2.8 - 7.4 \times 10^{-14}$ | Konstandoporlos et al. |
| 0.1 – 0.5     | 0.83        |                             | Merkel et al.          |
| 2.4 – 37.6    | 0.85        | $\sim 5 \times 10^{-12}$    | Young et al.           |
| 5 – 50        |             |                             | MECA Report            |
| 0.1 – 10      | 0.90        |                             | McGeehan et al.        |
| 1             |             |                             | Konstandoporlos et al. |
| 0.3 – 30      |             |                             | Sonntag et al.         |
| 0.1 – 1       |             |                             | Usui et al.            |
| 0.5 – 10      |             | $1.8 - 2.3 \times 10^{-14}$ | Zarvalis et al.        |
|               | 0.90 – 0.95 | $2.8 - 7.4 \times 10^{-14}$ | Sappok et al.          |
|               | 0.91        |                             | Sappok et al.          |
| 0.97          | 0.91 – 0.95 |                             | Chiou et al.           |
|               | 0.91 – 0.95 | $2.9 - 9 \times 10^{-14}$   | Sappok et al.          |

報告されている数値範囲をまとめると、粒子径は0.1から50  $\mu\text{m}$ の範囲であり、空隙率は0.83から0.95の範囲、透過率は $10^{-12}$ から $10^{-14} \text{m}^2$ のオーダーとなる。

そのほか、堆積アッシュのかさ密度は0.09  $\text{g}/\text{cm}^3$ から0.56  $\text{g}/\text{cm}^3$ の範囲であった<sup>(1-42)</sup>。加えてバーナーシステムで加速的に堆積させたアッシュでは、加速されていないフィールド回収アッシュよりも、かさ密度が低くなる傾向が確認されている<sup>(1-42)</sup>。

Wall アッシュの粒子径や空隙率は、Wall アッシュ層を透過するガス流れの圧力損失を決定づける重要な因子と考えられるため、Wall アッシュ層の構造変化のメカニズムを把握することは、DPF の圧損挙動を予測するうえでも重要と考えられるが、Wall アッシュの堆積構造がどのようなメカニズムで決定されているかについての研究例は少ない。しかしながら、次の松野らの研究結果が、重要な示唆をしている。

松野らは、Wall アッシュの粒子径や空隙率などの堆積構造が、DPF 再生時などにおけるスート酸化の影響を受けて決定されている可能性を指摘している<sup>(1-60)</sup>。再生時に DPF 内に堆積しているスート量が異なる条件での、Wall アッシュ堆積構造の比較画像(高解像度 X-ray CT 画像)を、**図 1.37**に示す。これより、再生時の堆積スート量が多いほど、Wall アッシュ層はより疎な堆積構造となっていることが分かる。



**Fig. 1.37** Comparison of wall ash layer structure of each soot load condition <sup>(1-60)</sup>

### 1.3 本研究の目的

アッシュはエンジン稼働時間の経過とともに不可逆的に蓄積されていき、PF の圧損変化を引き起こす。これまでに述べたように、PF 前後の圧力損失挙動は、長期的にはスートよりもむしろアッシュの堆積状態に大きく依存し、またスート堆積時の圧損特性をも変化させ得ることから、DPF 前後差圧ベースでスート量を推定する一般的な DPF システムにおいては、アッシュの堆積がスート量推定の最も大きな外乱要因となるため、アッシュ堆積状態を精度よく予測するモデルが求められている。

先行研究調査の結果、アッシュ堆積状態を予測するモデルについては、PF 堆積後に流路内で発生するアッシュ移動のメカニズムや、Wall アッシュの粒子径や空隙率など堆積構造が決定されるメカニズムが明らかでないため、これまでのところ汎用的なモデル化には至っていない。流路内アッシュ移動現象のモデリングは、Sappok らが構築したアッシュ層に作用するせん断応力に基づくモデルで一応の成功を見てはいるが、先に述べた通りアッシュ移動を左右するせん断応力の臨界値自体はフィッティングパラメータであり、この臨界値のモデル化が課題であった。また Wall アッシュの堆積構造のモデリングについては、提案されているモデルは存在しないものの、再生時の堆積スート量の影響が示唆されている。

そこで本研究では、先行研究での課題点や示唆されている点を踏まえて、DPF へ堆積したスートの酸化消失が、圧損因子である堆積アッシュの粒子径、空隙率に与える影響をモデル化し、さらに DPF 流路内のアッシュ移動現象をモデル化することで、実機運転状態に応じた DPF 流路内アッシュ堆積層の厚み分布と、DPF 全体の圧力損失を予測することを、目的とする。

## 1.4 本論文の構成

本論文は、以下に示す全5章より構成される。

第1章では、序論として研究背景と先行研究について示し、研究目的を明確化する。研究背景として、環境問題の観点から昨今急速に変化している、内燃機関を取り巻く環境と排出ガス規制動向を述べ、排出ガス後処理技術の重要性とその技術課題を示したうえで、本研究で取り組むDPFへのアッシュ堆積研究の重要性を明確化する。先行研究の調査では、DPFへの堆積アッシュの生成過程とその堆積影響に関して整理し、先行研究での課題点を指摘したうえで、これらを解明する現象解析とそれに基づくモデリングを研究目的と位置付ける。

第2章では、DPFの圧力損失を予測するうえで重要なDPF流路内堆積アッシュの構造解析とモデリングを実施する。まず実験により、運転状態、特に新規に堆積したアッシュ量に対するスート量の比(S/A比)と、Wallアッシュの粒子径・空隙率との関係性を解析する。実施する実験は二種類で、Diesel Particulate Generator(以下、DPG)で生成しDPFへ堆積させたアッシュの物性(構造)調査と、新たに構築した流通場でのスート燃焼・アッシュ層形成装置を用いたアッシュ層形成の調査である。次にこれらの結果を基に、Wallアッシュの粒子径・空隙率の予測モデルを作成する。

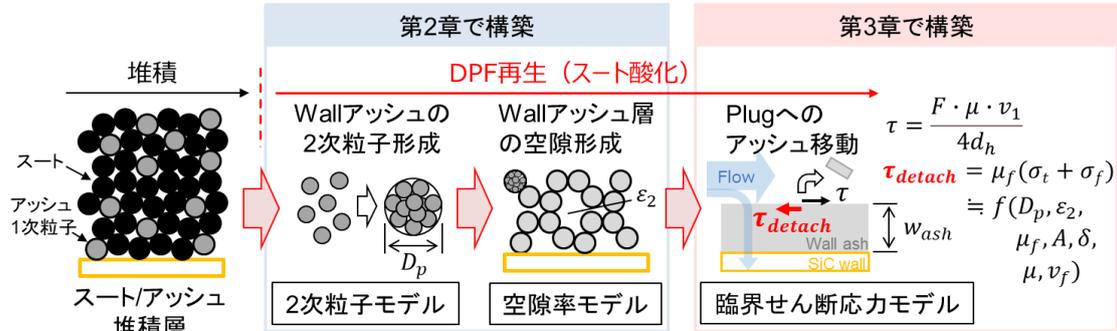
第3章では、DPFの圧力損失に大きな影響を及ぼす、DPF内のアッシュ堆積分布を予測するため、DPF流路内のアッシュ移動現象のモデリングを実施する。先行研究で構築されているアッシュ堆積層に作用するせん断応力に基づくモデルをベースとし、Wallアッシュの構造に基づくかたちで、同モデルで課題となっている臨界値のモデル化を実施する。

第4章では、前章までで構築した、運転条件(S/A比)に応じて変化するアッシュ堆積層の性状を計算するアッシュ2次粒子モデル、アッシュ層空隙率モデルと、その性状からアッシュの移動のしやすさを計算する臨界せん断応力モデルを用いて、汎用コード(Exothermia社のAxisuite)上で作成したDPF圧損モデルとを連成させ、DPFの運転状態に応じて形成されるアッシュ堆積層の性状・堆積形態を反映させた、DPF全体の圧力損失を予測するモデルを構築し、実際のアッシュ堆積分布や圧力損失と計算結果を比較し、モデルの妥当性を検証する。

第5章では、各章で得られた成果を総括し、今後の研究の展望について述べる。

本論文で構築するモデルの全体像を図 1.38 に示す。

### DPF流路内アッシュ堆積形態のモデリング (第2章, 第3章)



### DPF流路内流れ場と圧力損失のモデリング (第4章)

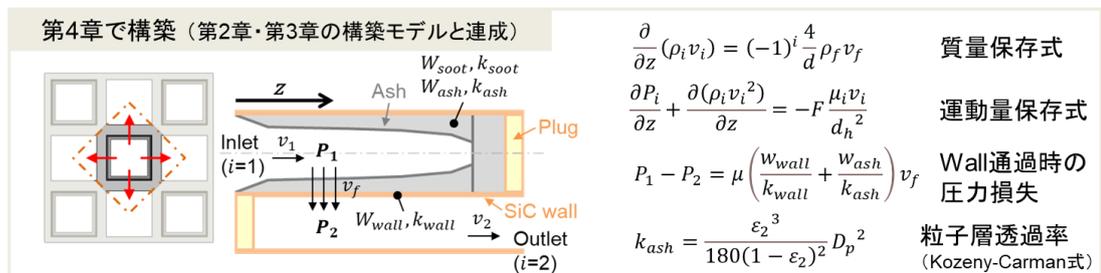


Fig.1.38 Overview of calculation model constructed in this study

運転条件(S/A 比)に応じて変化するアッシュ堆積層の性状(粒子径, 空隙率)を計算するモデル(以下, アッシュ堆積層モデルと呼称する. 第 2 章で構築)と, その性状からアッシュの移動のしやすさを計算する臨界せん断応力モデル(第 3 章で構築)を用いて, 汎用コード(Exothermia 社の Axisuite)上で作成した DPF 圧損モデル(第 4 章で構築)とを連成させ, DPF の運転状態に応じて形成されるアッシュ堆積層の性状・堆積形態を反映させた, DPF 全体の圧力損失を予測するモデルを構築する。

モデルの構築は, 基本的に DPG により後述の硫酸灰分濃縮オイルを用いて生成し, DPF へ堆積させた, アッシュの構造(物性)調査結果を基に実施する. その際 DPF へ流通させるガスの流量と温度は, 一般的な SiC-DPF の運転条件を鑑みて, SV(Space Velocity/空間速度)  $6.0 \times 10^4 \text{ h}^{-1}$  (20 °C 1 atm 時; 以下特に断らない場合はこの条件とする), 堆積運転時 350 °C, 再生運転時 680 °C とする。

構築する各モデルへの入力と, 各モデル内部の計算対象, 各モデルからの出力と, 各モデル間の入出力のつながりを, 図 1.39 に示す。

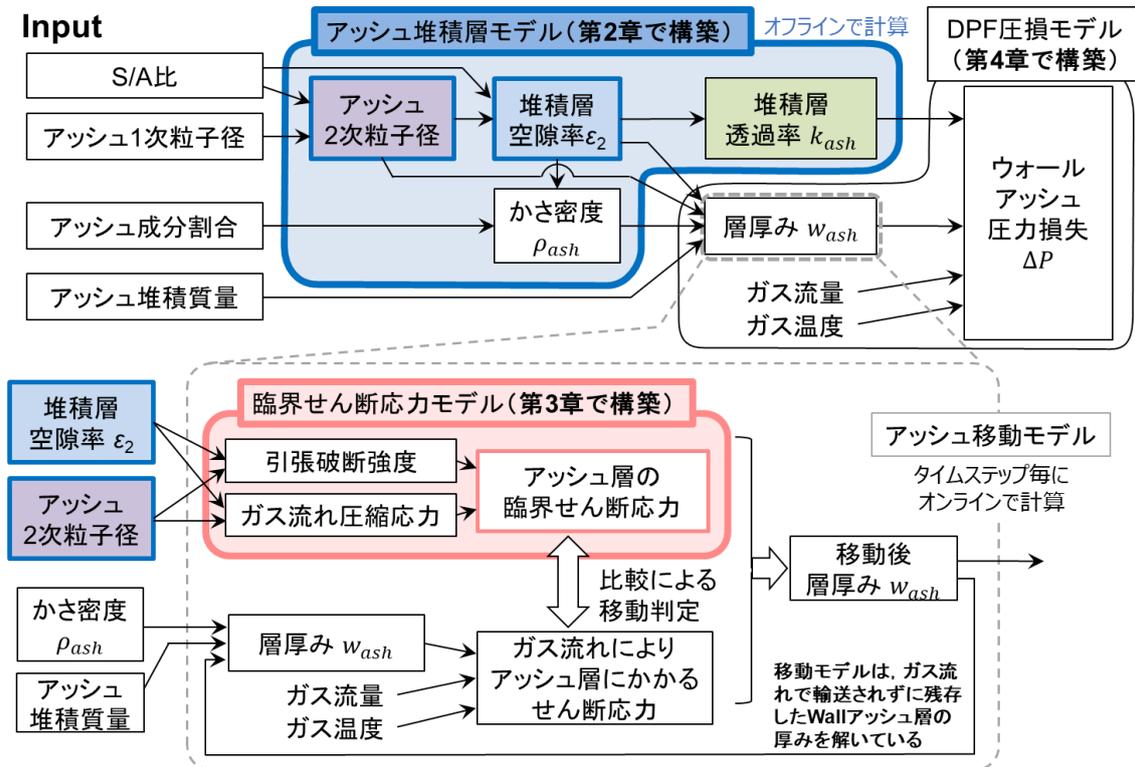


Fig.1.39 Schematic diagram of wall ash property and ash mobility prediction model, and DPF pressure drop calculation model

第2章では、主にスート/アッシュ比(S/A比)とアッシュ1次粒子径(本論文では20 nmと仮定)からアッシュ2次粒子径を求める2次粒子モデルと、アッシュ層の空隙率を求める空隙率モデルを構築する。加えて、これらのモデル出力とアッシュの真密度(アッシュの成分割合より計算)が分かれば、既往モデル式より、アッシュ層の透過率とかさ密度まで求めることができる。最終的な圧力損失の計算時にはこれらが必要となるため、これらを含めてアッシュ堆積層モデルとし、これを第2章で構築するものとする。

第3章では、第2章で構築したモデルの出力である、アッシュの2次粒子径とアッシュ層の空隙率を用いて、アッシュ層のせん断剥離の臨界値を求める、臨界せん断応力モデルを構築する。

第4章では、DPF流入アッシュの質量(流量)からDPF流路内堆積アッシュの層厚み分布を求め、DPF全体の圧力損失を求めるDPF圧損モデルを構築するが、このモデルの入力として第2章で構築したモデル出力(堆積層のかさ密度と透過率)を使用する。また、ガス流れにより堆積層に作用するせん断応力がある臨界値を超えたらアッシュが剥離し後流(Plug側)へ移動、その位置におけるアッシュの層厚みが減少する、というアッシュ移動の計算も、本モデル内で実施する。

## 第2章 DPF 流路内堆積アッシュの構造解析とモデリング

### 2.1 まえがき

本章では, DPF の圧力損失を予測するうえで重要な, DPF 流路内堆積アッシュの構造解析とそのモデリングを実施する. 前章で述べた通り, Wall アッシュの粒子径や空隙率などの堆積構造は, DPF 再生時などにおけるスート酸化の影響を受けて決定されている可能性が示唆されている(1-60). Wall アッシュはガスが透過するため, 圧損影響が大きく, その構造把握が重要となる. 一方 Plug アッシュはガス透過がほぼ無視できるため, 実用上はかさ密度が分かればよいと考えられる.

そこで本章では DPF を対象に, まず実験により, 運転状態, 特に新規に堆積した強制再生時のアッシュ堆積量に対するスート堆積量の比(S/A比)と, Wallアッシュの粒子径・空隙率との関係性を解析する. 実施した実験は二種類で, DPG(Diesel Particulate Generator)での堆積アッシュの構造(物性)調査と, 新たに構築した流通場でのスート燃焼・アッシュ層形成装置を用いたアッシュ層形成の調査である. 次にこれらの結果を基に, Wall アッシュの粒子径・空隙率の予測モデルを作成する. 最後にこれらと既往のかさ密度モデル式, 透過率モデル式と組み合わせ, アッシュ堆積層の圧損計算に必要な, 層の性状全体を予測する, アッシュ堆積層モデルを作成する.

### 2.2 DPG での堆積アッシュの構造調査

#### 2.2.1 実験方法

共同研究を行ったJARI(日本自動車研究所)のDPG<sup>(1-60)</sup>でアッシュを生成し, DPFへ堆積させた. DPGの概要を図2.1に示す.

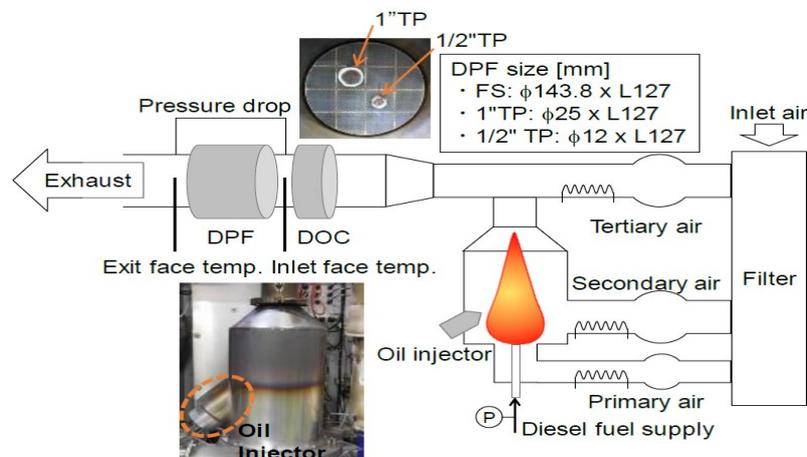


Fig.2.1 Overview of Diesel Particulate Generator (DPG) <sup>(1-60)</sup>

この DPG は図 2.1 の左下図に示すように、燃焼器側面にオイル噴射用のインジェクタが取り付けられており、スート発生用の軽油拡散火炎に向かってエンジンオイルを噴射可能としている。オイル噴射用のインジェクタには、ガソリン吸気管噴射用のエアアシスト噴射弁を用いており、エア一圧力とオイル噴射圧を調整して噴射することで、実機エンジンに近い性状のアッシュを生成させることが可能である。軽油拡散火炎形成用のディーゼル燃料は、JIS2 号軽油を使用した。

供試 DPF の仕様を表 2.1 に示す。容積 2.06 L の SiC 製 DPF で、1 平方インチ当たりのチャンネル数は 350 個のものを使用した。ろ過壁厚み 280  $\mu\text{m}$ 、気孔率 38%、平均気孔径 12  $\mu\text{m}$  で、白金(Pt)とパラジウム(Pd)が担持されている。この DPF を用いて、 $\phi 1/2$  インチと  $\phi 1$  インチのテストピース(TP)を図 2.1 に示す断面位置でそれぞれくり抜き、元の DPF へ再挿入された状態でアッシュを堆積させた。アッシュ堆積後、 $\phi 1/2$  インチの TP では切断・光学観察による Wall アッシュの堆積厚み分布の解析を、 $\phi 1$  インチの TP では X 線 CT による Plug アッシュ密度解析を、それぞれ実施した。なお、表中の単位 cpsi は cell per square inch、即ち単位平方インチ当たりのチャンネル数を表す。また表中の単位 mil は milli inch(ミリインチ)のことである。

Table 2.1 Specification of DPF used

|                              |               |                                  |
|------------------------------|---------------|----------------------------------|
| DPF diameter $\times$ length | mm            | $\phi 143.8 \times 127$ (2.06 L) |
| Cell density                 | cpai          | 350                              |
| Wall thickness               | $\mu\text{m}$ | 280 (11 mil)                     |
| Substrate material           | -             | SiC                              |
| Substrate porosity           | %             | 38                               |
| Substrate mean pore size     | $\mu\text{m}$ | 12                               |
| Catalyst                     | g/L           | 0.5 (Pt:Pd=2:1)                  |

供試エンジンオイルの諸元(主要金属元素含有量)を表 2.2 に示す。供試オイルは Sample A, B, C の 3 種類あり、各金属元素含有量は誘導結合プラズマ(Inductively Coupled Plasma / ICP) 発光分光分析法により JARI にて分析した。

Sample A と Sample B は、リン(P)、カルシウム(Ca)、亜鉛(Zn)、硫黄(S)など含有量の多い金属成分について、リファレンスとした JASO DL-1 規格適合エンジンオイルと、金属配合比を同等にしなから、全体の含有量を高めたものである(以降、これを Comp1 とする)。

Sample C は、Sample A に対して Ca 系添加剤の量を減らしており、相対的に P, Zn, S の含有量を高めたものとなっている(以降、これを Comp2 とする)。なお、主要 4 元素 (P, Ca, Zn, S) 中の濃度割合を、それぞれ金属成分濃度の下に括弧で表記している。

Table 2.2 Specification of engine oil used

| Sample   | Notification | P<br>wt ppm   | Ca<br>wt ppm  | Zn<br>wt ppm  | S<br>wt ppm    | Sulfated ash<br>wt% |
|----------|--------------|---------------|---------------|---------------|----------------|---------------------|
| Sample A | Comp1        | 9000<br>(23%) | 7000<br>(18%) | 8000<br>(20%) | 16000<br>(40%) | 4.9                 |
| Sample B |              | 3618<br>(18%) | 4486<br>(22%) | 4413<br>(22%) | 7700<br>(38%)  | 2.4                 |
| Sample C | Comp2        | 8201<br>(24%) | 938<br>(3%)   | 9946<br>(28%) | 15800<br>(45%) | 2.5                 |
| DL-1     | -            | 732<br>(13%)  | 1691<br>(31%) | 844<br>(15%)  | 2300<br>(42%)  | 0.8                 |

ここでエンジンオイルの硫酸灰分濃度は、次式に示す推算式により求めた。本式は文献中の参照式<sup>(2-1)</sup> から、主要 4 元素に係る金属成分項を抽出したものである。

$$\begin{aligned} \text{Sulfated Ash [wt\%]} &= (-11.63 + 3.284 \times \text{Ca [ppm]} + 1.385 \times \text{Zn [ppm]} \\ &+ 0.862 \times \text{P [ppm]})/10000 \end{aligned} \quad (2.1)$$

DPG 運転条件を表 2.3 及び図 2.2 に示す.

Table 2.3 Operating condition for soot/ash loading and regeneration<sup>(5-1)</sup>

|                      |                 | Loading             | Regeneration        |
|----------------------|-----------------|---------------------|---------------------|
| Operating time       | h               | 2                   | 0.75                |
| DPF inlet face temp. | deg.C           | 350                 | 680                 |
| SV (20 deg.C, 1 atm) | h <sup>-1</sup> | 6.0×10 <sup>4</sup> | 6.0×10 <sup>4</sup> |
| Soot loading rate    | g/h             | 0.5 / 2.0           | 0                   |
| Ash loading rate     | g/h             | 0.5 / 0.25          | 0                   |
| S/A ratio            | -               | 1 - 8               | -                   |

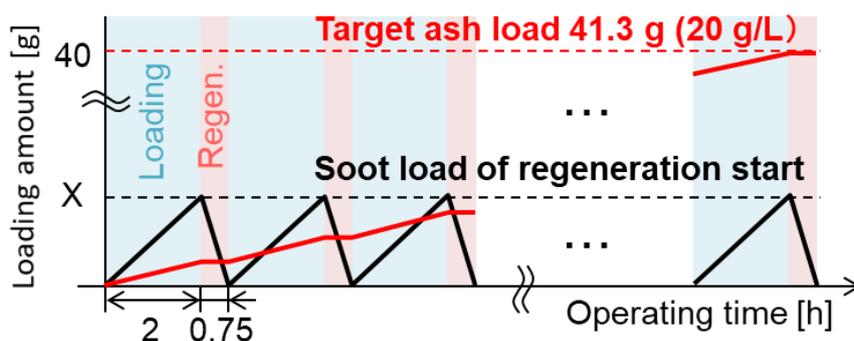


Fig.2.2 Schematic diagram of change in soot and ash load during ash loading operation

堆積運転 2 時間 (DPF 入口ガス温度 350 °C), 再生運転 0.75 時間 (DPF 入口ガス温度 680 °C) のサイクルを, アッシュが 41.3 g (20 g/L) 堆積するまで繰り返し実施した. アッシュ堆積量は, DPF の重量増分を計測することで算出した. 試験条件として, S/A 比と供試オイル種 (Comp1/Comp2) が異なる全 4 条件 (次項で説明) でそれぞれ DPF へアッシュを堆積させ, 各種条件で得られた堆積アッシュの厚み分布や堆積アッシュの粒子径・空隙率・透過率などの構造 (物性) を解析した. S/A 比 (新規に堆積した強制再生時のアッシュ堆積量に対するスート堆積量の比) の調整は, スート堆積速度を DPG のスート発生用軽油拡散火炎の当量比操作で調整し, アッシュ堆積速度を軽油拡散火炎へのオイル噴射量操作で調整<sup>(2-2)</sup> することで, 狙いの条件になるようにして制御した. なお, アッシュ堆積速度が 0.5 g/h の場合, サイクル数は 40 回, トータル 110 時間の運転となる.

ここで S/A 比は、本研究では堆積運転の後、680 °C再生運転(強制再生)を開始する時点で新規に堆積しているスート量とアッシュ量の比、として定義した。定義式を図 2.3 に示す。

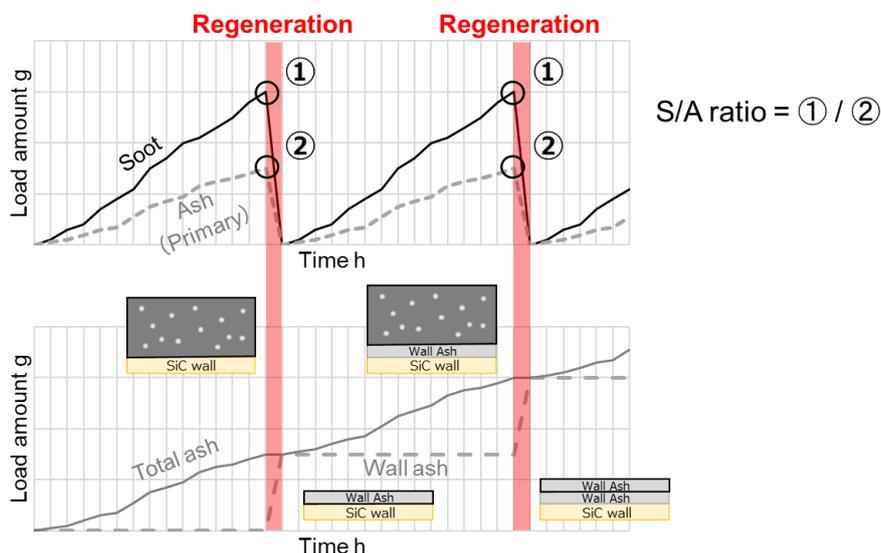


Fig.2.3 Schematic diagram of S/A ratio definition

前章の先行研究の節 1.2.2 (3)で述べた通り、Wall アッシュの粒子径や空隙率などの堆積構造は DPF 再生時などにおけるスート酸化の影響を受けて決定されている可能性がある。そこで本実験では、再生時に新規に堆積しているスート量とアッシュ量の比、S/A 比を、実験変数として設定した。

リアルワールドで使用されている DPF で考えた場合、S/A 比は、強制再生時に DPF へ堆積しているスートの量と、強制再生時に DPF へ堆積しているアッシュのうち、まだ強制再生の履歴を受けていない新規の堆積アッシュ(1次粒子)の量が、どのような量的関係にあるかを定義したもの、と考えることができる。言い方を変えれば、S/A比が大きい運転条件は、排気温度が上がらない軽負荷稼働の割合が多いなど、スートが堆積して頻繁に DPF の強制再生が実施されるような運転条件であり、また S/A 比が小さい運転条件とは、高負荷稼働の割合が多いなど、連続再生によりほとんど DPF にスートが堆積しない運転条件である、と考えることができる。

### 2.2.2 実験結果の解析

DPG でのアッシュ堆積運転後、 $\phi 1/2$  インチ TP を供試 DPF より取り出し、15 mm 間隔で切断、破断面を光学顕微鏡 (DIGITAL MICROSCOPE VHX-900/キーエンス製) で観察し、観察断面位置での平均的な Wall アッシュ厚みを算出した。図 2.4 に切断後の  $\phi 1/2$  インチ TP の様子と、観察した破断面の例を示す。白色部が堆積アッシュである。ある断面位置での平均 Wall アッシュ厚みの算出は、図に示すように 1 チャネル当たり①～⑧のアッシュ厚みを計測、それを観察断面でランダムに 5 チャネル分観察および計測し、その平均値を、その断面位置における Wall アッシュ厚みとした。なお T/P の切断と破断面の観察、アッシュ厚みの計測は、JARI (日本自動車研究所) にて実施した。

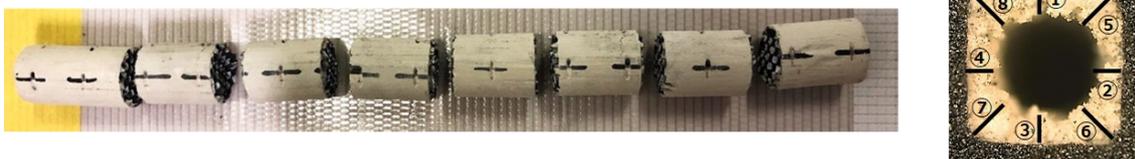


Fig.2.4 Overview of  $\phi 1/2$ "TP and example of wall ash deposited on DPF wall in a channel

光学観察で求めた堆積アッシュの厚み分布の計測結果を図 2.5 に示す。トータルサイクル数を微調整することで、どの試験条件も、アッシュの堆積量は 20 g/L で揃えてある。

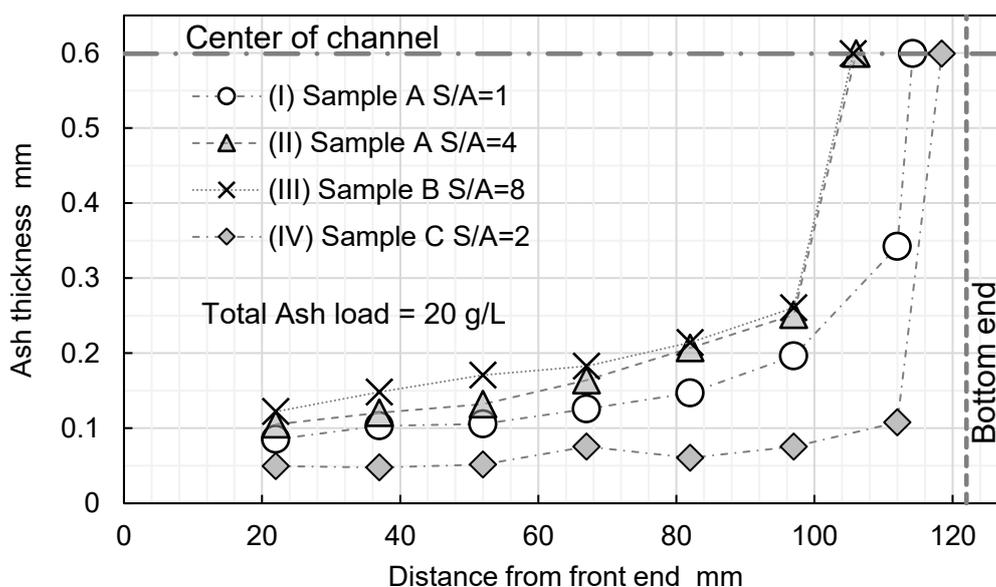


Fig.2.5 A comparison of distribution of wall ash thickness under each test condition

これより、同一のオイル種((I)~(III):Comp1)で見ると、概ね S/A 比が大きいほど Wall アッシュの厚みが厚い傾向があることが分かる。Bottom end からの堆積アッシュの厚み(Plug アッシュ長さ)については、S/A 比 1 と 4 では S/A 比が大きいほど長いですが、S/A 比 4 と 8 には大きな差は見られなかった。また異なるオイル種((I)~(III):Comp1 と(IV):Comp2)で比較すると、Comp2 オイルの場合は、Comp1 オイルの場合と比較して Wall アッシュの厚みが薄く、また Plug アッシュの長さも短くなっていることが分かる。

図 2.5 の厚み分布の DPF からアッシュを回収・分析して得られた、堆積アッシュの構造(物性)分析結果を、表 2.4, 表 2.5 に示す。

Table 2.4 Wall ash particle size distribution under each test condition

|       | Engine oil used |       | Mass flow rate |      | S/A ratio | Wall ash                                    |                     |                           |                     |
|-------|-----------------|-------|----------------|------|-----------|---|---------------------|---------------------------|---------------------|
|       |                 |       | Soot           | Ash  |           | Lognormal distribution of particle diameter |                     | Average particle diameter |                     |
|       |                 |       |                |      |           | Geometric mean                              | Geometric std. dev. | Area basis                | Vol. basis          |
|       |                 |       | g/h            | g/h  | -         | $D_{50}$<br>nm                              | $\sigma_g$<br>nm    | $D_3$<br>nm               | $D_4(d_{ag})$<br>nm |
| (I)   | Sample A        | Comp1 | 0.5            | 0.5  | 1         | 305   | 1.70                | 617                       | 819                 |
| (II)  |                 |       | 2.0            | 0.5  | 4         | 317   | 1.67                | 607                       | 788                 |
| (III) | Sample B        |       | 2.0            | 0.25 | 8         | 299   | 1.67                | 573                       | 743                 |
| (IV)  | Sample C        | Comp2 | 0.5            | 0.25 | 2         | 570   | 1.37                | 732                       | 810                 |

Table 2.5 Ash properties under each test condition

|       | Wall ash                                   |                   |                                    |                               |                   | Plug ash          |
|-------|--|-------------------|------------------------------------|-------------------------------|-------------------|-------------------|
|       | Permeability                               | Porosity          | Packing density                    | True density                  | Particle porosity | Packing density   |
|       | $k_{ash}$<br>$\times 10^{-15} \text{ m}^2$ | $\epsilon_2$<br>- | $\rho_{bulk}$<br>kg/m <sup>3</sup> | $\rho_o$<br>kg/m <sup>3</sup> | $\epsilon_1$<br>- | kg/m <sup>3</sup> |
| (I)   | 200  | 0.91              | 152                                | 3560                          | 0.52              | 204               |
| (II)  | 350  | 0.93              | 122                                | (3560)                        | 0.50              | 172               |
| (III) | 550  | 0.95              | 105                                | (3560)                        | 0.44              | 180               |
| (IV)  | 230  | 0.90              | 307                                | 3850                          | 0.18              | 410               |

以下、表 2.4 と表 2.5 にまとめた構造(物性)分析結果について、分析方法と、得られた結果に対する考察を、順に述べる。

(1) Wall アッシュの粒子径

表 2.4 の Wall アッシュの粒子径(2次粒子径)は、極細ブラシを用いて DPF より掻き出した Wall アッシュを FE-SEM で撮影し、画像処理により個数基準の粒子径分布を求めた。各堆積条件での Wall アッシュの FE-SEM 画像を図 2.6 に示す。

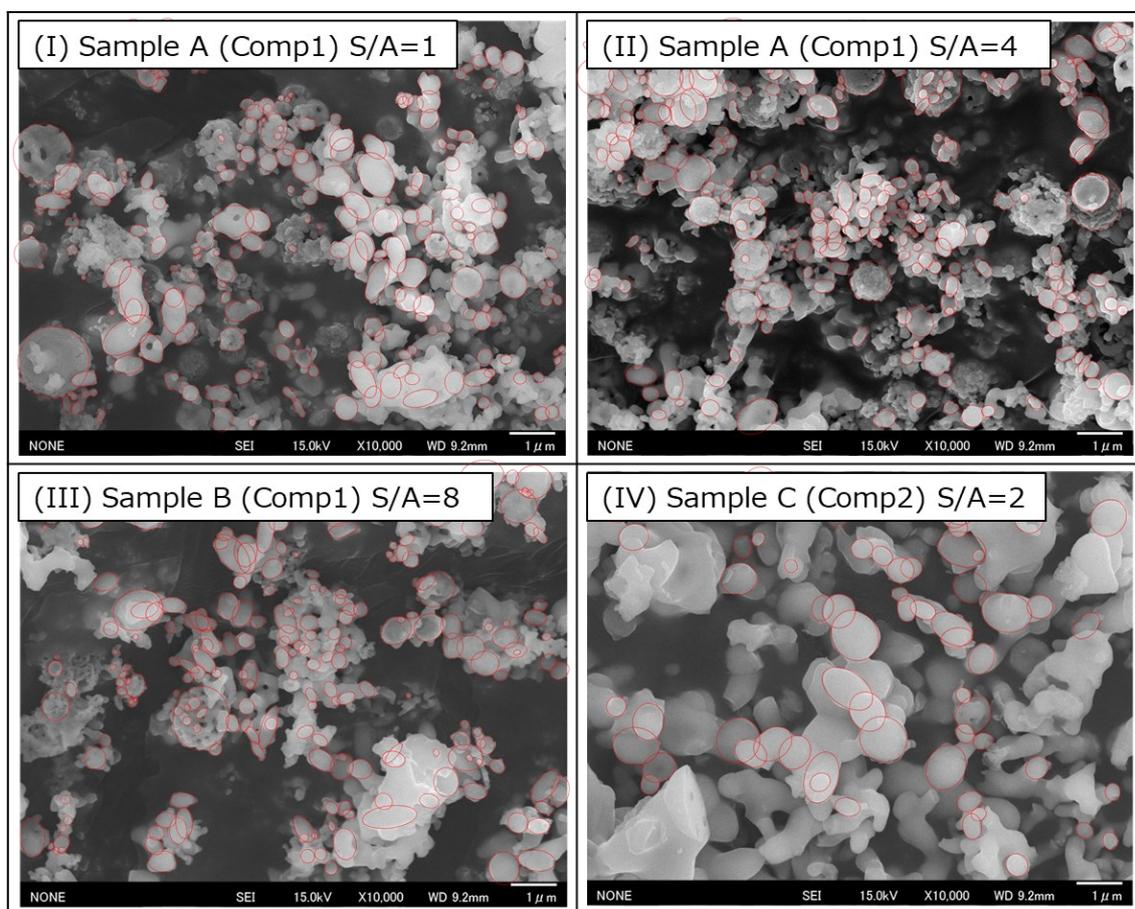


Fig.2.6 FE-SEM images of wall ashes accumulated by different oil and S/A ratio conditions

得られた SEM 画像より、(I)~(III)(Comp1 オイルでの S/A 比条件違い)に明確な差は見られませんが、(IV)の Comp2 オイルの場合については、他の条件よりも明らかに 2 次粒子が大きく見えることが分かる。

個数基準の粒子径分布の算出は、得られたFE-SEM 画像より、単一粒子と判断できる箇所を楕円でフィッティングし、画像処理により個々の楕円の面積を算出、それを真円相当直径に換算した面積相当径で集計し、条件(I)~(IV)それぞれの粒子径分布を求めた。なお分布を求める上で対象とした粒子数は、それぞれ条件(I)は 232 個、条件(II)は 248 個、条件(III)は 233 個、条件(IV)は 108 個、となる。スケールバーを基に画像解析により楕円面積を求めているが、 $1 \mu\text{m}=73 \text{ pixel}$ での解析のため、画像処理上の分解能は  $13.7 \text{ nm}$ となる。一方 SEMによる測長は、文献より倍率に最大で $\pm 10\%$ の誤差があり得る<sup>(2-3)</sup>ことから、仮に  $10\%$ を  $3\sigma$ とした場合に標準偏差  $\sigma$ は  $3.3\%$ となり、 $500 \text{ nm}$  に対し  $16.5 \text{ nm}$ となる。しかしながら、本解析では多数の粒子径をカウントしその分布を求めて平均粒子径を算出している。真の分布に対し、解析で得られた分布が若干ブロードな可能性はあるものの、平均径としてのばらつきは十分に小さい、と考えられる。なお粒子径既知の模擬アッシュ粒子( $20 \text{ nm}$ )の SEM 観察も実施しているが、概ね一致しており、支障となるような測長誤差は観察されていない。

得られた各堆積条件における個数基準の粒子径分布と、それをもとにフィッティングにより求めた対数正規分布、さらにはそこから求めた面積基準の平均径 $D_3$ 、体積基準の平均径 $D_4$  ( $d_{ag}$ )を、あわせて図 2.7 に示す。

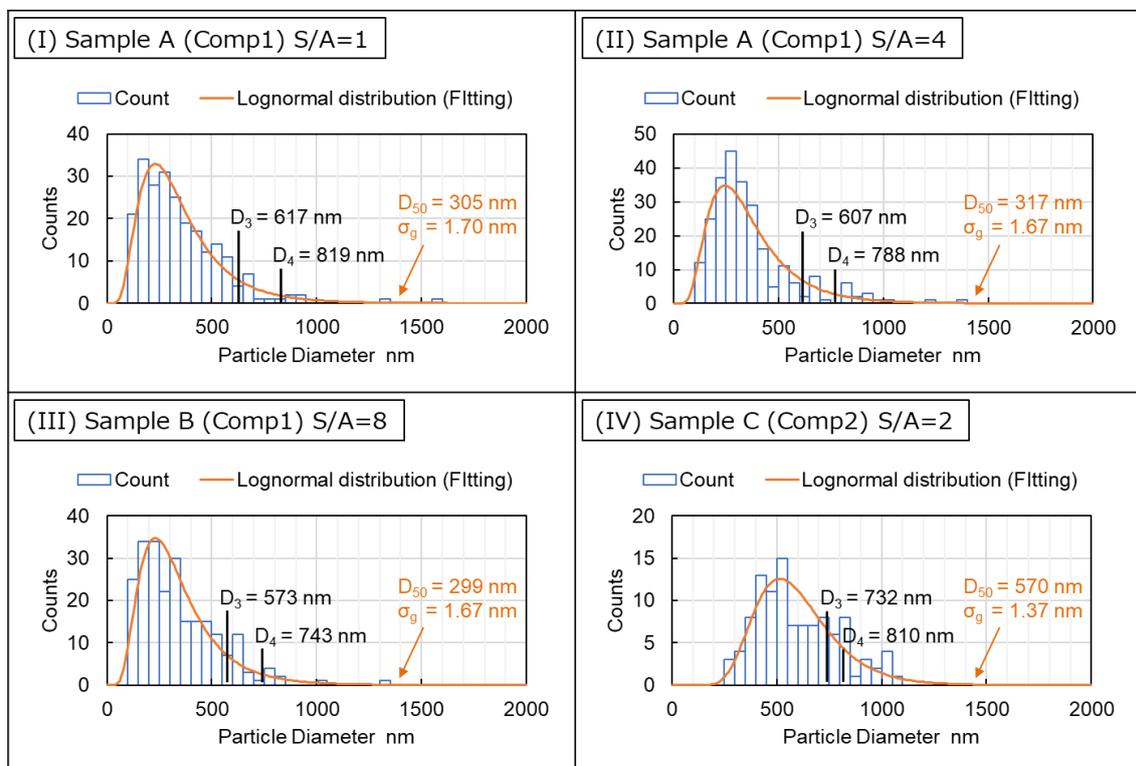


Fig.2.7 Wall ash particle diameter distributions under each test condition

ここで、対数正規分布(の積算分布)は次式で表される。

$$F(D_p) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \int_0^x \exp\left(-\frac{(x-\mu)^2}{2\sigma^2}\right) dx \quad (2.2)$$

ここに、

$$x = \ln D_p \quad (2.3)$$

$$\mu = \ln D_{50} \quad (2.4)$$

$$\sigma = \ln \sigma_g = \ln\left(\frac{D_{84.13}}{D_{50}}\right) \quad (2.5)$$

対数正規分布は横軸に粒子径の対数を取った際に、左右対称な正規分布になる分布であり、中位径(幾何平均径)  $D_{50}$  と幾何標準偏差  $\sigma_g$  が分布を決定するパラメータとなる。幾何標準偏差は、84.13%となる直径  $D_{84.13}$  を 50%となる径  $D_{50}$  で割れば求められる<sup>(2-4), (2-5)</sup>。粒子径は負の値をとらないため、 $\ln D_p$  の正規分布である対数正規分布が、一般に粉体に対してよく用いられるが<sup>(2-5)</sup>、アッシュの粒子径に対しても比較的良い一致が見られることから、対数正規分布にてフィッティングすることとした。以降の解析では、得られた対数正規分布 ( $D_{50}$ ,  $\sigma_g$ ) を基に、都度必要な平均粒子径を求めて計算に用いている。

平均粒子径には平均をとる対象として、粒子の個数なのか、表面積なのか、体積・質量なのか、何に着目して平均をとるかで異なる平均粒子径が存在するが、対数正規分布が当てはまる粉体の平均粒子径は、中位径(幾何平均径)  $D_{50}$  と幾何標準偏差  $\sigma_g$  より、数値積分を行わなくても代数計算により容易に求めることができる<sup>(2-4)</sup>。面積基準の平均径  $D_3$ 、体積基準の平均径  $D_4$  ( $d_{ag}$ ) の算出式<sup>(2-6), (2-7)</sup> を、次式に示す。

$$D_3 = D_{50} \exp(2.5 \ln^2 \sigma_g) \quad (2.6)$$

$$D_4 = D_{50} \exp(3.5 \ln^2 \sigma_g) \quad (2.7)$$

上式は Hatch, Choate らによる一連の研究により得られた関係式<sup>(2-8), (2-9)</sup> をもとに、常用対数(log)表記を自然対数(ln)表記に換算したものであり、Hatch-Choate の式とも呼ばれている<sup>(2-10)</sup>。

(2) Wall アッシュ層の透過率

表 2.5 の Wall アッシュ層の透過率 $k_{ash}$ は, DPG での実験結果として得られている堆積アッシュの厚み分布(図 2.5)と, 同じく実験結果として得られている流量-圧損の関係性より, シミュレーション(Exothermia 社の Axisuite)上で実際の堆積アッシュ厚み分布を再現させた流路モデルを作成し, 流量-圧損の関係性が実験結果を再現するような Wall アッシュ層の透過率を, 同定により求めた.

作成したアッシュ堆積DPFの流路圧損計算モデルの概略図を図 2.8 に示す. DPF 圧損モデルには, Inlet・Outlet チャネルの軸方向 1 次元に, アッシュ堆積を含む Wall 垂直方向 1 次元を考慮した, 準 2 次元モデルを採用した. 軸方向の計算格子数は 30 である.

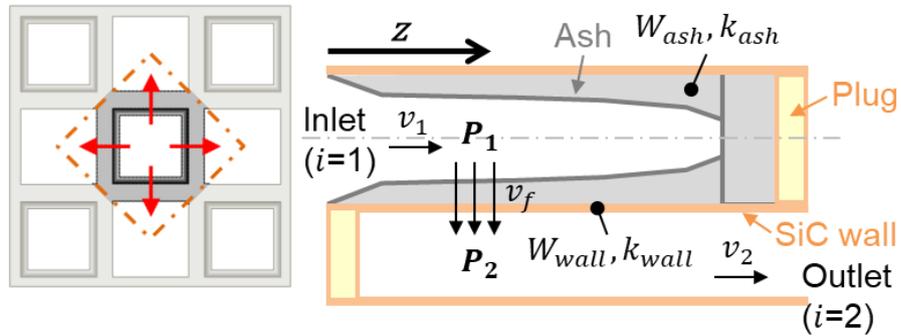


Fig.2.8 Schematic representation of pressure loss calculation model of DPF channel with ash deposition

アッシュ堆積層と基材 Wall 透過時の圧力損失は, 次式のダルシー則により求められる.

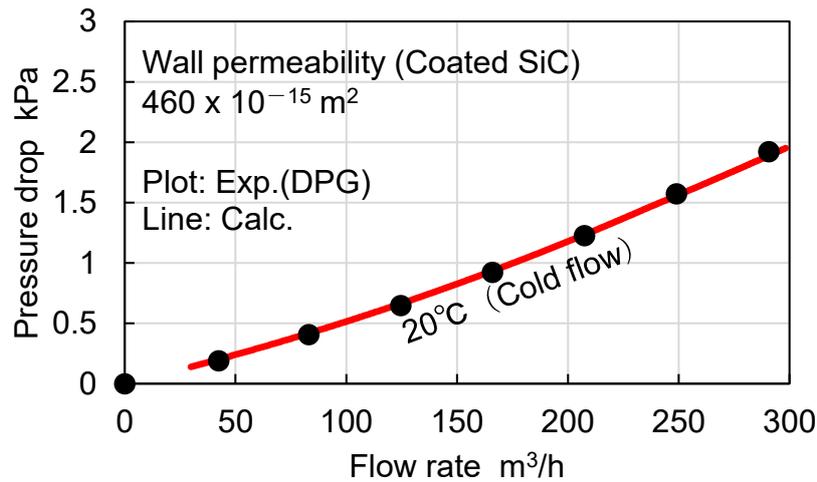
$$P_1 - P_2 = \mu \left( \frac{W_{wall}}{k_{wall}} + \frac{W_{ash}}{k_{ash}} \right) v_f \quad (2.8)$$

ここで,  $\mu$ は Wall 透過ガスの粘性係数[Pa・s],  $W$ は多孔質層の厚さ[m],  $v_f$ は多孔質層透過ガスの流速[m/s],  $k$ は多孔質層の透過率[m<sup>2</sup>]であり, 添え字の *wall*は DPF の SiC Wall 層, *ash*はアッシュ堆積層を示す.

Wall 透過ガスの粘性係数 $\mu$ は, 次式に示すサザーランド(Sutherland)の公式により求めた. ここで,  $T$ が透過ガスの温度[K]である. また $\mu_0$ は基準温度での粘性係数[Pa・s],  $T_0$ は基準温度[K],  $C$ はサザーランドの定数[K]で, 標準空気を仮定してそれぞれ $\mu_0 = 18.27 \times 10^{-6}$ ,  $T_0 = 291.15$ ,  $C = 120$ とした.

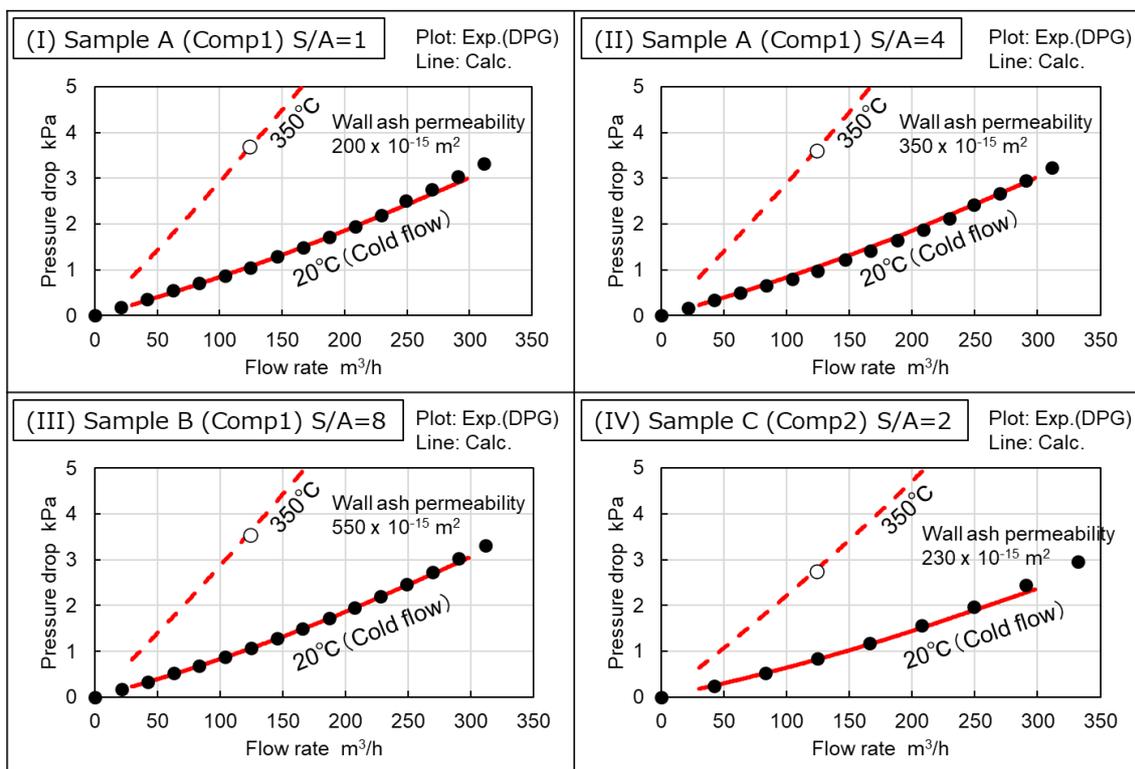
$$\mu = \mu_0 \left( \frac{T}{T_0} \right)^{\frac{3}{2}} \cdot \frac{T_0 + C}{T + C} \quad (2.9)$$

計算で用いる SiC Wall(基材)の厚み $w_{wall}$ は、表 2.1 に示す供試 DPF の仕様値より  $w_{wall} = 280 \mu\text{m}$  とした。また基材の透過率 $k_{wall}$ は、触媒担持後の透過率はメーカー公称値がなく不明であったため、予め基材のみ(アッシュ堆積なし)で計測した流量-DPF 前後圧損の実験データから同定により求め、 $k_{wall} = 460 \times 10^{-15} \text{ m}^2$  とした。基材透過率同定後の基材圧損の計算結果を、実験結果と合わせて図 2.9 に示す。



**Fig.2.9 Calculation result of DPF pressure drop without ash/soot deposition after coated SiC wall permeability fitting**

以上の様にして得られた粘性係数 $\mu$ 、基材厚み $w_{wall}$ 、基材透過率 $k_{wall}$ と、DPG 実験結果として得られている堆積アッシュの厚み分布(図 2.5)を用いて、アッシュ堆積 DPF の流量-DPF 前後圧損の関係を計算し、Wallアッシュの透過率 $k_{ash}$ を変えて実験結果と整合させることで、 $k_{ash}$ を同定した。Wallアッシュの透過率同定後の計算結果を、実験結果と合わせて図 2.10 に示す。なお、同定により得られた Wall アッシュの透過率値も図中に示している。これより、流通ガス温度が異なる 2 条件を透過率同定時の対象データとしたが、同一の透過率値で良い一致が見られていることが分かる。



**Fig.2.10 DPG Experimental results of pressure drop depending on flow rate of DPF inlet and comparison of simulation results under each test condition after fitting the wall ash permeability**

(3) Wall アッシュ層の空隙率

表 2.5 の Wall アッシュ層の空隙率 $\varepsilon_2$ は, 式 2.6 で得られた面積基準の粒子径 $D_3$ と Wall アッシュ層透過率 $k_{ash}$ をダルシー則と Kozeny-Carman 式より得られる次式<sup>(2-11)</sup>に適用し, 計算で求めた.

$$k_{ash} = \frac{\varepsilon_2^3}{180(1 - \varepsilon_2)^2} D_3^2 \quad (2.10)$$

上式の導出は以下の通り.

まずダルシー則より, 粒子堆積層(充填層)の圧力損失は次式で表される.

$$\Delta P = \mu \frac{W}{k} v_f \quad (2.11)$$

一方, Kozeny-Carman 式は, 以下の様に導出される.

まず空隙率 $\varepsilon$ , 長さ(厚さ) $W$ [m]の粒子充填層(Packed Bed)を, 図 2.11 のように内径 $D_e$ [m], 長さ $W_e$ [m]の屈曲した微細管の集合と考える.

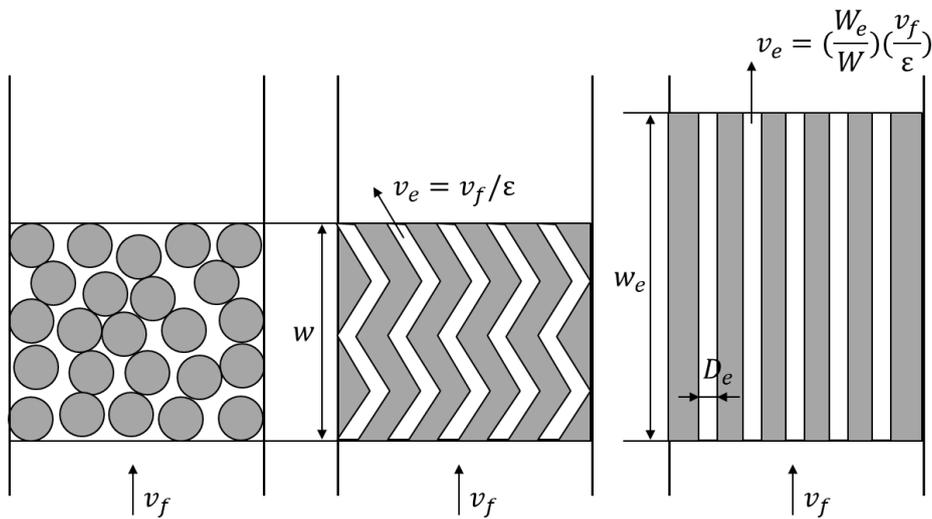


Fig.2.11 Flow model of packed bed <sup>(2-12)</sup>

この場合, 粒子間の隙間の割合は $\varepsilon$ , 長さは $W_e/W$ 倍となるので, 透過ガスの流速(空塔速度) $v_f$ [m/s]と, 微細管の管路内平均流速 $v_e$ [m/s]との間には, 次式が成立する<sup>(2-12)</sup>.

$$v_e = \left(\frac{W_e}{W}\right) \left(\frac{v_f}{\varepsilon}\right) \quad (2.12)$$

ここで層流流れを仮定すると、内径 $D_e$ [m]、長さ $W_e$ [m]、通過ガスの粘性係数 $\mu$ [Pa·s]として、管路通過により発生する圧力損失 $\Delta P$ [Pa]と管路内平均流速 $v_e$ [m/s]の関係は、ハーゲン・ポアズイユの式より、次式で表される。ここで、 $Re$ はレイノルズ数、 $\rho$ は透過ガスの密度である。

$$\Delta P = \frac{64}{Re} \cdot \frac{W_e}{D_e} \cdot \frac{1}{2} \rho v_e^2 = \frac{32}{D_e^2} \mu W_e v_e \quad (2.13)$$

式 2.12 と式 2.13 より、次式が得られる。

$$\frac{\Delta P}{W} = \frac{32 \left(\frac{W_e}{W}\right)^2}{\varepsilon D_e^2} \mu v_f \quad (2.14)$$

仮想した内径 $D_e$ は、粒子充填層の空隙体積と充填粒子の全表面積の比を 4 倍して求めることができる。即ち、粒子充填層の空隙率 $\varepsilon$ と、粒子の単位体積当たりの表面積(比表面積) $S_v$ を用いて、次式が得られる<sup>(2-12)</sup>。

$$D_e = \frac{4\varepsilon}{(1-\varepsilon)S_v} \quad (2.15)$$

式 2.14 と式 2.15 より、次式が得られる。

$$\frac{\Delta P}{W} = 2 \left(\frac{W_e}{W}\right)^2 \frac{(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3} S_v^2 \mu v_f \quad (2.16)$$

比表面積 $S_v$ は、面積基準の粒子径 $D_3$ を用いて $S_v = 6/D_3$ と表すことができる<sup>(2-13)</sup>。これを式 2.16 に代入すると、次式が得られる。

$$\frac{\Delta P}{W} = 2 \left(\frac{W_e}{W}\right)^2 \cdot 36 \frac{(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3 D_3^2} \mu v_f = 36 \cdot K \frac{(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3 D_3^2} \mu v_f \quad (2.17)$$

ここで $K$ は、微細管の長さ $W_e$ と粒子充填層の長さ(厚さ) $W$ の比(屈曲率)の 2 乗の 2 倍表され、Cozeny 定数と呼ばれる。Carman はこの $K$ の値について、多くの研究者及び自らの実験値に基づいて検討し、5.0 に近いことを確かめ、この値を入れて次式を導いた<sup>(2-14)</sup>。

$$\frac{\Delta P}{W} = \mu \frac{180(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3 D_3^2} v_f \quad (2.18)$$

上式が Kozeny-Carman 式と呼ばれ、層流条件での粒子充填層の圧力損失を求めるのに広く用いられている<sup>(2-14)</sup>。

上式と式 2.11 より, 次式が導かれる.

$$k = \frac{\varepsilon^3}{180(1 - \varepsilon)^2} D_3^2 \quad (2.19)$$

以上の様にして, 式 2.10 を導いた.

式 2.10 より得られる, 空隙率・粒子径と透過率の関係を, 図 2.12 に示す. 今回同定により求めた Wall アッシュの透過率と空隙率をプロットで示しているが, 濃縮オイルを用いて DPG で加速堆積させたアッシュではあるものの, 透過率・空隙率共に前章の表 1.1 で調べた文献値<sup>(1-42)</sup> の範囲に入っており, アッシュ物性(構造)として概ね妥当なオーダーが得られていると考える.

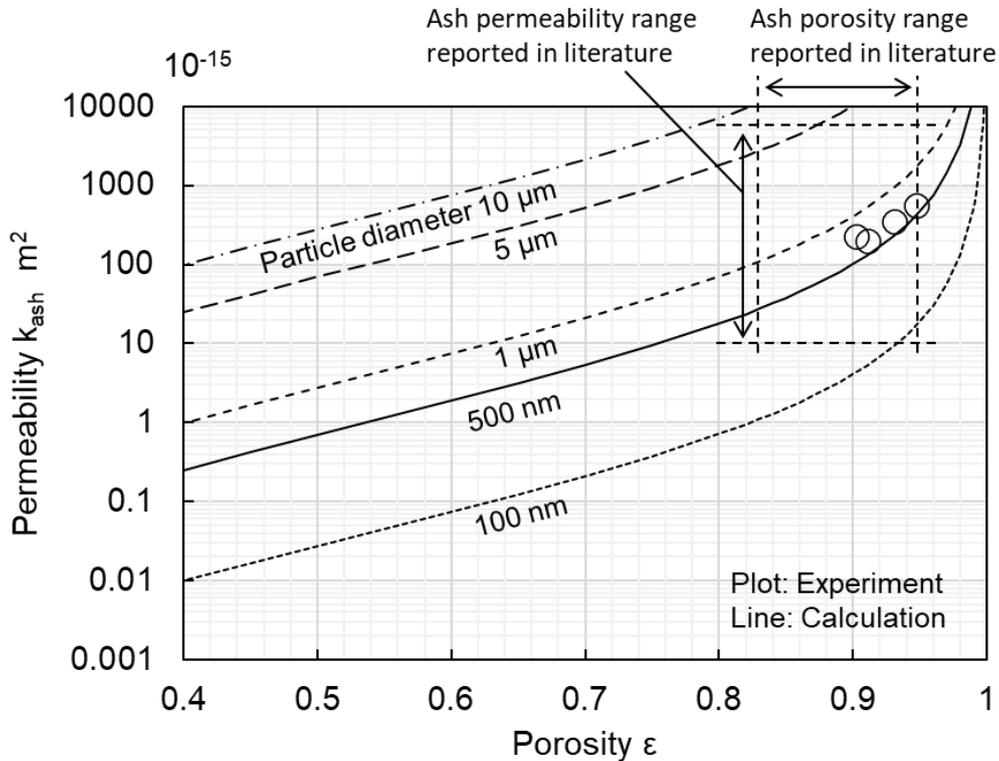


Fig.2.12 Permeability depending on particle diameter and porosity calculated from Kozeny-Carman equation, and comparison of calculated wall ash permeability and porosity to literature<sup>(1-42)</sup>

(4) Wall アッシュ層と Plug アッシュのかさ密度

表 2.5 の Wall アッシュ層のかさ密度  $\rho_{bulk}$  は, 図 2.5 で得られている堆積アッシュの厚み分布と, アッシュ堆積前後の DPF 重量差より求めた総アッシュ堆積量  $m_{ash\ total} = 41.3\ g$  より, 以下の様に求める. アッシュが堆積した DPF チャンネル内の模式図を図 2.13 に示す.

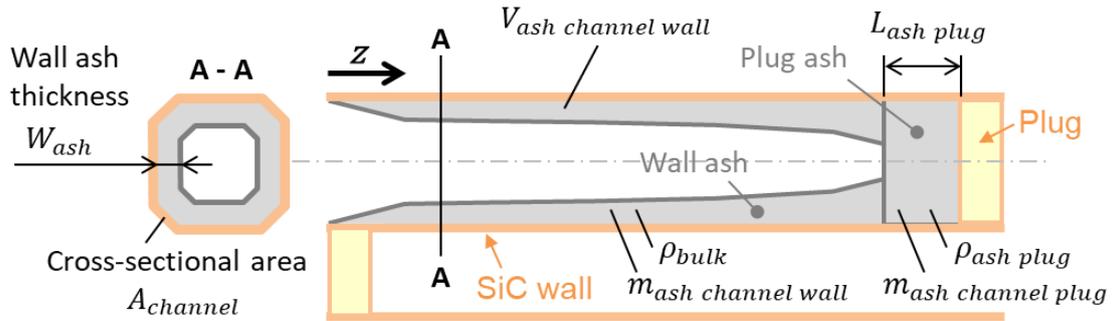


Fig.2.13 Schematic representation of channel geometry and ash distribution of DPF

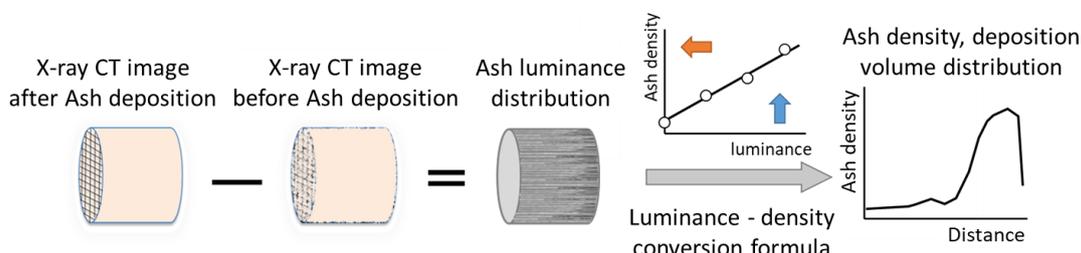
まず, DPF の重量増分から算出した全堆積アッシュ量  $m_{ash\ total}$  であり, 画像解析でカウントした Inlet チャンネル数  $N_{channels}$  であったので, 1 チャンネル (Inlet) 当たりのアッシュ堆積量は  $m_{ash\ total}/N_{channels} = m_{ash\ channel}$  となる. 次に 1 チャンネル当たりの Plug アッシュ堆積量は, 後に述べる X 線 CT 解析により求めた Plug アッシュ長さ  $L_{ash\ plug}$  とかさ密度  $\rho_{ash\ plug}$  より, 1 チャンネルの断面積  $A_{channel}$  を考慮して計算すると,  $A_{channel} \times L_{ash\ plug} \times \rho_{ash\ plug} = m_{ash\ channel\ plug}$  となる. したがって, Wall アッシュの堆積量  $m_{ash\ channel\ wall}$  は, 1 チャンネル当たりのアッシュ堆積量  $m_{ash\ channel}$  と, Plug アッシュ堆積量  $m_{ash\ channel\ plug}$  の差分で求められる.

1 チャンネル当たりの Wall アッシュ層の体積  $V_{ash\ channel\ wall}$  は, 図 2.13 に示すチャンネルジオメトリと, 図 2.5 の通りに得られている Wall アッシュ堆積厚み (分布) より, チャンネル軸方向 (Z 方向) の各断面について Wall アッシュの断面積を算出し, それを軸方向に積分することで計算される.

得られた Wall アッシュの堆積量 (質量)  $m_{ash\ channel\ wall}$  と体積  $V_{ash\ channel\ wall}$  より, Wall アッシュ層のかさ密度  $\rho_{bulk} = m_{ash\ channel\ wall}/V_{ash\ channel\ wall}$  で求められる.

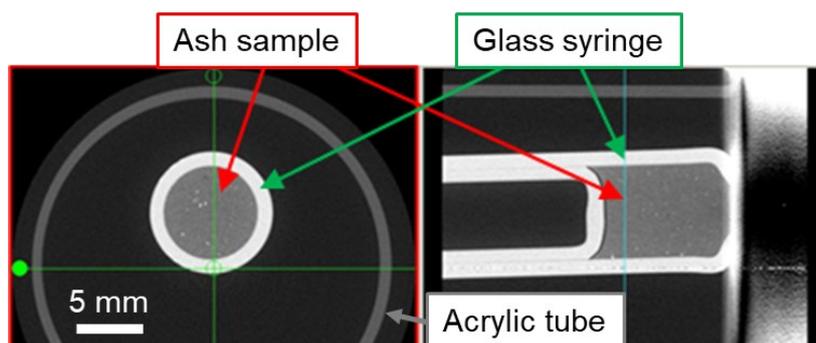
供試 DPF では  $N_{channels} = 3662$  個より, 1 チャンネル当たりのアッシュ堆積量  $m_{ash\ channel}$  は 11.2 mg となる. ここで S/A 比=1 の場合を例にとると,  $L_{ash\ plug} = 7.7\ mm$ ,  $\rho_{ash\ plug} = 204\ kg/m^3$ ,  $A_{channel} = 1.43\ mm^2$  より,  $m_{ash\ channel\ plug} = 2.3\ mg$ ,  $m_{ash\ channel\ wall} = 8.9\ mg$  となる. また  $V_{ash\ channel\ wall} = 58.5\ mm^3$  より, S/A 比=1 の場合, Wall アッシュ層のかさ密度  $\rho_{bulk}$  は  $152\ kg/m^3$  となる.

表 2.5 の Plug アッシュのかさ密度は、X 線 CT で得られた Plug アッシュの輝度値より、予め密度の異なるアッシュ充填層で作成しておいた輝度-密度校正曲線により換算して求めたものである<sup>(2-15)</sup>。Plug アッシュのかさ密度算出方法を図 2.14 に示す。



**Fig.2.14 Schematic representation of quantification procedure of ash bulk density deposited in DPF channel <sup>(2-15)</sup>**

DPG でのアッシュ堆積運転前後で、供試 DPF より抜き出した TP をそれぞれ X 線 CT 撮影し、得られた像の差分を取ることで、DPF-TP に堆積したアッシュのみの輝度データを抽出する。得られた輝度値を予め作成しておいた輝度-密度校正曲線に照らすことで、堆積アッシュの密度分布が求められる。なお X 線 CT 撮影で得られる輝度値は、X 線強度の変動により撮影ごとにばらつきが生じるため、アクリル板を基準物質として同時に撮影し、コントラストの補正を行っている。輝度-密度校正曲線は、かさ密度が明確な状態にコントロールしたアッシュサンプルを数種類用意し、得られた輝度値と既知のかさ密度を用いて、校正曲線を作成した<sup>(2-15)</sup>。X 線 CT 撮影を実施したアッシュサンプルの例を図 2.15 に示す。



**Fig.2.15 X-ray CT image of referenced ash sample <sup>(2-15)</sup>**

充填したアッシュは、解析対象アッシュと同様に DPG で生成したものである。これを規定質量ガラスシリンジに充填することで、かさ密度既知のアッシュサンプルを作成した。作成した密度違い 3 種類のアッシュサンプルに、アッシュを充填しない空気封入シリンジを加えた計 4 種類について、

X線 CT 撮影を実施した。得られた輝度-密度校正曲線(直線)を図 2.16 に示す。なお、サンプルの計測結果をプロットで示している。これらの最小二乗法による近似直線をアッシュの輝度-密度校正線として用いることで、Plug アッシュのかさ密度を算出した。

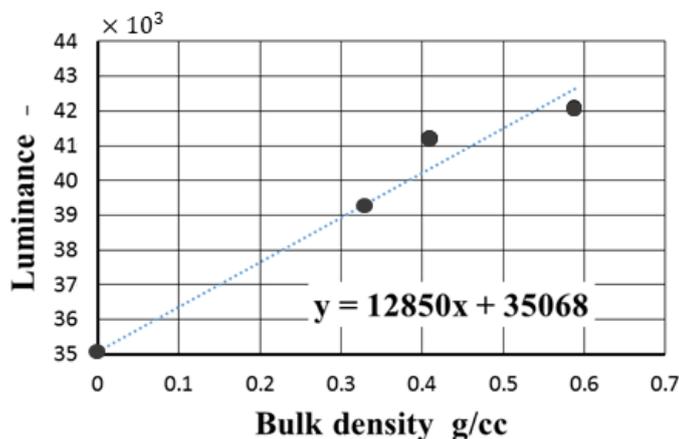


Fig.2.16 Calibration line of luminance to bulk density of DPG ash (2-15)

以上の様にして X 線 CT 解析で求めた Plug アッシュのかさ密度の分布を図 2.17 に示す。

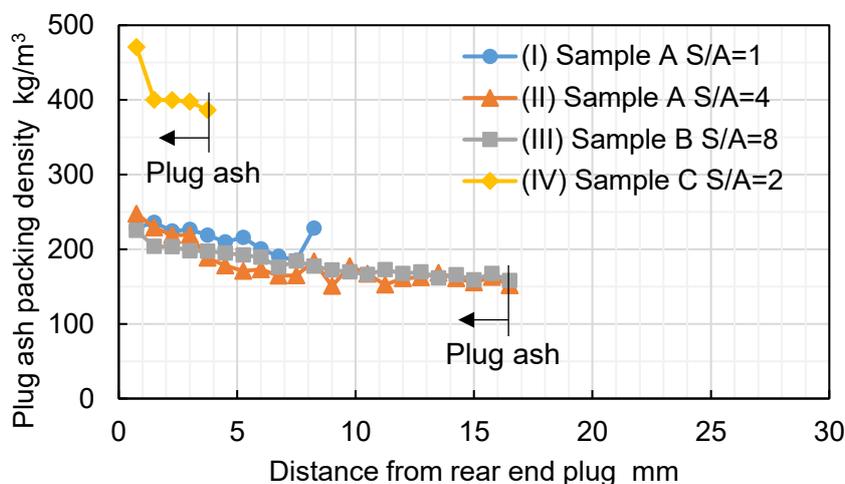


Fig.2.17 Plug ash packing density distribution of each soot loading condition

プロットは、CT 像より Plug アッシュの存在が確認される位置までの、各条件における断面平均かさ密度を示す。これより Plug 端が最も高く、上流側ほど密度が低下していることが分かるが、これは断面平均値であるため、Wall アッシュかさ密度の影響を受けていると考えられる。なお表 2.5 に記載の Plug アッシュのかさ密度は、上記の様に流路後端からの距離に依存した分布を持つ密度を、Plug アッシュ長さで平均化して表記している。

## (5) Wall アッシュの真密度

表 2.5 の Wall アッシュの真密度 $\rho_0$ は、アッシュサンプルを X 線回折 (X-Ray Diffraction; XRD) 測定により構成成分を同定し、さらにリトベルト法による回帰分析で各構成成分の質量分率を同定することで求めた。なお、本分析は株式会社東レリサーチセンターにて実施した。また本分析に用いたアッシュサンプルは、JARI より提供された DPG にてストレスモードで作成した再生履歴の無いアッシュを、スート(カーボンブラック/Printex V)と質量比 1:1(S/A 比 1)で混合し、次節で述べる流通昇温装置にて 680 °C でスートを燃焼させ、生成した焼成アッシュを用いた。

X 線回折 (XRD) 法は、波長 $\lambda$ が既知の X 線を物質へ入射し、入射角を変えながら、その回折角 $2\theta$ とその X 線強度を測定することで得られる回折 X 線の強度パターンを、標準物質のピーク角パターンのデータベースと比較することで、構成成分を同定する手法であり、次のブラッグ (Bragg) の式で表される関係性を基礎としている。

$$2d \sin\theta = n\lambda \quad (2.20)$$

ここで、 $d$ は結晶中の原子間隔、 $2\theta$ が X 線の回折角、 $n$ は反射次数、 $\lambda$ は X 線の波長である。上式で表される関係性を、図 2.18 に示す。

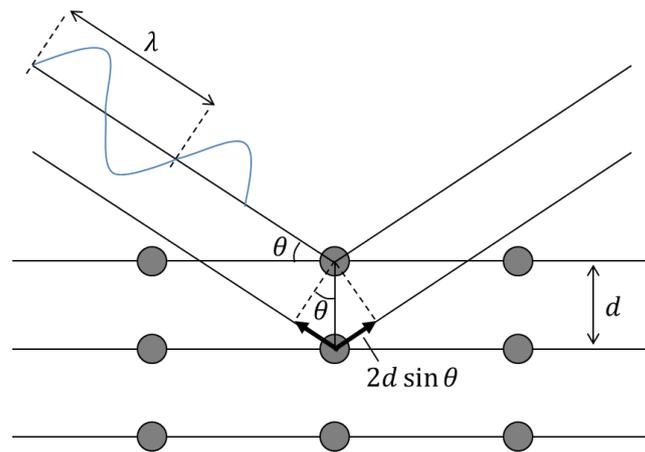


Fig.2.18 Schimatic representation of Bragg's law

リトベルト法は、上記 XRD 法で同定した構成成分それぞれについて、結晶構造モデルとプロフィールモデルに基づいて成分ごとの回折パターンを作成し、それを重ね合わせて、含有量が相対的に増加すれば増大するスケール因子をフィッティングすることで、構成成分を定量化する手

法である。結晶構造パラメータが手元にある場合に有力な定量化手法であり、研究開発および原材料の品質管理の現場で広く使用されている<sup>(2-16)</sup>。

Comp1 オイルでのアッシュサンプルについて、XRD 測定結果と、リートベルト解析結果を、それぞれ図 2.19 と図 2.20 に示す。

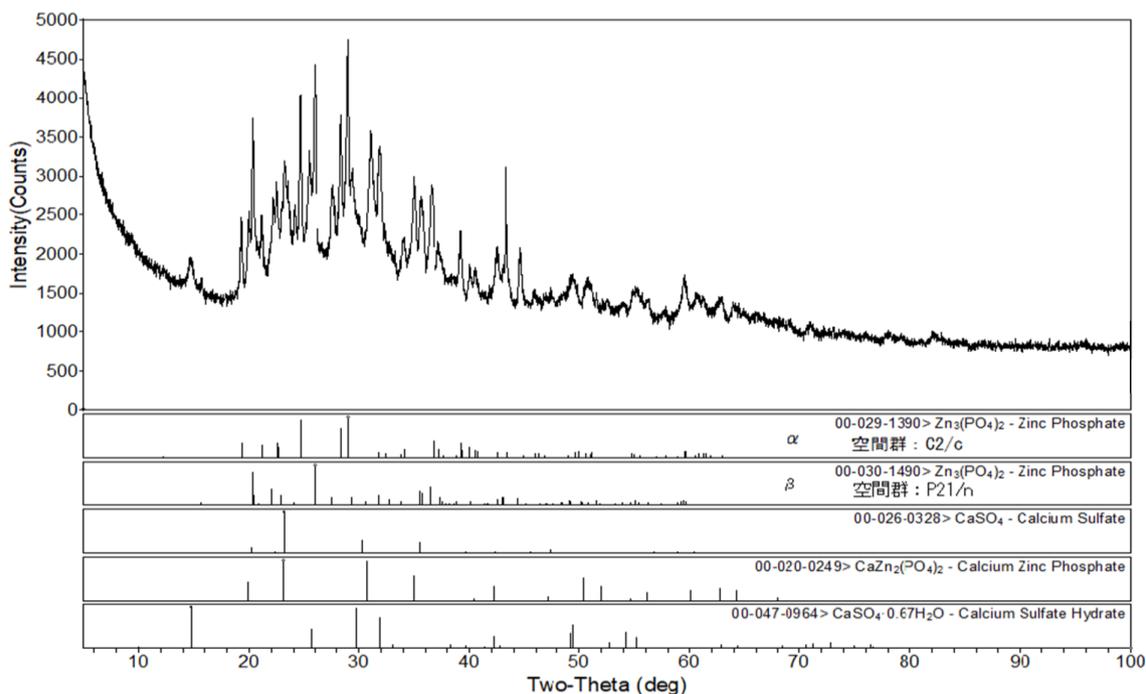


Fig.2.19 Wide angle x-ray diffraction pattern and standard pattern of each materials of Comp1 oil based ash

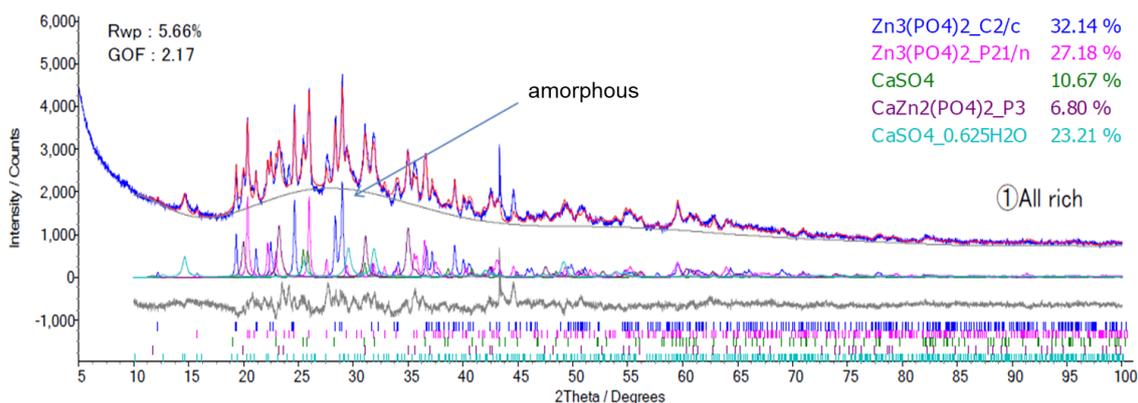


Fig.2.20 Rietveld analysis result of Comp1 oil based ash

これより Comp1 オイルでのアッシュサンプルは、 $\alpha$ - $Zn_3(PO_4)_2$  32%、 $\beta$ - $Zn_3(PO_4)_2$  27%、 $CaSO_4$  11%、 $CaZn_2(PO_4)_2$  7%、 $CaSO_4 \cdot 0.625H_2O$  23% で構成されていることが分かる。 $CaSO_4$

は吸湿によると考えられる水和物として 23%検出されているが、実際にアッシュが生成された直後の環境では高温のため水和物には変化していないと考えられることから、これも  $\text{CaSO}_4$  として解析する。

Comp2 オイルでのアッシュサンプルについて、XRD 測定結果と、リートベルト解析結果を、それぞれ図 2.21 と図 2.22 に示す。

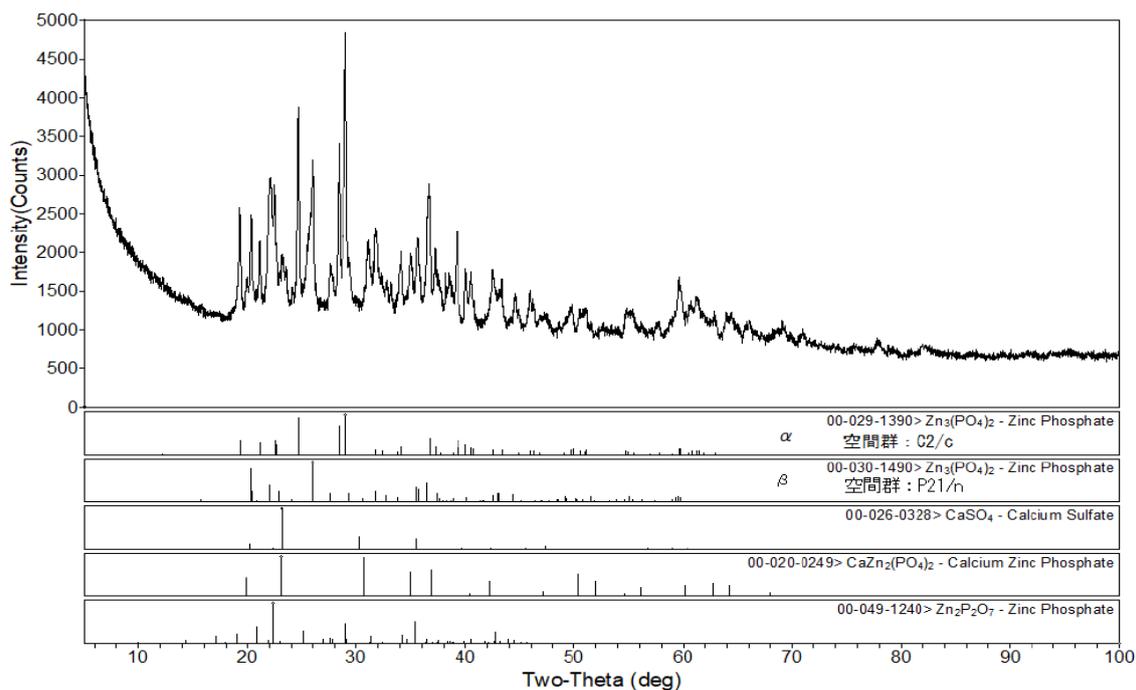


Fig.2.21 Wide angle x-ray diffraction pattern and standard pattern of each materials of Comp2 oil based ash

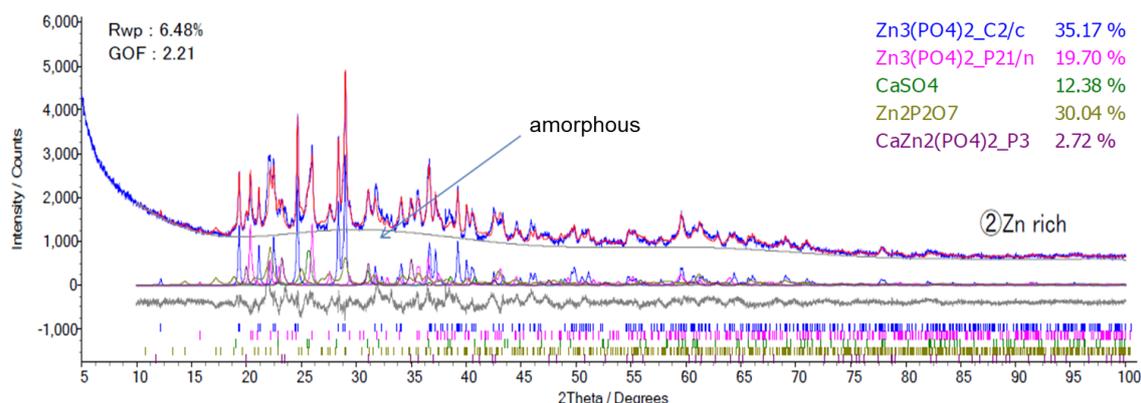


Fig.2.22 Rietveld analysis result of Comp2 oil based ash

これより Comp2 オイルでのアッシュサンプルは、 $\alpha$ - $Zn_3(PO_4)_2$  35%、 $\beta$ - $Zn_3(PO_4)_2$  20%、 $CaSO_4$  12%、 $CaZn_2(PO_4)_2$  3%、 $Zn_2P_2O_7$  30% で構成されていることが分かる。Comp1 オイルでのアッシュと比較すると、 $CaSO_4$  は 3 分の 1 ほどに減少しており、代わりに  $Zn_2P_2O_7$  (2リン酸亜鉛) が多く含まれていることが分かる。

以上分析により得られた構成成分と質量分率より、Comp1 と Comp2、各オイル由来アッシュの真密度をそれぞれ表 2.6、表 2.7 に示す。

**Table 2.6 Estimated true density of wall ash of Comp1 engine oil based on XRD analysis**

| <u>Comp1</u><br>(I), (II), (III) | Mass fraction<br>wt% | Density<br>kg/m <sup>3</sup> |      |
|----------------------------------|----------------------|------------------------------|------|
| $CaSO_4$                         | 34                   | 2960                         | 3560 |
| $\alpha$ - $Zn_3(PO_4)_2$        | 32                   | 3835                         |      |
| $\beta$ - $Zn_3(PO_4)_2$         | 27                   | 3973                         |      |
| $CaZn_2(PO_4)_2$                 | 7                    | 3650                         |      |
| $Zn_2P_2O_7$                     | 0                    | 4180                         |      |

**Table 2.7 Estimated true density of wall ash of Comp2 engine oil based on XRD analysis**

| <u>Comp2</u><br>(IV)      | Mass fraction<br>wt% | Density<br>kg/m <sup>3</sup> |      |
|---------------------------|----------------------|------------------------------|------|
| $CaSO_4$                  | 12                   | 2960                         | 3850 |
| $\alpha$ - $Zn_3(PO_4)_2$ | 35                   | 3835                         |      |
| $\beta$ - $Zn_3(PO_4)_2$  | 20                   | 3973                         |      |
| $CaZn_2(PO_4)_2$          | 3                    | 3650                         |      |
| $Zn_2P_2O_7$              | 30                   | 4180                         |      |

以上より、Comp1 オイルアッシュサンプルの真密度は 3560 kg/m<sup>3</sup>、Comp2 オイルアッシュサンプルの真密度は 3850 kg/m<sup>3</sup> と得た。

(6) Wall アッシュ 2 次粒子内の空隙率

表 2.5 の Wall アッシュ 2 次粒子内の空隙率 $\varepsilon_1$ は, 以上のように得られた Wall アッシュ層の空隙率(2 次粒子間の空隙率) $\varepsilon_2$ と, かさ密度 $\rho_{bulk}$ , 真密度 $\rho_0$ を用いて, 次式により求めた. ここで $\varepsilon$ は, アッシュ堆積層全体の空隙率である.

$$\varepsilon = 1 - \frac{\rho_{bulk}}{\rho_0} \quad (2.21)$$

$$\varepsilon = 1 - (1 - \varepsilon_1)(1 - \varepsilon_2) \quad (2.22)$$

表 2.4, 表 2.5 の DPF 堆積アッシュの各物性(構造)の分析・解析方法は, 以上の通りである.

(7) S/A 比やオイル種違いが堆積アッシュ構造に及ぼす影響

以上のようにして得られた DPF 堆積アッシュの構造(物性)解析結果より, S/A 比やオイル種違いによるアッシュの構成成分違いが, 堆積アッシュの構造(物性)に及ぼす影響を考察する.

まず同一オイル種(Comp1)における, S/A 比に対する Wall アッシュの 2 次粒子径変化(面積基準  $D_3$ , 体積基準  $D_4$ )と, 2 次粒子内空隙率  $\epsilon_1$  の変化を, 図 2.23 に示す. 横軸の S/A 比 1 にて縦に並ぶデータが条件(I)のデータ, S/A 比 4 にて縦に並ぶのが条件(II)のデータ, S/A 比 8 にて縦に並ぶのが条件(III)のデータだが, これより S/A 比が大きいほど, 僅かながら Wall アッシュの 2 次粒子径が縮小していること, またそのとき 2 次粒子内の空隙率  $\epsilon_1$  が減少していること, が分かる.

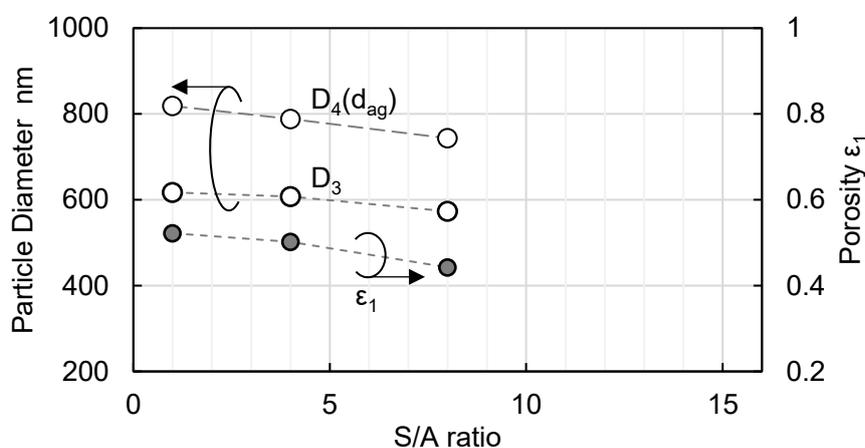


Fig.2.23 The effect of S/A ratio on wall ash particle diameter and porosity

また, 得られた S/A 比に対する Wall アッシュ層の空隙率  $\epsilon_2$  の変化を, 図 2.24 に示す. これより S/A 比が大きいほど, Wall アッシュ層の(2 次粒子間の)空隙率  $\epsilon_2$  が増加していることが分かる.

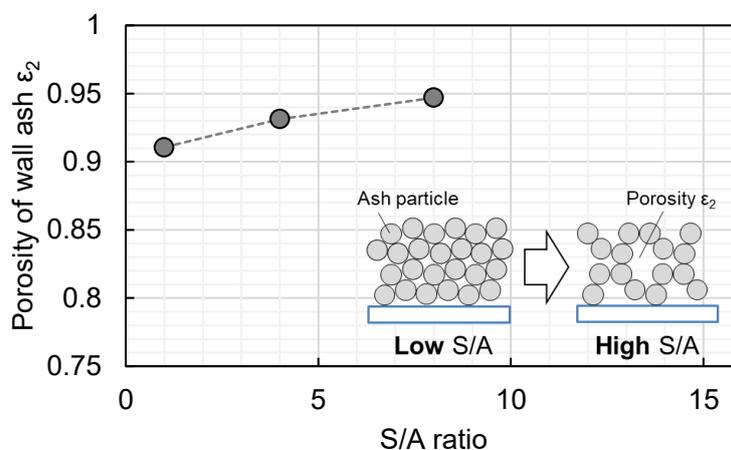
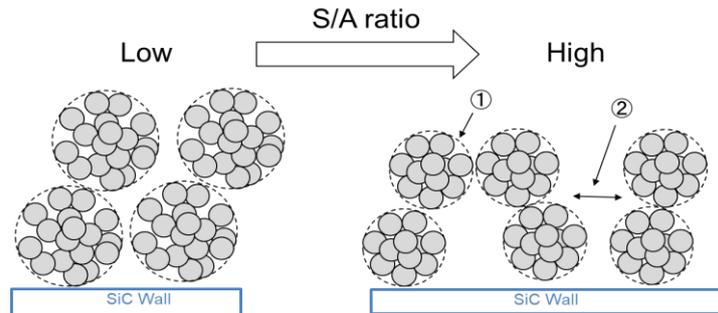


Fig.2.24 The effect of S/A ratio on wall ash porosity

S/A 比がアッシュ層の構造形成に及ぼす影響について考察する. S/A 比と 2 次粒子径(①), Wall アッシュ層空隙率(②)の関係を図 2.25 示す.



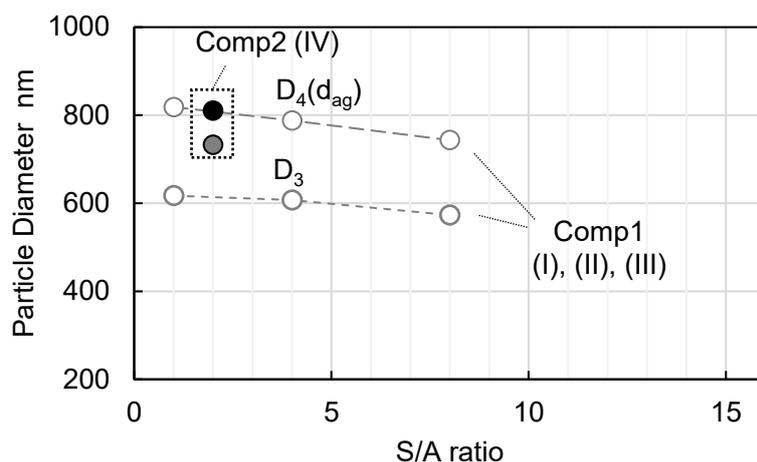
**Fig.2.25 Estimated behavior of wall ash porosity and ash particle diameter and permeability change in S/A ratio<sup>(5-1)</sup>**

S/A 比が大きい, 即ちスート比率が多い場合, ①に示すアッシュ 2 次粒子は, スート燃焼熱(酸化熱)の影響を大きく受けて強固に焼結するため, 2 次粒子内の空隙は少なく, 粒子直径は小さくなる. 同時にアッシュに対して相対的にスートの量が多い条件のため, スートの酸化消失により形成される②のアッシュ 2 次粒子間の空隙は多くなる, と考えられる. ガスの透過性に関しては, 式 2.10 より 2 次粒子の粒子径と 2 次粒子間の空隙率に多く依存すると言えるため, S/A 比が大きいほど形成される Wall アッシュ層のガス透過性は大きくなる, と考えることができる.

一方 S/A 比が小さい, 即ちスート比率が少ない場合, 2 次粒子の焼結は弱く, 相対的に空隙の多い 2 次粒子となり, 直径は大きくなる. しかしながら, 2 次粒子間の空隙は少ないため, ガスは透過しにくくなる, と考えられる.

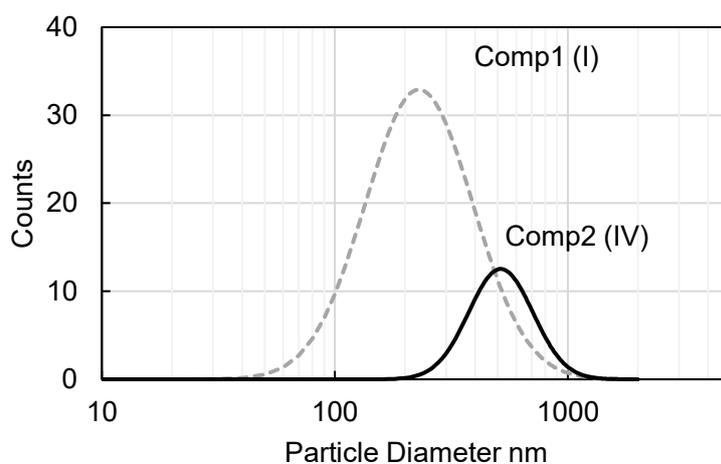
次に、オイル種違い(アッシュの構成成分違い)の影響を考察する。

まず Wall アッシュの 2 次粒子径(面積基準 $D_3$ , 体積基準 $D_4$ )について、Comp1 オイル由来アッシュ(条件(I), (II), (III))に対して得られた S/A 比に対する感度の結果(図 2.23)に、Comp2 オイル由来アッシュ(条件(IV))の結果を追記し、図 2.26 に示す。



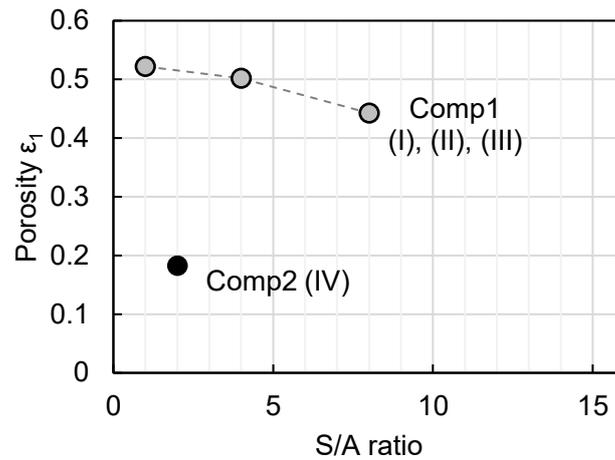
**Fig.2.26 Comparison of wall ash particle diameter between Comp1 derived ash and Comp2 derived ash**

上記結果より、Comp2 オイル由来アッシュ(IV)の 2 次粒子径は、体積基準の平均粒子径( $D_4$ )では Comp1 オイル由来のアッシュ(I), (II), (III)の特性線上に乗るものの、面積基準の平均粒子径( $D_3$ )ではそうになっていないことが分かるが、これは粒子径分布が異なるためである。Comp2 オイル由来アッシュ(IV)と、Comp1 オイル由来アッシュ(I)の粒子径分布の比較を図 2.27 に示す。



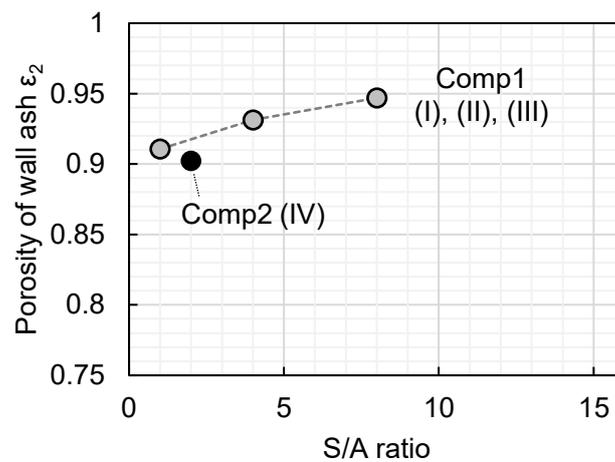
**Fig.2.27 Comparison of wall ash particle diameter distribution between Comp1 derived ash and Comp2 derived ash**

次に, Comp2 オイル由来アッシュ(IV)と, Comp1 オイル由来アッシュ(I), (II), (III)の 2 次粒子内空隙率 $\varepsilon_1$ を図 2.28 に示す. これより, Comp2 オイル由来アッシュ(IV)の 2 次粒子内空隙率 $\varepsilon_1$ は Comp1 オイル由来のそれと比較して, 著しく低いことが分かる. 図 2.27 で示した粒子径の特性と合わせて考えると, Comp2 オイル由来のアッシュ 2 次粒子は, Comp1 オイル由来のアッシュと比較して, 粒子径が大きくかつ粒子内空隙が少ない, 密に詰まった大きな粒子, として形成されていることが分かる.



**Fig.2.28 Comparison of wall ash particle porosity between Comp1 derived ash and Comp2 derived ash**

また, Comp2 オイル由来アッシュ(IV)と, Comp1 オイル由来アッシュ(I), (II), (III)の Wall アッシュ層の空隙率 $\varepsilon_2$  (2 次粒子間の空隙率)を, 図 2.29 に示す.



**Fig.2.29 Comparison of wall ash porosity between Comp1 derived ash and Comp2 derived ash**

これより、Comp2 オイル由来の Wall アッシュ層空隙率 $\varepsilon_2$ は、Comp1 オイル由来のそれよりも若干低いものの、比較的近い傾向となることが分かる。

以上の実験解析結果より、オイル種違いに起因するアッシュ構成成分の影響は、**図 2.26～図 2.28** に示すように 2 次粒子自身の構造(粒子径・分布と、粒子内空隙率 $\varepsilon_1$ )に大きく影響することが分かった。一方で**図 2.29** に示すように、2 次粒子同士で構成される Wall アッシュ層の構造(粒子間空隙率 $\varepsilon_2$ )には、2 次粒子自身の構造に見られたような大きな差は見られず、Comp1 オイル由来アッシュでの S/A 比感度特性に近い傾向が得られた。また**図 2.17** より、Plug アッシュのかさ密度も、Comp2 オイル由来アッシュ(IV)は Comp1 オイル由来アッシュ(I), (II), (III)の 1.5～2 倍大きくなっていることも分かった。これらの性状変化の原因として、構成成分中のリン酸亜鉛等の低融点成分(**図 1.28** 参照)の量の影響が考えられるが、現象解明には至っていない。

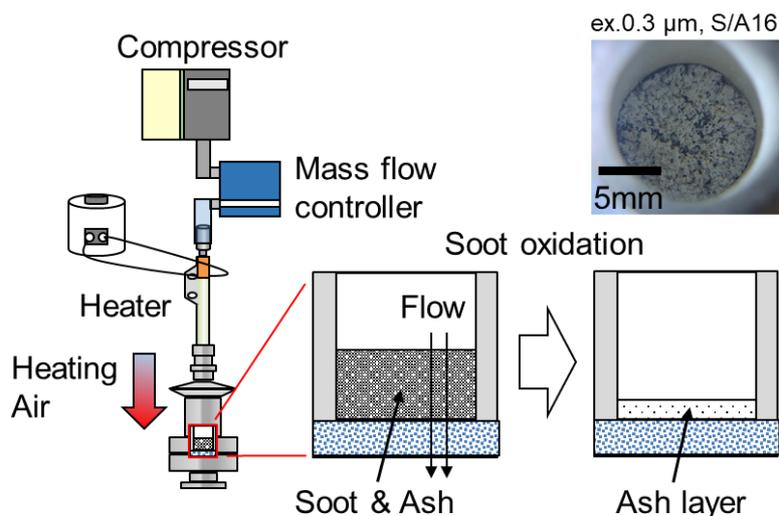
オイル種違い(アッシュ構成成分違い)が堆積アッシュの構造に影響することは、ここまでの実験解析結果より明らかではあるが、リアルワールドへの適用を考えると、JASO DL-1 規格適合エンジンオイルと構成成分比率に近い Comp1 オイルで生成されたアッシュを、まずはモデル化対象とすべき、と考えられる。したがって本研究では、Comp1 オイル由来の堆積アッシュ(I), (II), (III)の構造変化を、まずはモデル化対象とすることとした。

ここまでの実験解析結果より、S/A 比とアッシュ 2 次粒子の粒子径、S/A 比とアッシュ堆積層の(2 次粒子間)空隙率に、それぞれ相関関係が確認されている。アッシュ堆積層の空隙率をモデル化しようとした場合、既往の DPF 流路モデルにおけるスート堆積層と同様に、粒子堆積層の空隙率モデルとして、次々節で述べる Roller 式<sup>(2-20)</sup> を用いることが考えられたが、Roller 式はある限界粒子径以下では粒子径が小さいほど、粒子間付着力の影響により粉体充填時の空隙率が大きくなる、という粉体の特性を表すものであるため、式の成り立ちから考えた場合、粒子径と粒子堆積層の空隙率(粒子間空隙率)に相関関係があるかどうか、本式の適用根拠を求める際に重要となる。そこで次節では、粒子径既知の模擬アッシュを、S/A 比既知の状態ですートと混合・堆積させて、実機 DPF と近い環境にてスートを酸化消失させ、DPF Wall 上に(模擬)アッシュ堆積層を形成させられる装置を構築することとした。その装置を用いて、アッシュ堆積層の空隙率が、粒子径を変えた場合と S/A 比を変えた場合とで、それぞれどのような変化をするかを、実験的に調査を実施する。

## 2.3 流通場でのスート燃焼によるアッシュ層形成の調査

### 2.3.1 実験目的と実験方法

アッシュ堆積層の空隙形成に S/A 比やアッシュ粒子径がどのように影響しているかを調べるため、実機 DPF のガス流れ場を再現した装置を構築した。構築した装置の概要を図 2.30 に示す。



**Fig.2.30 Overview of experimental set up of soot oxidation and wall ash formation under flow through condition<sup>(5-1)</sup>**

実機 DPF の Wall 流れを再現するため、ガスを流通させられるようにした坩堝(るつぼ)を製作した。その中によく混合したスートとアッシュを堆積させ、流量・温度を実機相当に調整した加熱空気を流通させることで、実機に近い環境でスートを酸化消失させ、アッシュ層を形成させることが可能である。

ヒーター下流昇温部に設置する坩堝の概要を図 2.31 に、ヒーター下流昇温部の流路断面図を図 2.32 に、それぞれ示す。図中の P は坩堝上流圧力の計測箇所である。また図中の T1, T2 は熱電対による温度計測箇所である。T2 の温度が後述の試験条件に示す狙い温度となるように、ヒーターの加熱量を調整し、実験を行った。

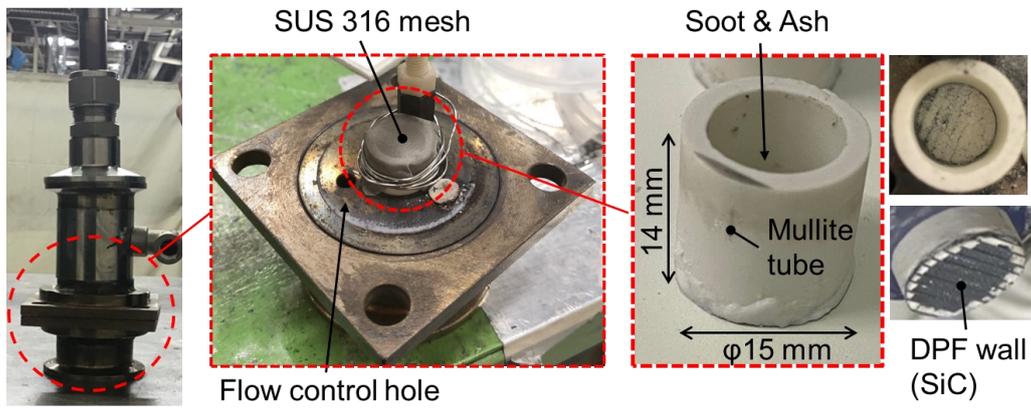


Fig.2.31 Overview of heating pod placed on downstream of a heating device<sup>(5-1)</sup>

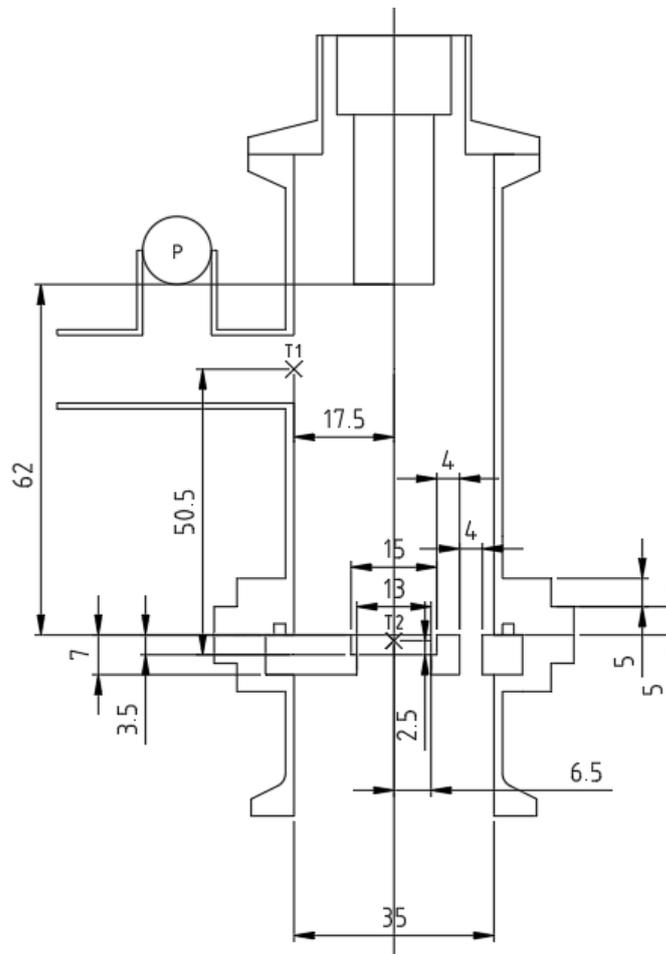


Fig.2.32 Cross sectional view of downstream of a heating device

昇温部に設置される坩堝は、表 2.1 に示す SiC 製 DPF より切り出した SiC wall 一枚分を、外径 15 mm、内径 11 mm、高さ 11 mm のムライト管の下端に接着して製作した。管の上端には SUS 316 材のメッシュを被せることで、坩堝への流入ガスの整流を図っている。また坩堝には実機相当に低い Wall flow 流量を流しながら、一方で坩堝の放熱による温度低下を最小限とするため、坩堝を設置する台座にはガスの逃がし穴を設け、周囲を高温ガスで保温する構造としている。狙いの温度・空間速度 (Space Velocity, 以後 SV) の条件が得られるように、逃がし穴の数を調整しながら試験を実施した。

流通空気生成に用いたコンプレッサーの外観を図 2.33 に、主要諸元を表 2.8 に示す。



Fig.2.33 Compressor

Table 2.8 Specification

|                          |                  |
|--------------------------|------------------|
| Manufacturer             | HITACHI          |
| Type                     | SRL-2.2DMP5      |
| Power [kW]               | 2.2 (50 / 60 Hz) |
| Maximum pressure [MPa]   | 0.8              |
| Output flow rate [L/min] | 252              |

加熱空気の生成に用いたヒーターの外観を図 2.34 に、主要諸元を表 2.9 に示す。



Fig.2.34 Heater

表 2.9 Specification

|                                 |                    |
|---------------------------------|--------------------|
| Manufacturer                    | Sakaguchi dennetsu |
| Type                            | SD-II-1 NO.800     |
| Rated power [W]                 | 500 (100V)         |
| Maximum inline pressure [MPa]   | 0.2                |
| Controllable flow range [L/min] | 20 - 50            |
| Maximum operating temp. [ °C]   | 800                |
| Resistance [Ω]                  | 20                 |

実験で用いた圧力計(ゲージ圧計)の外観を図 2.35 に、主要諸元を表 2.10 に示す。



Fig.2.35 Pressure sensor

表 2.10 Specification

|                          |               |
|--------------------------|---------------|
| Type                     | AP-C35        |
| Measurement range [kPa]  | +10           |
| Display resolution [kPa] | 0.01          |
| Response time [msec]     | 2.5/5/100/500 |

試験条件の概要を表 2.11 に示す。供試する模擬アッシュは、粒子径が既知の状態で行うため、融点が高く安定な酸化亜鉛 (ZnO) を用いた。これと混合するスートは、市販のカーボンブラックを用いた。模擬アッシュとスートは、乳鉢にて7分間攪拌し混合させた。これを坩堝内へ投入し、タッピングにより均一な厚みになる様に調整した。投入量は、DPG 試験で形成されるアッシュ厚みと概ね同定度となるように調量した。

アッシュの焼成は、DPG 試験条件と合わせて 680 °C, SV  $6.0 \times 10^4 \text{ h}^{-1}$  (20 °C, 1 atm での空間速度) を狙い実施した。焼成時間は、スートを燃焼し尽くす時間として 2 時間とした。

模擬アッシュ (ZnO) の粒子径は 0.3, 0.75, 5  $\mu\text{m}$  の 3 種を供試した。また S/A 比は 1 と 16 の 2 条件で試験を実施した。なお焼成後も模擬アッシュの粒子径に変化がないことは、焼成後アッシュの SEM 観察により確認している。

**Table 2.11 Experimental conditions**

|                            |                 |                   |
|----------------------------|-----------------|-------------------|
| Ash                        | -               | Zinc oxide (ZnO)  |
| Soot                       | -               | Carbon black      |
| Heating temperature        | deg.C           | 680               |
| Heating duration           | h               | 2                 |
| SV (Target) 20deg.C, 1 atm | $\text{h}^{-1}$ | $6.0 \times 10^4$ |
| Ash particle diameter      | $\mu\text{m}$   | 0.3, 0.75, 5      |
| S/A ratio                  | -               | 1, 16             |

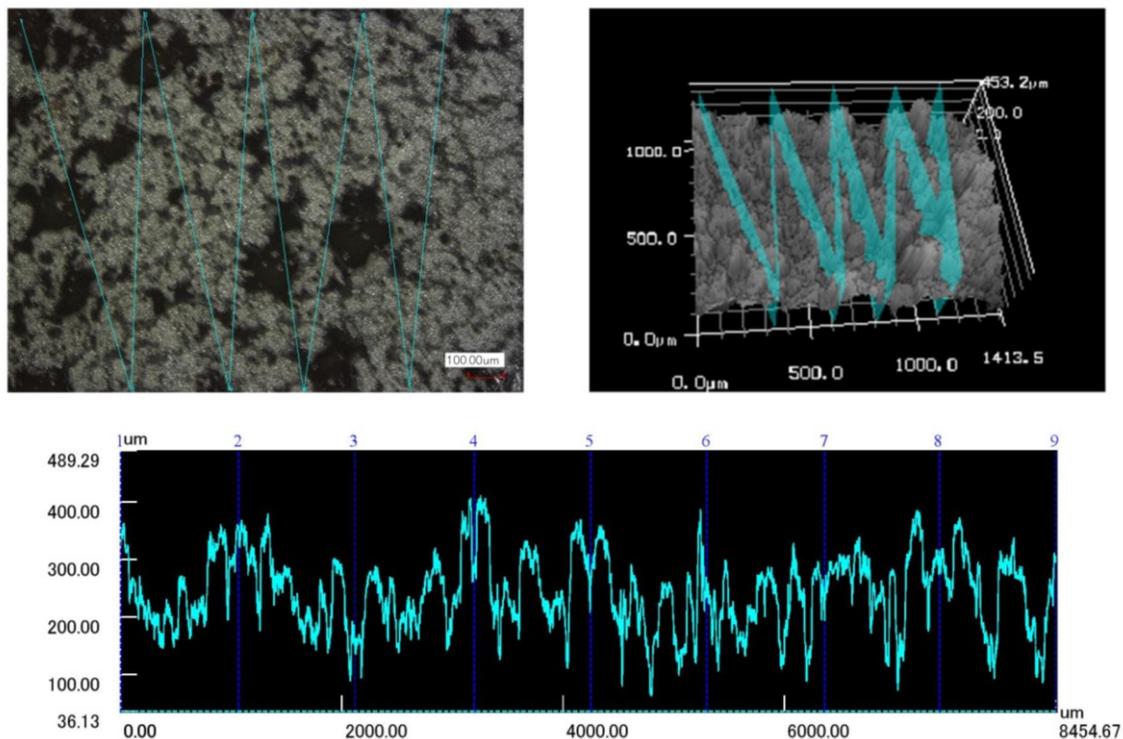
実験結果から空隙率  $\varepsilon_2$  を算出する方法を示す。スート酸化後の残存アッシュ重量を  $m_{ash}$ 、残存アッシュ層の体積を  $V_{ash}$  とすると、スート酸化後に形成されるアッシュ層のかさ密度  $\rho_{ash}$  は、次式で表される。

$$\rho_{ash} = \frac{m_{ash}}{V_{ash}} \quad (2.23)$$

アッシュ層の体積  $V_{ash}$  は、画像解析で求めた Wall 上の堆積アッシュの面積と、レーザー顕微鏡で計測したアッシュ層厚み  $W_{ash}$  から求めた。坩堝底面の SiC Wall は厳密には平面ではないため、アッシュ層の体積算出は、Wall 部の凹凸も考慮して実施している。

レーザー顕微鏡によるアッシュ層の厚み計測は、アッシュ堆積層表面でランダムに選定した 3 か所について、それぞれ 1.00 mm  $\times$  1.43 mm の面積範囲をレーザーでスキャンし、平均的な厚み

を算出, それを 3 か所で平均し, アッシュ堆積層の厚みとした. レーザー顕微鏡での計測例を図 2.36 に示す.



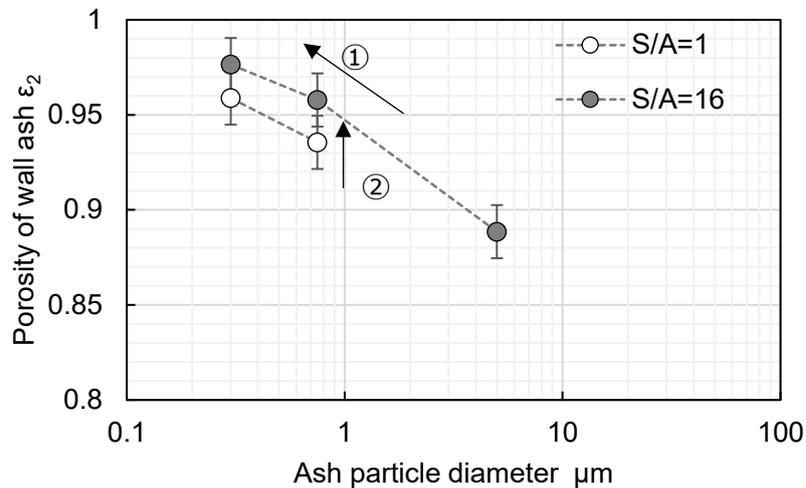
**Fig.2.36 Wall ash thickness measurement result measured by laser microscope  
(ZnO, particle diameter 5  $\mu\text{m}$ , S/A=16, KEYENCE VK9510)**

式 2.23 に示すアッシュ層のかさ密度 $\rho_{ash}$ が得られれば, 供試模擬アッシュ(ZnO)の真密度 $\rho_0=5606 \text{ kg/m}^3$ より, 次式でアッシュ層の空隙率 $\varepsilon_2$ が計算できる.

$$\varepsilon_2 = 1 - \frac{\rho_{ash}}{\rho_0} \quad (2.24)$$

## 2.3.2 実験結果の解析

粒子径とS/A比を変えて焼成したアッシュ層の、それぞれの空隙率を図2.37に示す。



**Fig.2.37 The effect of ash particle diameter on wall ash porosity under S/A=1 and S/A=16 conditions (SV  $6.0 \times 10^4 \text{ h}^{-1}$ )**

上図は、次の図2.38で得られたSVに対する空隙率変化(感度)を用いて、予めSV  $6.0 \times 10^4 \text{ h}^{-1}$ の条件に正規化して示している。またエラーバーは、プロットが示す実験点でそれぞれ測定した3か所のアッシュ厚み計測値のばらつき(標準偏差 $\sigma$ )より、アッシュ層の体積 $V_{ash}$ ばらつきを求め、式2.23と式2.24で計算されるアッシュ層の空隙率 $\epsilon_2$ が、どの程度ばらつき得るのかを示したものである。アッシュ層の質量 $m_{ash}$ もばらつき因子ではあるが、用いた計量器の精度(A&D GR-200;  $\sigma = 0.1 \text{ mg}$ )より影響度が非常に小さいため、考慮していない( $\epsilon_2$ ばらつきへの計量ばらつきの影響度は厚みの5/100程度)。

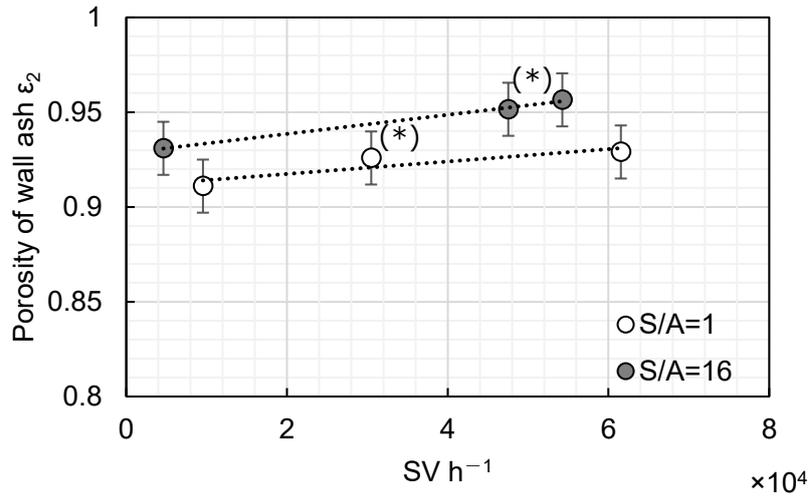
これより、粒子径とS/A比は、それぞれにスート酸化消失後に形成されるアッシュ層の空隙率 $\epsilon_2$ に影響しており、

- ① 粒子径が小さいほど 空隙率は増加する
- ② S/A比が大きいほど 空隙率は増加する

と考えられる。

①については、エラーバーを考慮しても有意と判断できる。②についてはエラーバーが重なっており、この結果だけで有意とは言えないものの、次の図2.38に示すSVを変えた場合でも同様にS/A比で空隙率に差が見られていることから、S/A比で空隙率は変化する、と考えられる。

粒子径  $0.75 \mu\text{m}$  条件にて, 図 2.31 に示す逃がし穴 (Flow control hole) の数を変更し SV を変えた時の, 焼成後アッシュ層の空隙率変化を, 図 2.38 に示す. 本試験では低流量でもスートが完全燃焼するように, 焼成時間 4 時間を基本として実施した. ただし, (\*) 部のデータのみ 2 時間焼成で実施した.



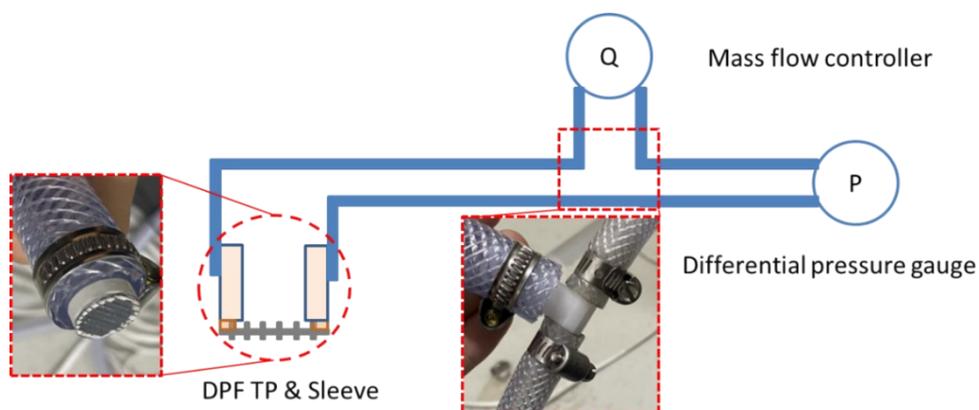
**Fig.2.38 The effect of Space Velocity on wall ash porosity under S/A=1 and S/A=16 conditions (particle diameter  $0.75 \mu\text{m}$ , heating duration 4 h [(\*) plot: 2 h])**

SV 値は, 各条件での  $680^\circ\text{C}$  アッシュ焼成運転にてスート消失後に計測した坩堝上流圧力をもとにダルシー則に従うものとして坩堝内アッシュ堆積層への透過流速を求め, 実機相当 SV に換算して示している. 透過流速の概算式を次式に示す.

$$v_f = k_0 \cdot \frac{\Delta P - \Delta P_{mesh}}{\mu_1(W_{ash} + W_{wall})} \quad (2.25)$$

ここで,  $k_0$  は SiC Wall + 焼成後アッシュ堆積層の透過率であり, 別に計測した差圧値よりダルシー則にしたがうものとして同定した.  $\Delta P$  は坩堝上端の SUS メッシュ入口から底面 SiC Wall 出口までの圧力損失,  $\Delta P_{mesh}$  は SUS メッシュの圧力損失,  $\mu_1$  は空気の粘性係数,  $W_{ash}$  はレーザー顕微鏡で計測したアッシュ層厚み,  $W_{wall}$  は SiC Wall の厚みである. 式 2.25 の透過流速と, 実機 SV  $6.0 \times 10^4 \text{ h}^{-1}$  時の DPF 流路内平均 Wall flow 流速  $0.0577 \text{ m/s}$  との比を取り, SV 値へ換算した. これより, SV 条件が異なると, Wall アッシュ層の空隙率も僅かながら変化することが分かった.

SV の見積もりに必要な透過率 $k_0$ や SUS メッシュの圧損特性の計測には, リーク等外乱の影響を排除するため, 坩堝に直接ホースを接続し計測するようにした. 圧損計測時の装置概要を図 2.39 に示す.



**Fig.2.39 Schematic representation of experimental setup for pressure drop measurement of DPF TP & sleeve**

実験で用いた圧力計(ゲージ圧計)の外観を図 2.40 に, 諸元を表 2.12 に示す.



**Fig.2.40 Pressure sensor**

**Table 2.12 Specification**

| Type                     | DPC-201N12 |
|--------------------------|------------|
| Measurement range [Pa]   | ±200.0     |
| Display resolution [Pa]  | 0.1        |
| Accuracy                 | 0.1%FS±1   |
| Temperature drift /deg.C | ±0.12%FS   |
| Display cycle [sec]      | 0.1        |

## 2.4 モデル構築

本節での DPF 流路内堆積アッシュのモデル化検討においては、まずは標準の DL-1 オイルに近い組成を持つ Comp1 オイル由来アッシュを対象を絞り、検討を実施することとした。

### 2.4.1 アッシュ2次粒子モデル

DPF 流入段階の、まだ再生履歴を経っていない潤滑油由来のアッシュは、多くはスート 2 次粒子に付着する形で流入し、その粒子径(1 次粒子径)は 10~30 nm 程度と考えられる<sup>(2-17)</sup>。

一方、DPF 堆積後、再生履歴を経たアッシュは、DPG 試験後の堆積アッシュ分析結果(図 2.23)より、直径がサブミクロンオーダーで、内部に空隙を持つ 2 次粒子であり、その 2 次粒子径と空隙率が S/A 比条件で異なることが明らかとなった。

アッシュの 2 次粒子は、DPF 再生等でスートが酸化消失する際に、スートに付着していた 1 次粒子同士が、スートの収縮と酸化熱の影響で凝集・焼結し、形成されと考えられる。したがって、このような凝集・焼結が同時に生じる際の凝集体構造を表現するのに用いられている<sup>(2-18)</sup> フラクタル次元を用いて、アッシュ 2 次粒子をモデル化することとした。本研究で用いたフラクタル次元の定義式(Schmidt-Ott 式<sup>(2-19)</sup>)を次式に示す。

$$N_{pr} = k_f \left( \frac{d_{ag}}{d_{pr}} \right)^{D_f} \quad (2.26)$$

ここで、 $N_{pr}$ は 1 個の 2 次粒子を構成している 1 次粒子の個数、 $d_{ag}$ は 2 次粒子径(体積基準= $D_4$ )、 $d_{pr}$ は 1 次粒子径、そして $D_f$ がフラクタル次元である。 $k_f$ は、厳密には凝集の速度論やフラクタル次元、及び凝集粒子の代表径に依存しているが、その値はおよそ 1 とされている<sup>(2-18)</sup>。

上式より、フラクタル次元 $D_f$ は、凝集体を構成する粒子の個数が、凝集体と 1 次粒子の直径の比の何乗であるか、という「次元」を表していることが分かる。具体的には、1 次粒子を直線に並べた場合は、フラクタル次元 $D_f$ は 1 に近い値となり、平面に敷き詰めた場合は 2 に近い値、真球に近づくと、3 に近い値となる。凝集形態とフラクタル次元の関係を、図 2.41 に示す。

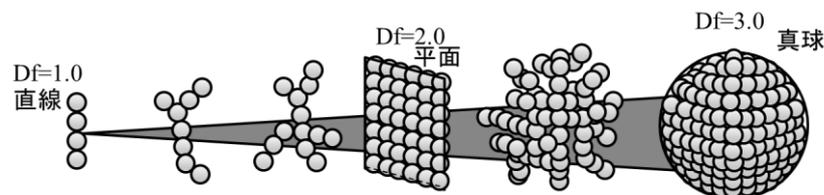


Fig.2.41 Relationship between agglutination morphology and fractal dimension

また 2 次粒子内 1 次粒子充填率 $(1 - \varepsilon_1)$ は次式で表される.

$$1 - \varepsilon_1 = N_{pr} \left( \frac{d_{pr}}{d_{ag}} \right)^3 \quad (2.27)$$

$k_f$ を 1 とし, 1 次粒子径 $d_{pr}$ を先行研究<sup>(2-17)</sup>より 20 nm と仮定すると, 以上 2 式より 2 次粒子径 $d_{ag}$ と空隙率 $\varepsilon_1$ が既知であれば, 1 次粒子数 $N_{pr}$ とフラクタル次元 $D_f$ が求められる.

DPG 試験で得られた S/A 比ごとの 2 次粒子径 $d_{ag}$ と空隙率 $\varepsilon_1$ データ(図 2.23)から, S/A 比と 1 次粒子数 $N_{pr}$ , フラクタル次元 $D_f$ の関係性を同定した結果を図 2.42 に示す.

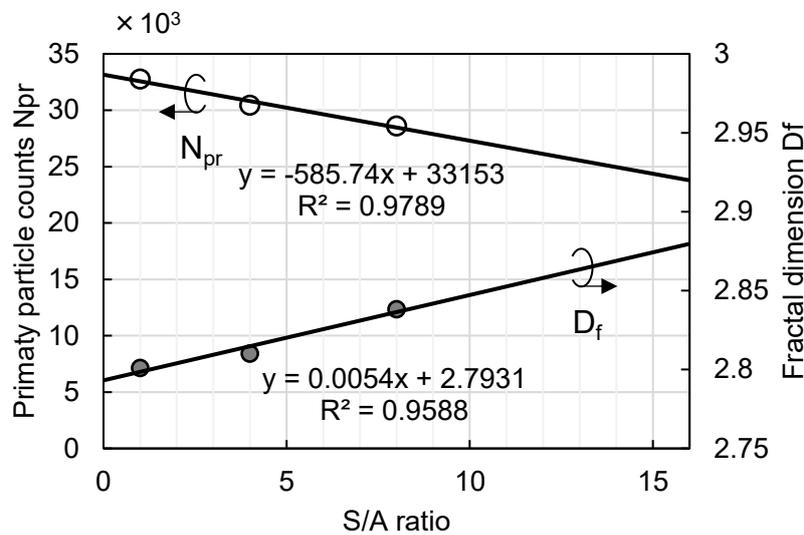
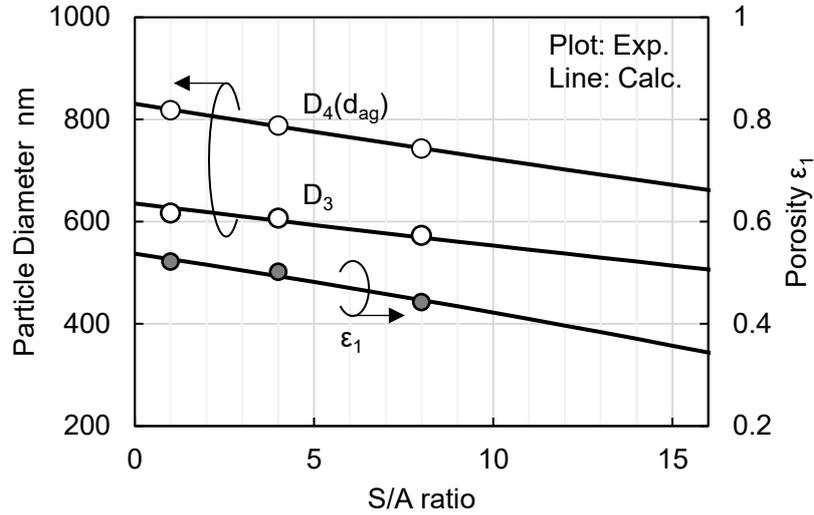


Fig.2.42 Fitting results of primary particle counts and fractal dimension of each S/A ratio

これより, DPF 再生で形成されるアッシュ 2 次粒子は,

- S/A 比が大きいほど, 少ない 1 次粒子で構成されること,
- S/A 比が大きいほど焼結が進み,  $D_f=3$  の中実真球粒子に近づくこと, 分かる.

図 2.42 で得られた S/A 比と  $N_{pr}$ ,  $D_f$  の関係性を用いて, 2 次粒子径 (面積基準  $D_3$ , 体積基準  $D_4$ ) と, 2 次粒子内空隙率  $\varepsilon_1$  を計算した結果を図 2.43 に示す. なお図中のプロットは, 計算と対応した DPG での実験結果 (図 2.23) である.



**Fig.2.43 Prediction result of ash particle diameter and porosity of each S/A ratio based on fractal structure model**

ここで, 体積基準の平均径  $D_4$  ( $D_{ag}$ ) と 2 次粒子内空隙率  $\varepsilon_1$  は, 式(2.26), 式(2.27)を変換して求めた次式で計算した.

$$d_{ag} = d_{pr} \cdot N_{pr}^{\frac{1}{D_f}} \quad (2.28)$$

$$\varepsilon_1 = 1 - N_{pr}^{\left(1 - \frac{3}{D_f}\right)} \quad (2.29)$$

また面積基準の平均径  $D_3$  は, 表 2.4 より幾何標準偏差  $\sigma_g$  を 1.68 として, 式 2.6 と式 2.7 より中位径 (幾何平均径)  $D_{50}$  を消去して得られる, 次式により計算した.

$$D_3 = D_4 \cdot \frac{\exp(2.5 \ln^2 \sigma_g)}{\exp(3.5 \ln^2 \sigma_g)} \quad (2.30)$$

上図より, 計算は実験結果を予測できていることが分かる.

以上より, アッシュ 2 次粒子をフラクタル次元を用いてモデル化することで, S/A 比で変化するアッシュ 2 次粒子の構造を予測できるモデルを構築した.

2.4.2 アッシュ層空隙率モデル

図 2.37 に示す結果より、粒子径と S/A 比は、それぞれにスート酸化消失後に形成されるアッシュ層の空隙率 $\varepsilon_2$ に影響している、と考えられる。したがって Wall アッシュ層の空隙率変化を、次式に示す Roller の式<sup>(2-20)</sup>にて、モデル化することとした。

$$\begin{aligned} \varepsilon_2 &= \varepsilon_c & (D > D_c) \\ \varepsilon_2 &= \frac{1}{1 + \left(\frac{1}{\varepsilon_c} - 1\right) \left(\frac{D}{D_c}\right)^n} & (D \leq D_c) \end{aligned} \tag{2.31}$$

ここで、 $D$ は粒子径(面積基準 $D_3$ )、 $n$ は粒子径依存性指数、 $D_c$ は限界粒子径、 $\varepsilon_c$ は限界粒子径 $D_c$ の時の空隙率である。

この式は、ある限界粒子径 $D_c$ 以下では、粒子径が小さいほど、粒子間付着力の影響により粉体充填時の空隙率が大きくなる、という粉体の特性を表すもので、フライアッシュを用いた研究ではおよそ 10  $\mu\text{m}$  以下でこの特性が確認されている<sup>(2-21)</sup>。図 2.44 に、フライアッシュをタッピング充填した際の、粒子径と空隙率の関係を参考として示す。

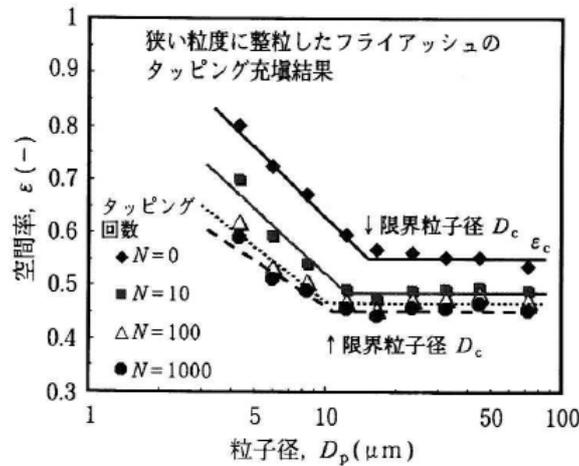


Fig.2.44 Relationship between particle size and porosity of packed bed of fly-ash filled by tapping <sup>(2-21)</sup>

DPF のろ過壁上に形成されるアッシュ層では、スートとアッシュが混合した状態で堆積し、強制再生等でスートが酸化消失した結果、空隙が形成される。したがって圧縮やタッピング等で充填され形成される堆積層とは、形成過程は異なるのだが、図 2.37 の結果が示すように、スートの酸化消失により形成されるアッシュ層の空隙率にも、粒子径依存性が確認されたことから、本研究では

この Roller の式をベースに、限界粒子径時の空隙率 $\varepsilon_c$ の変化として S/A 比の影響を組み込むことで、アッシュ堆積層の空隙率をモデル化することとした。

構築モデル式を次式に示す。

$$\varepsilon_2 = \varepsilon_c \quad (D > D_c)$$

$$\varepsilon_2 = \frac{1}{1 + \left(\frac{1}{\varepsilon_c} - 1\right) \left(\frac{D}{D_c}\right)^n} \quad (D \leq D_c) \quad (2.32)$$

$$\varepsilon_c = A \cdot \exp(B \cdot r_{S/A}) \quad (2.33)$$

上式の限界粒子径 $D_c$ は、フライアッシュでの結果<sup>(2-21)</sup>を参照し、 $D_c=10 \mu\text{m}$ とした。また粒子径依存性指数  $n$  は図 2.37 に示す実験結果で同定し、 $n=0.55$ とした。

式 2.33 は、限界粒子径 $D_c$ 時の空隙率 $\varepsilon_c$ を、S/A 比依存性を組込んでモデル化したもので、 $r_{S/A}$ は S/A 比、 $A$ と $B$ は S/A 比依存性を規定する係数である。係数  $A$ 、 $B$ は、構築モデルによる計算結果 $\varepsilon_2$ が DPG 実験結果を再現する様にフィッティングし、 $A=0.32$ 、 $B=-0.055$ と同定した。

構築したモデルによる計算結果を図 2.45 に示す。なお図中のプロットは計算と対応した DPG での実験結果(図 2.24)である。これより、計算は実験結果を予測できていることが分かる。

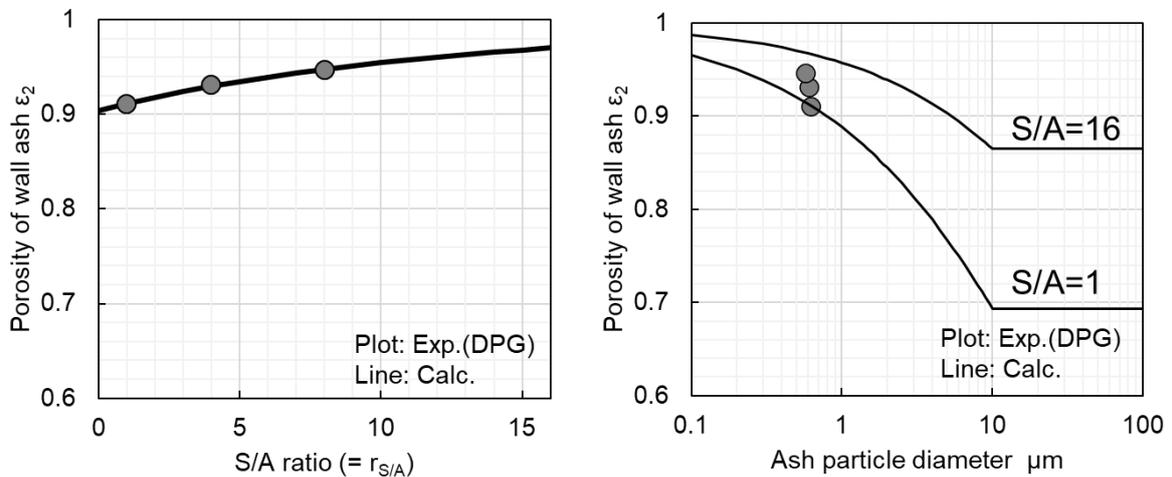


Fig.2.45 Prediction result of wall ash porosity of each S/A ratio and ash particle diameter based on Roller equation

以上、空隙率の粒子径依存性を表す Roller の式をベースに、限界粒子径時の空隙率変化として S/A 比影響を組み込むことで、アッシュ堆積層の空隙率が予測できるモデルを構築した。

2.4.3 アッシュ堆積層モデル

アッシュ堆積層のかさ密度は式(2.21)と式(2.22)より、アッシュ堆積層の透過率は式(2.10)よりそれぞれ求めることができる。したがって、本章で構築したアッシュ2次粒子モデルと、アッシュ層空隙率モデルにより、DPF 流路内圧力損失の計算に必要なアッシュ堆積層の性状は、すべて求めることができる。

本章で構築したモデル(アッシュ2次粒子モデルと、アッシュ層空隙率モデル)を用いた、アッシュ堆積層モデルの全体像を図2.46に示す。

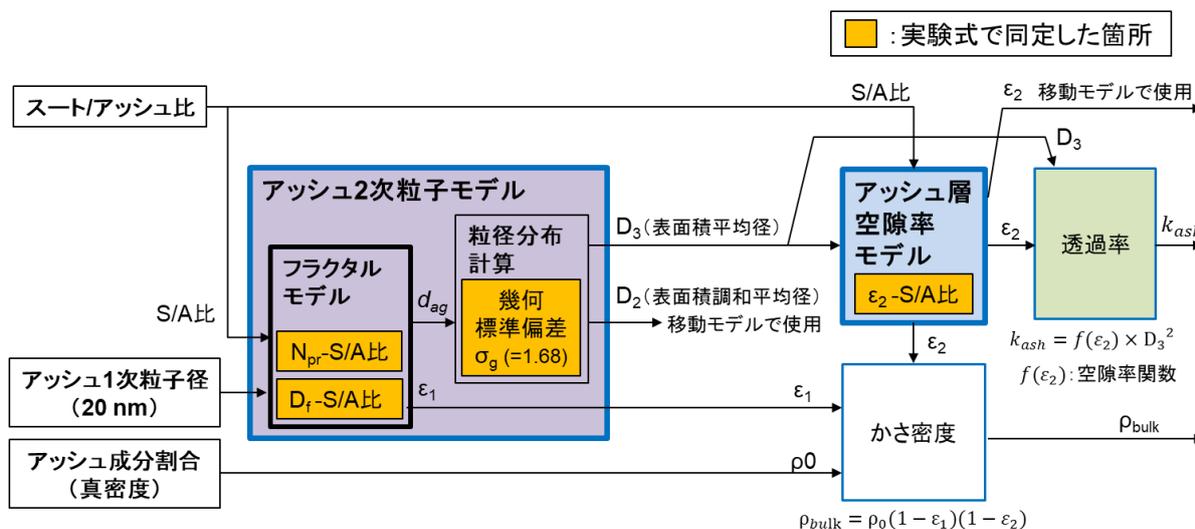


Fig.2.46 Schematic diagram of wall ash property prediction model

アッシュ1次粒子径 $d_{pr}$ を先行研究<sup>(2-17)</sup>より20 nmと仮定することで、アッシュ2次粒子径(粒径分布)を求めることができ、またアッシュ層の空隙率も求めることができる。求めたアッシュ2次粒子径とアッシュ層の空隙率より、アッシュ層の透過率が求められる。またアッシュの真密度を、アッシュの成分割合より表2.6で与えることで、アッシュ層厚みの算出に必要なかさ密度が求められる。

## 2.5 まとめ

本章では、DPF 再生時などにおけるスート酸化で形成される Wall アッシュの粒子径・空隙率と、運転状態、特に新規に堆積したアッシュ量に対するスート量の比(S/A 比)との関係性を、標準の DL-1 オイルに近い組成を持つ Comp1 オイル由来アッシュを対象を絞り、実験的に解析し、モデル化を実施した。得られた成果を以下に示す。

- S/A 比が大きい(スート量多い)ほど、Wall アッシュの 2 次粒子は小さく密になり、また 2 次粒子間の空隙は増加する。
- フラクタル次元を用いてモデル化することで、S/A 比で変化するアッシュの 2 次粒子構造(粒子径・空隙率)を予測できるモデルを構築した。
- Roller の式をベースに、粒子径と S/A 比で変化する Wall アッシュ層の空隙率を予測できるモデルを構築した。
- 構築したアッシュ 2 次粒子モデル、アッシュ層空隙率モデルを、既往モデル式と組み合わせることで、アッシュ層の透過率とかさ密度を含む、アッシュ堆積層モデルを構築した。これにより、DPF 流路内圧力損失の計算に必要なアッシュ堆積層の構造パラメータは、すべて求めることが可能となる。

## 第3章 DPF 流路内アッシュ移動現象のモデリング

### 3.1 まえがき

本章では, DPF の圧力損失に大きな影響を及ぼす, DPF 内のアッシュ堆積分布を予測するため, DPF 流路内のアッシュ移動現象のモデリングを実施する.

序論で述べた通り, 流路内アッシュ移動現象のモデリングに一応の成功を見ているのは, これまでのところ, Sappok らにより構築されたせん断剥離モデルのみである. しかしながら彼らのモデルも, アッシュ移動を左右するせん断応力の臨界値自体はフィッティングパラメータであり, この臨界値のモデル化が課題であった. そこで本章では, Sappok らのせん断剥離モデル(アッシュ移動モデル)をベースとし, 同モデルで課題となっている臨界値を, 前章で予測モデルを構築した Wall アッシュ堆積層の粒子径・空隙率を用いて, モデル化を実施する. それにより, 流路内ガス流れによりアッシュ層に作用するせん断応力から, 軸方向の計算格子ごとにアッシュ移動の発生有無を判定することで, DPF 再生時に生じる Plug へのアッシュ移動と, DPF 再生後の Wall アッシュ厚み分布を予測可能とする.

### 3.2 モデル構築

#### 3.2.1 DPF 流路内流れ場の計算モデル

DPF 流路(チャンネル)内流れ場の数値計算は, 汎用コードである Exothermia 社の Axisuite を用いて実施する. 計算モデルの概略図を図 3.1 に示す. Inlet・Outlet チャンネルの軸方向 1 次元にアッシュ堆積層を含む Wall 垂直方向 1 次元を考慮した, 準 2 次元モデルとなる. なお軸方向の計算格子数は 30 である.

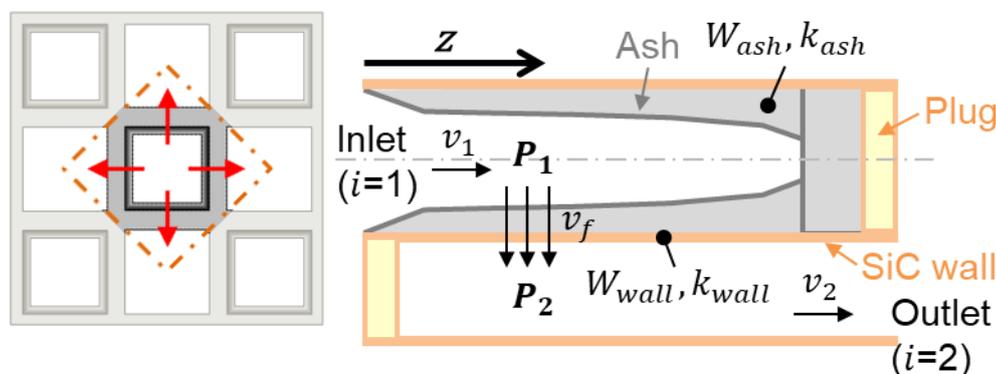


Fig.3.1 Schematic representation of DPF channel / wall flow field calculation model

DPF 流路内流れ場の支配方程式(質量保存式, 運動量保存式)は, 次式のとおり.

$$\frac{\partial}{\partial z}(\rho_i v_i) = (-1)^i \frac{4}{d} \rho_f v_f \quad (3.1)$$

$$\frac{\partial P_i}{\partial z} + \frac{\partial(\rho_i v_i^2)}{\partial z} = -F \frac{\mu_i v_i}{d_h^2} \quad (3.2)$$

ここで,  $i$ は領域を示すもので, 1は Inlet チャンネル, 2は Outlet チャンネルを示す. また $\rho_i$ はチャンネル内流通ガスの密度[ $\text{kg}/\text{m}^3$ ],  $v_i$ はチャンネル内流通ガスの流速[m/s](流路断面内で一様と仮定),  $\rho_f$ は Wall 透過ガスの密度[ $\text{kg}/\text{m}^3$ ],  $v_f$ は Wall 透過ガスの流速[m/s],  $P_i$ は圧力[Pa],  $\mu_i$ は流通ガスの粘性係数[ $\text{Pa}\cdot\text{s}$ ],  $F$ は Bissett の摩擦係数(ここでは 28.454 とした)である. また,  $d$ はチャンネルの流路幅[m],  $d_h$ はアッシュ堆積層厚みを考慮した開口流路幅[m]である.

図 3.2 に, DPF 流路内における典型的なガス流速分布を示す.  $\text{SV } 6.0 \times 10^4 \text{ h}^{-1}$  ( $20^\circ\text{C}$ , 1 atm 時),  $680^\circ\text{C}$  強制再生時でスート・アッシュ堆積がない場合の例だが, Inlet チャンネルの軸方向流速  $v_1$  は, 流路入口が最も流速が大きい右肩下がりの分布となり, Wall 方向流速  $v_f$  は, Outlet チャンネルとの圧力バランスから若干下に凸の流速分布となる. また Wall 方向流速  $v_f$  は, 基本的に軸方向流速の 1/100 以下と非常に小さい. なお流路内流れは層流となる.

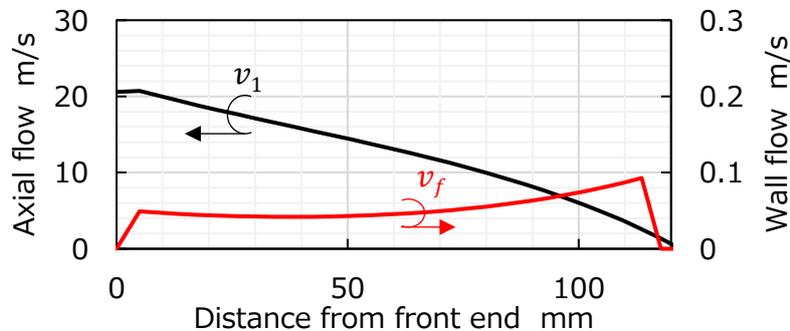


Fig. 3.2 Typical flow velocity distribution in a channel of a DPF

アッシュ堆積層と基材 Wall 透過時の圧力損失は, 次式のダルシー則により求められる.

$$P_1 - P_2 = \mu \left( \frac{W_{wall}}{k_{wall}} + \frac{W_{ash}}{k_{ash}} \right) v_f \quad (3.3)$$

ここで,  $P_1, P_2$ は圧力[Pa]で, 添え字の 1, 2 はそれぞれ Inlet チャンネル側, Outlet チャンネル側を示す.  $\mu$ は Wall 透過ガスの粘性係数[ $\text{Pa}\cdot\text{s}$ ],  $W$ は多孔質層の厚さ[m],  $v_f$ は多孔質層透過ガスの流速[m/s],  $k$ は多孔質層の透過率[ $\text{m}^2$ ]であり, 添え字の  $wall$ は DPF の SiC Wall 層,  $ash$ はアッシュ堆積層を示す. なお $k_{ash}$ は前章の式 2.10 より, アッシュの粒子径と空隙率から求められる.

### 3.2.2 アッシュ移動モデル

DPF 流路内のアッシュ移動を予測するモデルとしては、先行研究にて述べた通り、流路内ガス流れによりアッシュ層が受けるせん断応力 $\tau$  N/m<sup>2</sup> がある臨界値(臨界せん断応力) $\tau_{detach}$  N/m<sup>2</sup> を超えたときに、アッシュが堆積層の表層より剥離し移動する、というモデルが Sappok らによって提案されており<sup>(3-1)</sup>、本研究で用いる汎用コード(Exothermia 社の Axisuite)にも組み込まれている。

本モデルの概要を図 3.3 に示す。

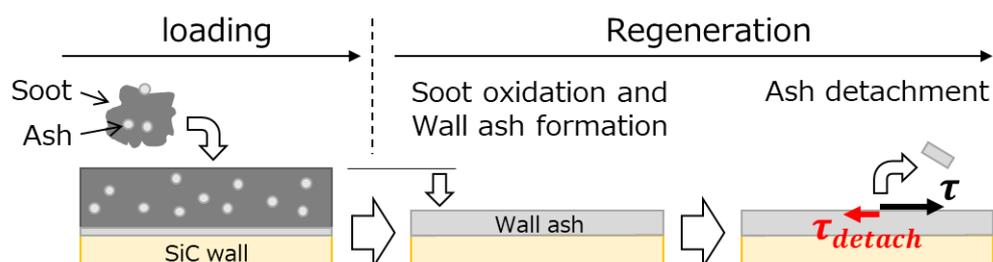


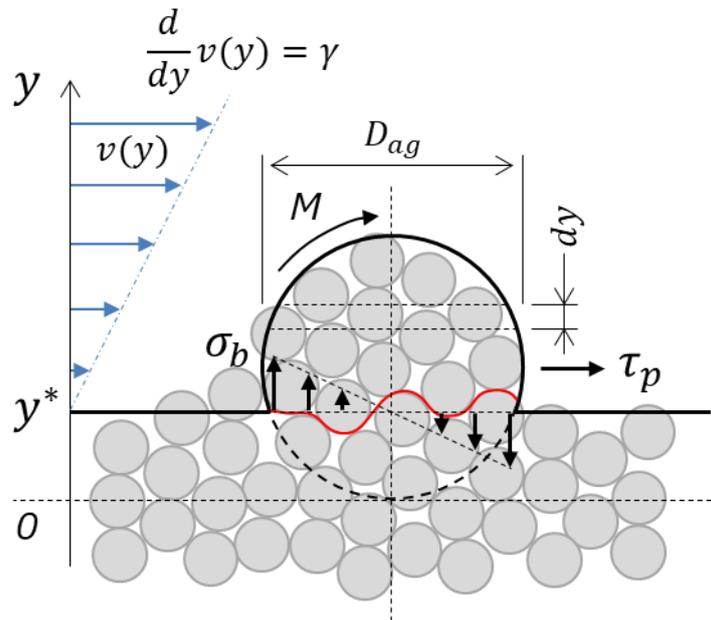
Fig. 3.3 Schematic of the ash mobility model in a channel of a DPF<sup>(5-2)</sup>

DPF 流路内ガス流れは層流を仮定、アッシュの移動は強制再生でスートが酸化消失しアッシュ層が形成された後に生じるものとする。アッシュ移動有無の判定は、前述の通りアッシュ層が受けるせん断応力が臨界値(臨界せん断応力)を上回った時に生じるものとする。

剥離したアッシュの再堆積については、図 3.2 の流速分布より、Wall 方向流速が軸方向流速の 1/100 以下と非常に小さいことから、本論文では Wall 部への再堆積はないものとし、流路後端(Plug 側)まで移動し Plug アッシュとして堆積するものとした。

(1) アッシュ移動のメカニズム仮定

外力により壁面または粒子層から、粒子や凝集粒子が浮遊・移動する現象は飛散と呼ばれ、一度沈着(堆積)した後に再び流体によって運ばれる現象は、特に再飛散(re-entrainment)と呼ばれる。再飛散のしやすさは粒子径や付着性によって異なり、砂漠や河床の砂の移動など、粒子径が大きい場合付着力よりも流体抗力が支配的な粗粒子では、比較的容易に再飛散が生じる。また重力も支配的となるため、サルテーション(saltation)と呼ばれる連続的な跳躍運動を繰り返す現象が知られている<sup>(3-2)</sup>。一方 DPF 流路内堆積アッシュのような微粒子( $\sim 10 \mu\text{m}$ )の世界では、流体抗力が小さくなるため、堆積微粒子は付着力によって保持され、容易には移動しない。単一粒子での再飛散は生じにくいですが、堆積量の増加に伴って微小な凝集粒子が形成されると、流体抗力が増加し、また DPF 流路内においては流路狭小化による流速増加も合わさって、凝集粒子塊として再飛散するようになる、と考えられる。粒子層表面の凝集粒子塊の様子と、凝集粒子塊に作用する力(再飛散をさせようとする側)の概念図を、**図 3.4** に示す。なお流れ場としては層流、あるいは乱流における粘性底層(Viscous sublayer)内を想定している。



**Fig.3.4 Schimatic representation of particle bed surface and acting forces**

粒子に働く流体抗力は、中心流速を代表流速 $v_p$ とすると、次式で求めることができる<sup>(3-2)</sup>。ここで $C_D$ は粒子塊の抗力係数、 $A$ は粒子塊の投影面積である。

$$R_D = C_D \frac{\rho v_p^2}{2} A = C_D \frac{\rho v_p^2}{8} \pi D_{ag}^2 \quad (3.4)$$

粒子まわりの流れがストークス域のとき、流体抗力は粘性係数 $\mu$ を用いて次式で表される。

$$R_D = 3\pi\mu v_p D_{ag} \quad (3.5)$$

式 3.4 と式 3.5 より、ストークス域における抗力係数 $C_D$ として次式が得られる。ここで $Re_p$ は粒子レイノルズ数であり、 $Re_p < 2$  の範囲をストークス域(層流域)となる。

$$C_D = \frac{24\mu}{\rho v_p D_{ag}} = \frac{24}{Re_p} \quad (3.6)$$

DPF 流路内の流れと堆積アッシュを考えた場合、粒子レイノルズ数は  $10^{-3} \sim 10^{-4}$  オーダーであり、ストークス域(層流域)となる。

ここで、凝集粒子塊の微小高さ $dy$ に働く流体抗力を、高さ $y$ の関数として表すと、次式となる。

$$dR_D(y) = C_D(y) \frac{\rho \cdot v(y)^2}{2} dA(y) = C_D(y) \cdot \rho \cdot v(y)^2 \sqrt{y(D_{ag} - y)} \cdot dy \quad (3.7)$$

粒子周りの流れをストークス域とすると、式 3.6 と式 3.7 より、次式が得られる。

$$dR_D(y) = \frac{24\mu}{D_{ag}} \cdot v(y) \sqrt{y(D_{ag} - y)} \cdot dy \quad (3.8)$$

ここに、高さ $y$ における流速 $v(y)$ は、粘性により生じる速度勾配 $\gamma$ を用いて次式で表される。

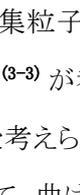
$$v(y) = \gamma(y - y^*) \quad (3.9)$$

また粘性により生じるせん断応力 $\tau$ は、速度勾配 $\gamma$ より、次式で表される。

$$\tau = \mu\gamma \quad (3.10)$$

以上より、凝集粒子塊の高さ $y$ 、微小高さ $dy$ に働く流体抗力 $dR_D(y)$ は結局、次式で表されることになり、せん断応力 $\tau$ に比例することが分かる。

$$dR_D(y) = \frac{24\tau}{D_{ag}} \cdot (y - y^*) \sqrt{y(D_{ag} - y)} \cdot dy \quad (3.11)$$

流体抗力により凝集粒子塊に作用する力(内部応力)は、 図 3.4 に示すように、曲げ応力<sup>(3-2),(3-3)</sup>とせん断応力<sup>(3-3)</sup>が考えられる。まず破断面に作用する曲げ応力は、凝集粒子の上流側端部で最大値をとると考えられるが、凝集粒子が剥離する際、亀裂の起点はこの上流側端部になると考えられる。従って、曲げ応力による凝集粒子の剥離発生有無を考える際は、最大曲げ応力が重要となる、と考えられる。

最大曲げ応力 $\sigma_b$ は、曲げモーメント $M$ と断面係数 $Z$ を用いて次式で表される。

$$\sigma_b = \frac{M}{Z} \quad (3.12)$$

流体抗力により破断面(高さ $y^*$ )に作用する曲げモーメント $M$ は、次式で与えられる。

$$M = \int_{y^*}^{D_{ag}} (y - y^*) dR_D(y) = 24\tau D_{ag}^3 \int_{Y^*}^1 \sqrt{Y(1-Y)}(Y - Y^*)^2 dY \quad (3.13)$$

ただし、 $Y = y/D_{ag}$ 、 $Y^* = y^*/D_{ag}$ である。

破断面の断面係数 $Z$ は、破断面が円形となるため次式で表される。

$$Z = \frac{\pi D^3}{32} = \frac{\pi D_{ag}^3}{4} (Y^*(1 - Y^*))^{\frac{3}{2}} \quad (3.14)$$

よって、破断面に作用する最大曲げ応力 $\sigma_b$ は次式となる。

$$\sigma_b = \frac{96\tau}{\pi} (Y^*(1 - Y^*))^{-\frac{3}{2}} \int_{Y^*}^1 \sqrt{Y(1-Y)}(Y - Y^*)^2 dY = \frac{96\tau}{\pi} f(Y^*) \quad (3.15)$$

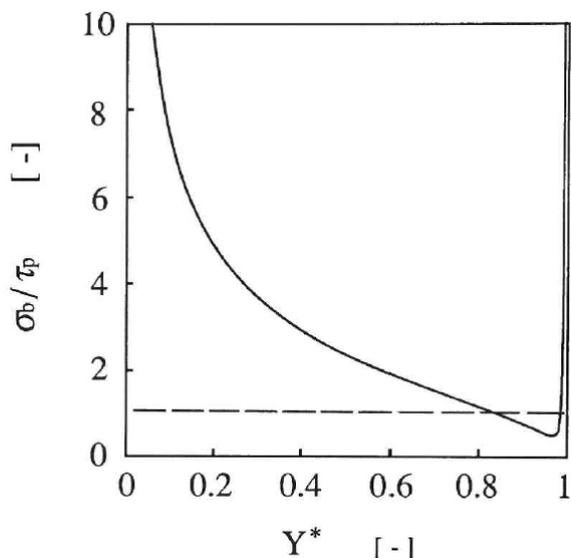
また、流体抗力により破断面に作用するせん断応力 $\tau_p$ は、流体抗力を破断面の断面積で割ることにより得られ、式 3.15 と同様に次式で表すことができる。

$$\tau_p = \frac{24\tau}{\pi} (Y^*(1 - Y^*))^{-1} \int_{Y^*}^1 \sqrt{Y(1-Y)}(Y - Y^*) dY = \frac{24\tau}{\pi} g(Y^*) \quad (3.16)$$

ここで $Y^* = y^*/D_{ag}$ より、 $Y^*$ は直径 $D_{ag}$ の凝集粒子塊が粒子堆積層にどの程度埋没しているかを表しており、 $Y^* = 0$  が埋没無し、 $Y^* = 1$  が完全に埋没となる。したがって $f(Y^*)$ 、 $g(Y^*)$ は、ともに凝集粒子塊の埋没の程度(埋没率)で変化する無次元の関数となる<sup>(3-3)</sup>。

以上より、流体抗力により凝集粒子塊に作用する力は、曲げ応力とせん断応力が考えられ、最大曲げ応力 $\sigma_b$ とせん断応力 $\tau_p$ が、凝集粒子の剥離発生有無を左右する応力として考えられるが、いずれにしてもせん断応力 $\tau$ に比例することが分かる。したがって流体抗力による堆積アッシュ再飛散の発生有無は結局、堆積層表面に作用するせん断応力 $\tau$ の大きさを評価することができる。

凝集粒子の埋没率を表す $Y^*$ を横軸にとり、縦軸に最大曲げ応力 $\sigma_b$ とせん断応力 $\tau_p$ の比 $\sigma_b/\tau_p$ を取ると、**図 3.5** となる。



**Fig.3.5 Comparison of bending stress and shearing stress acting on aggregated particle buried in particle bed in a shear flow field <sup>(3-3)</sup>**

これより、 $\sigma_b/\tau_p$ は埋没率 $Y^*$ により大きく変化するが、大部分の埋没率範囲において $\sigma_b/\tau_p > 1$ となっていることが分かる。したがってせん断流れによる粒子の再飛散に対しては、せん断応力 $\tau_p$ よりも最大曲げ応力 $\sigma_b$ の方が支配的である、と言える<sup>(3-3)</sup>。

以上より、以降のアッシュ移動のモデリングにおいては、せん断流れによる凝集粒子塊の破断(剥離)は、曲げ応力により生じるものとして、検討することとした。

(2) アッシュ層が受けるせん断応力

DPF 流路内のガス流れにより, Inlet 側流路壁上のアッシュ堆積層が受けるせん断応力 $\tau$ は, 流路計算格子内で一様な流速(軸方向流速) $v_1$ [m/s]を用いて, 次式で表される<sup>(3-1)</sup>. ここで,  $\tau$ はアッシュ層が受けるせん断応力[N/m<sup>2</sup>],  $F$ は Bissett の摩擦係数(ここでは 28.454),  $\mu$ は粘性係数[Pa·s],  $d_h$ はアッシュ層の厚みを考慮した流路幅(水力等価直径)[m]である.

$$\tau = \frac{F \cdot \mu \cdot v_1}{4d_h} \quad (3.17)$$

上式は以下の様に導出できる. 直径 $d_h$ の管状流路と考えると, 流体が流路壁面より受ける力と流体の圧力損失のつり合いより, 次式が成立する.

$$\tau \cdot \pi d_h \cdot \Delta z = \Delta P \cdot \frac{\pi}{4} d_h^2 \quad (3.18)$$

ここで,  $\tau$ は流体により流路壁が受けるせん断応力[N/m<sup>2</sup>],  $\pi d_h$ は流体が流路壁と接する部分の長さ(濡れ縁長さ)[m],  $\Delta z$ は圧力損失を考慮する区間長さ[m],  $\Delta P$ は流体の圧力損失,  $\pi/4 d_h^2$ は流路断面積(等価断面積)[m<sup>2</sup>]である.

一方, 管壁の摩擦損失で発生する圧力損失 $\Delta P$ は, ダルシー・ワイスバッハの式より次式で表すことができる.

$$\Delta P = \lambda \cdot \frac{\Delta z}{d_h} \cdot \frac{\rho \cdot v_1^2}{2} \quad (3.19)$$

式 3.18 と 3.19 より, 次式が得られる.

$$\tau = \frac{\lambda \cdot \rho \cdot v_1^2}{8} \quad (3.20)$$

ここで $\lambda$ は管摩擦係数で, DPF 流路内の場合, Bissett の摩擦係数 $F$ を用いて次式で表される.

$$\lambda = \frac{2F}{Re} = \frac{2F \cdot \mu}{\rho \cdot v_1 \cdot d_h} \quad (3.21)$$

式 3.20 と 3.21 より, 式 3.17 が導かれる.

$$\tau = \frac{2F \cdot \mu}{\rho \cdot v_1 \cdot d_h} \cdot \frac{\rho \cdot v_1^2}{8} = \frac{F \cdot \mu \cdot v_1}{4d_h} \quad (3.22)$$

(3) アッシュ移動と堆積層厚み計算のフロー

アッシュ移動と堆積層厚み計算のフローを図 3.6 に示す。

本計算フローは、各時間ステップにおいて、DPF 流路内流れ場を解いた後に実施される。再生により堆積スートが酸化消失すると計算フローが回り、z方向入口側の 1 格子目から、順に計算していく。対象格子におけるガス流れからアッシュ層が受けるせん断応力を計算し、臨界せん断応力との比較による移動判定と、移動の計算を行う。これを全計算格子について、各時間ステップで実施する。本計算での流路内のアッシュ移動は、堆積スートが無いことを移動計算開始の条件としていることから、基本的に DPF 強制再生中かつ堆積スート酸化消失後に生じる。またアッシュ移動が完了しアッシュ厚み分布が形成されるまでに要する時間は、1計算ステップでのアッシュ移動量の設定値に依存するが、基本的には強制再生継続時間(本研究では 0.75 h)に対して十分に短い時間となる。

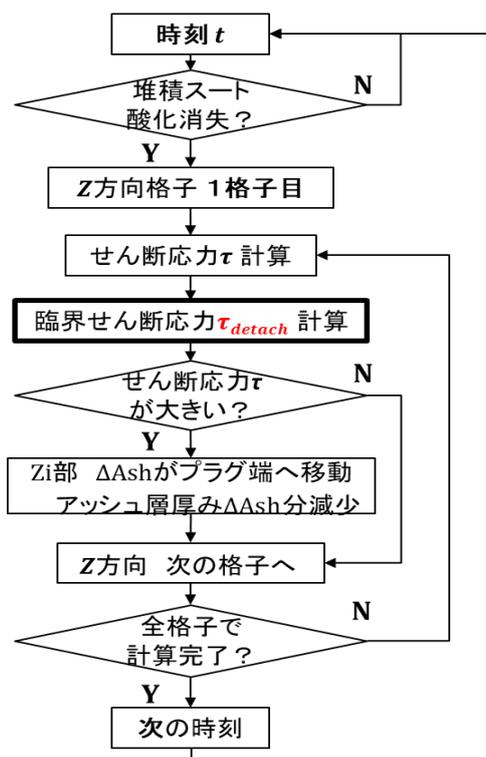


Fig.3.6 Flow chart of wall ash thickness calculation

アッシュ層が受けるせん断応力 $\tau$ は、堆積アッシュ層を考慮した開口部の流路形状と流入ガス条件より、式 3.17 で求めることができる。しかしながらアッシュ層の臨界せん断応力 $\tau_{detach}$ は、Sappok らのモデルではフィッティングパラメータであり、リアルワールドでの各種運転条件で生成されるアッシュの堆積形態を予測するには、汎用性の低いものであった。

## (4) 臨界せん断応力のモデル化方針

ここで臨界値 $\tau_{detach}$ に関して、粉体工学(微粒子工学)の分野を参照すると、Wall アッシュのような粒子層の粒子径や空隙率など堆積構造は、粒子層の引張破断強度に影響し、ガス流れによる堆積層の再飛散のし易さに直接的な影響を及ぼしている可能性が示唆されている。増田らは、空気流路壁面に堆積したフライアッシュ(JIS Z 8901 試験用粉体<sup>(3-5)</sup>)が、空気流れにより再飛散する現象を研究し、飛散開始時の臨界せん断応力が、粒子径と空隙率から理論的に求めた粒子層の引張破断強度と比例関係で整理できると報告している<sup>(3-4)</sup>。

増田らが実験に用いた矩形空気流路を図 3.7 に示す。流路上面をガラス製とした、幅 9.4 mm、高さ 3.3 mm、長さ 240 mm のアクリル製矩形流路で、流路端部より乾燥空気を流し、150 mm の助走区間の後に配置された、真鍮製の Powder bed 部へ導入する。Powder bed 部には 6×2 mm、深さ 0.5 mm の長円形の溝が彫られており、そこに十分乾燥させたフライアッシュをふるいを通して堆積させ、これにタッピングを加えることにより種々の充填率を得ている。フライアッシュ堆積層の表面は堆積後にナイフカットし、流路壁面と同一平面になるようにし、最後に 110 °C で 12 時間乾燥させ、飛散実験に供試している。

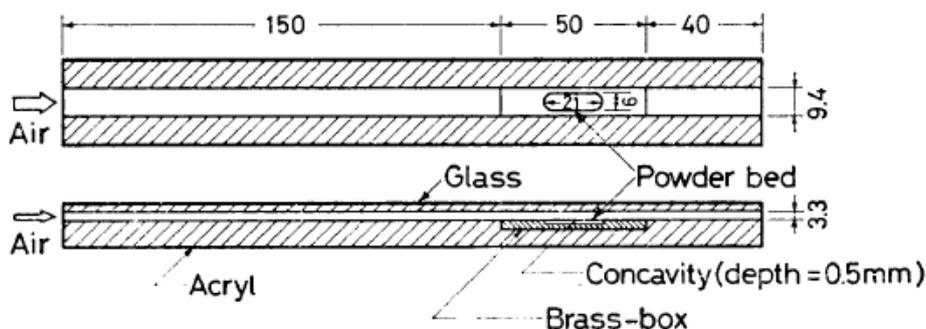


Fig. 3.7 Schematic of the powder bed section on experimental device <sup>(3-4)</sup>

流路断面の大きさと流す空気の流速から、主流の流れは乱流となる条件だが、堆積層表層の凝集粒子塊により生じる面粗さ(図 3.4 参照)は粘性底層内に収まることを確認しており<sup>(3-4)</sup>、本実験においても再飛散はせん断応力で評価することができる。

増田らの実験では、粒子径分布が異なる No.5 と No.10 の 2 種類のフライアッシュが供試されている。JIS Z 8901 で規定されているフライアッシュの SEM 画像を、図 3.8 に示す。フライアッシュ No.5 と No.10 の平均粒子径は、質量中位径がそれぞれ 10.9  $\mu\text{m}$  と 3.6  $\mu\text{m}$ 、面積基準調和平均径がそれぞれ 3.7  $\mu\text{m}$  と 1.8  $\mu\text{m}$  となる<sup>(3-4)</sup>。

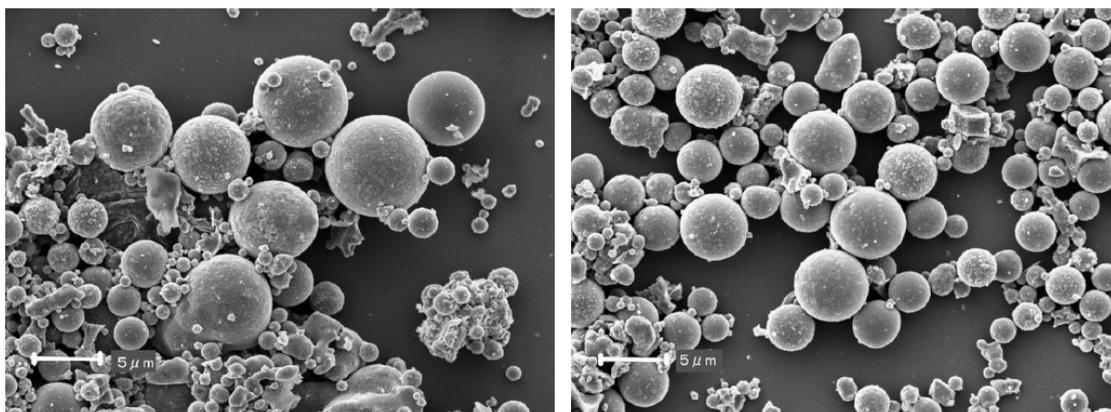


Fig. 3.8 FE-SEM images of fly-ash specified in JIS Z 8901 No.5 (left) and No.10 (right) <sup>(3-5)</sup>

フライアッシュは、燃焼排ガス中のダストを想定した試験粉体として、工業的な集じん装置などの性能試験等に使用されているもので、粒子形状は大半が球形となっている。微粉炭を燃料とする石炭火力発電所の副産物として生成されるもので、粒子密度は通常  $2.0 \sim 2.3 \text{ g/cm}^3$ 、二酸化ケイ素を主成分(45%以上)とする灰白色の粉末となる。

増田らは、上記の粒径分布の異なる 2 種類のフライアッシュと種々の充填率条件において、飛散発生有無を観察しながら流通空気の流速を徐々に増加させることで、飛散開始流速を実験的に求めた。さらにそのときの流速から、飛散開始時にフライアッシュ堆積層が受けていたせん断応力  $\tau_c$  を計算により求め、粒子径・充填率  $\phi$  (Packing fraction) との関係性を調べた<sup>(3-4)</sup>。得られた実験結果を図 3.9 に示す。

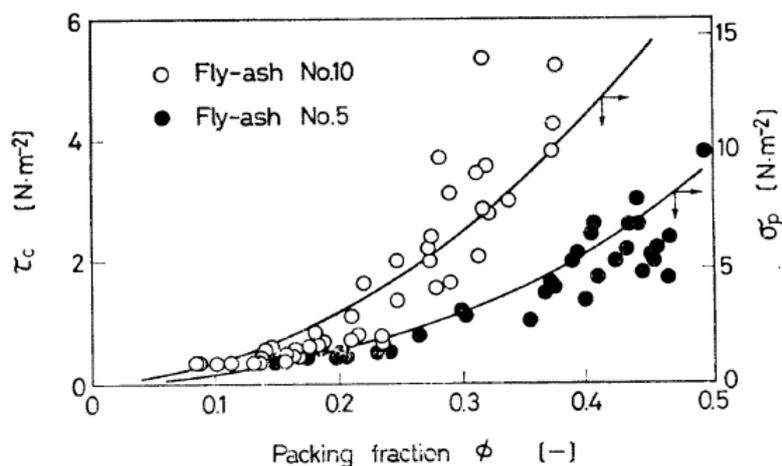


Fig. 3.9 Experimental results of shear stress  $\tau_c$  and calculated tensile strength  $\sigma_p (= \sigma_t)$  as a function of packing fraction  $\phi$  <sup>(3-4)</sup>

プロットが実験結果より得られた, それぞれの粒子径・充填率条件における, 飛散開始時のせん断応力 $\tau_c$ であり, 飛散開始流速 $v_c$ より次式で求めている<sup>(3-4)</sup>.

$$\tau_c = C_f \frac{\rho v_c^2}{2} \quad (3.23)$$

ここで $C_f$ は摩擦係数である. 先に述べた通り, 本実験条件での流れは乱流であり, また堆積層の表面粗さは粘性底層内であったため<sup>(3-4)</sup>, 摩擦係数 $C_f$ は次の Blasius の実験式で求めている.

$$C_f = 0.0791 Re^{-\frac{1}{4}} \quad (3.24)$$

また図中のラインは, フライアッシュの粒子径や充填率 $\phi$ , 成分物性より理論的に求めた, 粒子層の引張破断強度 $\sigma_p (= \sigma_t)$ であり, 次式に示す Rumpf の式<sup>(3-6)</sup>より求めている.

$$\sigma_t = \frac{\phi k_n F_a}{\pi D_p^2} \quad (3.25)$$

ここで,  $\sigma_t$ は粒子層の引張破断強度[N/m<sup>2</sup>],  $\phi$ は粒子層の充填率,  $k_n$ は配位数(1 粒子当たりの接触粒子数),  $F_a$ は粒子間付着力[N],  $D_p$ は粒子径[m]である. 粒子径は分布を持つ場合は平均径を用いる必要があるが,  $\sigma_t$ が単位面積あたりの付着力で粒子径に反比例するため,  $D_p$ には面積基準の調和平均径を用いている.

Rumpf の式は, 粒子層を均一粒径粒子のランダム充填層と仮定し, 層を構成する粒子同士の接触点数と粒子間付着力より, 粒子層内に設けた仮想破断面での引張破断強度を求めるものである. Rumpfの式で仮定する, 均一粒径粒子ランダム充填層の仮想破断面に作用する粒子間付着力の模式図を図 3.10 に示す.

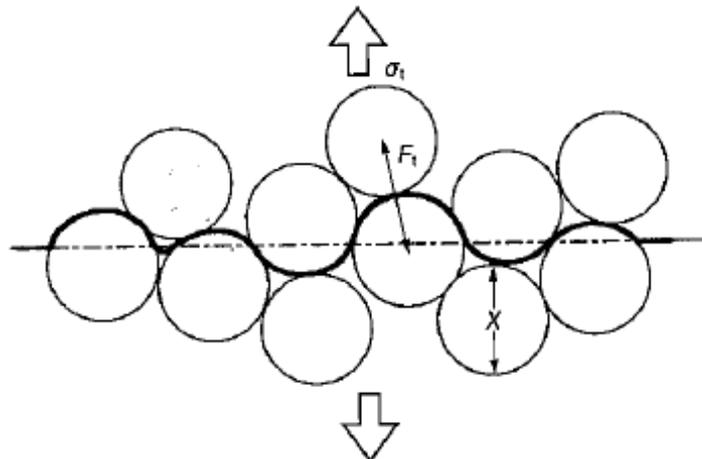


Fig. 3.10 Schematic representation of Rumpf's relationship <sup>(3-7)</sup>

直径 $X$ の均一粒径粒子をランダムに充填した粒子充填層を考え、そこに引張応力 $\sigma_t$ と垂直な、粒子径の幅の凹凸がある仮想破断面(太線)を考える。このモデルにおいて、粒子中心間方向に働く粒子間付着力 $F_t$ の引張方向分力を、単位破断面面積で積分すると、Rumpf の式が導出される<sup>(3-7)</sup>。Rumpf の式は、粒子堆積層に働く応力と粒子間力の関係を示す一般式であるが、そのモデル仮定から、粒子堆積の不均一性や、粒子形状、粒子径分布の影響は考慮されない<sup>(3-7)</sup>。

配位数 $k_n$ は、或る粒子が周囲の粒子と何か所で接触しているかを表すもので、空隙率 $\varepsilon$ から求める実験式が多くの研究者によって提案されているが、増田らは Ridgway-Tarback<sup>(3-8)</sup> の実験式を用いている。同実験式より得られる関係式を次式に示す。

$$k_n = 13.8 - \sqrt{175 - 232\varphi} \quad (3.26)$$

粒子間付着力 $F_a$ は van der Waals 力を仮定して求めている。球形粒子間に働く van der Waals 力(引力)の大きさは、一般に次式で表される<sup>(3-13)</sup>。

$$F_a = \frac{Ad}{12z^2} \quad (3.27)$$

ここで、 $A$ は Hamaker 定数[J]であり、接触する物質に依存するが、同物質間では固有の物性と見なすことができる。

また、 $d$ は次式で定義される換算粒子径[m]である。

$$d = \frac{D_{p1}D_{p2}}{D_{p1} + D_{p2}} \quad (3.28)$$

上式は、2つの粒子径が異径の場合の式であり、等径の場合は次式となる。

$$d = \frac{D_p}{2} \quad (3.29)$$

$z$ は粒子表面が滑らかで粗さを考慮しない場合の表面間距離[m]である。粗さを考慮する場合は、次式で表される。ここで $h$ は粒子表面間距離[m]、 $\delta$ は粒子表面粗さ[m]である。

$$z = h + \delta \quad (3.30)$$

等径2球間での van der Waals 力式は結局、次式で表される。

$$F_a = \frac{AD_p}{24(h + \delta)^2} \quad (3.31)$$

以上より、式 3.25 の Rumpf の式は、式 3.26、式 3.31 より結局、次式で表される。

$$\begin{aligned}\sigma_t &= \frac{A}{24\pi(h+\delta)^2} \cdot \frac{\varphi(13.8 - \sqrt{175 - 232\varphi})}{D_p} \\ &= \frac{A}{(h+\delta)^2} \cdot \frac{\varphi(0.183 - \sqrt{0.0308 - 0.0408\varphi})}{D_p}\end{aligned}\tag{3.32}$$

増田らは、別で実施したフライアッシュ No.10 の粉体層せん断試験の結果(引張破断強度 $\sigma_t = 12.9 \text{ N/m}^2$ , 充填率 $\varphi = 0.42$ )より、上式の係数を次のように同定した<sup>(3-17)</sup>。

$$\sigma_t = 8.5 \times 10^{-4} \cdot \frac{\varphi(0.183 - \sqrt{0.0308 - 0.0408\varphi})}{D_p}\tag{3.33}$$

図 3.9 のラインは、上式を用いて各粒子径・充填率について求めた引張破断強度 $\sigma_t$ である。

増田らは、図 3.9 の結果より、Rumpf の式で理論的に求められる粒子層の引張破断強度 $\sigma_t$ と、飛散開始時の臨界せん断応力 $\tau_c$ との間に、比例関係として次式が成立していると報告している。

$$\tau_c = \mu_f \cdot \sigma_t\tag{3.34}$$

ここで $\mu_f$ は比例係数で、フライアッシュの場合は 0.38 となる<sup>(3-4)</sup>。

増田らの研究より、Wall アッシュのような粒子堆積層の粒子径や空隙率など堆積構造は、粒子層の引張破断強度に影響していると考えられ、ガス流れによる堆積層の再飛散のし易さに影響している可能性が示唆されている。即ち、Sappok らのせん断剥離モデルではフィッティングパラメータであったせん断応力の臨界値を、Wall アッシュの粒子径や空隙率など堆積構造で表現できる可能性が示唆されている、と考えられる。そこで本研究では、臨界せん断応力 $\tau_{detach}$ を堆積アッシュの構造から求めることとした。

### 3.2.3 臨界せん断応力モデル

増田らの研究で得られた関係が DPF 流路内壁面に堆積したエンジンオイル由来のアッシュでも成立すると仮定し、同様の考え方で臨界せん断応力モデルを作成した。その際、DPF 流路内特有の、Wall 垂直方向へのガス流れを考慮し、それによりアッシュ堆積層へ作用する圧縮応力 $\sigma_f$ の影響を、新たに考慮した。

アッシュ堆積層を均一球形粒子のランダム堆積層と仮定し、臨界せん断応力を、粒子間付着力より理論的に求められる粒子層の引張破断強度 $\sigma_t$ [N/m<sup>2</sup>]と、透過ガス流れにより破断面に作用する圧縮応力(破断面単位面積上に積み重なる粒子にかかる流体抗力の総和) $\sigma_f$ [N/m<sup>2</sup>]で、モデル化した。破断する臨界状態における、堆積層表面のアッシュ凝集粒子塊内部の破断面に作用する応力と、ガス流れにより堆積層表面に作用する臨界状態でのせん断応力(臨界せん断応力) $\tau_{detach}$ の関係を、図 3.11 に示す。

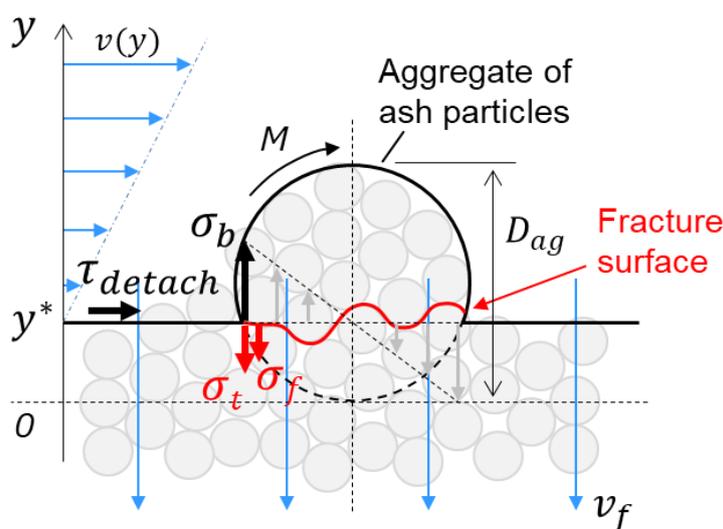


図 3.11 Schematic of the critical shear stress of particle bed surface and acting forces on fracture surface

いま半球形のアッシュ凝集粒子塊が、破断する臨界状態にあるとする。先に述べたとおり曲げ応力による破断が支配的と考えられることから、曲げ応力による破断を考えると、破断面に作用する最大曲げ応力 $\sigma_b$ と、引張破断強度 $\sigma_t$ 、破断面に作用する圧縮応力 $\sigma_f$ の関係は、次式となる。

$$\sigma_b = \sigma_t + \sigma_f \quad (3.35)$$

一方, 式 3.15 より, 破断面に作用する最大曲げ応力 $\sigma_b$ は, アッシュ堆積層表層に作用するせん断応力 $\tau$ を用いて, 次式で表される.

$$\sigma_b = \frac{96\tau}{\pi} f(Y^*) \quad (3.36)$$

ここで $f(Y^*)$ は, 凝集粒子塊の埋没率 $Y^*$ で変化する無次元の関数となり, 次式で表される<sup>(3-3)</sup>.

$$f(Y^*) = (Y^*(1 - Y^*))^{-\frac{3}{2}} \int_{Y^*}^1 \sqrt{Y(1 - Y)} (Y - Y^*)^2 dY \quad (3.37)$$

臨界状態においてアッシュ堆積層表層に作用するせん断応力を, 臨界せん断応力 $\tau_{detach}$ と表すこととすると, 式 3.35 と式 3.36 より, 臨界せん断応力 $\tau_{detach}$ は次式で表される.

$$\tau_{detach} = \frac{\pi}{96f(Y^*)} (\sigma_t + \sigma_f) \quad (3.38)$$

実際のアッシュ堆積層表層において, 凝集粒子塊の埋没率を規定することが困難であったため, 本研究ではモデル定数として比例係数 $\mu_f$ を導入し, 次式で臨界せん断応力を定義することとした.

$$\tau_{detach} = \mu_f (\sigma_t + \sigma_f) \quad (3.39)$$

上式を, 凝集粒子塊の剥離移動を判定する, 臨界せん断応力 $\tau_{detach}$ のモデル式とする.

以下, モデル式を構成する粒子層の引張破断強度 $\sigma_t$ と, 透過ガス流れにより破断面に作用する圧縮応力 $\sigma_f$ について, 詳細を説明する.

(1) 粒子層の引張破断強度

式 3.39 の粒子層の引張破断強度 $\sigma_t$ [N/m<sup>2</sup>]は, Rumpfの式<sup>(3-6)</sup> より次式で表される.

$$\sigma_t = \frac{\varphi k_n F_a}{\pi D_p^2} = \frac{(1 - \varepsilon) k_n F_a}{\pi D_p^2} \quad (3.40)$$

$\varepsilon$ は粒子層の空隙率,  $k_n$ は配位数(1 粒子当たりの接触粒子数),  $F_a$ は粒子間付着力[N],  $D_p$ は粒子径[m]である.

配位数 $k_n$ は, 或る粒子が周囲の粒子と何か所で接触しているかを表すもので, 空隙率 $\varepsilon$ から求める実験式が多くの研究者によって提案されているが, DPF 内堆積アッシュの配位数については研究例がなく知見が乏しいため, 本研究では増田らの研究を参照し, Ridgway-Tarbutck<sup>(3-8)</sup> の実験式を用いた. 同実験式より得られる関係式を次式に示す. また, 代表的な配位数の実験式を図 3.12 に示す.

$$\begin{aligned} k_n &= 13.8 - \sqrt{175 - 232\varphi} \\ &= 13.8 - \sqrt{175 - 232(1 - \varepsilon)} \end{aligned} \quad (3.41)$$

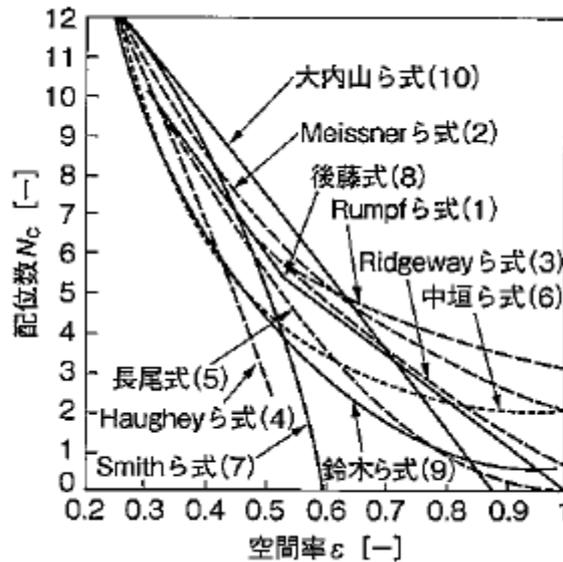


Fig.3.12 Typical experimental relationship between porosity and coordination number <sup>(3-9)</sup>

粒子間付着力 $F_a$ は, 代表的なものとして van der Waals 力, 粒子間に液体が保持された場合に働く粒子間引力(液架橋付着力), 接触帯電による静電気力, が考えられる<sup>(3-13)</sup>. 液架橋付着力は, 水蒸気の凝集などで液滴を生じる環境下においては付着力の支配要因となり得るが, エンジン排気の高湿環境下では無視できると考えられる. 静電気力は, DPF 内部のアッシュ粒子の帯電

状態についての研究例がほとんどなく知見が乏しいが、一般的には電氣的に中性で、無視できると考えられている<sup>(3-10)</sup>。アッシュの粒径範囲(数百 nm～数十  $\mu$  m)を考慮すると、重力よりも粒子間付着力の方が支配的となる。また同様に粒径範囲から、粒子間付着力 $F_a$ は van der Waals 力が支配的と考えられるため<sup>(3-11), (3-12)</sup>、本研究では粒子間付着力 $F_a$ を van der Waals 力と仮定する。

互いに接する各粒子が電氣的に中性でも、原子または分子には電氣的な揺らぎがあり、接触表面間ではこの揺らぎが相互に影響し合い、引力を生み出す。これが Van der Waals 力であり、球形粒子間に働く引力の大きさは、一般に次式で表される<sup>(3-13)</sup>。

$$F_a = \frac{Ad}{12z^2} \quad (3.42)$$

ここで、 $A$ は Hamaker 定数[J]、 $d$ は次式で定義される換算粒子径[m]である。

$$d = \frac{D_{p1}D_{p2}}{D_{p1} + D_{p2}} \quad (3.43)$$

上式は、2つの粒子径が異径の場合の式であり、等径の場合は次式となる。

$$d = \frac{D_p}{2} \quad (3.44)$$

$z$ は粒子表面が滑らかで粗さを考慮しない場合の表面間距離[m]である。粗さを考慮する場合は、次式で表される。ここで $h$ は粒子表面間距離[m]、 $\delta$ は粒子表面粗さ[m]である。

$$z = h + \delta \quad (3.45)$$

以上より、等径2球間での van der Waals 力式は結局、次式で表される。

$$F_a = \frac{AD_p}{24(h + \delta)^2} \quad (3.46)$$

$A$ の Hamaker 定数は、接触する物質に依存するが、同物質間では固有の物性で見なすことができる。炭化水素系の物質では  $4 \times 10^{-20} \sim 10 \times 10^{-20}$  J、酸化物では  $6 \times 10^{-20} \sim 15 \times 10^{-20}$  J、金属では  $15 \times 10^{-20} \sim 50 \times 10^{-20}$  J 程度であり、粒子の表面が酸化物層で覆われているときは、酸化物の値を用いればよい<sup>(3-13)</sup>。

Hamaker 定数は、真空中における同じ物質(物質1)同士の付着力 $A_{11}$ として求められている場合が多いが、異種物質間(物質1と物質2)の場合の Hamaker 定数は、次式で推算できる<sup>(3-13)</sup>。

$$A_{12} = \sqrt{A_{11}A_{22}} \quad (3.47)$$

また、間に物質 3(たとえば水)を介して相互作用を及ぼす場合の Hamaker 定数は、次式で推算できる<sup>(3-13)</sup>。

$$A_{131} = (\sqrt{A_{11}} - \sqrt{A_{33}})^2 \quad (3.48)$$

文献で調査したスート(カーボン), SiC 基材, 種々のアッシュ成分の Hamaker 定数 $A$ を表 3.1 に示す。

**Table 3.1 Hamaker constant of soot, SiC, and various ash components<sup>(3-14), (3-15), (3-16)</sup>**

|      |                   | Hamaker constant<br>$10^{-20}$ [J] | Remarks   |
|------|-------------------|------------------------------------|---|
| Soot | Carbon            | 21.7 <sup>(3-14)</sup>             |   |
| Wall | SiC               | 24.8 <sup>(3-15)</sup>             | 6H-SiC  |
| Ash  | CaSO <sub>4</sub> | 10.1                               | Calculated based on $A_{131} = 1.17 \times 10^{-20}$ (Gyphthm in water) <sup>(3-16)</sup> and $A_{33} = 4.38 \times 10^{-20}$ (water) <sup>(3-14)</sup> |
|      | CaO               | 12.4 <sup>(3-14)</sup>             |   |
|      | CaCO <sub>3</sub> | 10.1 <sup>(3-15)</sup>             |   |
|      | ZnO               | 9.21 <sup>(3-15)</sup>             |   |
|      | ZnS               | 15.2 <sup>(3-15)</sup>             | Cubic   |

ここで CaSO<sub>4</sub>の Hamaker 定数 $A$ は、水中での文献値  $1.17 \times 10^{-20}$  J<sup>(3-16)</sup> より、水を  $4.38 \times 10^{-20}$  J<sup>(3-14)</sup> として、式 3.48 より空気中での値に換算して使用した。

粒子表面間距離 $h$ に関して、van der Waals 力は粒子表面間距離を近づけると大きくなるが、表面の原子または分子の電子雲が重なるところまで近づくと斥力が働く。これをボルン(Born)の斥力という。気相では引力と斥力のつり合いによる安定な表面間距離として、粒子表面間距離  $h = 0.4$  nm が用いられていることから<sup>(3-13)</sup>、本研究でも同様とした。

粒子表面粗さ $\delta$ は、粒子表面が滑らかと見做せない場合に考慮が必要とされる<sup>(3-13)</sup>。粒子表面が粗く凹凸がある場合は、粒子表面間距離が増加したのと同じ効果となり、van der Waals 力は減少する。本研究では、アッシュ粒子表面にも相応の凹凸が存在するものと仮定し、粗さの影響も

考慮した。粒子表面が粗く凹凸がある場合の例を図 3.13 に示す。また、粒子表面粗さ  $\delta$  の定義式を式 3.49 に示す<sup>(3-13)</sup>。

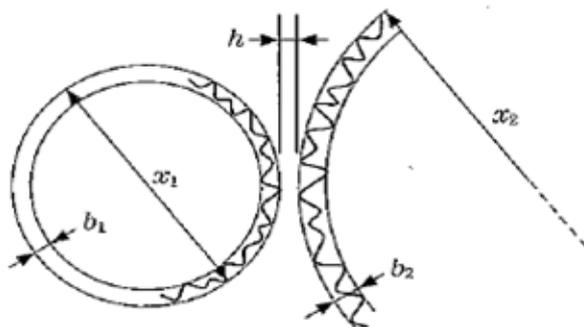


Fig.3.13 Schematic representation roughness of particle surface <sup>(3-13)</sup>

$$\delta = \frac{b_1 + b_2}{2} \quad (3.49)$$

以上、式 3.41、式 3.46 より、粒子層の引張破断強度 $\sigma_t$ を表す式 3.40 (Rumpf の式)は、結局、以下の通りに変換できる。

$$\begin{aligned} \sigma_t &= \frac{A}{24\pi(0.4 \times 10^{-9} + \delta)^2} \cdot \frac{(1 - \varepsilon) \left( 13.8 - \sqrt{175 - 232(1 - \varepsilon)} \right)}{D_p} \\ &= \frac{A}{(0.4 \times 10^{-9} + \delta)^2} \cdot \frac{(1 - \varepsilon) \left( 0.183 - \sqrt{0.0308 - 0.0408(1 - \varepsilon)} \right)}{D_p} \end{aligned} \quad (3.50)$$

上式より、最終的に粒子層の引張破断強度 $\sigma_t$ は、粒子径 $D_p$ と粒子層の空隙率 $\varepsilon$ 、それと粒子物性パラメータ (Hamaker 定数 $A$ 、粒子表面粗さ $\delta$ ) で表現されることが分かる。

(2) ガス流れにより粒子層に作用する圧縮応力

Wall 上に堆積するアッシュ粒子層には、ガス流れにより、Wall 方向への圧縮力が作用する。これは粒子間の付着力と同様に、粒子層(あるいは凝集粒子塊)の剥離・再飛散を抑制する方向に作用する。図 3.14 に、透過ガス流れが仮想破断面に及ぼす圧縮応力の、模式図を示す。

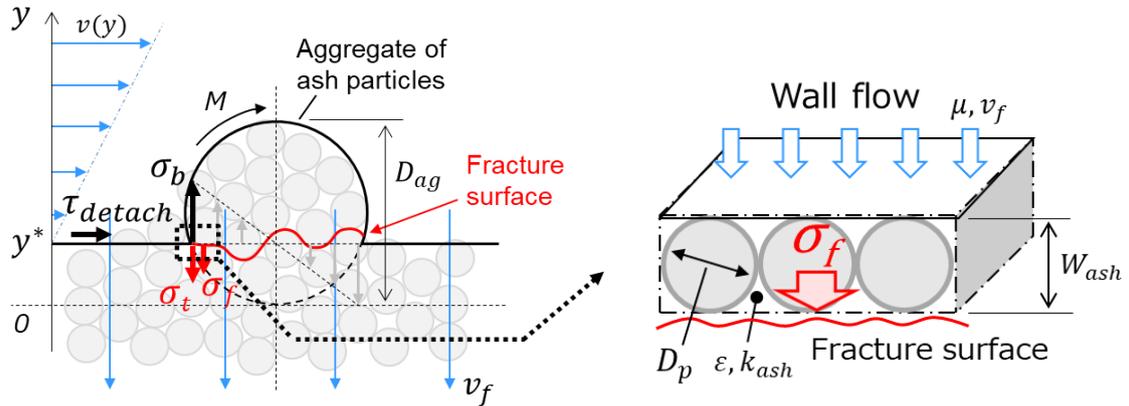


Fig.3.14 Schematic of the compressive stress on hypothetical fracture surface in particle layer caused by permeate wall flow<sup>(5-2)</sup>

均一粒径粒子が整列して配置された層の、上面から下面方向へガスが透過している場合を考える。層の下面を破断面とした場合、ガス流れにより破断面に作用する圧縮方向の応力は、層上下面の圧力差 $\Delta P$ に等しいと考えられることから、式 3.39 のガス流れにより粒子層に作用する圧縮応力 $\sigma_f$ は、次式のダルシー則で表現できると考えられる。

$$\sigma_f = \Delta P = \mu \frac{W_{ash}}{k_{ash}} v_f \quad (3.51)$$

ここで、 $\mu$ は Wall 透過ガスの粘性係数[Pa・s]、 $W_{ash}$ はガスが透過する粒子層の厚さ[m]、 $v_f$ は Wall 透過ガスの流速[m/s]、 $k_{ash}$ はアッシュ粒子層の透過率[m<sup>2</sup>]である。上式より、粒子層に作用する圧縮応力は粒子層の厚さに比例する。即ち、粒子層表面が最も小さく、表面から深いところほど大きくなると考えられる。したがって、透過ガス流れによる圧縮応力の観点からは、粒子層の剥離輸送は、粒子層の表層に近いところで生じやすい、と考えられる。

粒子層(あるいは凝集粒子塊)の再飛散時破断面に作用する圧縮応力 $\sigma_f$ を求めるには、ガスが透過する粒子層の厚さ $W_{ash}$ を定義する必要があるが、破断の起点を凝集粒子塊にガスが当たる面(上流側)で、凝集粒子塊と粒子層表層のキワだと仮定すると、凝集粒子側面から流入するガス流れもあるため、さほどの粒子層厚さ $W_{ash}$ は考慮する必要はない、と考えられる。一方で粒子

径 $D_p$ よりも小さい剥離厚さ $W_{ash}$ は考えにくいことから、本研究では、アッシュ粒子層の剥離厚さ $W_{ash}$ を、次式の様に仮定した。

$$\begin{aligned} W_{ash} &= C \cdot D_p \\ C &= 1 \end{aligned} \quad (3.52)$$

式 3.52 より、ガス流れにより破断面に作用する圧縮応力 $\sigma_f$ を表す式 3.51 は、次式の通りに変換できる。

$$\sigma_f = \frac{D_p}{k_{ash}} \mu v_f \quad (3.53)$$

ここで、厚さ $W$ の粒子層を流れる層流圧力損失の計算に用いられる関係式として、Kozeny-Carman の式として知られる次式の関係式がある。

$$\frac{\Delta P}{W} = \frac{180(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3 D_p^2} \mu v_f \quad (3.54)$$

式 3.51 と式 3.54 より、アッシュ層の透過率 $k_{ash}$ は、次式の様に空隙率 $\varepsilon$ と粒子径 $D_p$ で表すことができる。

$$k_{ash} = \frac{\varepsilon^3}{180(1-\varepsilon)^2} D_p^2 \quad (3.55)$$

式 3.53 と式 3.55 より、ガス流れにより粒子層破断面に作用する圧縮応力 $\sigma_f$ を表す式 3.51 は、結局、次式の通りに変換できる。

$$\sigma_f = \frac{180(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3 D_p} \mu v_f \quad (3.56)$$

上式より、最終的にガス流れにより破断面に作用する圧縮応力 $\sigma_f$ は、粒子径 $D_p$ と粒子層の空隙率 $\varepsilon$ 、それと Wall 透過ガスの粘性係数 $\mu$ と、Wall 垂直方向の透過ガス流速 $v_f$ 、で表現されることが分かる。

### 3.2.4 粒子径, 空隙率に対する臨界せん断応力の変化

構築した臨界せん断応力モデル式, 式 3.39 と式 3.50・式 3.56 より, 粒子径 $D_p$ , 粒子層空隙率 $\varepsilon$ で, 臨界せん断応力 $\tau_{detach}$ がどのように変化するかを計算した例を, 図 3.15 に示す. アッシュの付着特性を規定するパラメータは, それぞれ比例係数 $\mu_f$ は 0.38, Hamaker 定数 $A$ は  $10.1 \times 10^{-20}$  J, 粒子表面粗さは 5.3 nm とした. また Wall 透過ガスの粘性係数 $\mu$ と流速 $v_f$ は, SV  $6.0 \times 10^4 \text{ h}^{-1}$  (20 °C, 1 atm 時), 680 °Cでの DPF 再生時を想定し, それぞれ  $4.15 \times 10^{-5} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ , 0.0577 m/s で計算した. これより構築した臨界せん断応力モデルでは, Wall アッシュ層の空隙率が大きく, またアッシュ粒子径が大きいほど, その Wall アッシュは臨界せん断応力が小さくなることが分かる.

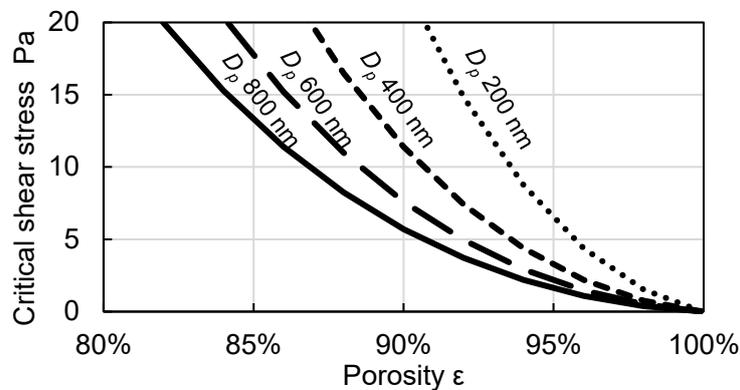


Fig. 3.15 Critical shear stress for each porosity and particle diameter

Wall アッシュ層の空隙率やアッシュ粒子径は, 前章での構築モデルにより, S/A 比の関数として表現できる. 図 3.16 に, S/A 比を横軸にとった場合の臨界せん断応力の変化を示す. なお付着特性など計算条件は図 3.15 と同様である. これより構築した臨界せん断応力モデルでは, 結局 S/A 比が大きいほど臨界せん断応力が小さくなり, せん断されやすい特性となることが分かる.

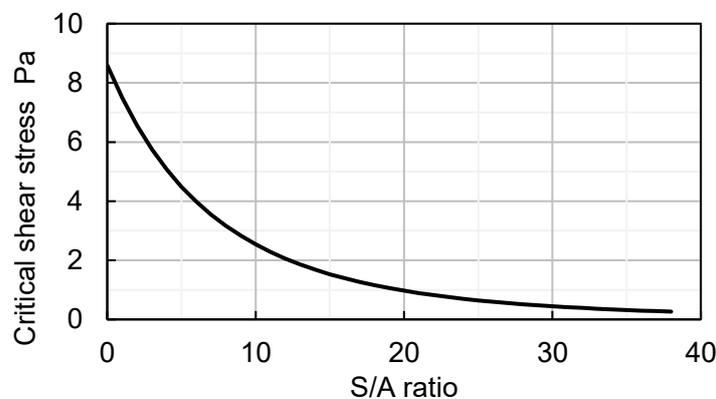


Fig. 3.16 Critical shear stress change in S/A ratio calculated with developed model in chapter 2

### 3.3 まとめ

本章(第3章)では、粉体工学分野の先行研究を参照し、Wall アッシュの粒子径と空隙率でアッシュ堆積層の付着特性をモデリングすることで粒子径・空隙率が大きい Wall アッシュ層ほど臨界せん断応力が低く、せん断されやすい特性を示す、臨界せん断応力モデルを構築した。

前章(第2章)にて、Wall アッシュ層の粒子径と空隙率は DPF 再生時などにおけるスート酸化の影響を受けて形成され、その構造変化がスートと新規堆積アッシュの堆積量比(S/A比)で説明できることを示し、その構造変化を示すアッシュ2次粒子モデル、アッシュ層空隙率モデルを構築したが、第2章と第3章の結果を合わせて考えると、S/A比が与えられれば、Wallアッシュ堆積層の構造が計算でき、また DPF 流路内でのアッシュ移動も計算できる、と考えられる。

次章(第4章)では、第2章で構築したアッシュ2次粒子モデル、アッシュ層空隙率モデルと、第3章で構築した臨界せん断応力モデルとを連成させ、アッシュ堆積状態やアッシュ堆積後の DPF 圧損特性が、DPG 試験で得られた実測データを再現するのかを検証する。

## 第4章 DPF 流路内堆積アッシュによる圧損影響のモデリングとモデル検証

### 4.1 まえがき

本章では、まず前章までで構築した、運転条件(S/A比)に応じて変化するアッシュ堆積層の性状を計算するモデル(以下、アッシュ堆積層モデル)と、その性状からアッシュの移動のしやすさを計算する臨界せん断応力モデルを用いて、汎用コード(Exothermia社のAxisuite)上で作成したDPF圧損モデルとを連成させ、DPFの運転状態に応じて形成されるアッシュ堆積層の性状・堆積形態を反映させた、DPF全体の圧力損失を予測するモデルを構築する。次に構築モデルによる計算結果をDPGでの実測データと比較し、モデルの予測精度の検証を実施する。最後にモデルの有効性検証として、DPFサイズを変えた場合の圧損影響をモデルで予測し、DPFサイズの最適化検討を実施、モデルの有効性を検証する。

### 4.2 DPF 全体の数値計算モデル

DPF全体の流れ場や化学反応、物質輸送の数値計算は、汎用コードである、Exothermia社のAxisuiteを用いて実施する。構築モデルの全体像を図4.1に示す。

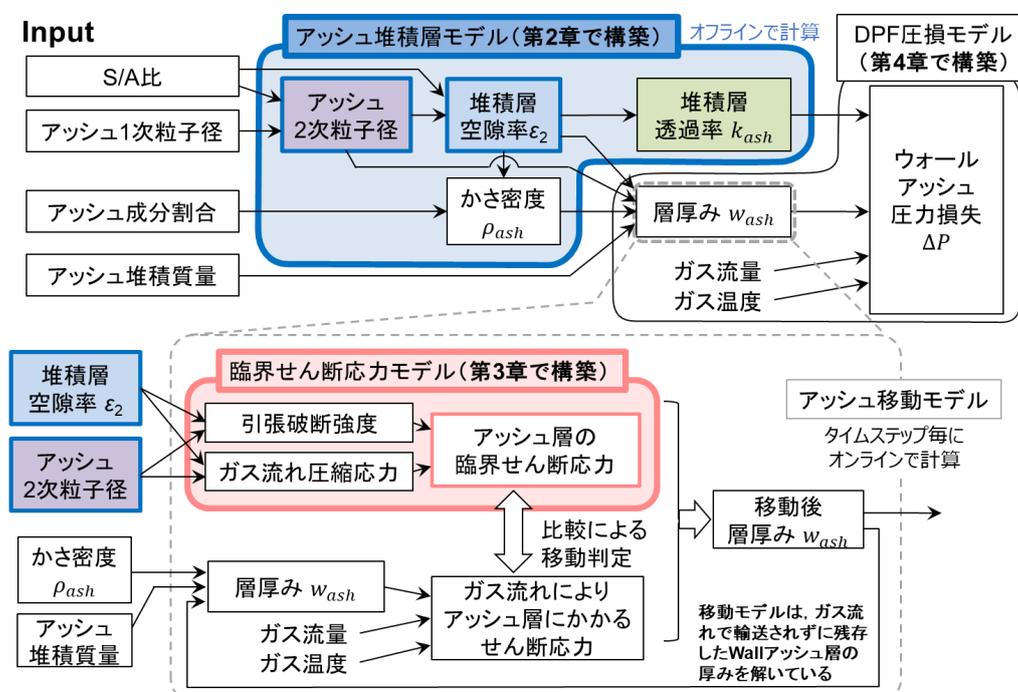


Fig.4.1 Schematic diagram of wall ash property and ash mobility prediction model, and DPF pressure drop calculation model

また、アッシュ堆積層モデルの詳細を図 4.2 に示す。アッシュ 2 次粒子モデルと、アッシュ層空隙率モデルは、それぞれ第2章にて構築したモデルを適用している。

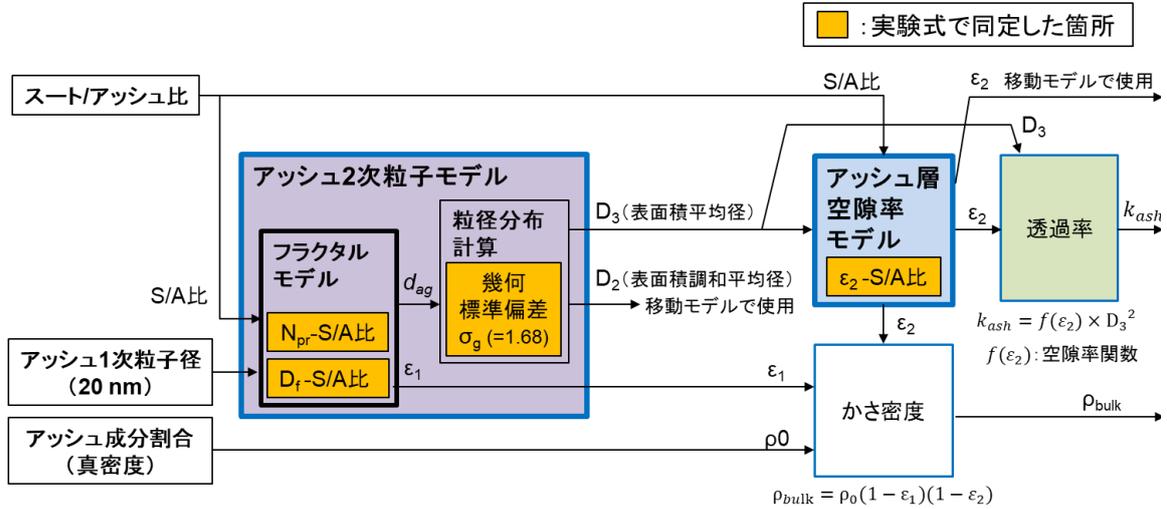


Fig.4.2 Schematic diagram of wall ash property prediction model

アッシュ移動モデルでは、図 4.1 に示すように臨界せん断応力(式 3.39)の計算にアッシュ2次粒子径を用いているが、この際に用いる2次粒子径は、粒子層の引張破断強度 $\sigma_t$ (式 3.40)については、 $\sigma_t$ が単位面積あたりの付着力で粒子径に反比例するため、次式で得られる面積基準の調和平均径 $D_2$ を使用した。

$$D_2 = D_4 \cdot \frac{\exp(1.5 \ln^2 \sigma_g)}{\exp(3.5 \ln^2 \sigma_g)} \quad (4.1)$$

面積基準の調和平均径は計算上長さ平均径と一致するため<sup>(4-1)</sup>、ここでは $D_2$ として示している。

ガス流れにより粒子層破断面に作用する圧縮応力 $\sigma_f$ については、図 4.2 に示すアッシュ堆積層モデルで得られる透過率を、ダルシー則より得られる式 3.53 に直接入力することで求めた。その際の剥離厚さに相当する粒子径 $D_p$ には、代表長さとして面積基準の調和平均径 $D_2$ を適用した。

構築モデルと連成させる DPF 圧損モデルは、Exothermia 社の Axisuite 上で作成した。DPF 圧損モデルの概要を図 4.3 に示す。

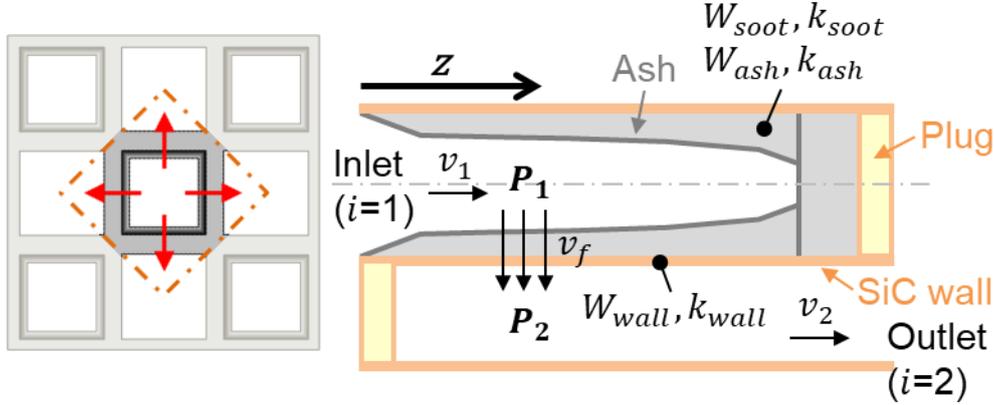


Fig.4.3 Schematic representation of DPF pressure drop calculation model

DPF 圧損モデルには、Inlet・Outlet チャンネルの軸方向 1 次元に、スート・アッシュ堆積を含む Wall 垂直方向 1 次元を考慮した準 2 次元モデルを採用した。軸方向の計算格子数は 30 である。

DPF 流路内流れ場の支配方程式(質量保存式, 運動量保存式)は、次式のとおりに。

$$\frac{\partial}{\partial z}(\rho_i v_i) = (-1)^i \frac{4}{d} \rho_f v_f \quad (4.2)$$

$$\frac{\partial P_i}{\partial z} + \frac{\partial(\rho_i v_i^2)}{\partial z} = -F \frac{\mu_i v_i}{d_h^2} \quad (4.3)$$

ここで、 $i$ は領域を示すもので、1は Inlet チャンネル、2は Outlet チャンネルを示す。また $\rho_i$ はチャンネル内流通ガスの密度[kg/m<sup>3</sup>]、 $v_i$ はチャンネル内流通ガスの流速[m/s](流路断面内で一様と仮定)、 $\rho_f$ は Wall 透過ガスの密度[kg/m<sup>3</sup>]、 $v_f$ は Wall 透過ガスの流速[m/s]、 $P_i$ は圧力[Pa]、 $\mu_i$ は流通ガスの粘性係数[Pa・s]、 $F$ は Bissett の摩擦係数(ここでは 28.454 とした)である。また、 $d$ はチャンネルの流路幅[m]、 $d_h$ はアッシュ堆積層厚みを考慮した開口流路幅[m]である。

スート・アッシュ堆積層と基材 Wall 透過時の圧力損失は、次式のダルシー則により求められる。

$$P_1 - P_2 = \mu \left( \frac{W_{wall}}{k_{wall}} + \frac{W_{soot}}{k_{soot}} + \frac{W_{ash}}{k_{ash}} \right) v_f \quad (4.4)$$

ここで、 $P_1$ 、 $P_2$ は圧力[Pa]で、添え字の 1、2 はそれぞれ Inlet チャンネル側、Outlet チャンネル側を示す。 $\mu$ は Wall 透過ガスの粘性係数[Pa・s]、 $W$ は多孔質層の厚さ[m]、 $v_f$ は多孔質層透過ガスの

流速[m/s],  $k$ は多孔質層の透過率[m<sup>2</sup>]であり, 添え字の  $wall$ は DPF の SiC Wall 層,  $soot$ はスー  
ト堆積層,  $ash$ はアッシュ堆積層を示す.

アッシュ堆積層の厚さ $W_{ash}$ は, 今回構築した DPF 流路内アッシュ移動モデルにより, 運転条件  
や堆積アッシュ性状を反映した流路内アッシュ移動の影響が考慮される. アッシュ層厚みの計算  
ルーチンを図 4.4 に示す.

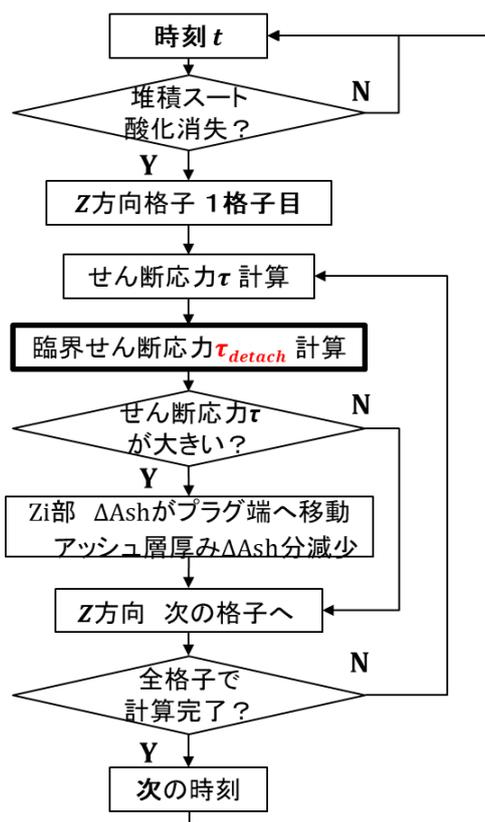


Fig.4.4 Flow chart of wall ash thickness calculation

本計算フローは, 各時間ステップにおいて, DPF 流路内流れ場を解いた後に実施される. 再生  
により堆積スートが酸化消失すると計算フローが回り, z方向入口側の 1 格子目から, 順に計算し  
ていく. 対象格子におけるガス流れからアッシュ層が受けるせん断応力を計算し, 臨界せん断応  
力との比較による移動判定と, 移動の計算を行う. これを全計算格子について, 各時間ステップ  
で実施する. 本計算での流路内のアッシュ移動は, 堆積スートが無いことを移動計算開始の条件  
としていることから, 基本的に DPF 強制再生中かつ堆積スート酸化消失後に生じる. またアッシュ  
移動が完了しアッシュ厚み分布が形成されるまでに要する時間は, 1計算ステップでのアッシュ移

動量の設定値に依存するが、基本的には強制再生継続時間(本研究では 0.75 h)に対して十分に短い時間となる。

今回新たに構築したアッシュ堆積層モデルと、改良した臨界せん断応力モデルとを、汎用コード(Exothermia 社の Axisuite)上で作成した DPF 圧損モデルと連成し計算することで、運転条件に応じたアッシュ層の透過率と、流路内アッシュ移動を反映した Wall アッシュ厚みが考慮された、DPF 圧損の予測が可能となる。

### 4.3 モデル精度検証

本節では、S/A 比が異なる DPG 試験条件(I)~(III)について、アッシュ堆積分布と圧損の計算結果を DPG での実験結果と比較し、モデル精度の検証を行う。まず 4.3.1 項にて、スート流入量のみが異なる条件(I)と条件(II)でモデル定数を同定し、計算精度を検証する。次に 4.3.2 項にて、供試オイルの硫酸灰分が異なり、運転サイクル数が倍となる条件(III)でも同様に計算し、モデル適用範囲を検証する。

#### 4.3.1 低 S/A 比条件でのフィッティングと、計算結果の検証

検証としてシミュレートする運転サイクルは、堆積運転 2 時間 (DPF 入口ガス温度 350 °C)、再生運転 0.75 時間 (DPF 入口ガス温度 680 °C) の DPG 運転サイクルで、これを約 40 回、トータル 110 時間運転し、アッシュを 41.3 g (20 g/L) 堆積させた。

##### (1) モデル検証用の実験データ

表 2.4 より、オイル種と硫酸灰分が (Sample A で) 等しい、条件(I);スート堆積速度 0.5 g/h (S/A 比=1) と 条件(II);スート堆積速度 2.0 g/h (S/A 比=4) の 2 条件を対象に、実験データと比較し、アッシュ厚み分布と圧損の予測精度を検証した。検証データの実験条件を表 4.1 に示す。

**Table 4.1 Operating condition for soot/ash loading and regeneration<sup>(5-2)</sup>**

|                       |                 | Loading             | Regeneration        |
|-----------------------|-----------------|---------------------|---------------------|
| Operating time        | h               | 2                   | 0.75                |
| Soot loading rate     | g/h             | 0.5 / 2.0           | 0                   |
| Ash loading rate      | g/h             | 0.5                 | 0                   |
| S/A ratio             | -               | 1 / 4               | -                   |
| DPF inlet temperature | deg.C           | 350                 | 680                 |
| SV (20 deg.C, 1 atm)  | h <sup>-1</sup> | 6.0×10 <sup>4</sup> | 6.0×10 <sup>4</sup> |

条件(I)と条件(II)で、それぞれアッシュ堆積量が 41.3 g (20 g/L) となるまで、堆積運転 2 h と DPF 再生運転 0.75 h を、繰り返し実施した。アッシュ堆積速度 0.5 g/h では、狙いのサイクル数は 40 回となる。アッシュ堆積後の DPF を切断し、光学観察で求めたアッシュ堆積厚み分布の実測結果を図 4.5 に示す。(本図は図 2.5 に対して、計算と比較する条件(I)と条件(II)の結果を強調したものとなる)

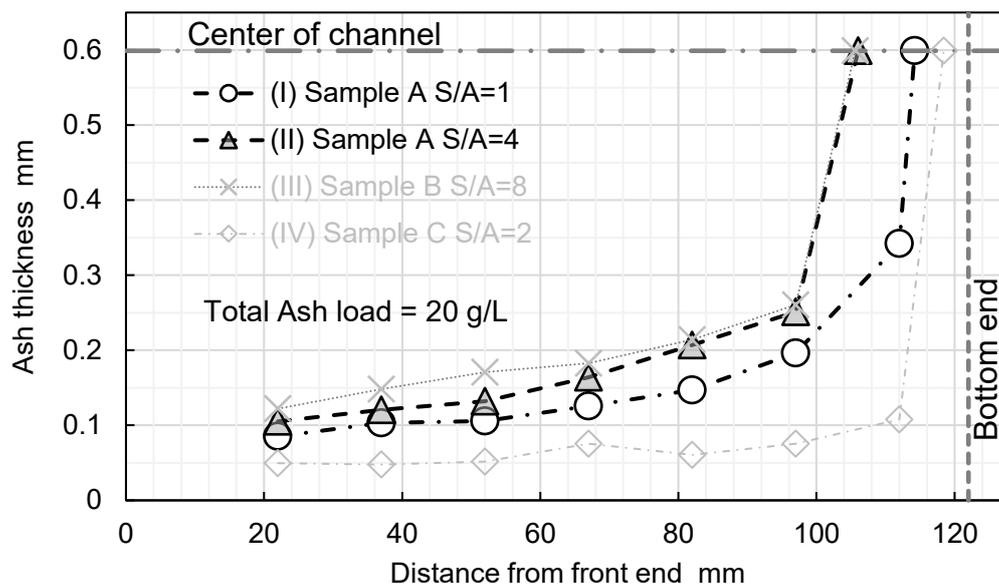


Fig.4.5 Distribution of wall ash thickness under both soot loading conditions

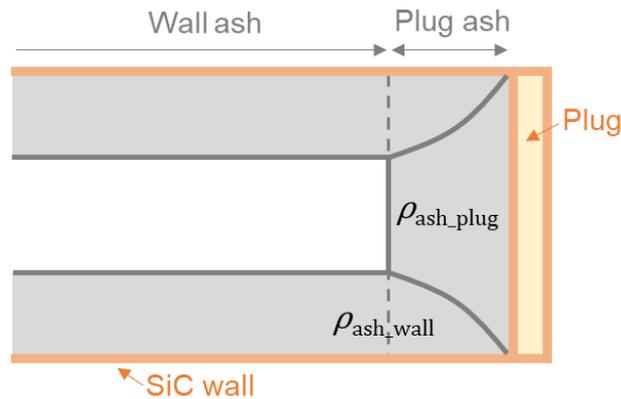
(2) 計算モデルへ入力するパラメータ

今回構築したアッシュ堆積層モデルにより計算した、堆積 S/A 比に応じた Wall アッシュ性状の計算結果を、同じく今回構築した DPF 圧損モデル・臨界せん断応力モデルへ、それぞれ入力する。構築したアッシュ堆積層モデルでの計算結果と、入力対象モデルを表 4.2 に示す。

Table 4.2 INPUT parameter of wall ash properties calculated from prediction model

| Experimental conditions |                 |           | Wall ash properties                             |              |   |                                  |     |
|-------------------------|-----------------|-----------|---|--------------|---|----------------------------------|-----|
|                         | Engine oil used | S/A ratio | Particle diameter (Harmonic Mean)               | Porosity     | Bulk density                                      | Permeability                     |     |
|                         |                 |           | $D_2$   | $\epsilon_2$ | $\rho_{bulk}$                                     | $k_{ash}$                        |     |
|                         | -               | -         | nm  | -            | kg/m <sup>3</sup>                                 | 10 <sup>-15</sup> m <sup>2</sup> |     |
| (I)                     | Sample A        | Comp1     | 1   | 480          | 0.91  | 149                              | 211 |
| (II)                    |                 |           | 4   | 460          | 0.93  | 127                              | 326 |
|                         |                 |           | INPUT to critical shear stress prediction model |              | INPUT to DPF pressure drop calc. model (Axisuite) |                                  |     |

ここで、DPF 圧損モデルへ入力する Plug アッシュのかさ密度について検討する。Wall アッシュの形成と同時に、上流から移動してきたアッシュが Plug 部へ堆積し、Plug アッシュが形成されていく場合、Plug アッシュは、**図 4.6** のように Wall アッシュに由来する領域(かさ密度は Wall アッシュのかさ密度 $\rho_{ash\_wall}$ と同じ)と、上流から移動してきて再堆積したアッシュに由来する領域(かさ密度 $\rho_{ash\_plug}$ の領域)の、かさ密度が異なる2つの領域で形成されている、と考えられる。



**Fig.4.6 Schematic representation of plug ash bulk density**

DPF 前後の圧力損失を求めようとする場合、デッドボリュームとなる Plug アッシュの長さを精度よく求めることが求められる。そのためには、構築したアッシュ堆積層モデルで求められる Wall アッシュのかさ密度 $\rho_{ash\_wall}$ のほかに、再堆積 Plug アッシュのかさ密度 $\rho_{ash\_plug}$ が必要となるが、この $\rho_{ash\_plug}$ はモデル化には至っていないため、実験結果から与える必要がある。

ここで、**図 2.17** の実験結果を見てみると、エンドプラグ部(横軸で 0 mm の位置)でのかさ密度は、S/A 比が異なる条件においても、およそ  $250 \text{ kg/m}^3$  程度となっていることが分かる。**図 4.6** のようなかさ密度の領域形態をとっていると仮定すると、エンドプラグから離れた地点においては Wall アッシュのかさ密度の影響を強く受けると考えられるが、エンドプラグ部に近づくにつれて Wall アッシュのかさ密度の影響は小さくなり、最終的なエンドプラグ部近傍での実測かさ密度は、ほぼ再堆積 Plug アッシュのかさ密度である、と考えることができる。

以上の検討より、計算の入力とした再堆積 Plug アッシュのかさ密度とその入力対象モデルを、表 4.3 のように仮定し、計算の入力とした。

**Table 4.3 INPUT parameter of plug ash bulk density**

| Experimental conditions |                 |           | Plug ash properties                                     |     |
|-------------------------|-----------------|-----------|---|-----|
|                         | Engine oil used | S/A ratio | Bulk density  |     |
|                         | -               | -         | kg/m <sup>3</sup>                                       |     |
| (I)                     | Sample A        | Comp1     | 1   | 250 |
| (II)                    |                 |           | 4   |     |
|                         |                 |           | INPUT to DPF pressure drop calculation model (Axisuite) |     |

Wall アッシュの臨界せん断応力を計算するには、アッシュ層の比例係数 $\mu_f$ 、アッシュ粒子の Hamaker 定数 $A$ と粒子表面粗さ $\delta$ 、が必要である。表 4.4 に、モデルへの入力としたこれらの値を示す。

**Table 4.4 INPUT parameter of wall ash properties**

| Experimental conditions |                 |           | Wall ash properties                             |                     |                   |
|-------------------------|-----------------|-----------|---|---------------------|-------------------|
|                         | Engine oil used | S/A ratio | Proportionality coefficient                     | Hamaker constant    | Surface roughness |
|                         | -               | -         | $\mu_f$   | $A$                 | $\delta$          |
|                         | -               | -         | -   | 10 <sup>-20</sup> J | nm                |
| (I)                     | Sample A        | Comp1     | 1   | 10.1                | 5.3               |
| (II)                    |                 |           | 4   |                     |                   |
|                         |                 |           | INPUT to critical shear stress prediction model |                     |                   |

比例係数 $\mu_f$ は、前章で述べた通り、粒子層表層の形状(凝集粒子塊の埋没率)に関連すると考えられるが、DPF 流路内堆積アッシュにおける適切な $\mu_f$ は明らかでないため、本論文では増田らの研究にて粘性底層内で堆積させたフライアッシュにおいて得られた実験結果( $\mu_f=0.38$ )を、まずは流用した。増田らの実験は乱流条件だが、粒子堆積層の粗さ(凝集粒子塊の突出高さ)は粘性底層内に収まる条件で実施されており、DPF 内の層流条件での現象と類似と見なすことができる。また増田らの実験で付加したせん断応力のオーダーは $\sim 6$  N/m<sup>2</sup>であるが、後に述べる通り、DPF 流路内の堆積アッシュ層に作用するせん断応力も、アッシュ移動(再飛散)が生じると考えて

いる強制再生中(ガス温度 680 °C)の流速条件においては、ほぼ同等のせん断応力が生じる状態にあり、応力状態も類似の状態と見なすことができる。

また Hamaker 定数 $A$ は、DPF 内堆積アッシュの構成成分(表 2.6 参照)すべてについての定数が明らかではないため、本論文ではアッシュの主成分である  $\text{CaSO}_4$  の値(表 3.1 参照)を代表値として、計算に用いることとした。表 3.1 に示す通り金属成分酸化物の Hamaker 定数は概ね  $10 \times 10^{-20}$  J 前後であることから、 $\text{CaSO}_4$  の値で代表させたとしても、実際のアッシュ粒子の Hamaker 定数と、大きくずれることはないと考えられる。

粒子表面粗さ $\delta$ は、実験結果の Wall アッシュ性状(表 2.4, 表 2.5)を入力として、予め粒子表面粗さを変えて行った計算結果から、条件(I)と(II)の Plug アッシュ長さの計算結果と実験結果の差(残差)の平方和が最小となるように、フィッティングにより求めた。フィッティングした粒子表面粗さ $\delta$ と、条件(I), (II)の plug アッシュ長さの計算誤差に相当する残差平方値、それと(I), (II)の計算誤差の和に相当する、残差平方和の関係を、図 4.7 に示す。

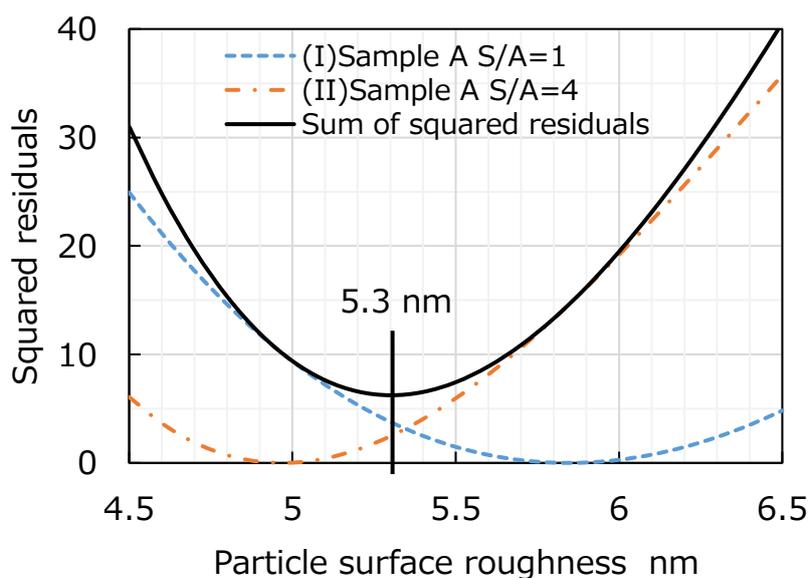


Fig.4.7 Squared residuals of plug ash length calculation and fitted particle surface roughness

(3) アッシュ堆積状態と圧力損失 計算結果

図 4.8 に、構築モデルで計算した Plug アッシュ長さの時間変化と、実験結果との比較を示す。ラインで示しているのが、Plug アッシュ長さの時間変化の計算結果である。一方プロットで示すのが Plug アッシュ長さの実験結果で、アッシュ堆積後 DPF の X 線 CT 解析により求めた。ここでエラーバーは観察したチャンネル毎のばらつき範囲を示している。これより、計算にて実際の Plug アッシュ長さを概ね予測出来ていることが分かる。

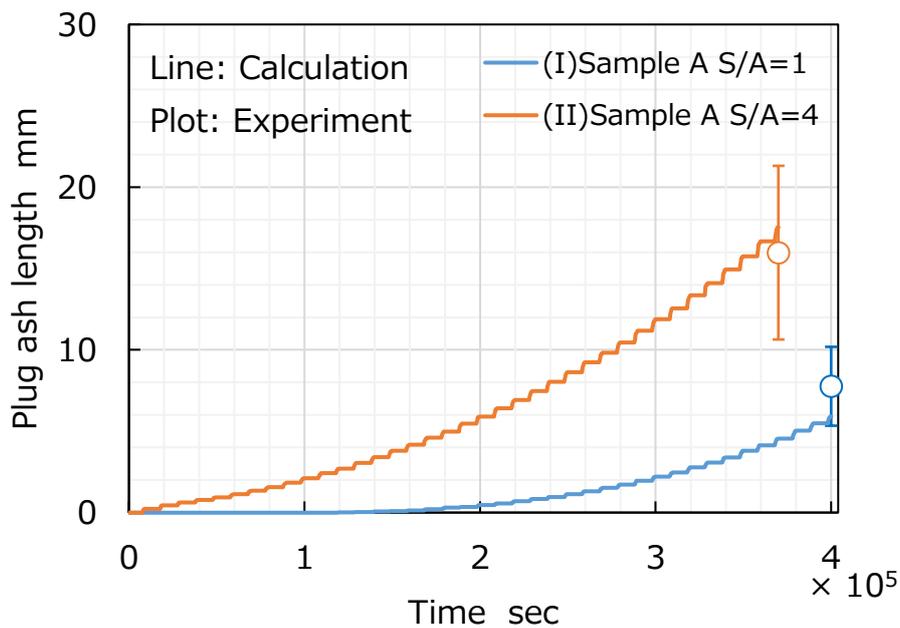
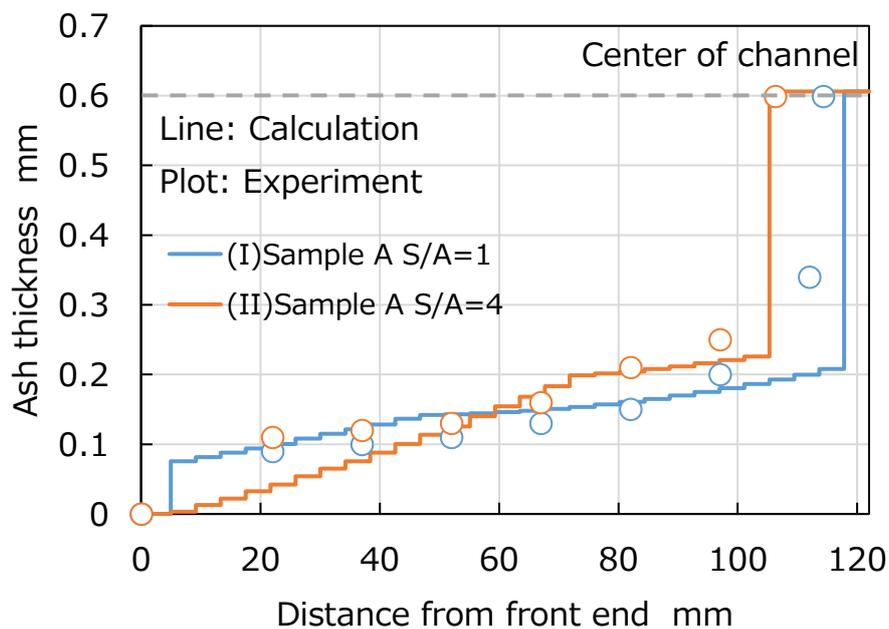


Fig.4.8 Predicted plug ash length growth and comparisons with experimental results

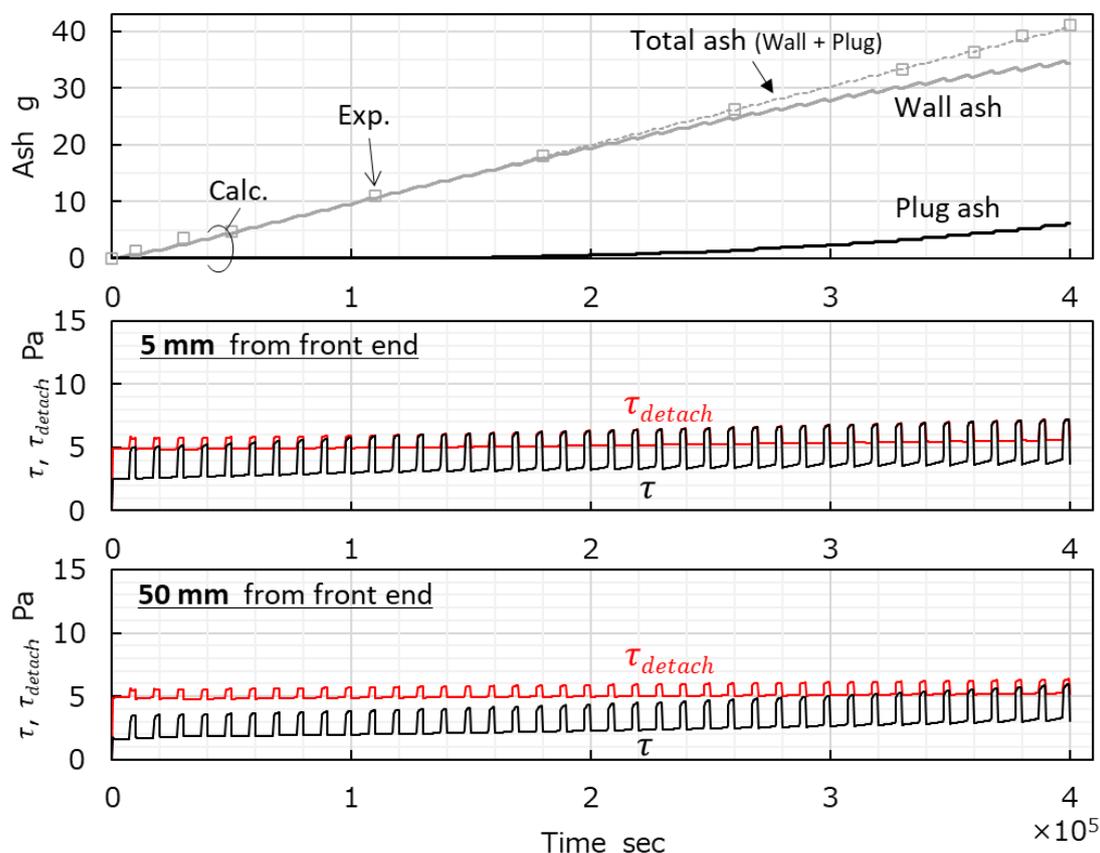
図 4.9 に、サイクル運転終了後のアッシュ堆積分布の計算結果を示す。プロットが実験結果、実線が計算結果である。これよりアッシュ堆積厚み分布の計算は、実験結果を概ね再現していることが分かる。詳細に比較すると差異が生じているが、この原因としては、今回は流路軸方向でアッシュ性状に差がないとしたが、粒子径が異なる、空隙率が異なるなどの差が、実際は生じている可能性が考えられる。



**Fig.4.9 Predicted wall ash thickness on 20 g/L (41.3 g) ash loading and comparison with experimental results**

なお、本図において横軸 122 mm 地点が流路後端に対応しており、アッシュ堆積厚みが流路中心に達している箇所が Plug アッシュ堆積が生じていることを示している。また堆積厚みが階段状に変化しているのは、軸方向の表示解像度が計算格子数(30 分割)に依存しているためである。Plug アッシュ長さについては、図 4.8 の結果が正である。

図 4.10 に、条件(I)での、サイクル中のアッシュ移動の計算結果を示す。



**Fig.4.10 Predicted change in wall/plug ash mass and change in shear stress / critical shear stress under soot 0.5 g/h (S/A=1) condition**

上段のグラフはPlugアッシュ、Wallアッシュ、トータルアッシュの各堆積量の推移を示す。プロットはDPF担体の重量差から算出した実アッシュ堆積量である。また、中段と下段のグラフに、ガス流れによりWallアッシュ堆積層が受けるせん断応力 $\tau$ と、臨界せん断応力 $\tau_{detach}$ の計算結果を示している。 $\tau$ と $\tau_{detach}$ ともに上下を繰り返しているが、これは堆積運転と再生運転でのガス温度変化(350 $\leftrightarrow$ 680 $^{\circ}$ C)により生じる、流通ガスの粘性変化と流量変化に起因している。

これらより、アッシュ堆積量の増加による流路狭小化のため、せん断応力が全体的に上昇していき、およそ $1.2 \times 10^5$  sec付近で上流域(5 mm地点)にてせん断応力が臨界値に到達、続く $2.0 \times 10^5$  sec以降より、Wallアッシュからのアッシュ移動が顕著となり、Wallアッシュ質量の増加が緩やかとなり、一方でPlugアッシュ質量の増加が生じる様子が分かる。

図 4.11 に、条件(I)での、サイクル中のアッシュ堆積厚み変化の様子を示す。

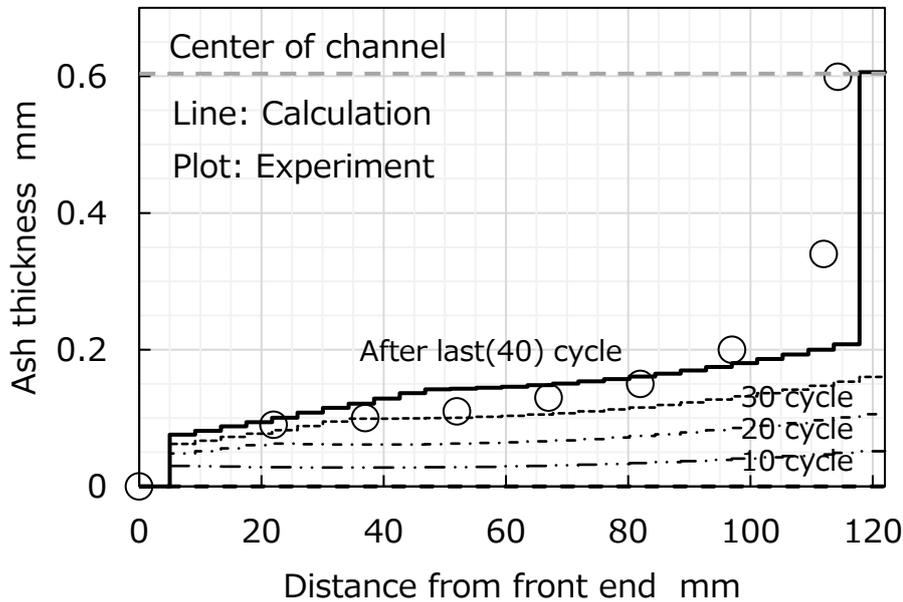
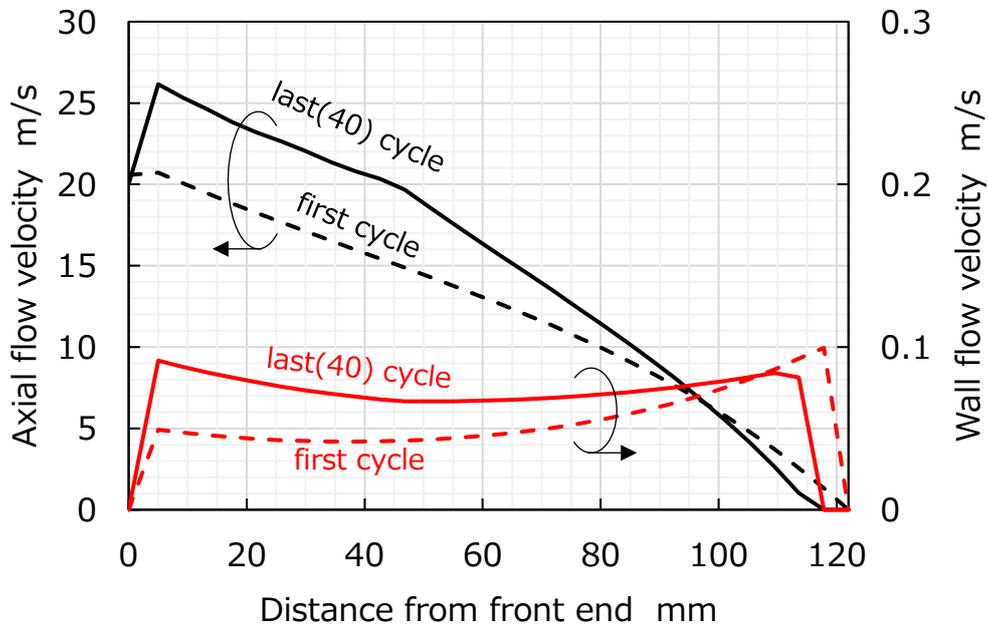


Fig.4.11 Predicted change in wall ash thickness under soot 0.5 g/h (S/A=1) condition

これよりサイクル回数が増えるにしたがい、Wall アッシュの厚みが増加していく様子が分かる。また図 4.10 より、およそ 20 サイクル目 ( $2.0 \times 10^5$  sec) 以降で Wall アッシュ質量の増加が顕著に緩やかとなるが、本グラフにおいても 20 サイクル目以降、流路上流側で厚みの増加が緩やかになっている様子が分かる。なお、40 サイクル目のラインで、流路後端 (Plug) 側のアッシュ堆積厚みが流路中心 (0.6 mm) まで達しているが、これは Plug アッシュの形成を示している。ただし先に述べた通り、軸方向の計算格子数を 30 としている関係上、本図における Plug アッシュ長さの表示精度は高くはない。

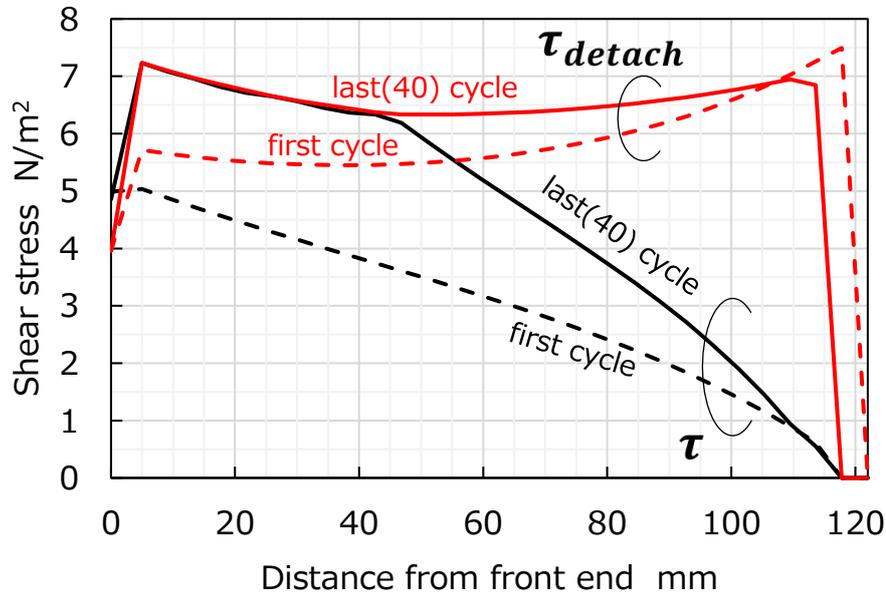
図 4.12 に、条件(I)で 680 °C 強制再生中の、DPF チャンネル内流れの軸方向流速と、Wall 透過流速の軸方向分布の、サイクル運転前後の比較を示す。点線が第 1 サイクル目を示しており、一方実線が 40 サイクル目を示すものである。



**Fig.4.12 Comparison with axial flow velocity and wall flow velocity in a channel of DPF between first cycle and last cycle under soot 0.5 g/h (S/A=1) condition**

図 4.11 に示すように、本運転条件では、サイクル数が増加するにしたがいアッシュ堆積厚みが増加し、流路が狭小化していくため、軸方向流速は基本的には増加する。また、流路後端側の方がアッシュ堆積厚みが厚く圧力損失が大きいため、Wall 透過ガス流れは上流側に偏るようになり、結果として Wall 方向の透過流速は流路入口側で増加する。なお軸方向流速も流路後端では、アッシュ堆積層の透過抵抗が大きくなる関係から、逆に低下が見られている。

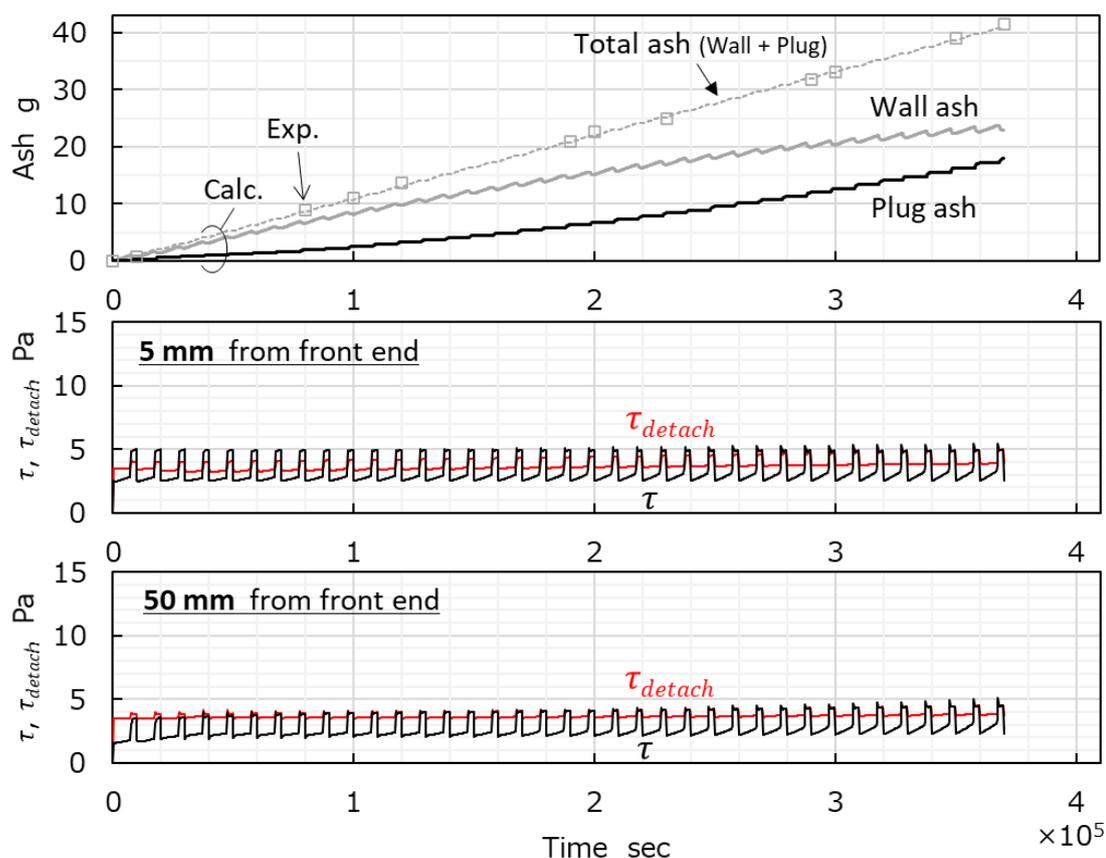
図 4.13 に、条件(I)で 680 °C 強制再生実施中の、ガス流れにより Wall アッシュ堆積層が受けるせん断応力 $\tau$ と、臨界せん断応力 $\tau_{detach}$ の計算結果の、サイクル運転前後の比較を示す。図 4.12 と同じく、点線が第 1 サイクル目を示しており、一方実線が 40 サイクル目を示すものである。



**Fig.4.13 Comparison with shear stress / critical shear stress between first cycle and last cycle under soot 0.5 g/h (S/A=1) condition**

これより、図 4.12 の軸方向流速、Wall 透過流速の増加と対応して、せん断応力、臨界せん断応力共に増加したことが分かる。40 サイクル目のせん断応力、臨界せん断応力のラインより、上流から 45 mm 付近まで重なっているが、これはアッシュ移動の結果、せん断応力と臨界せん断応力が釣り合うアッシュ堆積厚みでバランスしていることを示している。

また図 4.14 に、条件(II)での、サイクル中のアッシュ移動の計算結果を示す。



**Fig.4.14 Predicted change in wall/plug ash mass and change in shear stress / critical shear stress under soot 2.0 g/h (S/A=4) condition**

条件(II)は、(I)に比べて Wall アッシュの空隙率・透過率が大きく、臨界せん断応力が全体的に低い。そのため上流域(5 mm 地点)では、堆積初期よりせん断応力が臨界値に到達し、アッシュ移動が生じている。また中流域(50 mm 地点)でも、およそ  $1.0 \times 10^5$  sec 付近でせん断応力が臨界値に到達しており、中流域からもアッシュの移動が発生している。

本計算では、図 3.3 で置いたモデル仮定により、スート堆積があるときにはアッシュの移動は生じないとして計算しているため、図 4.10、図 4.14 共に、上段グラフでの Plug アッシュの増加は再生時のスート堆積が無くなったタイミングで生じている。一方 Wall アッシュ質量は、堆積運転時に増加し、再生運転のスートが無くなったタイミングで Plug へ移動した質量分減少する、という変化を繰り返している。また Wall アッシュの厚み増加による流路狭小化により軸方向流速が増加するため、徐々にアッシュ移動量が増加し、結果なだらかな上に凸の曲線を描く変化となっている。

図 4.15 に、条件(II)での、サイクル中のアッシュ堆積厚み変化の様子を示す。

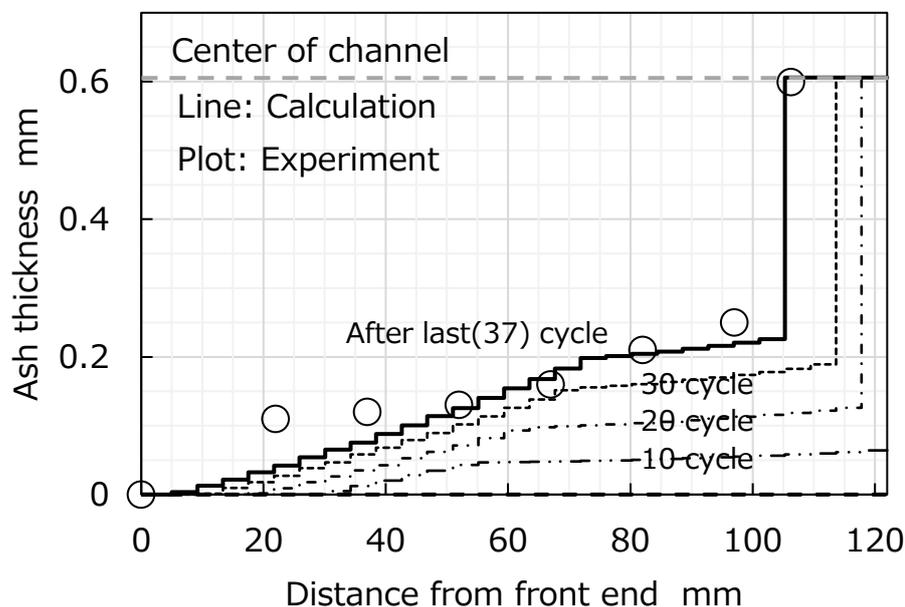
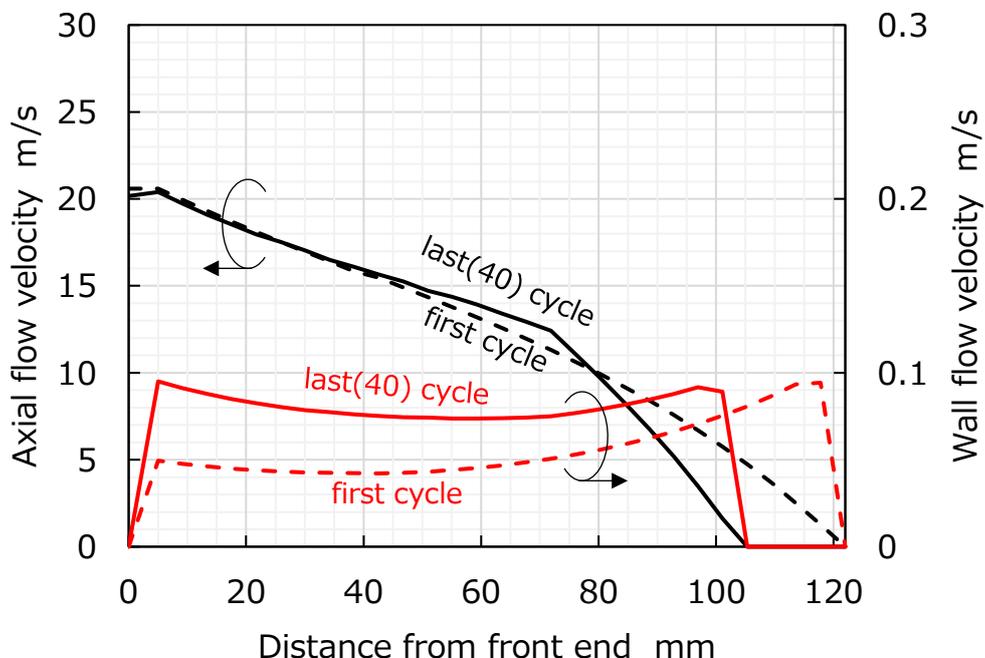


Fig.4.15 Predicted change in wall ash thickness under soot 2.0 g/h (S/A=4) condition

これよりサイクル回数が増えるにしたがい、Wall アッシュの厚みが増加していく様子が分かる。また図 4.14 より、本条件では 1 サイクル目から Wall アッシュ質量の増加が緩やかとなっているが、本グラフにおいても 1 サイクル目から、流路上流側では厚みの増加が見られないことが分かる。なお、本条件では 20 サイクル目のラインから、流路後端(Plug)側のアッシュ堆積厚みが流路中心(0.6 mm)まで達しており、条件(I)よりも早い段階で Plug アッシュの形成が生じていることが分かる。

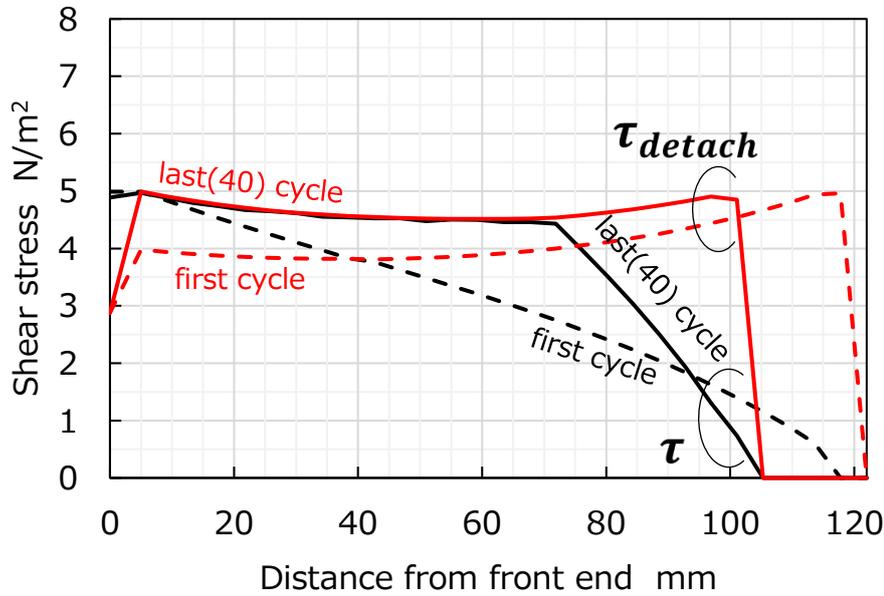
図 4.16 に、条件(II)で 680 °C 強制再生中の、DPF チャンネル内軸方向流速と、Wall 透過流速の軸方向分布の、サイクル運転前後の比較を示す。点線が第 1 サイクル目を示しており、一方実線が 40 サイクル目を示すものである。



**Fig.4.16 Comparison with axial flow velocity and wall flow velocity in a channel of DPF between first cycle and last cycle under soot 2.0 g/h (S/A=4) condition**

図 4.15 に示すように、本運転条件では、サイクル数が増加しても流路入口ではアッシュ堆積厚みが増加しないため、入口での軸方向流速は基本的に変化しない。また、流路後端側の方がアッシュ堆積厚みが厚く圧力損失が大きいいため、Wall 透過ガス流れは上流側に偏るようになり、結果として Wall 方向の透過流速は流路入口側で増加する。これは、流入ガスの多くが流路入口付近で出口チャンネルへ透過していくことを示している。結果として、軸方向流速は 1 サイクル目と同様に低下している。流路後端で軸方向流速の落ち幅が大きくなっているが、これはアッシュ堆積層が厚く透過抵抗が大きいためと考えられる。

図 4.17 に、条件(II)で 680 °C 強制再生実施中の、ガス流れにより Wall アッシュ堆積層が受けるせん断応力 $\tau$ と、臨界せん断応力 $\tau_{detach}$ の計算結果の、サイクル運転前後の比較を示す。図 4.16 と同じく、点線が第 1 サイクル目を示しており、一方実線が 40 サイクル目を示すものである。



**Fig.4.17 Comparison with shear stress / critical shear stress between first cycle and last cycle under soot 2.0 g/h (S/A=4) condition**

これより、図 4.16 の軸方向流速、Wall 透過流速の増加と対応して、せん断応力、臨界せん断応力共に増加したことが分かる。40 サイクル目のせん断応力、臨界せん断応力のラインより、上流から 70 mm 付近まで重なっているが、これは図 4.13 と同様に、アッシュ移動の結果、応力が釣り合うアッシュ堆積厚みでバランスしていることを示している。

図 4.18 に、アッシュ堆積後のアッシュ圧損の計算結果を示す。これより、条件(I)(S/A 比=1)と条件(II)(S/A 比=4)において、本モデルでは±10%程度の精度で、アッシュ圧損の推定を可能にしたと結論づけられる。

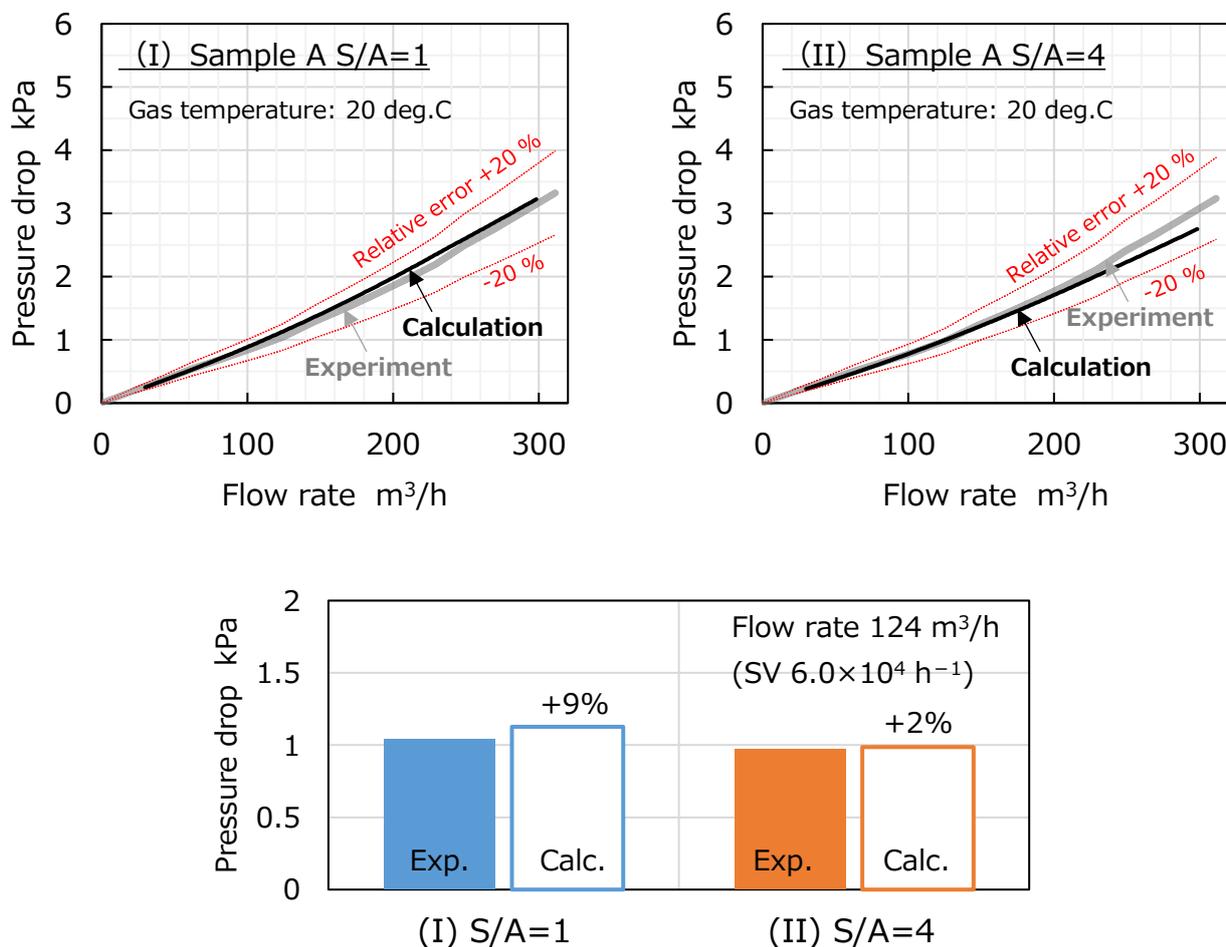
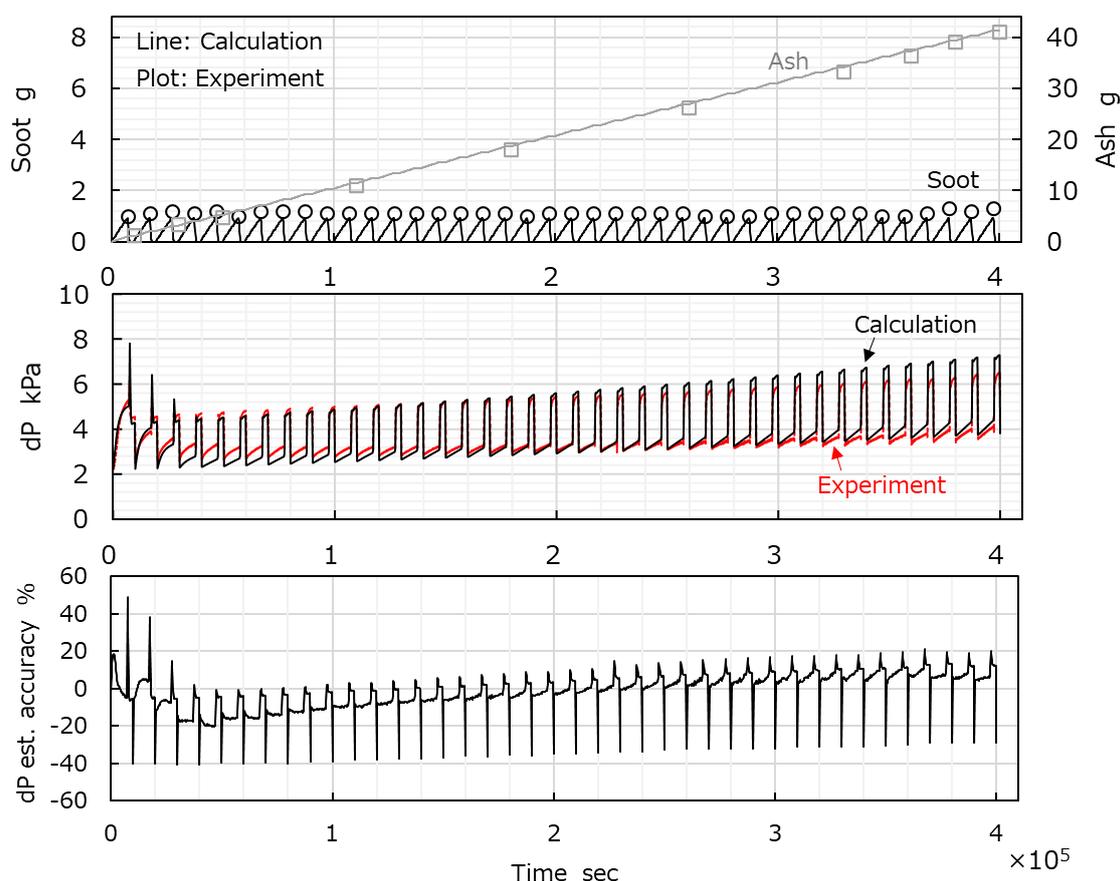


Fig.4.18 Predicted pressure drop of ash loaded DPF and comparison with experimental results

アッシュ性状分析結果とモデル計算の結果より、実験結果に対する考察としては、スート濃度 (S/A 比) が大きい条件 (II) の方が、条件 (I) よりも空隙が多く移動しやすいアッシュのため、Plug に多く溜まり圧損が上がる要因と、一方で Wall アッシュの透過率が大きく圧損が下がる要因が複合し、結果として両者での圧損に大きな差が見られなかった、と考えられる。

条件 (I) でのサイクル中の DPF 前後圧損の計算結果を図 4.19 に示す。上段にスート・アッシュ堆積量、中段に DPF 前後圧損について、それぞれ実測と計算の比較を示す。また最下段には DPF 前後圧損の計算予測誤差を示す。なお各サイクルにおけるスートとアッシュの堆積速度は、

表 4.1 に示す実験条件を計算入力条件としている。スート・アッシュ堆積運転  $7.2 \times 10^3$  sec, スート再生運転  $2.8 \times 10^3$  sec で1サイクル(計  $1.0 \times 10^4$  sec)となるが, 再生開始時と終了時の, ガス流量・ガス温度やスート堆積状態の急変による圧損変化を除くと, サイクル運転中も概ね予測誤差  $\pm 20\%$ の精度で DPF 前後圧損の推移が予測できている, と言える。

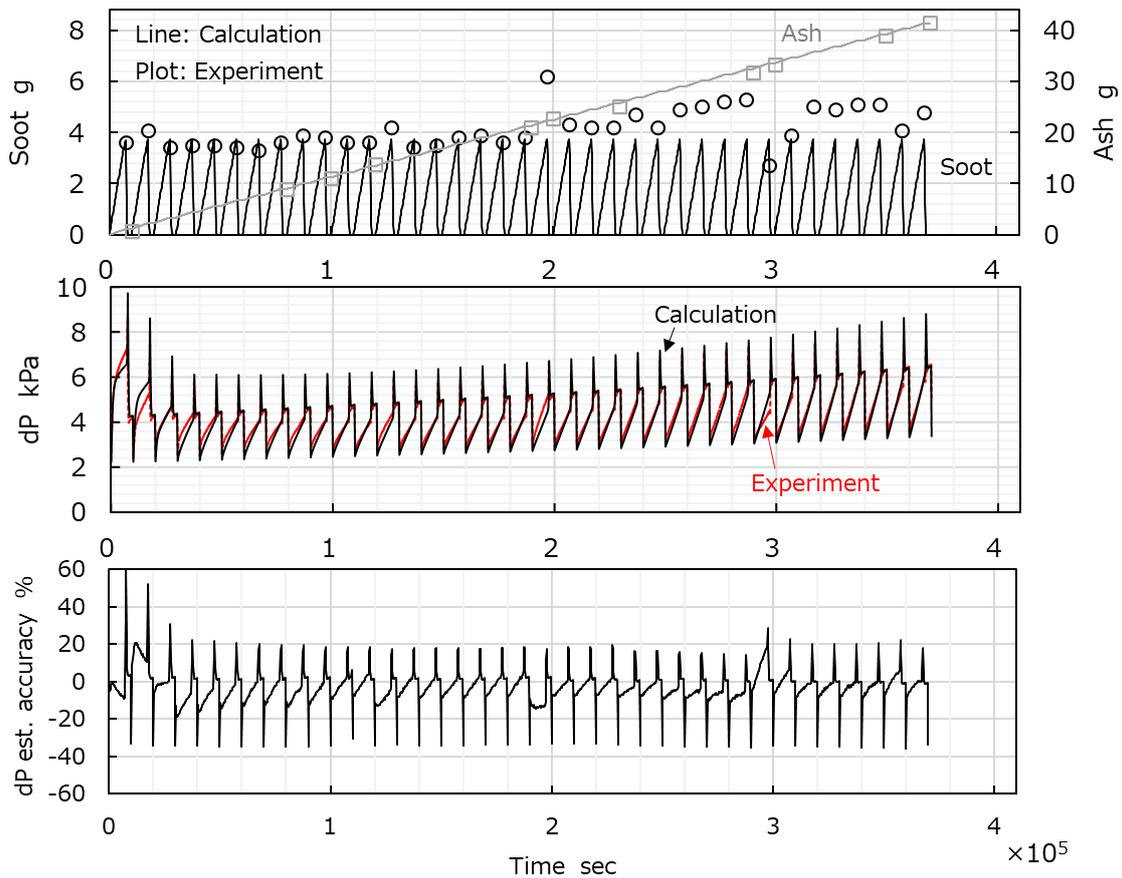


**Fig.4.19 Predicted pressure drop of DPF during ash loading and estimation accuracy under soot 0.5 g/h (S/A=1) condition**

予測誤差が比較的大きい再生開始時と終了時に着目すると, まず Wall へのアッシュ堆積が少ない 1~3 サイクル目の再生開始時に顕著に見られる上方スパイクは, Wall アッシュの堆積が進むにつれて誤差が小さくなっていることから, 主に Wall 内部の細孔部に侵入したスートの, 堆積状態の急変によるものと考えられる。したがって Wall 内堆積スートの圧損特性と酸化特性に係るモデル定数の同定精度を向上させることで, 予測精度の向上が可能と考えられる。一方で下方へ延びるスパイクは, 再生終了時の過渡的なガス流量・ガス温度変動の不一致によるものであり, タイミングや過渡変化の入力精度を向上させることで, 予測精度の向上が可能と考えられるが, ここ

では Wall アッシュの堆積形態とその圧損影響の観点において精度影響を評価をすることとしたため、Wall 内堆積スートの圧損・酸化特性の同定はこれ以上実施していない。

条件(II)でのサイクル中の DPF 圧損の計算結果を図 4.20 に示す。



**Fig.4.20 Predicted pressure drop of DPF during ash loading and estimation accuracy under soot 2.0 g/h (S/A=4) condition**

条件(I)と比較すると、再生開始時のスート堆積量が 1 g から 4 g となっており、それに対応して再生開始時の圧損も条件(I)よりも大きな値となっている。また、装置の問題によりサイクル終了時の実スート堆積量のサイクル間変動が大きく、それにより圧損の予測誤差にも変動が見られる。その点を考慮しながら結果を見てみると、やはり再生開始時と終了時に誤差は一瞬大きくなるものの、それを除くと、条件(I)の結果と同様に、サイクル運転中も概ね予測誤差±20%の精度で DPF 前後圧損の推移が予測できている、と言える。

### 4.3.2 高 S/A 比条件での計算結果と検証

前項でフィッティングしたモデルを用いて、供試オイルの金属成分濃度が異なる、より高 S/A 比条件(表 2.4 の条件(III):Sample B S/A 比=8)で計算し、実験結果と比較・検証を実施する。検証としてシミュレートする運転サイクルは、前項と同じサイクルで実施した。

#### (1) モデル検証用の実験データ

検証データの実験条件を表 4.5 に示す。

**Table 4.5 Operating condition for soot/ash loading and regeneration**

|                            |                 | Loading             | Regeneration        |
|----------------------------|-----------------|---------------------|---------------------|
| Operating time             | h               | 2                   | 0.75                |
| Experimental condition No. | -               | (III)               | -                   |
| Soot loading rate          | g/h             | 2.0                 | 0                   |
| Ash loading rate           | g/h             | 0.25                | 0                   |
| S/A ratio                  | -               | 8                   | -                   |
| DPF inlet temperature      | deg.C           | 350                 | 680                 |
| SV (20 deg.C, 1 atm)       | h <sup>-1</sup> | 6.0×10 <sup>4</sup> | 6.0×10 <sup>4</sup> |

条件(III)は、前項の条件(I), (II)に対しては供試オイルの金属成分濃度が異なる。条件(I), (II)は Sample A オイル(硫酸灰分 4.9 wt%)であったが、本条件(III)は、金属成分濃度が約半分の Sample B オイル(硫酸灰分 2.4 wt%)となる。したがってスート堆積速度は条件(II)と同じ 2.0 g/h だが、アッシュ堆積速度が約半分の 0.25 g/h となり、S/A 比=8 となる。サイクル終了時の狙いアッシュ堆積量は前節と同じ 41.3 g(20 g/L)である。本条件(III)の狙いのサイクル数は、アッシュ堆積速度が Sample A オイルの条件(I), (II)の約半分となるため、倍の 80 回となる。

アッシュ堆積後の DPF を切断し、光学観察で求めたアッシュ堆積厚み分布の実測結果を図 4.21 に示す。(本図は図 2.5 に対して条件(III)の結果を強調したものとなる)

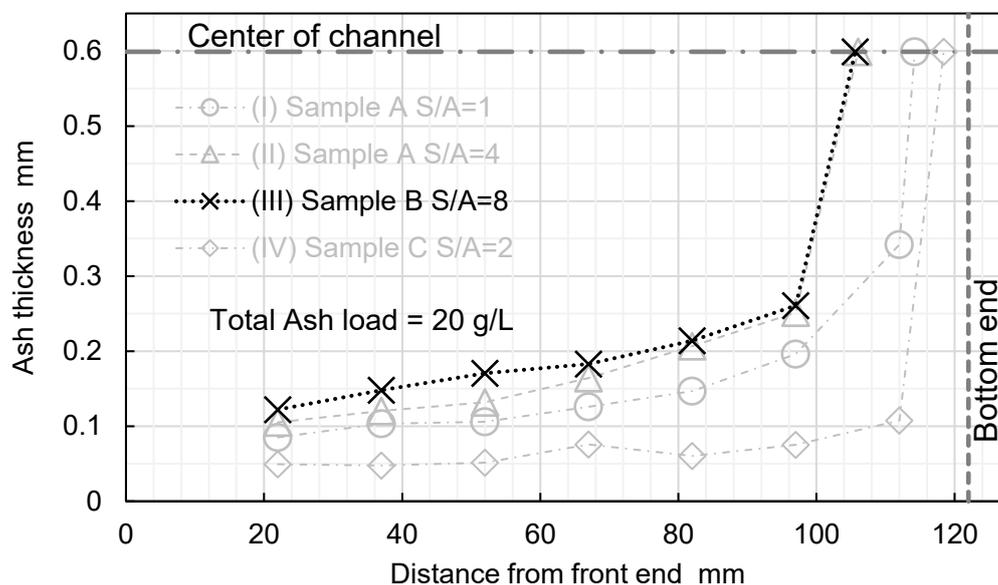


Fig.4.21 Distribution of wall ash thickness under both soot loading conditions

(2) 計算モデルへ入力するパラメータ

今回構築したアッシュ堆積層モデルにより計算した、堆積 S/A 比に応じた Wall アッシュ性状の計算結果を、同じく今回構築した DPF 圧損モデル・臨界せん断応力モデルへ、それぞれ入力する。構築したアッシュ堆積層モデルでの計算結果と、入力対象モデルを表 4.6 に示す。

Table 4.6 INPUT parameter of wall ash properties calculated from prediction model

| Experimental conditions |          |           |                                   | Wall ash properties                             |                   |   |     |
|-------------------------|----------|-----------|-----------------------------------|---|-------------------|---|-----|
| Engine oil used         |          | S/A ratio | Particle diameter (Harmonic Mean) | Porosity  | Bulk density      | Permeability                                      |     |
|                         |          |           | $D_2$                             | $\epsilon_2$                                    | $\rho_{bulk}$     | $k_{ash}$   |     |
| -                       |          | -         | nm                                | -   | kg/m <sup>3</sup> | 10 <sup>-15</sup> m <sup>2</sup>                  |     |
| (III)                   | Sample B | Comp1     | 8                                 | 435   | 0.95              | 103   | 559 |
|                         |          |           |                                   | INPUT to critical shear stress prediction model |                   | INPUT to DPF pressure drop calc. model (Axisuite) |     |

計算の入力とした再堆積 Plug アッシュのかさ密度とその入力対象モデルを、表 4.7 に示す。

**Table 4.7 INPUT parameter of plug ash bulk density**

| Experimental conditions |          |           |   | Plug ash properties  |  |
|-------------------------|----------|-----------|---|--|--|
| Engine oil used         |          | S/A ratio |   | Bulk density   |  |
| -                       |          | -         |   | kg/m <sup>3</sup>  |  |
| (III)                   | Sample B | Comp1     | 8 | 250  |  |
|                         |          |           |   | INPUT to DPF pressure drop calculation model<br>(Axisuite) |  |

本条件(III)の再堆積 Plug アッシュのかさ密度は、前節の条件(I)と(II)の予測計算に用いた値と同じ、250 kg/m<sup>3</sup>とした。

Wall アッシュの臨界せん断応力計算に用いるアッシュ層の比例係数 $\mu_f$ 、アッシュ粒子の Hamaker 定数 $A$ と粒子表面粗さ $\delta$ は、まずは条件(I)と(II)の予測計算に用いた表 4.4 と同様とした。モデルへの入力とした値を表 4.8 に示す。

**Table 4.8 INPUT parameter of wall ash properties**

| Experimental conditions |          |           |   | Wall ash properties                             |                     |                   |
|-------------------------|----------|-----------|---|---|---------------------|-------------------|
| Engine oil used         |          | S/A ratio |   | Proportionality coefficient                     | Hamaker constant    | Surface roughness |
| -                       |          | -         |   | $\mu_f$   | $A$                 | $\delta$          |
| -                       |          | -         |   | -   | 10 <sup>-20</sup> J | nm                |
| (III)                   | Sample B | Comp1     | 8 | 0.38  | 10.1                | 5.3               |
|                         |          |           |   | INPUT to critical shear stress prediction model |                     |                   |

(3) アッシュ堆積状態と圧力損失 計算結果

図4.22に、構築したモデルによって計算した、条件(III)のPlugアッシュ長さの時間変化と、実験結果との比較結果を示す。実験結果のエラーバーは観察したチャンネル毎のばらつき範囲を示している。ラインで示している計算結果はPlugアッシュ長さを示すものであり、一方プロットで示す実験結果はアッシュ堆積後DPFのX線CT解析により求めたPlugアッシュ長さである。

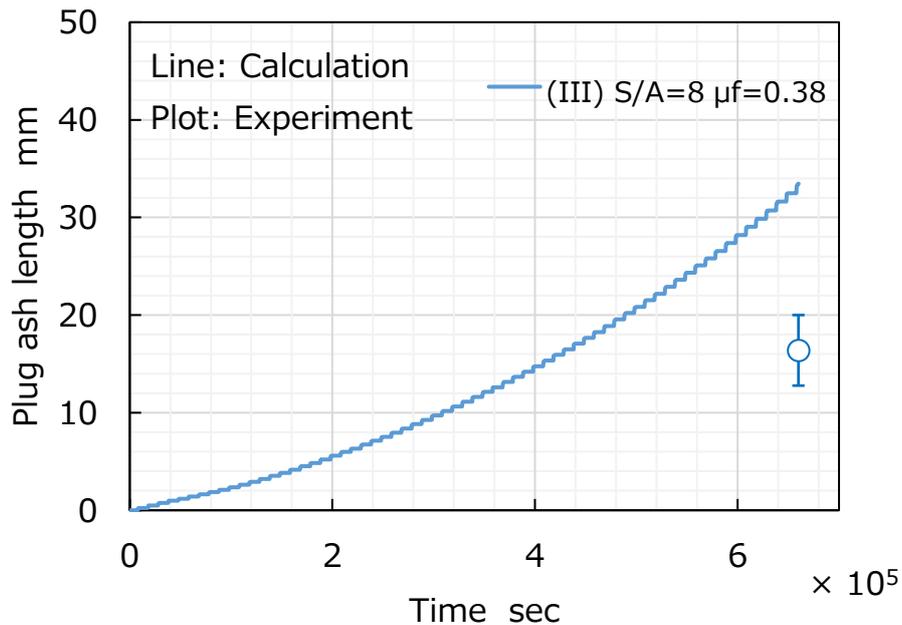


Fig.4.22 Predicted plug ash length growth and comparisons with experimental results

これより、Plugアッシュ長さの計算結果は実験結果のおよそ倍となっており、条件(I)、(II)のフィッティング結果をそのまま適用すると、本条件(III)では Plugアッシュ長さの予実差が大きいことが分かった。また図4.23に、サイクル運転終了後のアッシュ堆積分布の計算結果を示す。本条件(III)でのアッシュ堆積厚み分布の計算結果も、Plugアッシュ長さの結果と同様に、実験結果と比較すると乖離が見られる。これは本構築モデルにおいて、Wallアッシュ層の臨界せん断応力が実際よりも過少に予測された結果である、と考えられる。

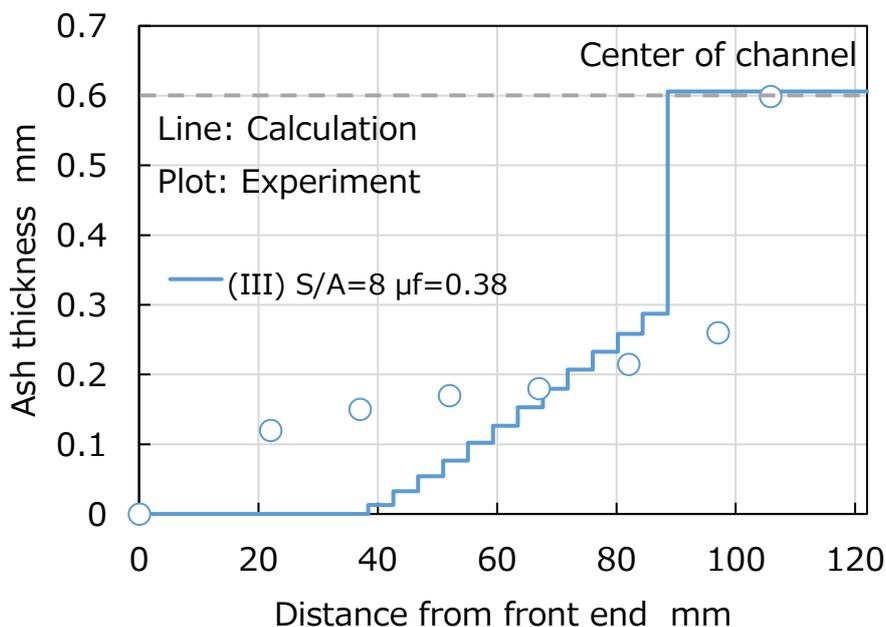


Fig.4.23 Predicted wall ash thickness and comparison with experimental results

図 4.24 に、アッシュ堆積後のアッシュ圧損の計算結果を示す。アッシュ堆積分布の予実差、特に流路入口付近のアッシュ堆積厚みの予実差に起因して、圧損が低めに推定されている。

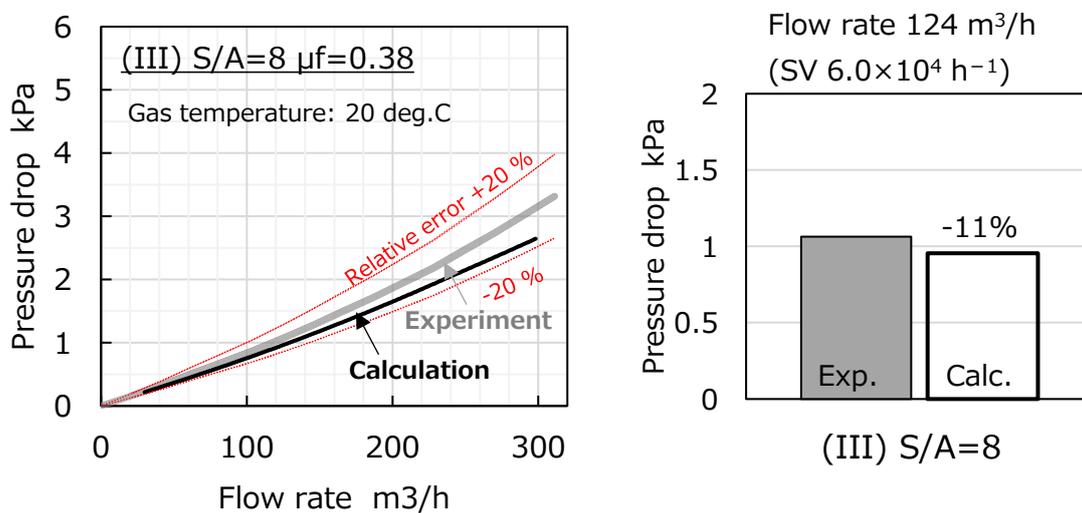


Fig.4.24 Predicted pressure drop of ash loaded DPF and comparison with experimental result under (III) Sample B (S/A=8) condition

先に述べた通り、条件(III)に対しては、Wall アッシュ層の臨界せん断応力が実際よりも過少な予測となっている、と考えられる。条件(III)の試験条件は、条件(I)と(II)と比較すると DPF へのアッシュ流入速度が半分であり、狙いのアッシュ堆積量(41.3 g)堆積させるまでに倍のサイクルを経験している。1サイクル当たりのアッシュ堆積量も半分となっていることから、堆積層表層で表面粗さを形成する凝集粒子塊の大きさ(突き出し量)が、半分となっている可能性が考えられる。また、ある堆積厚みにおいて経験している熱履歴は、条件(III)は条件(I)と(II)の倍と考えられる。S/A 比も 8 と高い条件であることを考えると、条件(III)のアッシュ堆積層内のアッシュ粒子は、条件(I)と(II)よりも受熱量が増加しており、表面拡散の進行度に差が生まれ、粒子表面粗さの低下による付着力の増大が生じている可能性も考えられる。

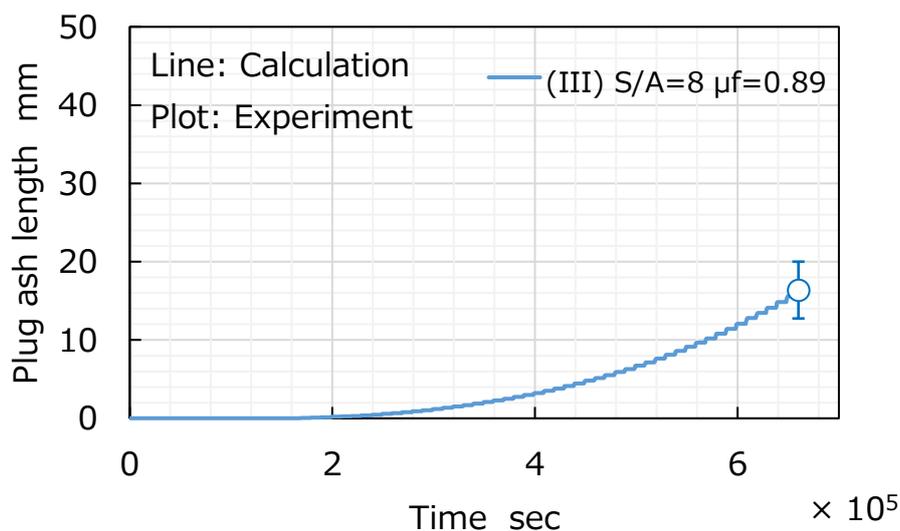
ここで表 4.8 の各パラメータの妥当性について考察する。まず比例係数 $\mu_f$ は、先に述べた通り堆積層表層で表面粗さを形成する凝集粒子塊の大きさ(突き出し量)と関連付けることができ、条件(III)は条件(I), (II)と異なる可能性がある。一方で Hamaker 定数 $A$ は、供試オイルの構成成分割合が同じため、アッシュの構成成分も同じと考えられるので、条件(I), (II), (III)で変わらないと考えられる。粒子表面粗さ $\delta$ は、Plug アッシュ長さの予実差(残差)が最小となる粒子表面粗さが、図 4.7 より S/A 比 1 の条件(I)では 5.9 nm, S/A 比 4 の条件(II)では 4.9 nm であったことから、条件(III)では S/A 比大、あるいはサイクル数増加による熱履歴の増加により、アッシュ粒子の表面拡散の進行により、粒子表面粗さが縮小している可能性が考えられる。以上より、条件(III)に見られるアッシュ移動の抑制効果を表現しようとする場合に、妥当なパラメータとして比例係数 $\mu_f$ と粒子表面粗さ $\delta$ が考えられるが、本論文では比例係数 $\mu_f$ での同定を行うこととした。

最終的にモデルへの入力とした値を表 4.9 に示す。

Table 4.9 INPUT parameter of wall ash properties

| Experimental conditions |          |           |                             | Wall ash properties                             |                   |     |
|-------------------------|----------|-----------|-----------------------------|---|-------------------|-----|
| Engine oil used         |          | S/A ratio | Proportionality coefficient | Hamaker constant                                | Surface roughness |     |
|                         |          |           | $\mu_f$                     | $A$   | $\delta$          |     |
| -                       |          | -         | -                           | $10^{-20}$ J                                    | nm                |     |
| (III)                   | Sample B | Comp1     | 8                           | 0.89  | 10.1              | 5.3 |
|                         |          |           |                             | INPUT to critical shear stress prediction model |                   |     |

図 4.25 に、比例係数 $\mu_f$ を変更し再計算した、条件(III)の Plug アッシュ長さの時間変化と、実験結果との比較結果を示す。実験結果のエラーバーは、観察したチャンネル毎のばらつき範囲を示している。ラインで示している計算結果は Plug アッシュ長さを示すものであり、一方プロットで示す実験結果は、アッシュ堆積後 DPF の X 線 CT 解析により求めた Plug アッシュ長さである。



**Fig.4.25 Predicted plug ash length growth and comparisons with experimental result under (III) Sample B (S/A=8) condition**

図 4.26 に、比例係数 $\mu_f$ を変更し再計算した、サイクル運転終了後のアッシュ堆積分布の計算結果を示す。比例係数 $\mu_f$ の同定により、本条件(III)でのアッシュ堆積厚み分布の計算結果も概ね実験結果を再現できていることが分かる。

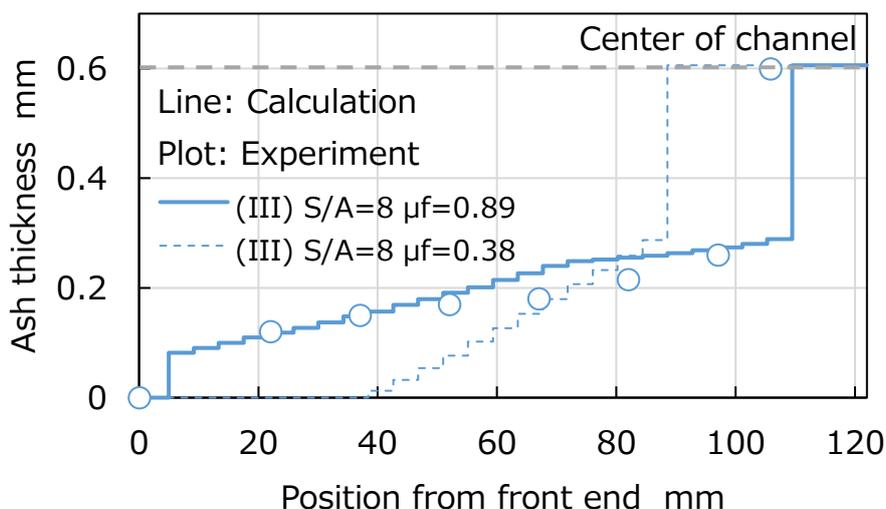


Fig.4.26 Predicted wall ash thickness and comparison with experimental result under (III) Sample B (S/A=8) condition

図 4.27 に、アッシュ堆積後のアッシュ圧損の計算結果を示す。条件(III)の高 S/A 比条件(S/A 比=8)においても、比例係数 $\mu_f$ の同定によりアッシュ堆積分布の予実差が縮小した結果、アッシュ圧損の推定精度が向上し、実験結果とほぼ同等の圧損推定が可能となったことが分かる。

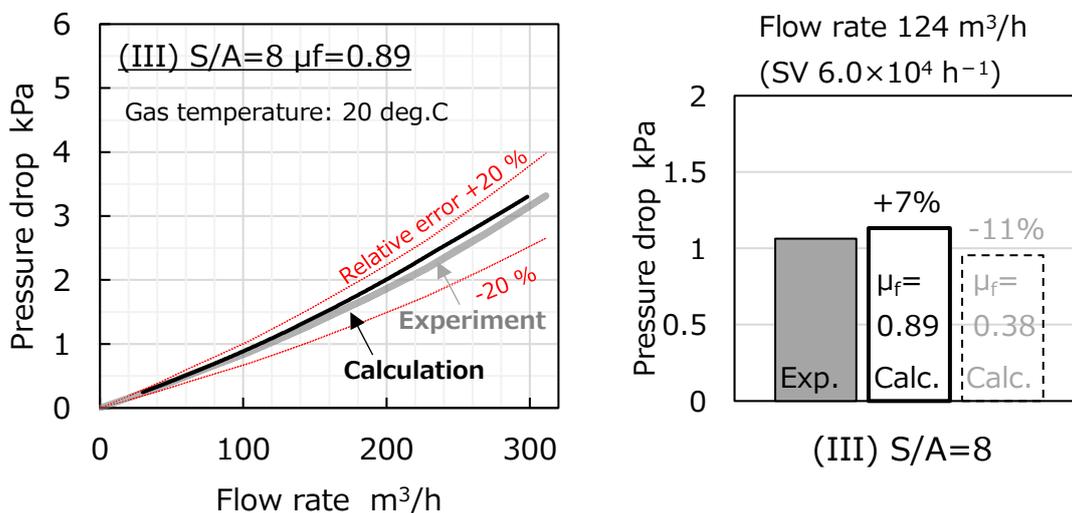


Fig.4.27 Predicted pressure drop of ash loaded DPF and comparison with experimental result under (III) Sample B (S/A=8) condition

アッシュ圧損については、比例係数 $\mu_f$ の同定前後で予測精度にさほどの差はないものの、アッシュ堆積分布の予測精度は大きく改善している。実稼働条件においては、アッシュ堆積層の上にスート堆積層が形成されることになるが、アッシュ堆積分布が異なっていると、このスート堆積時の圧損特性が大きく変化するため、アッシュ堆積分布の予測精度が重要となる。したがってスート堆積時まで考慮すると、比例係数同定後の方が、より適切なモデル定数である、と言える。

本構築モデルを、より高 S/A 比条件へ適用する際、低 S/A 比条件と同一の Wall アッシュ物性値でも、アッシュ堆積形態(Wall/Plug)が S/A 比に対してどのように変化するかとの定性的な傾向把握は可能である。一方で、より高い圧損予測精度を得るためには、1サイクル当たりのアッシュ堆積量が半分となっていることから、堆積層表面で表面粗さを形成する凝集粒子塊の大きさ(突き出し量)も半分となっている可能性や、S/A 比やサイクル数差に起因する熱履歴の増加(による粒子表面粗さの減少)の影響など、高 S/A 比条件において考えられるアッシュ移動の抑制効果を追加で考慮していく必要がある、と考えられる。今後、これらアッシュ移動の抑制効果が何によって生じているのかをより詳しく解析し、実験式の構築など関係性をモデル化していくことで、より適用範囲の広いモデルにしていくことができる、と考えられる。

実稼働条件における S/A 比は、エミッション規制対応を目的としたスート排出量のチューニングや、オイル消費量のエンジン設計方針、エンジンの使われ方や、連続再生条件の有無により、1～50 程度と大きく変化する。本論文では S/A 比 1～8 を対象に解析しモデル化したが、より高 S/A 比条件への適用範囲拡張は、今後の課題である。

#### 4.4 モデル有効性検証

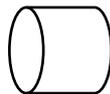
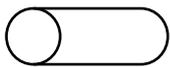
本節では構築した一連のモデルの有効性検証として、条件(I) (S/A 比=1)と条件(III) (S/A 比=8)を対象に、容積一定のまま DPF 長さを倍・半分に変えた条件(対応して断面積は半分・倍と変えた条件となる)にて、それぞれ前述の DPG 運転を模擬した計算を行い、アッシュ堆積影響の予測・評価を実施した。

##### 4.4.1 DPF サイズ違いの計算条件と計算結果

###### (1) DPF サイズ計算条件

計算を実施した DPF サイズ条件を表 4.10 に示す。これまでの現象解析や計算検証で対象としてきた DPF サイズである L=1 (Base) を基準として、DPF 容積やその他諸元を変えずに、長さを倍 (L=2)、半分 (L=0.5) と変えた、3 種類の DPF サイズを計算条件とした。

Table 4.10 Specification of DPF for calculation

|                          |       | L=0.5   | L=1 (Base)   | L=2   |
|--------------------------|-------|---|--|---|
| DPF diameter             | mm    | 204   | 144  | 102   |
| DPF length               | mm    | 63.5  | 127  | 254   |
| DPF volume               | Liter | 2.06  |  |   |
| Cell density             | cpsi  | 350   |  |   |
| Wall thickness           | μm    | 280 (11 mil)  |  |   |
| Substrate material       | -     | SiC   |  |   |
| Substrate porosity       | %     | 38  |  |   |
| Substrate mean pore size | μm    | 12  |  |   |
| Catalyst                 | g/L   | 0.5 (Pt:Pd=2:1)   |  |   |
| DPF size image           | -     |  |  |  |

上記DPF サイズ違い時のアッシュ堆積影響評価を実施する運転条件を表4.11に示す。前節までと同様、堆積運転 2 時間(DPF 入口ガス温度 350 °C), 再生運転 0.75 時間(DPF 入口ガス温度 680 °C)の DPG 運転サイクルで、これをアッシュが 41.3 g (20 g/L) 堆積するまで実施した。また堆積運転時の運転条件は、条件(I) (S/A 比=1)と条件(III) (S/A 比=8)の 2 条件とした。

**Table 4.11 Operating condition for soot/ash loading and regeneration**

|                       |                 | Loading               | Regeneration          |
|-----------------------|-----------------|-----------------------|-----------------------|
| Operating time        | h               | 2                     | 0.75                  |
| Soot loading rate     | g/h             | 0.5 / 2.0             | 0                     |
| Ash loading rate      | g/h             | 0.5 / 0.25            | 0                     |
| S/A ratio             | -               | 1 / 8                 | -                     |
| DPF inlet temperature | deg.C           | 350                   | 680                   |
| SV (20 deg.C, 1 atm)  | h <sup>-1</sup> | 6.0 × 10 <sup>4</sup> | 6.0 × 10 <sup>4</sup> |

その他、堆積アッシュの性状に関する計算入力条件を表 4.12～表 4.14 に示すが、条件(I)は表 4.2～表 4.4, 条件(III)は表 4.6, 表 4.7, 表 4.9 と同様の条件となる。したがって、DPF サイズ L =1(Base)でのアッシュ堆積状態は、条件(I)は図 4.9 と同様となり、条件(III)は図 4.26 と同様となる。

**Table 4.12 INPUT parameter of wall ash properties calculated from prediction model**

| Experimental conditions |                 |           | Wall ash properties                             |              |   |                                  |
|-------------------------|-----------------|-----------|---|--------------|---|----------------------------------|
|                         | Engine oil used | S/A ratio | Particle diameter (Harmonic Mean)               | Porosity     | Bulk density                                      | Permeability                     |
|                         |                 |           | $D_2$   | $\epsilon_2$ | $\rho_{bulk}$                                     | $k_{ash}$                        |
|                         | -               | -         | nm  | -            | kg/m <sup>3</sup>                                 | 10 <sup>-15</sup> m <sup>2</sup> |
| (I)                     | Sample A        | Comp1     | 480   | 0.91         | 149   | 211                              |
| (III)                   | Sample B        |           | 435   | 0.95         | 103   | 559                              |
|                         |                 |           | INPUT to critical shear stress prediction model |              | INPUT to DPF pressure drop calc. model (Axisuite) |                                  |

**Table 4.13 INPUT parameter of plug ash bulk density**

| Experimental conditions |                 |           | Plug ash properties  |     |
|-------------------------|-----------------|-----------|--|-----|
|                         | Engine oil used | S/A ratio | Bulk density   |     |
|                         | -               | -         | kg/m <sup>3</sup>  |     |
| (I)                     | Sample A        | Comp1     | 1  | 250 |
| (III)                   | Sample B        |           | 8  |     |
|                         |                 |           | INPUT to DPF pressure drop calculation model<br>(Axisuite) |     |

**Table 4.14 INPUT parameter of wall ash properties**

| Experimental conditions |                 |           | Wall ash properties                             |                     |                   |
|-------------------------|-----------------|-----------|---|---------------------|-------------------|
|                         | Engine oil used | S/A ratio | Proportionality coefficient                     | Hamaker constant    | Surface roughness |
|                         |                 |           | $\mu_f$   | $A$                 | $\delta$          |
|                         | -               | -         | -   | 10 <sup>-20</sup> J | nm                |
| (I)                     | Sample A        | Comp1     | 1   | 10.1                | 5.3               |
| (III)                   | Sample B        |           | 8   |                     |                   |
|                         |                 |           | INPUT to critical shear stress prediction model |                     |                   |

DPF サイズ違い(L=0.5, 1, 2 ;DPF 容積は同じ)における, 軸方向流速分布の計算結果を図 4.28 に, Wall 透過流速分布の計算結果を図 4.29 に, それぞれ示す. なお, 横軸はどちらも流路全長を1(前後端目封じ部 5 mm を除く)として正規化した. またアッシュ・スートの堆積はない状態で示している.

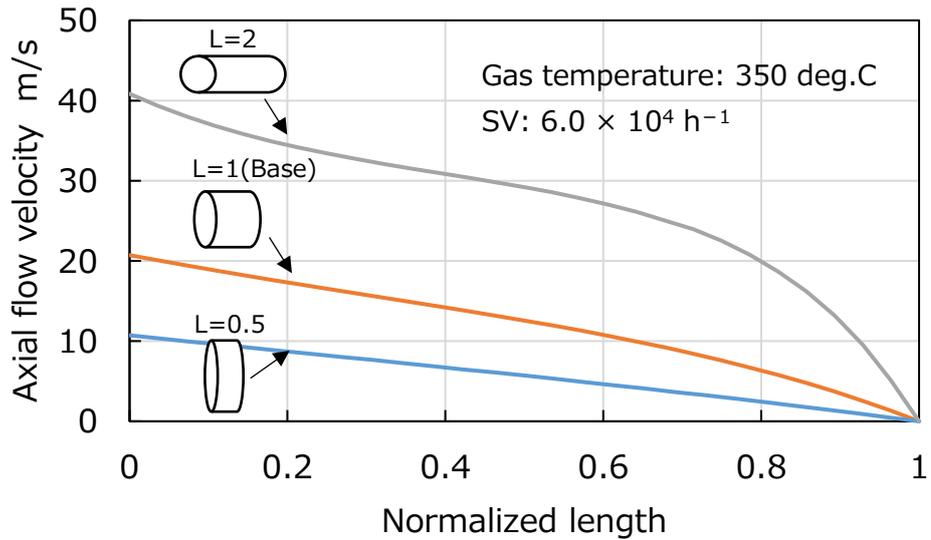


Fig.4.28 Comparison with axial flow velocity in a channel of DPF under different DPF size

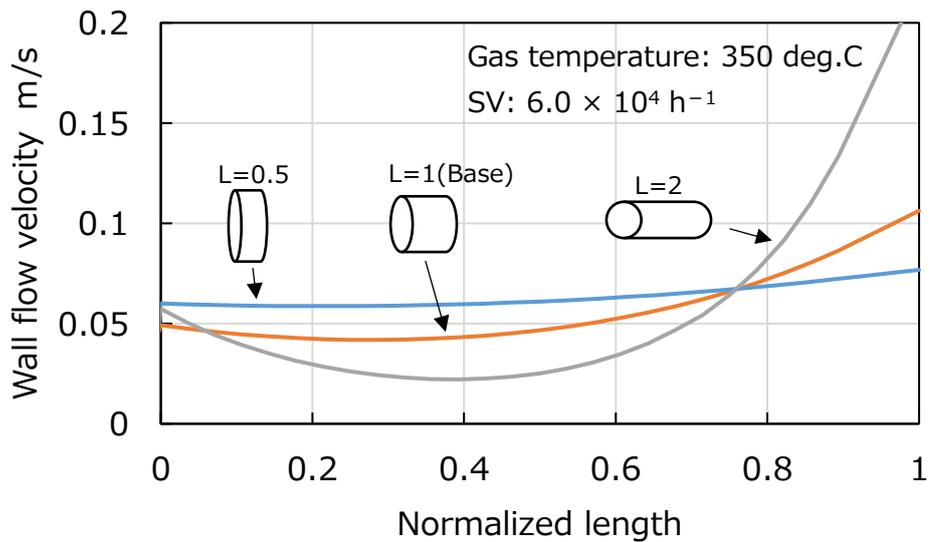


Fig.4.29 Comparison with wall flow velocity in a channel of DPF under different DPF size

軸方向流速分布の計算結果より、全長(L)が長く直径(D)が小さい、即ちL/Dが大きいDPFサイズ条件ほど、軸方向流速が大きくなっていることが分かるが、これは主に DPF 入口断面積の減少による、Inlet チャンネル数の減少(DPF 入口開口面積の減少)に起因するものである。また Wall 透過流速分布の計算結果では、全長(L)が長い(L/D が大きい)DPF サイズ条件ほど、Wall 透過流速が下に凸を描くようになることが見て取れるが、Wall 透過流速は式4.4のダルシー則に基づくものであり、主に入口側チャンネルと出口側チャンネルの圧力バランスの軸方向変化に起因するものである。

DPF サイズ違い(L=0.5, 1, 2 ;DPF 容積は同じ)における、壁面せん断応力分布の計算結果を図4.30に示す。壁面せん断応力は式3.17で想定される通り、図4.28の軸方向流速分布と同様の傾向を示しており、全長(L)が長い(L/D が大きい)DPF サイズ条件ほど、壁面せん断応力が大きくなっていることから、アッシュ移動が促進されることが考えられる。

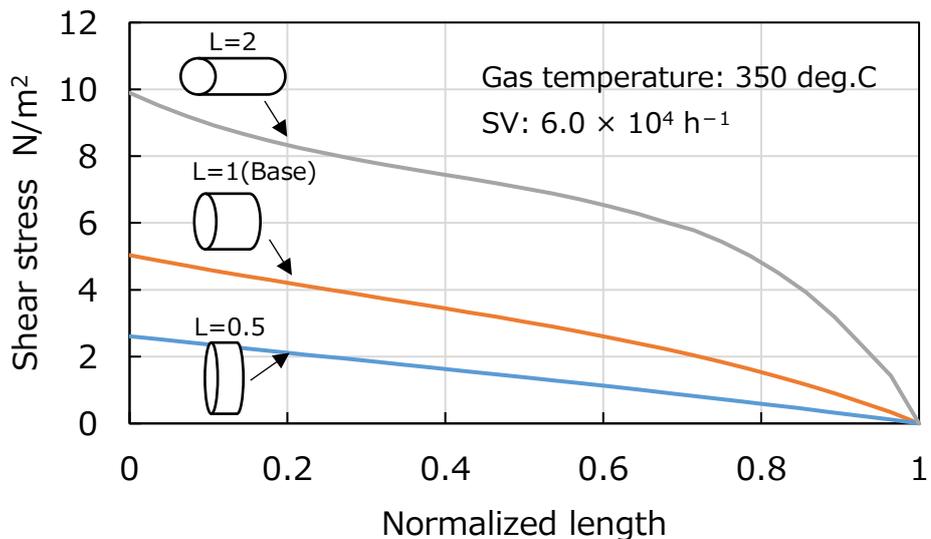


Fig.4.30 Comparison with shear stress in a channel of DPF under different DPF size

(2) アッシュ堆積状態と圧力損失 計算結果

サイクル運転終了後のアッシュ堆積分布について、条件(I) (S/A 比=1)での DPF 長さ違い時の予測計算結果を図 4.31、条件(III) (S/A 比=8)での同様の予測計算結果を図 4.32 にそれぞれ示す。なおアッシュは条件(I), 条件(III)共に、先に述べた通りそれぞれ 41.3 g 堆積させている。また、横軸は流路全長を1(前後目封じ部 5 mm を除く)として正規化して示している。

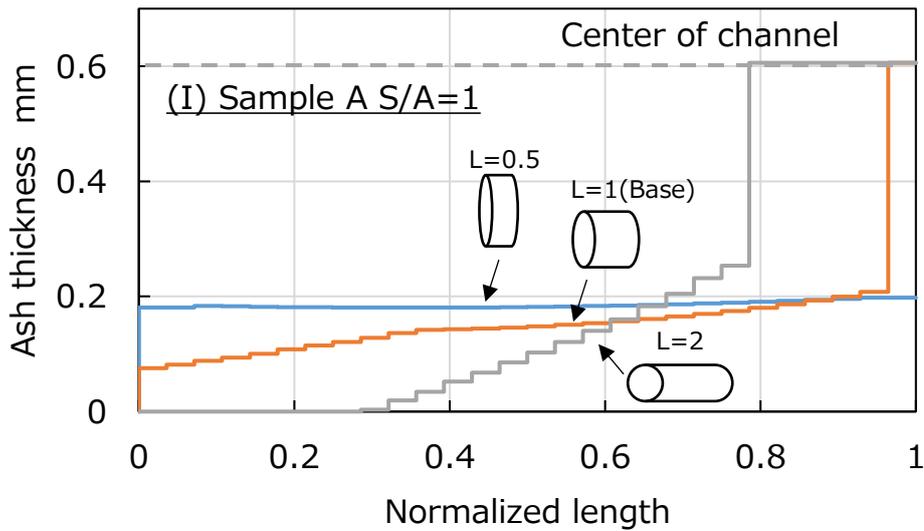


Fig.4.31 Predicted wall ash thickness change in DPF length under (I) S/A=1 condition

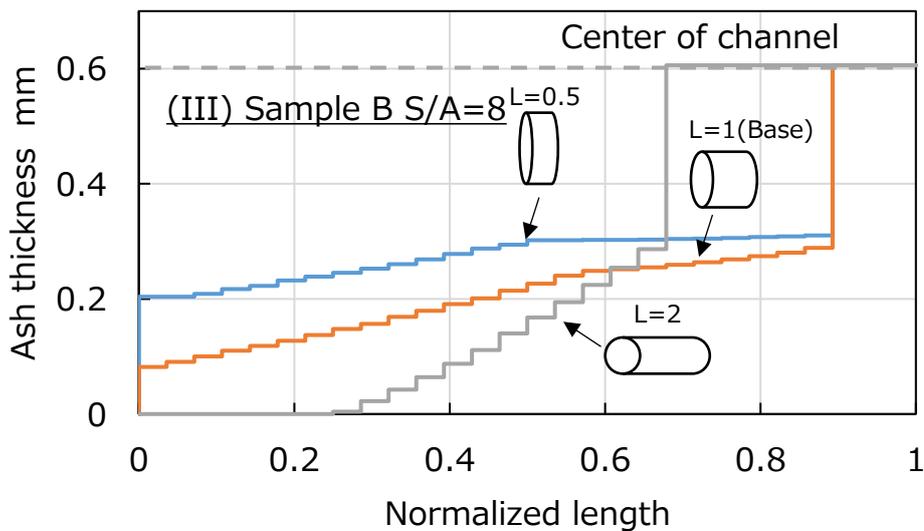


Fig.4.32 Predicted wall ash thickness change in DPF length under (III) S/A=8 condition

これより、DPF 容積一定のまま断面積を縮小して長さを長くしていくと、アッシュの移動が促進され、Plug アッシュが増加することが分かる。また条件(I)の S/A 比=1と、条件(III)の S/A 比=8 を比較すると、DPF 長さ違い時も総じて、S/A 比が大きい条件(III)の方がアッシュ移動が促進されており、Plug アッシュが増加していることが分かる。これはこれまで述べてきた通り、S/A 比が大きいほど臨界せん断応力が小さく、せん断されやすい Wall アッシュとなるためである。なお、L=1 (Base)として示す結果は、それぞれ図 4.9、図 4.26 に示した結果と同じものである。

次に、上記アッシュ堆積分布となったDPFに、さらにスートを堆積させたときのDPF圧損を計算し、DPF サイズ違い時の圧損特性を比較する。

まず堆積スートの透過率とかさ密度は、条件(I)、(III)のアッシュを堆積させたDPFにさらにスートを堆積させた時の圧損データを用いて、同定により求めた。条件(I)、(III)の圧損同定結果を図 4.33 に示す。

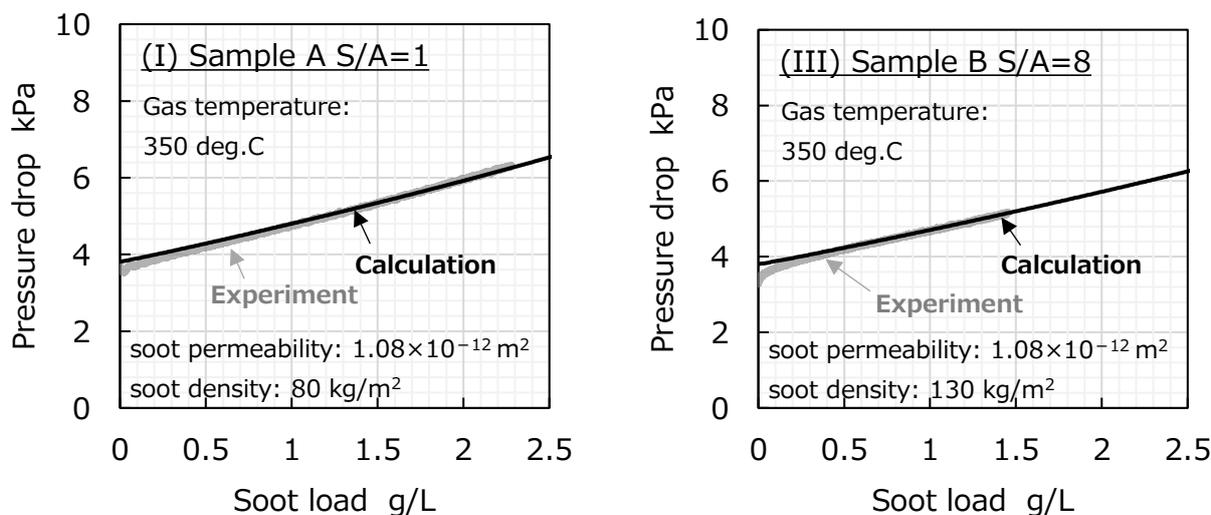


Fig.4.33 DPG Experimental results of pressure drop change in soot load and comparison of simulation results after fitting the wall soot permeability and density

(Left: (I) S/A=1, Right: (III) S/A=8)

得られたスートの透過率とかさ密度を用いて、DPF サイズ違い時のスート堆積圧損を予測計算し、特性の比較を行った。条件(I)での比較結果を図 4.34、条件(III)で比較結果を図 4.35 にそれぞれ示す。ここで、横軸 Soot load の単位 g/L の L はフィルタの容積(Liter)である。

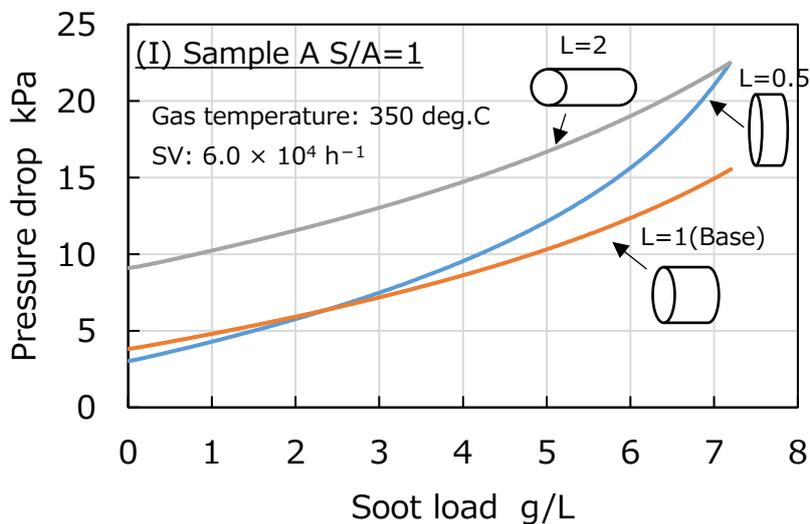


Fig.4.34 Predicted pressure drop change in soot loading on ash loaded DPF and comparison with different Length-Diameter DPF under (I) Sample A (S/A=1) condition

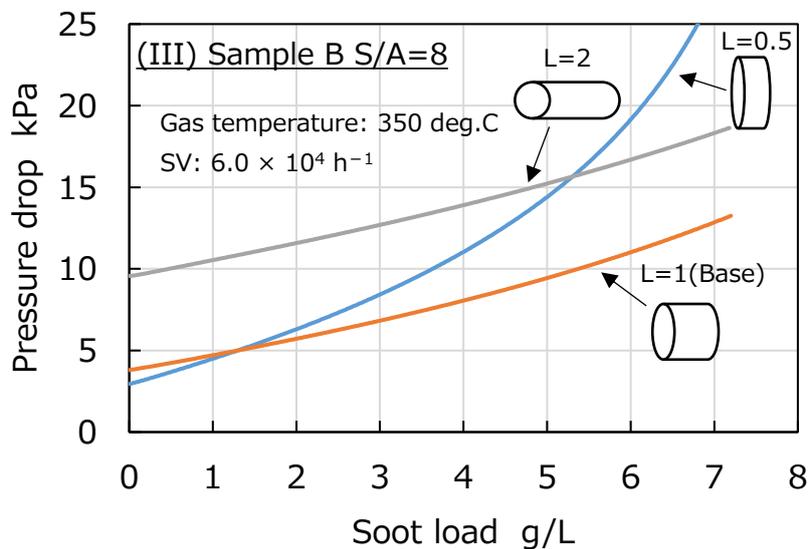


Fig.4.35 Predicted pressure drop change in soot loading on ash loaded DPF and comparison with different Length-Diameter DPF under (III) Sample B (S/A=8) condition

まず $L=2$ (DPF長さが基準DPFサイズの2倍で、断面積が0.5倍)では、基準となる $L=1$ (Base)での結果と比較して、どのスート堆積量においてもスート堆積時の圧損が高くなることが分かる。またこの傾向は、条件(I)の $S/A$ 比=1と条件(III)の $S/A$ 比=8どちらも同様である。したがって、先に述べた通りDPF容積一定のまま断面積を縮小して長さを長くしていくと、軸方向流速の増加によりアッシュの移動が促進されWallアッシュは減少するが、一方で軸方向流速の増加により管摩擦損失が大きくなるため、圧損低減の観点では有効ではないことが分かる。

次に $L=0.5$ (DPF長さが基準DPFサイズの0.5倍で、断面積が2倍)では、スート堆積量が比較的低い領域では、最も低い圧損となることが分かる。しかしながらスート堆積量が増加すると、圧損が急激に立ち上がってくることも分かった。この傾向は、条件(I)の $S/A$ 比=1と条件(III)の $S/A$ 比=8どちらも同様であった。これは図4.31より、特に流速が大きい流路入口付近のWallアッシュ堆積層の厚さが $L=0.5$ が最も厚いため、ここにさらにスートが堆積した際、流路の開口断面積が急速に狭小化することから、管摩擦損失による圧損が急激に立ち上がってくるものと考えられる。この傾向は $S/A$ 比=8(図4.35)ではより顕著となるが、これは $S/A$ 比=8の方が $S/A$ 比=1よりも、Wallアッシュ堆積層のかさ密度が低く堆積層厚さが厚いため、スート堆積時の開口断面積の狭小化が速く進行するため、と考えられる。

以上より、 $S/A$ 比=1と $S/A$ 比=8いずれの場合においても、 $L=1$ の条件が、スート堆積量によらず安定的に圧損が低く、最もバランスの取れたDPFサイズである、と言える。しかしながらスート堆積量が少ないと想定される稼働条件であれば、 $L=0.5$ も $L=1$ と同等以上に低い圧損が得られることが示された。したがってアッシュ堆積を考慮したときに、スート堆積量が少ないと想定される条件においては、 $L=1$ よりも扁平なDPFサイズ( $L=0.5$ )が、圧損の観点で有利となる可能性が示唆されている、と言える。

エンジンから排出されるスート量や強制再生開始時のスート堆積量は、エンジンへの要求仕様に合わせてある程度コントロール可能であり、用途に合わせてチューニングされる。したがってチューニング内容によっては、アッシュ堆積とスート堆積による合計圧損の観点から、 $L=0.5$ 相当のジオメトリを積極的に選択することもあり得る、と考えられる。逆に搭載場積の観点から $L=0.5$ 相当のジオメトリを選択せざるを得ない場合、アッシュ堆積とスート堆積による合計圧損が許容値を超えないように、スート堆積量の限界値を把握したい場合も考えられる。本研究で構築した予測モデルを用いることで、実際に試験するには長い時間が必要となるアッシュ堆積を考慮した、基材のジオメトリや運転条件など制御可能なパラメータ変更の圧損影響確認を、モデルベースにて実施できるようになる、と考えられる。

#### 4.5 まとめ

本章(第4章)では、構築した運転条件(S/A比)に応じて変化するアッシュ堆積層の性状を計算するアッシュ堆積層モデルと、その性状からアッシュの移動のしやすさを計算する臨界せん断応力モデルを用いて、汎用コード(Exothermia社のAxisuite)上で作成したDPF圧損モデルとを連成させ、DPFの運転状態に応じて形成されるアッシュ堆積層の性状・堆積形態を反映させた、DPF全体の圧力損失を予測するモデルを構築した。また構築モデルによる計算結果が、どの程度DPGでの実測データを再現するのかを検証した。

まず、低S/A比条件として実施した、条件(I)(Sample A, S/A比=1, 再生時スート堆積量0.5 g/L)と条件(II)(Sample A, S/A比=4, 再生時スート堆積量2.0 g/L)において、モデルのフィッティングと、計算予測精度の検証を行った。その結果、Plugアッシュ長さやアッシュ堆積厚み分布が、DPGでの実験結果を再現することが示された。またサイクル中を含めて、アッシュ堆積DPFの圧力損失が概ね±20%程度の精度で予測可能であることが示された。

次に、上記条件にてフィッティングしたモデルを用いて、より高S/A比条件として条件(III)(Sample B, S/A比=8, 再生時スート堆積量2.0 g/L)での計算も実施し、実験結果との比較・検証を実施した。その結果S/A比=8の条件に適用範囲を拡張した場合、モデル定数を変更しなくても、S/A比が大きいほどPlugアッシュ長さが長くなるという定性的な傾向は得られるが、アッシュ堆積厚み分布や圧損予測精度は低下することが分かった。本条件では再生時のスート堆積量自体は少なく(2.0 g/L)、先行研究にて示されている<sup>(1-60)</sup>ような、スートがアッシュを輸送するメカニズムの寄与度は低いと考えられることから、アッシュの移動は、条件(I), (II)と同じくWallからのアッシュの剥離移動(再飛散)が主体であると考えられ、予測精度の低下はWallアッシュ層の臨界せん断応力が過少に予測された結果であると考えられる。条件(III)の試験条件より、条件(I)と(II)と比較すると、1サイクル当たりのアッシュ流入量(堆積量)が半減していることと、ある堆積厚みにおいて経験しているサイクル数が倍であることと、S/A比が高いこと、という違いがある。これにより条件(III)のアッシュ堆積層は、アッシュ堆積層の表面形状(凝集粒子塊の突き出し量)に差が生じている可能性と、熱履歴の差によりアッシュ粒子の表面粗さに差が生じている可能性が考えられたが、本論文では前者を仮定し、条件(III)に見られるアッシュ移動の抑制効果を比例係数 $\mu_f$ で同定した。

結果、条件(III)の高 S/A 比条件(S/A 比=8)においても、アッシュ堆積分布の予実差が縮小し、アッシュ圧損の推定精度が向上、実験結果とほぼ同等の圧損推定が可能であることが示された。

本構築モデルを、より高 S/A 比条件へ適用する際、低 S/A 比条件と同一の Wall アッシュ物性値でも、アッシュ堆積形態(Wall/Plug)が S/A 比に対してどのように変化するか等の定性的な傾向把握は可能である。一方でより高い圧損予測精度を得るためには、1 サイクル当たりのアッシュ堆積量の半減による、堆積層表層で表面粗さを形成する凝集粒子の大きさ(突き出し量)が半分となっている可能性や、S/A 比の増加やサイクル数の増加による熱履歴の増加影響など、本条件において考えられるアッシュ移動の抑制効果を追加で考慮していく必要がある、と考えられる。今後、これらアッシュ移動の抑制効果が何によって生じているのかをより詳しく解析し、実験式の構築など関係性をモデル化していくことで、より適用範囲の広いモデルにしていけることができると考えられる。また実稼働条件における S/A 比は、エミッション規制対応を目的としたスート排出量のチューニングや、オイル消費量のエンジン設計方針、エンジンの使われ方や、連続再生条件の有無により、1~50 程度と大きく変化する。本論文では S/A 比 1~8 を対象に解析しモデル化した、より高 S/A 比条件への適用範囲拡張は、今後の課題である。

最後に構築した一連のモデルを活用した DPF サイズ最適化の検討として、容積一定のまま DPF の長さを倍/半分と変えた条件で、それぞれ前述の DPG 運転を模擬した計算を行い、DPF サイズが異なる場合のアッシュ堆積影響の予測・評価を実施した。その結果、スート堆積量が少ない条件での稼働がメインと想定されるのであれば、容積は変えず、長さを短くして直径を大きくした DPF の方が、スート堆積時圧損が僅かに低くなることが分かった。逆に長さを長くして直径を小さくすると、スート堆積時圧損が高くなることも分かった。DPF の圧力損失の上昇は、エンジン排圧を上昇させポンピング損失を増加させるため、燃費悪化の要因となる。またアッシュ堆積による圧損変化は、スート堆積量を DPF 前後差圧から推定している一般的なシステムにおいて、スート堆積量を過大に推定する外乱因子となるため、不要な強制再生を発生させることに繋がり、これも燃費悪化の要因となる。したがって、DPF 圧損は低く、かつアッシュ堆積状態差による圧損変化は小さい方が、良いシステムであると言える。本研究で構築した予測モデルを用いることで、基材のジオメトリや運転条件など制御可能なパラメータの変更が、DPF の圧損特性にどのような影響を及ぼすか、変更影響の予測検証を実施することが可能となる、と考えられる。

## 第5章 結論及び今後の研究の展望

### 5.1 結論

本研究は、DPF へ堆積したスートの酸化消失が、圧損因子である堆積アッシュの粒子径、空隙率に与える影響をモデル化し、さらに DPF 流路内のアッシュ移動現象をモデル化することで、実機運転状態に応じた DPF 流路内アッシュ堆積層の厚み分布と、DPF 全体の圧力損失を予測することを、目的として実施した。

第1章では、序論として研究背景と先行研究について示し、研究目的を明確化した。研究背景として、環境問題の観点から昨今急速に変化している、内燃機関を取り巻く環境と排出ガス規制動向を述べ、排出ガス後処理技術の重要性とその技術課題を示したうえで、本研究で取り組む DPF へのアッシュ堆積研究の重要性を明確化した。先行研究の調査では、DPF への堆積アッシュの生成過程とその堆積影響に関して整理し、先行研究での課題点を指摘したうえで、これらを解明する現象解析とそれに基づくモデリングを研究目的と位置付けた。

第2章では、DPF の圧力損失を予測するうえで重要な DPF 流路内堆積アッシュの構造解析とモデリングを実施した。まず実験により、運転状態、特に新規に堆積したアッシュ量に対するスート量の比(S/A比)と、Wallアッシュの粒子径・空隙率との関係性を解析した。実施した実験は二種類で、Diesel Particulate Generator(以下DPG)で生成しDPFへ堆積させたアッシュの構造調査と、新たに構築した流通場でのスート燃焼・アッシュ層形成装置を用いたアッシュ層形成の調査である。その結果、S/A比が大きい(スート量が多い)ほどWallアッシュの2次粒子径は小さくなり、また2次粒子内の空隙が減少すること、また粒子径が小さいほどWallアッシュ層の空隙率が増加することが示された。また、S/A比が大きいほどWallアッシュ層の空隙率が増加することが示された。次にこれらの結果を基に、Wallアッシュの2次粒子径と、Wallアッシュ層の空隙率を予測するモデルを作成した。Wallアッシュの2次粒子径モデルは、フラクタル次元を用いてモデル化することで、S/A比で変化する2次粒子構造を予測できるモデルとして構築した。Wallアッシュ層の空隙率モデルは、Rollerの式をベースに、S/A比で変化するアッシュ堆積層の空隙率を予測できるモデルとして構築した。

第3章では、DPFの圧力損失を予測するうえで重要な、DPF内部のアッシュの移動現象と、それによるDPF内部のアッシュ堆積分布の変化を予測するため、アッシュ堆積層表層の凝集粒子塊がせん断剥離(再飛散)するメカニズムの検討と、その再飛散のされにくさのモデリングを実施、粒子径・空隙率が大きいWallアッシュほど、堆積層表層の凝集粒子塊の臨界せん断応力が低くせん断されやすい特性を示す、Rumpfの式に基づく臨界せん断応力モデルを構築した。

第4章では、第2章で構築した運転条件(S/A比)に応じて変化するアッシュ堆積層の2次粒子径、アッシュ層空隙率を計算するモデルを含むアッシュ堆積層モデルと、第3章で構築したアッシュ堆積層の性状からアッシュの移動のしやすさを計算する臨界せん断応力モデルを用いて、汎用コード(Exothermia社のAxisuite)上で作成したDPF圧損モデルとを連成させ、DPFの運転状態に応じて形成されるアッシュ堆積層の性状・堆積形態を反映させた、DPF全体の圧力損失を予測するモデルを構築した。また構築モデルによる計算結果が、どの程度DPGでの実測データを再現するのかを検証した。

まず低S/A比条件での結果より、粒子面粗さのフィッティングと、再堆積Plugアッシュのかさ密度を実験結果に基づいて与えることで、Plugアッシュ長さやアッシュ堆積厚み分布が、DPGでの実験結果を再現することが示された。また、サイクル中を含めて、アッシュ堆積DPFの圧力損失が概ね±20%程度の精度で予測可能であることが示された。

次にモデルの適用範囲をより高S/A比条件へ拡張した場合、低S/A比条件で用いたモデル定数そのままでは、定性的な傾向は得られるものの、本条件でのPlugアッシュ長さやアッシュ堆積厚み分布の計算予測精度には改善の余地があることが示された。これは高S/A比条件に対してWallアッシュ層の臨界せん断応力が過少に評価された為であると考えられたので、アッシュ移動の抑制効果を比例係数 $\mu_f$ の増大として組み込むこととした。その結果、比例係数 $\mu_f$ を同定することにより、アッシュ堆積分布の予実差が縮小し、アッシュ圧損の推定精度が向上、実験結果とほぼ同等の圧損推定が可能であることが示された。

最後に構築した一連のモデルを活用したDPFサイズ最適化の検討として、容積一定のままDPFの長さを倍/半分と変えた条件で、それぞれ前述のDPG運転を模擬した計算を行い、DPFサイズが異なる場合のアッシュ堆積影響の予測・評価を実施した。その結果、スート堆積量が少ない条件での稼働がメインと想定されるのであれば、容積は変えず、長さを短くして直径を大きくしたDPFの方が、スート堆積時圧損が僅かに低くなることが分かった。逆に長さを長くして直径を小さくすると、スート堆積時圧損が高くなることも分かった。以上で示したように、本研究で構築した

予測モデルにより、基材のジオメトリや運転条件など制御可能なパラメータの変更影響確認を実施できることが示された。

以上、第 2 章から第 4 章にかけて構築・検証してきた一連のモデルを用いることで、DPF の運転条件に依存する強制再生時のスート堆積量と、堆積スートとアッシュ量の比である S/A 比が既知であれば、長期的なアッシュ堆積形態や圧損影響を広く予測できることが示された。本構築モデルにより、実機試験では非常に長い試験時間を要するアッシュ堆積の圧損影響確認を、シミュレーションにより短時間で実施することができ、また基材のジオメトリや運転条件など制御可能なパラメータの変更影響確認が、現実的なリードタイムで実施可能となると考えられることから、本研究で構築したアッシュ堆積層モデルと流路内アッシュ移動を解くための臨界せん断応力モデルは、工学的にも有用な成果物であると考えられる。

## 5.2 今後の研究の展望

先行研究では、Wall アッシュの粒子径や空隙率など堆積構造が決定されるメカニズムが明らかとはなっておらず、再生時の堆積スート量の影響が示唆されてはいるものの、Wall アッシュの堆積構造を予測する汎用的なモデルは存在していない。また流路内アッシュ移動現象のモデリングは、Sappok らが構築したアッシュ層に作用するせん断応力に基づくモデルで一応の成功を見てはいたものの、アッシュ移動を左右するせん断応力の臨界値自体はフィッティングパラメータであったため、この臨界値のモデル化が課題であった。そこで本研究では、先行研究での課題点や示唆されている点を踏まえて、DPF へ堆積したスートの酸化消失が、圧損因子である堆積アッシュの粒子径、空隙率に与える影響をモデル化した(アッシュ 2 次粒子モデル、アッシュ層空隙率モデル)。さらに堆積アッシュ層の臨界せん断応力をモデル化することで、DPF 流路内のアッシュ移動現象をモデル化し、実機運転状態に応じた DPF 流路内アッシュ堆積層の厚み分布と、DPF 全体の圧力損失を予測するモデルを構築した。今回の一連の構築モデルにより、DPF の運転条件からアッシュ堆積状態とその圧損影響までを予測することがある程度可能になったと考えるが、更なる予測精度向上と適用範囲の拡大のための、課題点は以下であると考ええる。

- ① 本論文で構築したアッシュ 2 次粒子モデル、アッシュ層空隙率モデルは、Diesel Particulate Generator (DPG) での堆積アッシュの構造調査と、新たに構築した流通場でのスート燃焼・アッシュ層形成装置を用いたアッシュ層形成実験で得られた結果に基づいて構築したものである。したがって本モデルは DPG での運転条件(流通ガスの流量・温度と、供試オイル)で得られた結果を再現するモデルである、と言えるが、強制再生時のガス温度・SV が異なる場合や、連続再生のみでの稼働のようにガス温度が大きく異なる場合、あるいは供試オイルの成分が大きく異なる場合(Sample A, B の Comp1  $\leftrightarrow$  Sample C の Comp2 など)にどのような補正項が必要か、また実機エンジン上での運転で DPF へ堆積させたアッシュに対しても適用が可能かどうか、その場合の凝縮水の影響など、適用範囲を拡張するために更なる検討・検証が必要な点があり、これらは今後の課題であると考ええる。
- ② DPF 流路内のアッシュ移動を予測するため、本論文で構築した臨界せん断応力モデルについては、モデル適用範囲をより高 S/A 比条件へ拡張していこうとした場合、同一のモデル定数では臨界せん断応力が過少に評価される。本論文ではアッシュ移動の抑制効果として堆積層の表面粗さの低下による比例係数 $\mu_f$ の増大を考え、比例係数 $\mu_f$ の同定として

フィッティングを行ったが、現象モデリングのどの部分の不一致により臨界せん断応力の過小評価が生じたか、詳細な現象説明は出来ておらず、今後の課題であると考え。

- ③ また本論文では Wall アッシュ主体の堆積形態を主なモデリング対象としたため、より高スート堆積条件(S/A 比=16, 再生時スート堆積量 8g/L; LはDPFの容積)において実験的に知られている<sup>(1-60)</sup>, スートがキャリアとなってアッシュを輸送するメカニズムのモデル化には至っていない。定性的には高 S/A 比条件での計算結果として、低 S/A 比条件と同一のモデル定数で計算をすれば、臨界せん断応力の低い Wall アッシュが形成されることになり、アッシュ移動が促進されるため、結果として近いアッシュ堆積形態が得られるものの、条件(III)(S/A 比=8)でのアッシュ移動の抑制効果を考慮しようとする、より高スート堆積条件(S/A 比=16)では堆積形態が合わなくなり、矛盾が生じる。この矛盾の解消には、高スート堆積量条件では、スートがキャリアとなってアッシュを輸送するメカニズムが主体となるようにモデルを修正する必要がある、と考えられるが、本メカニズムのモデリングは出来ておらず、今後の課題であると考え。また同様に、本論文では Wall アッシュ主体の堆積形態を主なモデリング対象としたため、再堆積 Plug アッシュのかさ密度を実験値に基づいて与えており、モデル化には至っていない。この再堆積 Plug アッシュのかさ密度変化のモデル化も、今後の課題であると考え。

内燃機関(ICE)は、今後も重要な動力源の選択肢であり続けると考えられ、ICEから排出されるPMの排出抑制として重要な微粒子捕集フィルタ(PF)の技術も、引き続き重要であると考えられる。PFの技術課題としてアッシュ堆積があるが、このアッシュ堆積影響を正確に把握し、アッシュの堆積構造を可能な限りコントロールすることが、今後の後処理システムのコンパクト化・機能統合化を追求する際の、PF容積の最小・最適化検討において、非常に重要であると考えられる。またアッシュ堆積は時間スケールが非常に長く、実機試験が現実的でないため、このような現象を扱う際には、モデルベース開発の恩恵は非常に大きい。今後も本研究を発展させつつ、培った技術を軸に、開発工数の大幅低減や革新的装置開発など、産業的要請に応えていきたい。

## 参考文献

- (1-1) Michael E. Mann et al. “Proxy-based reconstructions of hemispheric and global surface temperature variations over the past two millennia” 13252-13257 PNAS September 9, 2008 vol. 105 no. 36, <https://www.pnas.org/content/105/36/13252> (2021年7月検索)
- (1-2) 国立環境研究所, 本当に二酸化炭素濃度の増加が地球温暖化の原因なのか, <https://www.cger.nies.go.jp/cgernews/201806/330006.html> (2021年7月検索)
- (1-3) The Sixth Assessment Report (AR6) of the United Nations Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC) 2021, The Physical Science Basis, Summary for Policymakers (SPM), [https://www.ipcc.ch/report/ar6/wg1/downloads/report/IPCC\\_AR6\\_WGI\\_SPM\\_final.pdf](https://www.ipcc.ch/report/ar6/wg1/downloads/report/IPCC_AR6_WGI_SPM_final.pdf) (2022年1月検索)
- (1-4) 環境省, IPCC AR6/WG1 報告書の政策決定者向け要約(SPM)の概要, <http://www.env.go.jp/press/109850/116628.pdf> (2021年10月検索)
- (1-5) The Fifth Assessment Report (AR5) of the United Nations Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC) 2014, [https://www.ipcc.ch/site/assets/uploads/2018/05/SYR\\_AR5\\_FINAL\\_full\\_wcover.pdf](https://www.ipcc.ch/site/assets/uploads/2018/05/SYR_AR5_FINAL_full_wcover.pdf) (2021年7月検索)
- (1-6) 環境省, IPCC 第5次評価報告書の概要, [http://www.env.go.jp/earth/ipcc/5th/pdf/ar5\\_syr\\_overview\\_presentation.pdf](http://www.env.go.jp/earth/ipcc/5th/pdf/ar5_syr_overview_presentation.pdf) (2021年7月検索)
- (1-7) International Energy Agency (IEA) “The IEA energy data collection and CO2 estimates: an overview” 2017, [https://transparency-partnership.net/sites/default/files/u2620/the\\_iea\\_energy\\_data\\_collection\\_and\\_co2\\_estimates\\_an\\_overview\\_iea\\_coent.pdf](https://transparency-partnership.net/sites/default/files/u2620/the_iea_energy_data_collection_and_co2_estimates_an_overview_iea_coent.pdf) (2021年7月検索)
- (1-8) Continental automotive “Worldwide Emission Standards and Related Regulations” 2019 [https://www.continental-automotive.com/getattachment/8f2dedad-b510-4672-a005-3156f77d1f85/EMISSIONBOOKLET\\_2019.pdf](https://www.continental-automotive.com/getattachment/8f2dedad-b510-4672-a005-3156f77d1f85/EMISSIONBOOKLET_2019.pdf) (2021年7月検索)

- (1-9) 経済産業省, 自動車新時代戦略会議 中間整理,  
[https://www.meti.go.jp/shingikai/mono\\_info\\_service/jidosha\\_shinjidai/pdf/20180831\\_01.pdf](https://www.meti.go.jp/shingikai/mono_info_service/jidosha_shinjidai/pdf/20180831_01.pdf) (2021年7月検索)
- (1-10) 資源エネルギー庁, 電気自動車(EV)だけじゃない? 「xEV」で自動車の新時代を考える,  
<https://www.enecho.meti.go.jp/about/special/johoteikyo/xev.html> (2021年7月検索)
- (1-11) 富士通総研, 中国の排出量取引導入とEV普及によるCO2削減,  
<https://www.fujitsu.com/jp/group/fri/report/newsletter/2018/no18-004.html> (2021年7月検索)
- (1-12) JAFメディアワークス, EVは本当に環境にやさしい? 独ADACが総CO2量を試算,  
[https://kurukura.jp/news/180412-7\\_2.html](https://kurukura.jp/news/180412-7_2.html) (2021年7月検索)
- (1-13) Ratzinger, J.M., Buchberger, S. & Eichseder, H. Electrified powertrains for wheel-driven non-road mobile machinery. *Automot. Engine Technol.* 6, 1-13 (2021).  
<https://doi.org/10.1007/s41104-020-00072-z>
- (1-14) International Energy Agency (IEA) “Energy Technology Perspectives” 2020
- (1-15) 資源エネルギー庁, エンジン車でも脱炭素? グリーンな液体燃料「合成燃料」とは,  
[https://www.enecho.meti.go.jp/about/special/johoteikyo/gosei\\_nenryo.html](https://www.enecho.meti.go.jp/about/special/johoteikyo/gosei_nenryo.html) (2022年1月検索)
- (1-16) 経済産業省, 産業構造審議会 グリーンイノベーションプロジェクト部会 エネルギー構造転換分野ワーキンググループ 第8回資料,  
[https://www.meti.go.jp/shingikai/sankoshin/green\\_innovation/energy\\_structure/008.html](https://www.meti.go.jp/shingikai/sankoshin/green_innovation/energy_structure/008.html) (2022年1月検索)
- (1-17) Nordic Blue Crude, International Association for Sustainable Aviation 発表資料,  
<https://iasaev.org/wp-content/uploads/2019/11/6-Nordic-Blue-Crude-Holen-Producing-Fischer-Tropsch-based-Kerosine-on-Commercial-Scale.pdf> (2022年1月検索)
- (1-18) 自動車用内燃機関技術研究組合(AICE), AICEの目指す社会,  
<https://www.aice.or.jp/student/> (2021年7月検索)
- (1-19) トヨタ自動車75年史, 第2部 第2章 第3節 排出ガス規制への対応,  
[https://www.toyota.co.jp/jpn/company/history/75years/text/entering\\_the\\_automotive\\_business/chapter2/section3/item1.html](https://www.toyota.co.jp/jpn/company/history/75years/text/entering_the_automotive_business/chapter2/section3/item1.html) (2021年7月検索)

- (1-20) 日刊工業新聞社, 排気ガス規制の歴史,  
[https://pub.nikkan.co.jp/uploads/book/pdf\\_file5a829353137b0.pdf](https://pub.nikkan.co.jp/uploads/book/pdf_file5a829353137b0.pdf) (2021年7月検索)
- (1-21) Delphi “ booklet emission passenger cars 2020 online complet ” ,  
<https://www.delphi.com/sites/default/files/2020-04/DELPHI%20booklet%20emission%20passenger%20cars%202020%20online%20complet.pdf> (2021年7月検索)
- (1-22) Reşitoğlu, İ., Altinişik, K. and Keskin, A. (2014). The pollutant emissions from diesel-engine vehicles and exhaust aftertreatment systems. *Clean Technologies and Environmental Policy*, 17(1), pp.15-27,  
<https://link.springer.com/article/10.1007/s10098-014-0793-9>
- (1-23) A.G. Olabi, David Maizak, Tabbi Wilberforce, Review of the regulations and techniques to eliminate toxic emissions from diesel engine cars, *Science of The Total Environment*, Volume 748, 2020, 141249, ISSN 0048-9697,  
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.141249>.
- (1-24) Subhashish Dey, Ganesh Chandra Dhal, Materials progress in the control of CO and CO<sub>2</sub> emission at ambient conditions: An overview, *Materials Science for Energy Technologies*, Volume 2, Issue 3, 2019, Pages 607-623, ISSN 2589-2991,  
<https://doi.org/10.1016/j.mset.2019.06.004>
- (1-25) S. Dey, N.S. Mehta, Automobile pollution control using catalysis, *Resources, Environment and Sustainability*, Volume 2, 2020, 100006, ISSN 2666-9161,  
<https://doi.org/10.1016/j.resenv.2020.100006>
- (1-26) 横浜市, ppmC,  
[https://www.city.yokohama.lg.jp/kurashi/machizukuri-kankyo/kankyohozen/kansoku/kansoku\\_center/yogo/taki/ppmc.html](https://www.city.yokohama.lg.jp/kurashi/machizukuri-kankyo/kankyohozen/kansoku/kansoku_center/yogo/taki/ppmc.html) (2021年8月検索)
- (1-27) 横浜市, 非メタン炭化水素(NMHC),  
[https://www.city.yokohama.lg.jp/kurashi/machizukuri-kankyo/kankyohozen/kansoku/kansoku\\_center/yogo/taki/nmhc.html](https://www.city.yokohama.lg.jp/kurashi/machizukuri-kankyo/kankyohozen/kansoku/kansoku_center/yogo/taki/nmhc.html) (2021年8月検索)
- (1-28) 吉田忠雄ほか, 光化学オキシダントと炭化水素, *燃料協会誌*, Vol.57 No.618, pp.860-870 (1978), [https://www.jstage.jst.go.jp/article/jie1922/57/10/57\\_10\\_860/\\_pdf](https://www.jstage.jst.go.jp/article/jie1922/57/10/57_10_860/_pdf)
- (1-29) Martyn V. Twigg et al. Cleaning the Air We Breathe - Controlling Diesel Particulate Emissions from Passenger Cars, *Platinum Metals Rev.*, 2009, 53, (1), pp.27-34,

- 10.1595/147106709X390977,  
<https://www.technology.matthey.com/article/53/1/27-34/>
- (1-30) 堀場製作所, エンジンエミッション計測ハンドブック(第5版), p.47
- (1-31) 戸野倉健一, 燃焼場における多環芳香族炭化水素とスス粒子の生成過程, *Eurozoru Kenkyu*, Vol.29, No.1, pp.5-9 (2014),  
[https://www.jstage.jst.go.jp/article/jar/29/1/29\\_5/\\_pdf/-char/ja](https://www.jstage.jst.go.jp/article/jar/29/1/29_5/_pdf/-char/ja)
- (1-32) Oberdörster G, Ferin J, Lehnert BE. Correlation between particle size, in vivo particle persistence, and lung injury. *Environ Health Perspect.* 1994;102 Suppl 5(Suppl 5):173-179. doi:10.1289/ehp.102-1567252,  
<https://ehp.niehs.nih.gov/doi/10.1289/ehp.102-1567252>
- (1-33) 岩井和郎, 超微小(ナノ)粒子の生体影響をめぐって - 微小粒子との比較で -, *大気環境学会誌*, 35 (6), pp.321-331 (2000),  
[https://www.jstage.jst.go.jp/article/taiki1995/35/6/35\\_6\\_321/\\_pdf/-char/ja](https://www.jstage.jst.go.jp/article/taiki1995/35/6/35_6_321/_pdf/-char/ja)
- (1-34) David B. Kittelson, Engines and nanoparticles: a review, *Journal of Aerosol Science*, Volume 29, Issues 5-6, 1998, Pages 575-588, ISSN 0021-8502,  
<https://www.sciencedirect.com/science/article/abs/pii/S0021850297100374?via%3Dihub>
- (1-35) 福田圭佑, 固体粒子数の計測と規制の動向, *JARI Research Journal* 20190603, pp.1-6 (2019), [https://www.jari.or.jp/Portals/0/resource/JRJ\\_q/JRJ20190603\\_q.pdf](https://www.jari.or.jp/Portals/0/resource/JRJ_q/JRJ20190603_q.pdf)
- (1-36) 国立環境研究所, 微小粒子の健康影響 - アレルギーと循環機能,  
<https://www.nies.go.jp/kanko/kankyogi/22/02-03.html> (2021年7月検索)
- (1-37) 森雄一, 自動車における排出ガス規制動向と計測技術について, *日本燃焼学会誌*, Vol.58, No.184, pp.65-72 (2016),  
[https://www.jstage.jst.go.jp/article/jcombsj/58/184/58\\_65/\\_pdf/-char/ja](https://www.jstage.jst.go.jp/article/jcombsj/58/184/58_65/_pdf/-char/ja)
- (1-38) 室井高城ほか, ディーゼルエンジンの排気浄化における触媒材料およびシステムの開発・要素技術, *サイエンス&テクノロジー社*, 第1版 第1刷 (2017), pp.3-15, pp.35-57, pp.75-86, pp.87-108
- (1-39) Kojima, H., Fischer, M., Haga, H., Ohya, N. et al., "Next Generation All in One Close-Coupled Urea-SCR System," *SAE Technical Paper* 2015-01-0994, 2015,  
<https://doi.org/10.4271/2015-01-0994>.

- (1-40) 高見明秀, 自動車排出ガス浄化用触媒の現状と今後の動向, 日本燃焼学会誌, Vol.52, No.161, pp.198-205 (2010),  
[https://www.jstage.jst.go.jp/article/jcombsj/52/161/52\\_198/\\_pdf](https://www.jstage.jst.go.jp/article/jcombsj/52/161/52_198/_pdf)
- (1-41) JOHN DEERE, 2014 PowerTech Final Tier 4/ Stage IV Technology,  
<https://www.deere.com/en/campaigns/engines-and-drivetrain/diesel-engine-technology/>  
/ (2021年8月検索)
- (1-42) Yujun Wang, Carl J. Kamp, Yuesen Wang, Todd J. Toops, Changsheng Su, Ruoqian Wang, Jian Gong, Victor W. Wong, The origin, transport, and evolution of ash in engine particulate filters, Applied Energy, Volume 263, 2020, 114631, ISSN 0306-2619,  
<https://doi.org/10.1016/j.apenergy.2020.114631>.
- (1-43) Yong Qian, Zilong Li, Liang Yu, Xiaole Wang, Xingcai Lu, Review of the state-of-the-art of particulate matter emissions from modern gasoline fueled engines, Applied Energy, Volume 238, 2019, Pages 1269-1298, ISSN 0306-2619,  
<https://doi.org/10.1016/j.apenergy.2019.01.179>.
- (1-44) 笠井淳志, 自動車から排出される粒子状物質の低減対策について, 大気環境学会誌, Vol.58, No.4 (2017), pp.A91-A96
- (1-45) Bagi, S., Bowker, R., and Andrew, R., "Understanding Chemical Composition and Phase Transitions of Ash from Field Returned DPF Units and Their Correlation with Filter Operating Conditions," SAE Int. J. Fuels Lubr. 9(1):239-259, 2016,  
<https://doi.org/10.4271/2016-01-0898>.
- (1-46) Yilmaz E, Tian T, Wong V, Heywood J. The Contribution of Different Oil Consumption Sources to Total Oil Consumption in a Spark Ignition Engine. SAE Technical Paper 2004-01-2909, 2004, <https://doi.org/10.4271/2004-01-2909>.
- (1-47) D.B. Kittelson, W.F. Watts, J.P. Johnson, On-road and laboratory evaluation of combustion aerosols—Part 1: Summary of diesel engine results, Journal of Aerosol Science, Volume 37, Issue 8, 2006, Pages 913-930, ISSN 0021-8502,  
<https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2005.08.005>.
- (1-48) Mayer A, Czerwinski J, Kasper M, Ulrich, A. Metal Oxide Particle Emissions from Diesel and Petrol Engines. SAE Technical Paper 2012-01-0841, 2012,  
<https://doi.org/10.4271/2012-01-0841>.

- (1-49) Anthi Liati, Daniel Schreiber, Panayotis Dimopoulos Eggenschwiler, and Yadira Arroyo Rojas Dasilva, Metal Particle Emissions in the Exhaust Stream of Diesel Engines: An Electron Microscope Study, *Environmental Science & Technology* 2013 47 (24), pp. 14495-14501, <https://doi.org/10.1021/es403121y>
- (1-50) Baldauf RW, Devlin RB, Gehr P, Giannelli R, Hassett-Sipple B, Jung H, Martini G, McDonald J, Sacks JD, Walker K. Ultrafine Particle Metrics and Research Considerations: Review of the 2015 UFP Workshop. *Int J Environ Res Public Health*. 2016 Oct 28;13(11):1054. doi: 10.3390/ijerph13111054. PMID: 27801854; PMCID: PMC5129264.
- (1-51) Mayer, A., Czerwinski, J., Kasper, M., Ulrich, A. et al., "Metal Oxide Particle Emissions from Diesel and Petrol Engines," SAE Technical Paper 2012-01-0841, 2012, <https://doi.org/10.4271/2012-01-0841>.
- (1-52) Kamp, C., Sappok, A., Wang, Y., Bryk, W. et al., "Direct Measurements of Soot/Ash Affinity in the Diesel Particulate Filter by Atomic Force Microscopy and Implications for Ash Accumulation and DPF Degradation," *SAE Int. J. Fuels Lubr.* 7(1):307-316, 2014, <https://doi.org/10.4271/2014-01-1486>.
- (1-53) Sappok, A., Govani, I., Kamp, C., Wang, Y. et al., "In-Situ Optical Analysis of Ash Formation and Transport in Diesel Particulate Filters During Active and Passive DPF Regeneration Processes," *SAE Int. J. Fuels Lubr.* 6(2):336-349, 2013, <https://doi.org/10.4271/2013-01-0519>.
- (1-54) Katsunori Hanamura et. al., Time-lapse Visualization of Ash Deposition in Diesel Particulate Filter, *自動車技術会論文集*, Vol.10 No.2, pp.213-218 (2019), [https://doi.org/10.20485/jsaeijae.10.2\\_213](https://doi.org/10.20485/jsaeijae.10.2_213)
- (1-55) Kamp, C., Sappok, A., and Wong, V., "Soot and Ash Deposition Characteristics at the Catalyst-Substrate Interface and Intra-Layer Interactions in Aged Diesel Particulate Filters Illustrated using Focused Ion Beam (FIB) Milling," *SAE Int. J. Fuels Lubr.* 5(2):696-710, 2012, <https://doi.org/10.4271/2012-01-0836>.
- (1-56) Nemoto, S., Kishi, Y., Matsuura, K., Miura, M. et al., "Impact of Oil-derived Ash on Continuous Regeneration-type Diesel Particulate Filter - JCAPII Oil WG Report," SAE Technical Paper 2004-01-1887, 2004, <https://doi.org/10.4271/2004-01-1887>.

- (1-57) Sappok, A., Rodriguez, R., and Wong, V., "Characteristics and Effects of Lubricant Additive Chemistry on Ash Properties Impacting Diesel Particulate Filter Service Life," SAE Int. J. Fuels Lubr. 3(1):705-722, 2010, <https://doi.org/10.4271/2010-01-1213>.
- (1-58) Kamp, C., Sappok, A., and Wong, V., "Uncovering Fundamental Ash-Formation Mechanisms and Potential Means to Control the Impact on DPF Performance and Engine Efficiency", DEER conference (2012),  
[https://www.energy.gov/sites/default/files/2014/03/f8/deer12\\_kamp.pdf](https://www.energy.gov/sites/default/files/2014/03/f8/deer12_kamp.pdf) (2021年8月検索)
- (1-59) 宮原哲順ほか, 建設機械用 Diesel Particulate Filter へのアッシュ堆積に関する一考察, 自動車技術会論文集, Vol.49 No.6, pp.1181-1186 (2018),  
<https://doi.org/10.11351/jsaeronbun.49.1181>
- (1-60) 松野真由美ほか, ディーゼルパーティキュレートフィルタ内のアッシュ堆積および輸送に関する研究(第4報) -アッシュ輸送の観察およびアッシュ堆積形態の詳細解析-, 自動車技術会論文集, Vol.50 No.6, pp.1523-1529 (2019),  
<https://doi.org/10.11351/jsaeronbun.50.1523>
- (1-61) Sappok, A., Santiago, M., Vianna, T., and Wong, V., "Characteristics and Effects of Ash Accumulation on Diesel Particulate Filter Performance: Rapidly Aged and Field Aged Results," SAE Technical Paper 2009-01-1086, 2009,  
<https://doi.org/10.4271/2009-01-1086>.
- (1-62) 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 Int. J. Fuels Lubr. 7(2):511-524, 2014,  
<https://doi.org/10.4271/2014-01-1517>.

- (2-1) 國廣隆紀, エンジン油の硫酸灰分の推算, 石油学会誌, Vol.35 No.6, pp.460-465 (1992), <https://doi.org/10.1627/jpi1958.35.460>
- (2-2) 松野真由美ほか, ディーゼルパーティキュレートフィルタ内のアッシュ堆積および輸送に関する研究(第2報) - 強制再生頻度がアッシュ堆積分布に及ぼす影響 -, 自動車技術会論文集, Vol.49 No.6, pp.1199-1204 (2018), <https://doi.org/10.11351/jsaeronbun.49.1199>
- (2-3) 堀口睦乃ほか, SEMによる測長, 日本化学工業株式会社 技術報告書 No.5 [https://www.nippon-chem.co.jp/dcms\\_media/other/cre2004-8.pdf](https://www.nippon-chem.co.jp/dcms_media/other/cre2004-8.pdf)
- (2-4) 粉体工学会編, 粉体工学ハンドブック, 朝倉書店, pp.4-6 (2014)
- (2-5) 椿淳一郎, 鈴木道隆, 神田良照, 入門 粒子・粉体工学 改訂第2版, 日刊工業新聞社, pp.27-28 (2016)
- (2-6) 三輪茂雄, 粉体工学通論, 日刊工業新聞社, pp.12-14 (1981)
- (2-7) 坂下攝, 色材技術者のための“粉体技術の基礎”第1章粉粒体の物理的性質, 色材協会誌, Vol.78 No.4, pp.168-184 (2005), <https://doi.org/10.4011/shikizai1937.78.168>
- (2-8) Theodore Hatch, Sarah P. Choate, Statistical description of the size properties of non uniform particulate substances, Journal of the Franklin Institute, Volume 207, Issue 3, 1929, Pages 369-387, ISSN 0016-0032, [https://doi.org/10.1016/S0016-0032\(29\)91451-4](https://doi.org/10.1016/S0016-0032(29)91451-4).
- (2-9) Theodore Hatch, Determination of “average particle size” from the screen-analysis of non-uniform particulate substances, Journal of the Franklin Institute, Volume 215, Issue 1, 1933, Pages 27-37, ISSN 0016-0032, [https://doi.org/10.1016/S0016-0032\(33\)90137-4](https://doi.org/10.1016/S0016-0032(33)90137-4).
- (2-10) Jost Heintzenberg, Properties of the Log-Normal Particle Size Distribution, Aerosol Science and Technology, Vol.21 No.1, pp.46-48 (1994), <https://doi.org/10.1080/02786829408959695>
- (2-11) Wurzenberger, J.C. et al.: Ash Transport and Deposition, Cake Formation and Segregation - A Modeling Study on the Impact of Ash on Particulate Filter Performance, SAE Technical Paper 2019-01-0988 (2019), <https://doi.org/10.4271/2019-01-0988>.
- (2-12) 椿淳一郎, 鈴木道隆, 神田良照, 入門 粒子・粉体工学 改訂第2版, 日刊工業新聞社, pp.184-186 (2016)
- (2-13) 三輪茂雄, 粉体工学通論, 日刊工業新聞社, pp.5-6 (1981)

- (2-14) 三輪茂雄, 粉体工学通論, 日刊工業新聞社, pp.76-79 (1981)
- (2-15) 薄井陽ほか, デーゼルパーティキュレートフィルタ内のアッシュ堆積および輸送に関する研究(第1報) -X線CT撮影によるアッシュ堆積密度分布の定量化-, 自動車技術会論文集, Vol.49 No.6, pp.1193-1198 (2018), <https://doi.org/10.11351/jsaeronbun.49.1193>
- (2-16) 虎谷秀穂, 粉末回折法を用いた新しい定量分析法の開発とパターンソン関数, Vol.60 No.2-3, pp.113-120 (2018), <https://doi.org/10.5940/jcrsj.60.113>
- (2-17) Sappok, A., Govani, I., Kamp, C., Wang, Y. et al., "In-Situ Optical Analysis of Ash Formation and Transport in Diesel Particulate Filters During Active and Passive DPF Regeneration Processes," SAE Int. J. Fuels Lubr. 6(2):336-349, 2013, <https://doi.org/10.4271/2013-01-0519>.
- (2-18) 辻将之ほか, 非球形ナノ粒子の生成・成長ダイナミクス, エアロゾル研究, 25 (4), pp.315-322 (2010), <https://doi.org/10.11203/jar.25.315>
- (2-19) A Schmidt-Ott, New approaches to in situ characterization of ultrafine agglomerates, Journal of Aerosol Science, Volume 19, Issue 5, 1988, Pages 553-563, ISSN 0021-8502, [https://doi.org/10.1016/0021-8502\(88\)90207-8](https://doi.org/10.1016/0021-8502(88)90207-8).
- (2-20) Paul S. Roller, The Bulking Properties of Microscopic Particles, Industrial & Engineering Chemistry, Vol.22 No.11 (1930), pp.1206-1208, <https://doi.org/10.1021/ie50251a031>
- (2-21) 鈴木道隆, 粉体の密充填におよぼす粒子物性の影響, 粉体工学会誌, Vol.40 No.5, pp.348-354 (2003), [https://www.jstage.jst.go.jp/article/sptj1978/40/5/40\\_5\\_348/article/-char/ja/](https://www.jstage.jst.go.jp/article/sptj1978/40/5/40_5_348/article/-char/ja/)

- (3-1) 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 Int. J. Fuels Lubr. 7(2):511-524, 2014,  
<https://doi.org/10.4271/2014-01-1517>.
- (3-2) 粉体工学会編, 粉体工学ハンドブック, 朝倉書店, pp.113-114 (2014)
- (3-3) 松坂修二, 微粉体の再飛散現象に関する研究, Ph.D. Thesis, pp.12-21 (1993)
- (3-4) 増田弘昭, 松坂修二, 生三俊哉, 矩形空気流路内微粉体層からの粒子の再飛散, 化学工学論文集, 第 11 巻, 第 1 号, pp.48-54 (1985),  
<https://doi.org/10.1252/kakoronbunshu.11.48>
- (3-5) 日本粉体工業技術協会編, JIS Z 8901 試験用粉体 1 説明書, pp.17-18,  
<http://appie.or.jp/wordpress/wp-content/uploads/2014/11/1JIS-1-20141106.pdf>  
(2021 年 8 月検索)
- (3-6) Rumpf, H., Zur Theorie der Zugfestigkeit von Agglomeraten bei Kraftübertragung an Kontaktpunkten. Chemie-Ingenieur-Technik (Cit), 42(8), pp.538-540 (1970),  
<https://doi.org/10.1002/cite.330420806>
- (3-7) 椿淳一郎, 鈴木道隆, 神田良照, 入門 粒子・粉体工学 改訂第2版, 日刊工業新聞社, pp.162-164 (2016)
- (3-8) Ridgway, K. and K. J. Tarbuck: Brit. Chem. Eng. 12, 384 (1967)
- (3-9) 椿淳一郎, 鈴木道隆, 神田良照, 入門 粒子・粉体工学 改訂第2版, 日刊工業新聞社, pp.43-45 (2016)
- (3-10) Yujun Wang, Carl J. Kamp, Yuesen Wang, Todd J. Toops, Changsheng Su, Ruoqian Wang, Jian Gong, Victor W. Wong, The origin, transport, and evolution of ash in engine particulate filters, Applied Energy, Volume 263, 2020, 114631, ISSN 0306-2619,  
<https://doi.org/10.1016/j.apenergy.2020.114631>.
- (3-11) Kamp, C., Sappok, A., Wang, Y., Bryk, W. et al., "Direct Measurements of Soot/Ash Affinity in the Diesel Particulate Filter by Atomic Force Microscopy and Implications for Ash Accumulation and DPF Degradation," SAE Int. J. Fuels Lubr. 7(1):307-316, 2014,  
<https://doi.org/10.4271/2014-01-1486>.
- (3-12) 粉体工学会編, 粉体工学叢書 1, 粉体の基礎物性, 日刊工業新聞社, pp.227-236 (2005)
- (3-13) 粉体工学会編, 粉体工学ハンドブック, 朝倉書店, pp.65-66 (2014)

- (3-14) J. Visser, On Hamaker constants: A comparison between Hamaker constants and Lifshitz-van der Waals constants, *Advances in Colloid and Interface Science*, Volume 3, Issue 4, 1972, Pages 331-363, ISSN 0001-8686,  
[https://doi.org/10.1016/0001-8686\(72\)85001-2](https://doi.org/10.1016/0001-8686(72)85001-2).
- (3-15) Lennart Bergström, Hamaker constants of inorganic materials, *Advances in Colloid and Interface Science*, Volume 70, 1997, Pages 125-169, ISSN 0001-8686,  
[https://doi.org/10.1016/S0001-8686\(97\)00003-1](https://doi.org/10.1016/S0001-8686(97)00003-1).
- (3-16) Alexandre Pierre, Christophe Lanos, Patrice Estellé, Arnaud Perrot, Rheological properties of calcium sulfate suspensions, *Cement and Concrete Research*, Volume 76, 2015, Pages 70-81, ISSN 0008-8846,  
<https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2015.05.017>.
- (3-17) 松坂修二, 微粉体の再飛散現象に関する研究, Ph.D. Thesis, pp.29-32 (1993)
- (4-1) 三輪茂雄: 平均径の計算法, 命名法と物理的意味について, 粉体工学研究会誌, Vol.3, No.3, pp.562-571 (1964)
- (5-1) 宮原哲順ほか, “堆積スートの酸化が Diesel Particulate Filter 流路内 Wall アッシュの粒子径と空隙率へ及ぼす影響” 自動車技術会論文集, Vol.52, No.4, pp.851-856 (2021)
- (5-2) 宮原哲順ほか, “Diesel Particulate Filter 流路内のアッシュ移動モデルの構築 – アッシュの粒子径, 空隙率, 透過率が移動に及ぼす影響 –” 自動車技術会論文集, Vol.52, No.1, pp.1924-2021 (2020)

## 謝 辞

多くの方々のご支援,ご協力により,ここに博士学位論文を完成させることができました.心より謝意を表します.

早稲田大学大学院創造理工学研究科総合機械工学専攻 草鹿 仁教授には,本論文の主査として,論文草稿段階より懇切丁寧なご指導を賜るとともに,物理現象の理解及びモデル化について多くの的確なご助言を戴きました.また,社会人博士課程学生として受け入れて戴き,本研究の実施機会を与えて戴きました.深く感謝の意を表します.同専攻 中垣 隆雄教授,滝沢 研二教授,松田 佑准教授には,副査として本論文の内容を深くご理解いただいたうえで,多くの学術的ご助言を戴きました.心より感謝申し上げます.早稲田大学次世代自動車研究機構 福間 隆雄客員教授には,主指導教員として,研究の計画段階より多くの有益なご指摘と暖かい激励を賜るとともに,企業エンジニアとしての視点から,数多くの貴重なご助言を戴きました.また本論文の副査としても,多くのご助言を戴きました.厚く御礼申し上げます.

本研究は,自動車用内燃機関技術研究組合(AICE)より委託を受けた研究事業の成果です.関係各位に深く謝意を表します.アッシュ生成原理解明研究 WG の WG リーダー 大久保 浩志氏,研究リーダー 北村 高明氏, WG サブリーダー 中村 圭介氏をはじめとした産学 WG メンバーの方々には,定例の研究進捗報告の際,いつも的確なご助言と暖かい励ましの言葉を戴きました.心より感謝申し上げます.また本研究の基礎となる DPG での実験データは, WG の学間連携として,日本自動車研究所(JARI)にて取得戴きましたが,同所研究員の松野 真由美氏には,多くのデータを提供戴き,データの背景や解析手法について数多くのご助言を戴きました.厚く御礼申し上げます.豊田通商システムズ株式会社の岩崎 渉氏には,DPF 汎用コード上での DPF 圧損モデル構築にあたり,モデルを深くご理解いただいたうえで,的確なサポートを戴きました.心より御礼申し上げます.産業技術総合研究所(AIST)の武田 好央氏には, WG での研究報告の際,幅広いご知見をもとに,常に的確なご指摘とご助言を戴きました.また,株式会社 アイ・ピー・エー在籍中は,会社の上司として, AICE 研究に産側メンバーとして参画する機会を与えて戴き,また企業エンジニアとしての学との関わり方をご指導戴きました.深く感謝申し上げます.株式会社東レリサーチセンター 国須 正洋氏には,アッシュの成分分析においてご協力を戴きました.心より感謝致します.早稲田大学 各務記念材料技術研究所 河原林 薫氏には,アッシュの SEM 観察においてご協力を戴きました.心より御礼申し上げます.

本研究は、同じ研究室の修了生、および在校生各位の協力無くしては推進することができませんでした。特に同じ研究班にて研究に従事頂いた森元 溪氏、松永 堯明氏、菅谷 裕大氏には、実験の実施に関して特に多くのご協力を戴きました。貴方のご協力無しには何一つ実験を遂行することが出来なかったと思います。心より感謝申し上げます。また実験の計画・実施に際し、各種研究設備や装置製作について種々ご支援、ご協力戴きました。草鹿研究室 リサーチエンジニア 石井 泉氏にも深く感謝申し上げます。

株式会社 アイ・ピー・エー 小野寺 康之社長(当時)、企画管理グループ 本多 伸久 GM、アフターリートメント研究開発グループ 日下部 明 GM(当時)には、社会人博士課程への入学と、本研究に取り組む機会を与えて戴きました。心より御礼申し上げます。また、制御性能開発グループ 神崎 芳樹 GMには、在学中の私の活動に対してご理解戴き、ご支援戴きました。厚く御礼申し上げます。

最後に、社会人博士課程への入学から本論文執筆まで、身勝手を赦し、応援し支えてくれた妻と子に、心より感謝の意を表します。

2022年2月

宮原 哲順

## 早稲田大学 博士（工学） 学位申請 研究業績書

氏名 宮原 哲順 印

(2021 年 12 月 現在)

| 種 類 別          | 題名, 発表・発行掲載誌名, 発表・発行年月, 連名者 (申請者含む)   |
|----------------|---|
| 投稿論文<br>(査読付き) | <p>○宮原 哲順, 福間 隆雄, 草鹿 仁, 松野 真由美, 北村 高明, “Diesel Particulate Filter 流路内のアッシュ移動モデルの構築 –アッシュの粒子径, 空隙率, 透過率が移動に及ぼす影響–” 自動車技術会論文集, Vol. 52, No. 1, pp. 1924-2021, 2020 年 11 月</p> <p>○宮原 哲順, 福間 隆雄, 草鹿 仁, 松野 真由美, 北村 高明, “堆積スートの酸化が Diesel Particulate Filter 流路内 Wall アッシュの粒子径と空隙率へ及ぼす影響” 自動車技術会論文集, Vol. 52, No. 4, pp. 851-856, 2021 年 7 月</p> |
| 学会口頭<br>発表・講演  | <p>○宮原 哲順, 福間 隆雄, 草鹿 仁, 松野 真由美, 北村 高明, “Diesel Particulate Filter 流路内のアッシュ移動モデルの構築 –アッシュの粒子径, 空隙率, 透過率が移動に及ぼす影響–” 2020 年自動車技術会秋季大会 2020 年 10 月</p> <p>○宮原 哲順, 福間 隆雄, 草鹿 仁, 松野 真由美, 北村 高明, “堆積スートの酸化が Diesel Particulate Filter 流路内 Wall アッシュの粒子径と空隙率へ及ぼす影響” 2021 年自動車技術会春季大会 2021 年 5 月</p>   |