

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第4246425号
(P4246425)

(45) 発行日 平成21年4月2日(2009.4.2)

(24) 登録日 平成21年1月16日(2009.1.16)

(51) Int.Cl.

F 1

B 0 1 D 39/20 (2006.01)
F 0 1 N 3/02 (2006.01)
B 0 1 D 46/00 (2006.01)B 0 1 D 39/20 D
F 0 1 N 3/02 3 0 1 C
B 0 1 D 46/00 3 0 2

請求項の数 8 (全 15 頁)

(21) 出願番号

特願2001-316913 (P2001-316913)

(22) 出願日

平成13年10月15日 (2001.10.15)

(65) 公開番号

特開2003-117322 (P2003-117322A)

(43) 公開日

平成15年4月22日 (2003.4.22)

審査請求日

平成16年7月20日 (2004.7.20)

(73) 特許権者 000004064

日本碍子株式会社

愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号

(74) 代理人 100088616

弁理士 渡邊 一平

(72) 発明者 市川 周一

愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号

日本碍子株式会社内

(72) 発明者 桧川 直

愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号

日本碍子株式会社内

審査官 中村 泰三

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】ハニカムフィルター

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

隔壁により仕切られた、軸方向に貫通する多数の流通孔を有する複数のハニカムセグメントが接合材を介して接合一体化されてなるハニカムフィルターであって、前記接合材の熱伝導率 a に対する前記ハニカムセグメントの熱伝導率 s の比、 s / a が $5 \sim 300$ の範囲内であって、かつ前記接合材の密度 a が $0.1 \sim 4 \text{ g / c.c.}$ の範囲にあり、熱伝導率 a 及び比熱 $C_p a \times$ 密度 a で表される単位体積当たりの熱容量 H_a の一方又は両方が異なる 2 以上の接合材を、それぞれ別の領域に含むことを特徴とするハニカムフィルター。

【請求項 2】

前記接合材の、比熱 $C_p a \times$ 密度 a で表される単位体積当たりの熱容量 H_a が、 $0.1 \times 10^6 \sim 3 \times 10^6 \text{ J / m}^3 \cdot \text{K}$ の範囲にあることを特徴とする請求項 1 に記載のハニカムフィルター。

【請求項 3】

接合材が、その原料中に添加された造孔材により形成された気孔を有することを特徴とする請求項 1 又は 2 に記載のハニカムフィルター。

【請求項 4】

接合材が金属を含むことを特徴とする請求項 1 乃至 3 の何れか 1 項に記載のハニカムフィルター。

【請求項 5】

10

20

接合材の熱膨張率が、 $1 \times 10^{-6} \sim 8 \times 10^{-6}$ / の範囲であることを特徴とする請求項 1 乃至 4 の何れか 1 項に記載のハニカムフィルター。

【請求項 6】

ハニカムセグメントが、炭化珪素又は珪素 - 炭化珪素複合材料を主成分とする特徴とする請求項 1 乃至 5 の何れか 1 項に記載のハニカムフィルター。

【請求項 7】

ハニカムセグメントにおける所定の流通孔の開口部が一の端面において封止され、残余の流通孔の開口部が他の端面において封止されていることを特徴とする請求項 1 乃至 6 の何れか 1 項に記載のハニカムフィルター。

【請求項 8】

ハニカムフィルターの 70 容量 % 以上が、断面積が $900 \text{ mm}^2 \sim 10000 \text{ mm}^2$ であるハニカムセグメントから構成されていることを特徴とする請求項 1 乃至 7 の何れか 1 項に記載のハニカムフィルター。

10

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、内燃機関、ボイラー等の排ガス中の微粒子捕集フィルター等に用いられるハニカムフィルターに関し、特に温度の過度の上昇を抑制でき、温度分布のばらつきが少なく耐久性に優れたハニカムフィルターに関する。

【0002】

20

【従来の技術】

内燃機関、ボイラー等の排ガス中の微粒子、特にディーゼル微粒子の捕集フィルター等にハニカムフィルターが用いられている。

【0003】

この様な目的で使用されるハニカムフィルターは、一般に、図 6 に示すように、隔壁 2 により仕切られた、X 軸方向に貫通する多数の流通孔 3 を有し、端面が市松模様状を呈するよう、隣接する流通孔 3 が互いに反対側となる一方の端部で封止された構造を有する。この様な構造を有するハニカムフィルターにおいて、被処理流体は流入口側端面 4 2 が封止されていない流通孔 3、即ち流出口側端面 4 4 が封止されている流通孔 3 に流入し、多孔質の隔壁 2 を通って隣の流通孔 3、即ち流入口側端面 4 2 が封止され、流出口側端面 4 4 が封止されていない流通孔 3 から排出される。この際隔壁 2 がフィルターとなり、例えばディーゼルエンジンから排出されるスト (スス) などが隔壁に捕捉され隔壁上に堆積する。この様に使用されるハニカムフィルターは、排気ガスの急激な温度変化や局所的な発熱によってハニカム構造内の温度分布が不均一となり、ハニカムフィルターにクラックを生ずる等の問題があった。特にディーゼルエンジンの排気中の粒子状物質を捕集するフィルター (以下 DPF という) として用いられる場合には、溜まったカーボン微粒子を燃焼させて除去し再生することが必要であり、この際に局所的な高温化がおこり、再生温度の不均一化による再生効率の低下及び大きな熱応力によるクラックが発生しやすいという問題があった。また、再生時の温度分布が均一でないために、フィルター全体にわたり最適温度とすることが難しく、再生効率の向上を図ることが困難であった。

30

【0004】

このため、ハニカムフィルターを複数に分割したセグメントを接合材により接合する方法が提案された。例えば、米国特許第 4335783 号公報には、多数のハニカム体を不連続な接合材で接合するハニカム構造体の製造方法が開示されている。また、特公昭 61-51240 号公報には、セラミック材料よりなるハニカム構造のマトリックスセグメントを押出し成形し、焼成後その外周部を加工して平滑にした後、その接合部に焼成後の鉱物組成がマトリックスセグメントと実質的に同じで、かつ熱膨張率の差が 800 において 0.1 % 以下となるセラミック接合材を塗布し、焼成する耐熱衝撃性回転蓄熱式が提案されている。また、1986 年の SAE 論文 860008 には、コーチェライトのハニカムセグメントを同じくコーチェライトセメントで接合したセラミックハニカム構造体が開示

40

50

されている。さらに特開平8-28246号公報には、ハニカムセラミック部材を少なくとも三次元的に交錯する無機纖維、無機バインダー、有機バインダー及び無機粒子からなる弾性質シール材で接着したセラミックハニカム構造体が開示されている。また、熱伝導率の高く、耐熱性の高い炭化珪素系の材料等を用いてハニカムフィルターを作ることにより局所的な高温化を防止し、熱応力によるハニカムフィルターの破損を防止することも試みられている。

【0005】

しかしながらセグメント化することにより、及び／又は炭化珪素系の材料のように耐熱性の高い材料を用いることにより熱応力による破損はある程度抑制できるものの、ハニカムフィルターの外周部と中心部の温度差を解消することはできず、均一な再生による耐久性の向上という点では不十分であった。また、再生時における局所的な発熱が生じる場合もあった。

【0006】

また、特開2001-162119公報には、シール材（接合材）層の厚さが0.3～5mmであって、かつその熱伝導率0.1～10W/mkのセラミックフィルタ集合体とすることで、全体の温度を均一化し部分的な燃え残りが生じにくいフィルターが開示されている。しかしながら接合材の厚さと熱伝導率を一定範囲にすることにより、部分的な燃え残りをなくしストの再生効率を上げることはできるものの、局所的に高温発熱したときに発生する温度勾配を抑制し熱応力を抑えるには十分ではなく、スト再生可能な限界スト量の向上という点では不十分であった。また同公報に開示されているように接合材の厚みを変えることで接合材の熱伝導率や熱容量を調整することはできるが、接合材の厚みを増していくとフィルターの有効面積を減少させ、スト付圧力損失の特性が低下するという別の不具合を生じるため、低熱伝導率、高熱容量とフィルターの圧力損失は、接合材の厚みで制御しようとすると背反特性となり、実際にフィルターに適用可能なシール厚さには限界がある。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】

本発明はこのような事情に鑑みてなされたものであり、その目的とするところは、接合材の厚みを特に変えなくても、温度の過度な上昇を抑制でき、耐久性に優れたハニカムフィルターを提供することにある。

【0008】

【課題を解決するための手段】

本発明は、隔壁により仕切られた、軸方向に貫通する多数の流通孔を有する複数のハニカムセグメントが接合材を介して接合一体化されてなるハニカムフィルターであって、前記接合材の熱伝導率 a に対する前記ハニカムセグメントの熱伝導率 s の比、 s/a が5～300の範囲内であって、かつ前記接合材の密度 a が0.1～4g/ccの範囲にあり、熱伝導率 a 及び比熱 $C_p a \times$ 密度 a で表される単位体積当たりの熱容量 H_a の一方又は両方が異なる2以上の接合材を、それぞれ別の領域に含むことを特徴とするハニカムフィルターを提供するものである。

【0009】

本発明において、前記接合材の、比熱 $C_p a \times$ 密度 a で表される単位体積当たりの熱容量 H_a が、 $0.1 \times 10^6 \sim 3 \times 10^6 \text{ J/m}^3 \cdot \text{K}$ の範囲にあることが好ましい。また、接合材が、その原料中に添加された造孔材により形成された気孔を有することが好ましく、接合材が金属を含むことが好ましい。さらに、接合材の熱膨張率が、 $1 \times 10^{-6} \sim 8 \times 10^{-6} / \text{K}$ の範囲であることが好ましい。また、ハニカムセグメントが、炭化珪素又は珪素-炭化珪素複合材料を主成分とすることが好ましい。さらに、本発明のハニカムセグメントにおける所定の流通孔の開口部が一の端面において封止され、残余の流通孔の開口部が他の端面において封止されていることが好ましく、ハニカムフィルターの70容量%以上が、断面積が $900 \text{ mm}^2 \sim 10000 \text{ mm}^2$ であるハニカムセグメントから構成されていることが好ましい。

10

20

30

40

50

【0010】

【発明の実施の形態】

以下、図面に従って、本発明のハニカムフィルターを詳細に説明するが、本発明は以下の実施形態に限定されるものではない。なお、以下において断面とは、特に断りのない限り流通孔方向（X軸方向）に対する垂直の断面を意味する。

【0011】

本発明のハニカムフィルター1は、例えば図1(a)、(b)及び(c)に示すように、隔壁2により仕切られた、X軸方向に貫通する多数の流通孔3を有する複数のハニカムセグメント12が接合材8を介して接合一体化されてなるハニカムフィルターである。

【0012】

本発明の重要な特徴は、接合材8の熱伝導率aに対するハニカムセグメント12の熱伝導率sの比、即ちs/aが5~300、好ましくは8~280、さらに好ましくは10~250の範囲内であって、かつ接合材8の密度aが0.1~4g/cc、好ましくは0.3~3.5g/cc、さらに好ましくは0.5~3.0g/ccの範囲にあることである。この様な範囲に制御することにより、ハニカムフィルターの過度の温度上昇及び/又は温度勾配を抑制することができ耐久性が向上する。特にハニカムフィルターをDPFに用いた際の再生時における最高温度及び/又は温度勾配を抑制することができ耐久性に優れたハニカムフィルターとすることができます。

【0013】

例えば、ハニカムフィルターをDPFに用いた場合、フィルター内にストートが堆積するが、堆積ストート量が増大していくと、再生時に生じる発熱量は大きくなつてゆき、生じる最高温度、発生する温度勾配が増大し、熱応力が大きくなる。この様な場合に、温度勾配を制御し、熱応力の発生を抑制するためには、単にハニカムセグメント12、あるいは接合材8の熱伝導率を制御するのではなく、接合材8の熱伝導率aに対するハニカムセグメント12の熱伝導率sの比、即ちs/a値を制御することが重要である。s/a値が小さすぎると接合材8が断熱層として寄与しないために接合材8を介して隣のハニカムセグメントに熱が伝わる効果によりハニカムセグメント内における温度勾配が大きくなる傾向が生じる。一方でs/a値が大きすぎるとハニカムセグメント12に対して接合材8の熱伝導率が小さすぎるために接合材8に生じる温度勾配が大きくなりすぎ接合材8にクラックが生じやすくなり、場合によってはハニカムフィルターの破損に到る。

【0014】

また併せて接合材8の密度aが小さすぎると接合材8の熱伝導率の値に依らず、接合材8が断熱層として寄与しにくくなるために、接合材8を介して隣のセグメントに熱が伝わる効果によりセグメント内に生じる温度勾配が大きくなる。一方で接合材8の密度aが大きすぎると接合材8内部に生じる温度勾配が大きくなりすぎ接合材8にクラックが生じやすくなる。従って、s/a値及びaの値を上記本発明の範囲に制御することにより、耐久性に優れたハニカムフィルターとすることができます。

【0015】

本発明において、ハニカムセグメント12の熱伝導率sとは、ハニカムセグメント12の隔壁2及び外周壁7の平均の熱伝導率を意味し、流通孔3は含まない。また、接合材8の熱伝導率aに対するハニカムセグメント12の熱伝導率sの比、即ちs/aは、ハニカムフィルター1中の各ハニカムセグメント12の熱伝導率sの平均と接合材8の熱伝導率の平均との比率を意味する。

【0016】

また、本発明において、接合材8の単位体積当たりの熱容量H_aが小さすぎると接合材8が断熱層として寄与しにくくなるために接合材8を介して隣のハニカムセグメント12に熱が伝わりやすくなり、ハニカムセグメント12内の温度勾配が生じやすくなる。一方でH_aが大きすぎると接合材8内部に生じる温度勾配が大きくなりやすくなり接合材8にクラックが生じやすくなる。従って、接合材8の、比熱C_pa×密度aで表される単位体積当たりの熱容量H_aは、0.1×10⁶~3×10⁶J/m³·Kの範囲にあることが

10

20

30

40

50

好ましく、 $0.3 \times 10^6 \sim 2.5 \times 10^6 \text{ J/m}^3 \cdot \text{K}$ の範囲にあることがさらに好ましく、 $0.6 \times 10^6 \sim 2.0 \times 10^6 \text{ J/m}^3 \cdot \text{K}$ の範囲にあることが最も好ましい。

【0017】

ハニカムセグメントの材質や気孔率、接合材の材質等を適切に選択することにより、 s/a の値及び a の値を、本発明の範囲に制御することができる。 s/a の値及び a の値の具体的な好ましい制御手段としては、接合材が、ある設定された気孔を有する構成とし、接合材の密度を狙いとする値に下げることが挙げられる。この手段によれば、単位体積当たりの熱容量 H_a 、密度 a 及び熱伝導率 a を同時に下げる方向に調整することができる。接合材が気孔を有する構成とするためには、例えば接合材を形成する際に、接合材の原料に一定体積の空孔を予め含有する造孔材を添加する方法が挙げられる。好適な造孔材としてはバルーン状の発泡樹脂、シラスバルーン等の、各種無機、有機材質の中空粒子などが挙げられる。また接合後に熱処理の工程を設けることが可能であれば、所定温度で焼失あるいは溶融することによって気孔を形成するデンプン、セルロース、各種無機、有機材質の粒子を造孔材として添加する方法もある。

【0018】

s/a 値及び a の値の別の好ましい制御手段としては、接合材が金属纖維、粒子等の金属を含む構成とすることが挙げられる。この手段によれば、熱伝導率、熱容量及び密度を同時に上げる方向に調整することができる。好ましい金属としては銅、ステンレスなど、特に好ましくはこれらの纖維状物等が挙げられる。また、 s/a の値及び a の値のさらに別の好ましい制御手段としては、接合材が、高比重材、例えば珪酸ジルコニアム、ジルコニアなどを含む構成とすることが挙げられる。この手段によれば、熱容量のみを上げて熱伝導率を下げるという方向に調整することができる。

【0019】

ハニカムセグメントを形成する際の原料組成や原料の粒径等を変化させることにより、 s を変化させ、 s/a 値を適切な範囲にすることもできる。例えば、ハニカムセグメントの原料として造孔剤を用いることにより、気孔率を大きくし、熱伝導率を下げることができ、ハニカムセグメントの構成材料として金属珪素と炭化珪素を用いた場合には、金属珪素の比率を大きくすることにより熱伝導率を上げることができる。

これらの手段を適宜選択し又は組み合わせて用いることにより本発明のハニカムセグメントを好適に製造することができる。

【0020】

また、本発明のハニカムフィルターが、熱伝導率 a 及び単位体積当たりの熱容量 H_a の一方又は両方が異なる 2 以上の接合材を含むことも好ましい。例えば、D P F として使用する場合、発熱が大きいのはハニカムフィルター内の特に中央部である。従って、例えば図 2 に示すように、中央部に熱伝導率が小さく単位体積当たりの熱容量の小さい接合材 8 A、外周部には熱伝導率 a が高く熱容量 H_a の大きい接合材 8 B を用いることにより、中央部の温度上昇が抑制され、ハニカムフィルター内の温度分布がより均一となる。この様に、フィルター内の必要特性に応じて異なる接合材を用いてハニカムセグメント同士を接合し、フィルター内の温度勾配を制御することで、ハニカムフィルターの耐久性をより向上させることができる。この組み合わせに特に制限はなく、ハニカムフィルターの構造や使用される状況等に応じて、ハニカムフィルター全体の温度分布が均一になるように、

a 及び / 又は H_a が異なる複数の接合材を組み合わせることができる。 a 及び / 又は H_a が異なる接合材は、上記、造孔剤、金属及び高比重材などを用いた手段で作ることができる。

【0021】

本発明のハニカムフィルターにおける接合材としては熱膨張が大きいと熱衝撃などでクラックを生じやすいために、熱膨張率が比較的低いものが好ましい。接合剤の 20 ~ 80 0 の範囲における熱膨張率は、 $1 \times 10^{-6} \sim 8 \times 10^{-6} /$ の範囲が好ましく、 $1.5 \times 10^{-6} \sim 7 \times 10^{-6} /$ の範囲がさらに好ましく、 $2 \times 10^{-6} \sim 6 \times 10^{-6} /$ の範囲が最も好ましい。また、接合材とハニカムセグメントとの熱膨張係数の差が大きすぎると

加熱・冷却時において接合部に熱応力が集中するため好ましくない。接合材とハニカムセグメントとの20から800までの熱膨張係数の差は、好ましくは 1×10^{-6} /以下である。接合材は、セラミックスを主成分としたものが通常は好適に用いられる。接合材を形成するための原料としては、例えば珪酸アルミニウム、リン酸アルミニウム等の粒子又は纖維とコロイダルシリカ、コロイダルアルミナ等のコロイダルゾルの混合物に、先に述べたように必要特性に応じて金属纖維等の金属、造孔材、各種セラミックスの粒子などが用いられる。

【0022】

本発明において、ハニカムセグメントの主成分は、強度、耐熱性等の観点から、コージェライト、ムライト、アルミナ、スピネル、炭化珪素、炭化珪素-コージェライト系複合材料、珪素-炭化珪素系複合材料、窒化珪素、リチウムアルミニウムシリケート、チタン酸アルミニウム、Fe-Cr-Al系金属及びこれらの組み合わせよりなる群から選ばれる少なくとも1種の材料からなることが好ましいが、熱伝導率及び耐熱性の点で、炭化珪素又は珪素-炭化珪素複合材料が特に適している。ここで、「主成分」とは、ハニカムセグメントの50質量%以上、好ましくは70質量%以上、さらに好ましくは80質量%以上を構成することを意味する。また、本発明において、ハニカムセグメントが金属珪素(Si)と炭化珪素(SiC)の複合材料を主成分とする場合、ハニカムセグメントのSi/(Si+SiC)で規定されるSi含有量が少なすぎるとSi添加の効果が得られにくくなり、50質量%を超えるとSiCの特徴である耐熱性、高熱伝導性の効果が得られにくくなる。従ってSi含有量は、5~50質量%であることが好ましく、10~40質量%であることがさらに好ましい。

【0023】

本発明において、ハニカムセグメントの隔壁は、フィルターの役割を果たす多孔質体であることが好ましい。隔壁の厚さに特に制限はないが、隔壁が厚すぎると多孔質の隔壁を被処理流体が透過する際の圧力損失が大きくなりすぎ、隔壁が薄すぎるとフィルターとしての強度が不足し各々好ましくない。隔壁の厚さは、好ましくは30~2000μm、さらに好ましくは40~1000μm、最も好ましくは50~500μmの範囲である。

【0024】

本発明において、ハニカムセグメントのセル密度(単位断面積当たりの流通孔の数)に特に制限はないが、セル密度が小さすぎると、フィルターとしての強度及び有効GSA(幾何学的表面積)が不足し、セル密度が大きすぎると、被処理流体が流れる場合の圧力損失が大きくなる。セル密度は、好ましくは、6~2000セル/平方インチ(0.9~311セル/cm²)、さらに好ましくは50~1000セル/平方インチ(7.8~155セル/cm²)、最も好ましくは100~400セル/平方インチ(15.5~62.0セル/cm²)の範囲である。また、流通孔の断面形状(セル形状)に特に制限はないが、製作上の観点から、三角形、四角形、六角形及びコルゲート形状のうちのいずれかであることが好ましい。

【0025】

本発明において、ハニカムセグメントの大きさに制限はないが、各セグメントが大きすぎると、熱応力による破損の問題が生じ、小さすぎると各セグメントの製造や接合による一体化が煩雑となり好ましくない。好ましいハニカムセグメントの大きさは、断面積が900mm²~10000mm²、さらに好ましくは900mm²~5000mm²、最も好ましくは900mm²~3600mm²であり、ハニカムフィルターの70容量%以上が、この大きさのハニカムセグメントから構成されていることが好ましい。ハニカムセグメントの形状に特に制限はないが、例えば図1(a)に示すように断面形状が四角形状、即ちハニカムセグメントが四角柱状であるものを基本形状とし、図1(b)、(c)に示すように一体化した場合のハニカムフィルターの形状に合わせて外周側のハニカムセグメントの形状を適宜選択することができる。

【0026】

本発明のハニカムフィルターの断面形状は特に制限はなく、例えば図2に示すような円形

10

20

30

40

50

状の他、橢円形状、レーストラック形状、長円形状、三角、略三角、四角、略四角形状などの多角形状や異形形状とすることができます。また、ハニカムフィルター全体の熱伝導率に特に制限はないが、熱伝導率が高すぎると本発明のハニカムフィルターであっても放熱が大きすぎて、再生時に十分に温度が上昇せず再生効率が低下するため好ましくない。また、熱伝導率が低すぎると放熱が少なすぎるために温度上昇が大きすぎて好ましくない。40 における熱伝導率は好ましくは、10 ~ 60 W / m K、さらに好ましくは15 ~ 55 W / m K、最も好ましくは20 ~ 50 W / m Kである。

【0027】

本発明におけるハニカムセグメント12は、特にDPFとして用いる場合には、図3に示すように、所定の流通孔3aの開口部が一の端面46において封止され、残余の流通孔3bの開口部が他の端面48において封止されていることが好ましい。特に、図3に示すように、端面46及び48が市松模様状を呈するように、隣接する流通孔3が互いに反対側となる一方の端部で封止されていることが好ましい。この様に封止することにより、例えば一の端面46から流入した被処理流体は隔壁2を通って、他の端面48から流出し、被処理流体が隔壁2を通る際に隔壁2がフィルターの役目をはたし、目的物を除去することができる。

【0028】

封止に用いる材料としては、上述のハニカムセグメントに好適に用いることができるセラミックス又は金属として挙げたものの中から選択された1種又は2種以上の材料を好適に用いることができる。

【0029】

本発明のハニカムフィルターを、触媒担体として内燃機関等の熱機関若しくはボイラ等の燃焼装置の排気ガスの浄化、又は液体燃料若しくは気体燃料の改質に用いようとする場合、本発明のハニカムフィルターに触媒、例えば触媒能を有する金属を担持させることが好ましい。触媒能を有する金属の代表的なものとしては、Pt、Pd、Rhが挙げられ、これらのうちの少なくとも1種をハニカムフィルターに担持させることが好ましい。

【0030】

つぎに本発明のハニカムフィルターの製造方法を説明する。

ハニカムフィルターの原料粉末として、前述の好適な材料、例えば炭化珪素粉末を使用し、これにバインダー、例えばメチルセルロース及びヒドロキシプロポキシルメチルセルロースを添加し、さらに界面活性剤及び水を添加し、可塑性の坏土を作製する。この坏土を押出成形することにより、所定の形状を有するハニカムセグメントを得る。

これを、例えばマイクロ波及び熱風で乾燥後、端面が市松模様状を呈するように、隣接する流通孔3が互いに反対側となる一方の端部でハニカムフィルターの製造に用いた材料と同様の材料で封止し、さらに乾燥した後、例えばN₂雰囲気中で加熱脱脂し、その後Ar等の不活性雰囲気中で焼成することにより所定の熱伝導率sのハニカムセグメントを得る。得られたセグメントを、例えば、造孔剤、金属纖維などの金属、高比重材等を含むセラミックセメント等の接合材原料を用いて接合した後、200で乾燥硬化し、ハニカムフィルターを得ることができる。

【0031】

この様にして製造されたハニカムフィルターに触媒を担持させる方法は、当業者が通常行う方法でよく、例えば触媒スラリーをウォッシュコートして乾燥、焼成することにより触媒を担持させることができる。また、ハニカムセグメントに触媒を担持させてから接合し、ハニカムフィルターとしても良く、ハニカムフィルターとしてから触媒を担持させても良い。

【0032】

【実施例】

以下、本発明を実施例に基づいてさらに詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

【0033】

10

20

30

40

50

(ハニカムセグメントの作製)

原料として、SiC粉及び金属Si粉、及び造孔材としてポリメタクリル酸メチルを表1に示す質量割合で混合し、これにメチルセルロース及びヒドロキシプロポキシルメチルセルロース、界面活性剤及び水を添加して、可塑性の坏土を作製した。この坏土を押出成形し、マイクロ波及び熱風で乾燥して隔壁の厚さが380μm、セル密度が約31.0セル/cm²(200セル/平方インチ)、断面が一辺35mmの正方形、長さが152mmのハニカムセグメントを得た。これを、端面が市松模様状を呈するように、隣接する前記流通孔が互いに反対側となる一方の端部でハニカムフィルターの製造に用いた材料と同様の材料で封止して、乾燥させた後、大気雰囲気中約400℃で脱脂し、その後Ar不活性雰囲気中で約1450℃で焼成して、Si結合SiCのハニカムフィルターのセグメントA及びBを得た。

【0034】

ハニカムセグメントA及びBの気孔率、4点曲げ強度、ヤング率及び熱伝導率を測定し、その結果も表1に示した。気孔率はアルキメデス法にて測定した。また、熱伝導率はJIS R 1611に記載の方法に準拠してレーザーフラッシュ法にて測定した。4点曲げ強度は及びヤング率は、JIS R 1601に準拠した方法にて測定した。

【0035】

【表1】

ハニカム セグメント	SiC粉体平均 粒径[μ m]	SiC粉末配合 量[質量部]	金属Si平均 粒径[μ m]	金属Si配合 量[質量部]	造孔材平均 径[μ m]	造孔材配合 量[質量部]	平均細孔径 [μ m]	気孔率 [%]	4点曲げ 強度 [MPa]	ヤング率 [GPa]	熱伝導率 [W/mK]
A	50	70	4	30	—	—	15	40	35	25	40
B	32.6	80	4	20	12	20	10	55	12	10	12

【0036】

(接合材原料の調製)

表2に示す組成で、平均径100 μ mのアルミニノシリケート質纖維、平均径100 μ mの炭化珪素粉体、珪酸ジルコニアム、無機バインダーとしてコロイダルシリカ40質量%水溶液及び粘土を混合、水を加えてミキサーを用いて30分間混練を行い、接合材原料1～5を調製した。ここで接合材原料2、3は造孔材として発泡樹脂を、接合材原料4では金

10

20

30

40

50

属纖維として長さ 1 mm の Cu 繊維を添加したものである。また炭化珪素にかえて珪酸ジルコニウムを用いたものを接合材原料 6 、アルミノシリケート質纖維及び炭化珪素にかえて、珪酸ジルコニウム及びコロイダルシリカを用いて調製したものを接合材原料 7 とした。接合材原料 1 ~ 7 を 200 °C で乾燥硬化させて、各々接合材 1 ~ 7 とした後の熱伝導率、密度及び熱容量を測定し、その結果を表 3 に示した。熱伝導率は JIS R 1611 に記載の方法に準拠してレーザーフラッシュ法にて測定した。熱容量は JIS R 1611 に準拠してレーザーフラッシュ法にて比熱容量を測定、さらにアルキメデス法によって密度を測定し、両者の積を熱容量として求めた。

【 0037 】

【表 2 】

10

接合材原料	アルミニシリケート繊維[質量%]	炭化珪素[質量%]	珪酸ジルコニウム[質量%]	コロイダルシリカ[質量%]	粘土[質量%]	水[質量%]	Cu繊維[質量%]	発泡樹脂[質量%]
1	32	37	—	20	1	10	—	—
2	28	27	—	27	1	9	—	8
3	24	24	—	24	1	8	—	19
4	27	33	—	16	1	8	15	—
5	—	69	—	27	1	3	—	—
6	27	—	46	18	1	8	—	—
7	—	—	50	29	1	20	—	—

【0038】
【表3】

10

20

30

40

接合材	熱伝導率 [W/mK]	密度[g/cc]	熱膨張係数 [×10 ⁻⁶ /°C]	熱容量(Ha)×10 ⁻⁶ [J/m ³ .K]
1	0.9	1.7	3.2	1.3
2	0.2	1	2.8	0.8
3	0.05	0.6	2.5	0.5
4	2	2	3.8	1.8
5	3.5	1.9	3.6	1.3
6	0.3	1.3	3.5	1.4
7	0.1	4.3	3.3	3.1

10

【0039】

(実施例1～5及び比較例1～3)

上記の操作により得られたハニカムセグメントA、B及び接合材原料1～7を表4に示す組み合わせで用い、ハニカムセグメントを接合して200で乾燥硬化させた後、切削により、図4に示す、直径144mm、長さ152mmのDPF用の円柱状のハニカムフィルターを得た。作製したハニカムフィルターを、直噴式3リットルディーゼルエンジンの排気管に接続し、30ppmのローディア社製Ce燃料添加剤を含有する軽油を用いてエンジンを運転し、規定量のストート(スス)をフィルターに溜めた後、続けてプロパンガスバーナーにてハニカムフィルターを600に昇温させ、バイパスバルブの切り替えによりハニカムフィルター内を18%の酸素濃度としストートを再生した。ストートの量を4g/リットルから2g/リットルずつ増やしていく、顕微鏡観察においてフィルター端面にクラックが認められた時点の捕集堆積ストート量を限界ストート量とし、その結果を表4に示した。表4に示すように、実施例1～5で得られたハニカムフィルターは、本発明のs/a値及びHa値を示すものであり、本発明の範囲外のs/a値及びHa値を示す比較例1～3で得られたハニカムフィルターに比べて、限界ストート量の値が大きく耐久性において明らかに優れていることがわかる。

20

【0040】

30

【表4】

	ハニカム セグメント	接合材	$\kappa s / \kappa a$	$Ha \times 10^{-6} [J/m^3K]$	限界ストート堆積量 [g/リットル]	サンプル外観
実施例1	A	1	44	0.9	10	マイクロクラック
実施例2	A	2	200	0.2	12	マイクロクラック
実施例3	A	5	11	1.9	12	マイクロクラック
実施例4	B	3	240	0.6	12	マイクロクラック
実施例5	B	4	6	1.8	10	マイクロクラック
比較例1	A	3	800	0.5	6	接合材内クラック
比較例2	B	5	4.3	1.3	6	45度方向クラック
比較例3	A	7	400	3.1	4	接合材内クラック

40

【0041】

(実施例6、7)

図5に示すように、接合材8A(中心を通る十字状の接合材の部分)と接合材8B(周辺部)の接合材を表5に示すような組み合わせの接合材とした以外は実施例1と同様の方法で、ハニカムフィルターを作成し、実施例1と同様の方法で限界ストート堆積量を測定した。結果は、表5に示すように、周辺部に熱伝導率、熱容量の値の小さい接合材を用いる

50

ことにより、温度分布がより生じにくい方向になり、接合材として1種類の接合材のみを用いた実施例1、3と比較して限界ストップ量が1ランク上がり、さらに耐久性が増した。

【0042】

【表5】

	基材	接合材8A (十字部)	接合材8B (周辺部)	$\kappa_s / \kappa_a(8A)$	$\kappa_s / \kappa_a(8B)$	限界ストップ堆積量 [g/リットル]
実施例6	A	1	2	44	200	14
実施例7	A	5	2	11	200	14

10

【0043】

【発明の効果】

以上述べてきたように本発明のハニカムフィルターは、接合材の熱伝導率 a に対する前記ハニカムセグメントの熱伝導率 s の比、 s / a が 5 ~ 300 の範囲内であって、かつ前記接合材の密度 a が 0.1 ~ 4 g / cc の範囲にあるので、良好な耐久性を示した。なお、本発明のハニカムフィルターは DPF に特に好適に用いられるが、本発明の効果は、フィルターの過度の温度上昇を抑え、フィルター内の温度分布を均一にすることにあり、その用途は DPF だけには限られない。

【図面の簡単な説明】

【図1】 (a) は本発明に係るハニカムセグメントの一形態を示す模式的な斜視図、 (b) は、本発明のフィルターの一形態を示す模式的な斜視図、 (c) は本発明のハニカムフィルターの一形態を示す模式的な平面図である。

20

【図2】 本発明のハニカムフィルターの別の形態を示す模式的な平面図である。

【図3】 本発明に係るハニカムセグメントの別の実施形態を示す模式的な斜視図である。

【図4】 実施例1 ~ 5において作成された本発明のハニカムフィルターを示す模式的な平面図である。

【図5】 実施例6、7において作成された本発明のハニカムフィルターを示す模式的な平面図である。

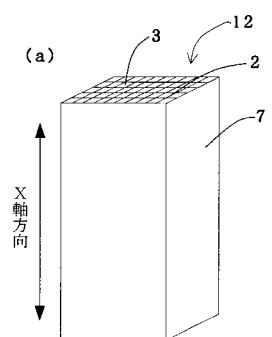
【図6】 従来のハニカムフィルターを示す模式的な斜視図である。

30

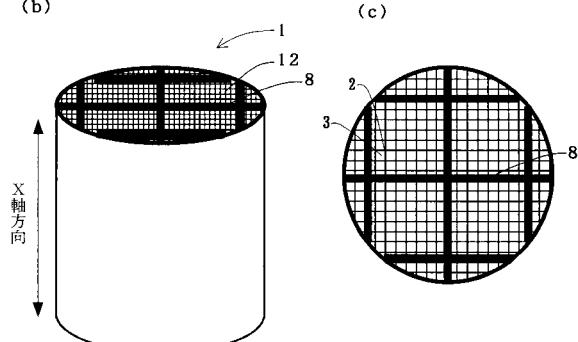
【符号の説明】

1 ... ハニカムフィルター、 2 ... 隔壁、 3、 3a、 3b ... 流通孔、 7 ... 外周壁、 8、 8A、 8B ... 接合材、 12 ... ハニカムセグメント、 42 ... 流入口側端面、 44 ... 流出口側端面、 46、 48 ... 端面。

【図1】

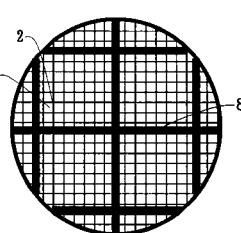


(a)

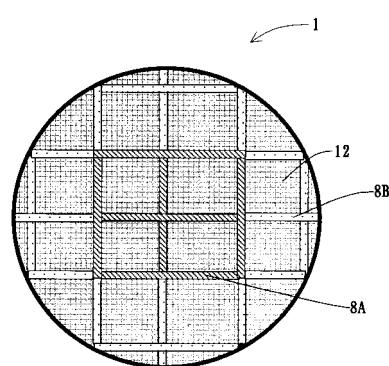


(b)

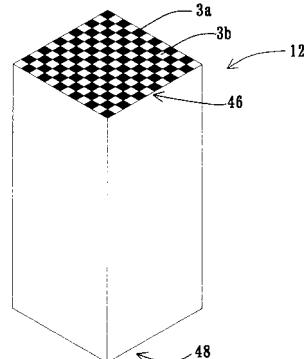
(c)



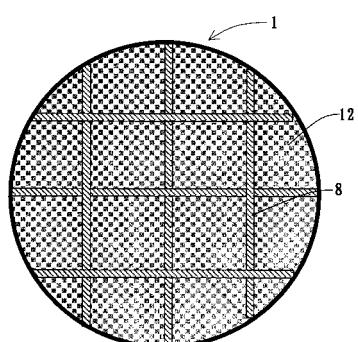
【図2】



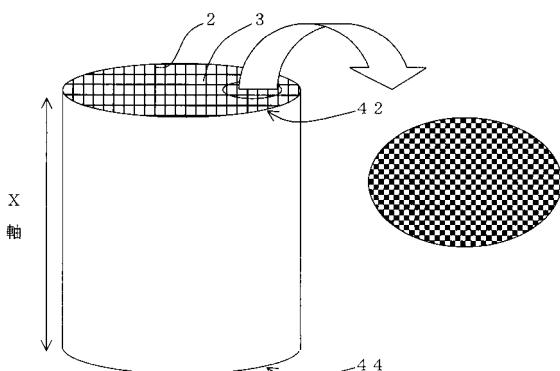
【図3】



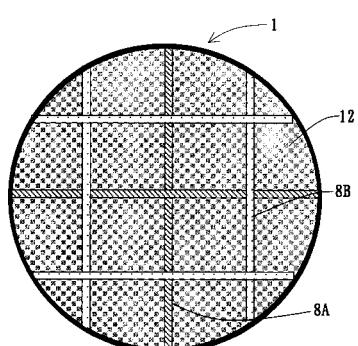
【図4】



【図6】



【図5】



フロントページの続き

(56)参考文献 特開2001-162119(JP,A)
実開平06-047620(JP,U)
特開平08-028246(JP,A)
実開平06-047617(JP,U)
特開2001-206780(JP,A)
特開2001-190916(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

B01D 39/20

B01D 46/00

F01N 3/02