(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号

特許第6295111号
(P6295111)

(45)発行日　平成30年3月14日(2018.3.14)　(24)登録日　平成30年2月23日(2018.2.23)

(51)Int.Cl.		F I		
B01D 39/20	(2006.01)	B01D	39/20	ZABD
B01D 46/00	(2006.01)	B01D	46/00	302
C04B 38/00	(2006.01)	C04B	38/00	303Z
B01J 32/00	(2006.01)	B01J	32/00	
B01J 35/04	(2006.01)	B01J	35/04	301J

請求項の数 14　(全 23 頁)　最終頁に続く

(21)出願番号　特願2014-52419(P2014-52419)
(22)出願日　平成26年3月14日(2014.3.14)
(65)公開番号　特開2015-174037(P2015-174037A)
(43)公開日　平成27年10月5日(2015.10.5)
審査請求日　平成28年10月17日(2016.10.17)

前置審査

(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
(74)代理人　100154829
弁理士　小池　成
(72)発明者　菊池　芳郎
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　関根　崇

最終頁に続く

(54)【発明の名称】目封止ハニカム構造体

(57)【特許請求の範囲】

【請求項１】

流体の流路となる第一端面から第二端面まで延びる複数のセルを区画形成する多孔質の隔壁を有する、複数個の柱状のハニカムセグメント、及び複数個の前記ハニカムセグメントの互いの側面同士が対向するように前記ハニカムセグメント同士を接合する接合層を有するハニカム構造部と、

前記ハニカム構造部における前記第一端面における所定のセルの開口部、及び前記第二端面における残余のセルの開口部に配設された目封止部と、を備え、

前記ハニカム構造部は、複数個の前記ハニカムセグメントとして、前記セルの延びる方向に垂直な断面において、前記ハニカム構造部の外周側に配置される外側セグメントと、前記外側セグメントよりも当該断面において内側に配置される内側セグメントと、を有し、

前記外側セグメントを構成する材料は、前記内側セグメントを構成する材料よりも単位体積当たりの熱容量が小さいものであり、

前記外側セグメントを構成する多孔体は、前記内側セグメントを構成する多孔体よりも単位体積当たりの熱容量が小さいものであり、

前記外側セグメントを構成する材料の６００℃における単位体積当たりの熱容量が、４．４１Ｊ／Ｋ／ｃｍ^{3}以下であり、

前記外側セグメントを構成する多孔体は、前記内側セグメントを構成する多孔体と比較して、熱伝導率が高いものである、目封止ハニカム構造体。

【請求項２】
前記外側セグメントを構成する材料の単位体積当たりの熱容量が、前記内側セグメントを構成する材料の単位体積当たりの熱容量と比較して、０．６０～０．９５倍の値である、請求項１に記載の目封止ハニカム構造体。
【請求項３】
前記外側セグメントを構成する材料の６００℃における単位体積当たりの熱容量が、３．１０～４．４１Ｊ／Ｋ／ｃｍ^{3}である、請求項１又は２に記載の目封止ハニカム構造体。
【請求項４】
前記内側セグメントを構成する材料の６００℃における単位体積当たりの熱容量が、３．８０～４．５０Ｊ／Ｋ／ｃｍ^{3}である、請求項１～３のいずれか一項に記載の目封止ハニカム構造体。
【請求項５】
前記外側セグメントの圧力損失が、前記内側セグメントの圧力損失と比較して、０．９０～１．１０倍の値である、請求項１～４のいずれか一項に記載の目封止ハニカム構造体。
【請求項６】
前記外側セグメントを構成する多孔体の熱膨張係数が、前記内側セグメントを構成する多孔体の熱膨張係数と比較して、０．８７倍以上である、請求項１～５のいずれかに記載の目封止ハニカム構造体。
【請求項７】
前記外側セグメントを構成する多孔体は、前記内側セグメントを構成する多孔体と比較して、熱膨張係数が大きいものである、請求項１～５のいずれか一項に記載の目封止ハニカム構造体。
【請求項８】
前記外側セグメントを構成する多孔体の熱膨張係数が、前記内側セグメントを構成する多孔体の熱膨張係数と比較して、１．２０～１．６０倍である、請求項７に記載の目封止ハニカム構造体。
【請求項９】
前記内側セグメントが、チタン酸アルミニウムを含む材料、又はチタン酸アルミニウム及びα－Al_2O_3を含む材料のいずれか一方からなる、請求項１～８のいずれか一項に記載の目封止ハニカム構造体。
【請求項１０】
前記外側セグメントが、ＳｉＣ、Ｓｉ、Si_3N_4、コージェライト、ムライト、又はこれら材料のうち少なくとも２種類以上を含む材料からなる、請求項１～９のいずれか一項に記載の目封止ハニカム構造体。
【請求項１１】
前記ハニカム構造部の前記セルの延びる方向に垂直な断面における、前記内側セグメントと前記外側セグメントの面積比率が、７０／３０～１０／９０である、請求項１～１０のいずれか一項に記載の目封止ハニカム構造体。
【請求項１２】
前記ハニカム構造部の前記セルの延びる方向に垂直な断面において、前記内側セグメント及び前記外側セグメントの配置が、線対称である、請求項１～１１のいずれか一項に記載の目封止ハニカム構造体。
【請求項１３】
前記ハニカム構造部を構成する前記多孔体の気孔率が、２０～５０％である、請求項１～１２のいずれか一項に記載の目封止ハニカム構造体。
【請求項１４】
前記ハニカム構造部の前記隔壁の表面及び前記隔壁の細孔のうちの少なくとも一方に、排ガス浄化用の触媒が担持されている、請求項１～１３のいずれか一項に記載の目封止ハ

ニカム構造体。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は、目封止ハニカム構造体に関する。さらに詳しくは、粒子状物質を捕集するフィルタとして使用した際に、粒子状物質を燃焼させて除去する再生時に、フィルタの外周部分と中心部分との双方で、粒子状物質の燃え残りが生じ難く、フィルタの再生回数を従来に比して減少させることが可能な目封止ハニカム構造体に関する。
【背景技術】
【０００２】
ディーゼルエンジン等の内燃機関や各種の燃焼装置等から排出される排ガスには、煤を主体とする粒子状物質（以下、「パティキュレートマター」或いは「ＰＭ」ともいう）が、多量に含まれている。このＰＭがそのまま大気中に放出されると、環境汚染を引き起こすため、排ガスの排気系には、ＰＭを捕集するためのパティキュレートフィルタが搭載されている。例えば、パティキュレートフィルタとしては、ディーゼルエンジンから排出される排ガスの浄化に用いられるディーゼルパティキュレートフィルタ（ＤＰＦ）等を挙げることができる。
【０００３】
このようなＤＰＦには、例えば、排ガスの流路となる複数のセルを区画形成する多孔質の隔壁を有するハニカム構造体が用いられている。このハニカム構造体は、流体の流出側の端面における所定のセルの開口部と、流体の流入側端面における残余のセルの開口部とに、セルの開口部を封止するための目封止部が配設され、目封止ハニカム構造体として利用される。以下、目封止ハニカム構造体を用いたＤＰＦ等のパティキュレートフィルタを総称して、「ハニカムフィルタ」ということがある。
【０００４】
ＤＰＦ等に用いられるハニカム構造体としては、例えば、複数のハニカムセグメントが接合されて形成された、セグメント構造のハニカム構造体も提案されている（例えば、特許文献１及び２参照）。
【０００５】
ＤＰＦ等のハニカムフィルタにおいては、フィルタ内部に経時的に堆積したＰＭによって圧力損失が徐々に増大するため、定期的な間隔で、ハニカムフィルタの内部に堆積したＰＭを燃焼させて除去する再生を行うことがある。例えば、ＤＰＦを再生する方法としては、エンジンから排出される排ガスの温度を上昇させ、その高温の排ガスを利用してＤＰＦを加熱する再生方法が知られている。排ガスの温度を上昇させる方法として、例えば、爆発行程後半又は排気行程において燃料を一時的に過剰に噴射するポスト噴射により、当該過剰燃料を燃焼させて排ガスの温度を上昇させる方法を挙げることができる。
【先行技術文献】
【特許文献】
【０００６】
【特許文献１】特開２００３－１０６１６号公報
【特許文献２】特開２００３－２５４０３４号公報
【発明の概要】
【発明が解決しようとする課題】
【０００７】
上述したようにＤＰＦ等のハニカムフィルタにおいては、高温の排ガスを利用した再生が行われているが、フィルタの外周部分は、当該フィルタの中心部分に比して温度が上昇し難い傾向がある。このため、ハニカムフィルタを再生した際に、フィルタの外周部分にて、ＰＭが燃え残ってしまうという問題があった。
【０００８】
また、近年、地球環境保護、資源節約の観点から自動車の燃費向上が求められている。

上述したポスト噴射によるＤＰＦの再生は、その再生時に、エンジン出力とは関わりのない燃料を消費するため、再生の頻度が多いほど、自動車の燃費は悪くなる。このため、自動車用のディーゼルエンジンの燃費向上を目的として、上述したＤＰＦ（別言すれば、目封止ハニカム構造体）の再生回数の低減について検討されている。すなわち、ＤＰＦの再生回数を減じた分、再生に必要とされた燃料の消費が抑制され、エンジンの燃費向上を図ることができる。

【０００９】

しかしながら、ＤＰＦの再生回数を少なくすると、再生が行われるまでの間隔（別言すれば、再生周期）が長くなるため、再生時において、従来よりも多くの量の煤が隔壁の表面に堆積した状態となる。ＤＰＦ等のハニカムフィルタにおいては、従来から、フィルタの外周部分にてＰＭが燃え残ってしまうという問題があり、ＤＰＦの再生回数を少なくすると、上述したＰＭが燃え残ってしまうという問題が更に顕著なものとなる。また、フィルタの外周部分にてＰＭが燃え残ってしまうという問題に対しては、再生時間を長くし、外周部分におけるＰＭの燃焼を促進させる方法も考えられるが、エンジンの燃費向上に関する要望とは全く相反するものとなってしまう。

【００１０】

本発明は、上述した問題に鑑みてなされたものである。本発明は、粒子状物質を捕集するフィルタとして好適に使用可能な目封止ハニカム構造体を提供する。特に、粒子状物質を燃焼させて除去する再生時に、フィルタの外周部分と中心部分との双方で、粒子状物質の燃え残りが生じ難く、フィルタの再生回数を従来に比して減少させることが可能な目封止ハニカム構造体を提供する。

【課題を解決するための手段】

【００１１】

上述の課題を解決するため、本発明は、以下の目封止ハニカム構造体を提供するものである。

【００１２】

［１］　流体の流路となる第一端面から第二端面まで延びる複数のセルを区画形成する多孔質の隔壁を有する、複数個の柱状のハニカムセグメント、及び複数個の前記ハニカムセグメントの互いの側面同士が対向するように前記ハニカムセグメント同士を接合する接合層を有するハニカム構造部と、前記ハニカム構造部における前記第一端面における所定のセルの開口部、及び前記第二端面における残余のセルの開口部に配設された目封止部と、を備え、前記ハニカム構造部は、複数個の前記ハニカムセグメントとして、前記セルの延びる方向に垂直な断面において、前記ハニカム構造部の外周側に配置される外側セグメントと、前記外側セグメントよりも当該断面において内側に配置される内側セグメントと、を有し、前記外側セグメントを構成する材料は、前記内側セグメントを構成する材料よりも単位体積当たりの熱容量が小さいものであり、前記外側セグメントを構成する多孔体は、前記内側セグメントを構成する多孔体よりも単位体積当たりの熱容量が小さいものであり、前記外側セグメントを構成する材料の６００℃における単位体積当たりの熱容量が、４．４１Ｊ／Ｋ／ｃｍ^{3}以下であり、前記外側セグメントを構成する多孔体は、前記内側セグメントを構成する多孔体と比較して、熱伝導率が高いものである、目封止ハニカム構造体。

【００１３】

［２］　前記外側セグメントを構成する材料の単位体積当たりの熱容量が、前記内側セグメントを構成する材料の単位体積当たりの熱容量と比較して、０．６０～０．９５倍の値である、前記［１］に記載の目封止ハニカム構造体。

［３］　前記外側セグメントを構成する材料の６００℃における単位体積当たりの熱容量が、３．１０～４．４１Ｊ／Ｋ／ｃｍ^{3}である、前記［１］又は［２］に記載の目封止ハニカム構造体。

【００１４】

［４］　前記内側セグメントを構成する材料の６００℃における単位体積当たりの熱容量

が、３．８０～４．５０Ｊ／Ｋ／ｃｍ^{3}である、前記［１］～［３］のいずれかに記載の目封止ハニカム構造体。

【００１５】

［５］　前記外側セグメントの圧力損失が、前記内側セグメントの圧力損失と比較して、０．９０～１．１０倍の値である、前記［１］～［４］のいずれかに記載の目封止ハニカム構造体。

【００１６】

［６］　前記外側セグメントを構成する多孔体の熱膨張係数が、前記内側セグメントを構成する多孔体の熱膨張係数と比較して、０．８７倍以上である、前記［１］～［５］のいずれかに記載の目封止ハニカム構造体。

【００１７】

［７］　前記外側セグメントを構成する多孔体は、前記内側セグメントを構成する多孔体と比較して、熱膨張係数が大きいものである、前記［１］～［５］のいずれかに記載の目封止ハニカム構造体。

【００１８】

［８］　前記外側セグメントを構成する多孔体の熱膨張係数が、前記内側セグメントを構成する多孔体の熱膨張係数と比較して、１．２０～１．６０倍である、前記［７］に記載の目封止ハニカム構造体。

【００１９】

［９］　前記内側セグメントが、チタン酸アルミニウムを含む材料、又はチタン酸アルミニウム及びα－Ａｌ$_2$Ｏ$_3$を含む材料のいずれか一方からなる、前記［１］～［８］のいずれかに記載の目封止ハニカム構造体。

【００２０】

［１０］　前記外側セグメントが、ＳｉＣ、Ｓｉ、Ｓｉ$_3$Ｎ$_4$、コージェライト、ムライト、又はこれら材料のうち少なくとも２種類以上を含む材料からなる、前記［１］～［９］のいずれかに記載の目封止ハニカム構造体。

【００２１】

［１１］　前記ハニカム構造部の前記セルの延びる方向に垂直な断面における、前記内側セグメントと前記外側セグメントの面積比率が、７０／３０～１０／９０である、前記［１］～［１０］のいずれかに記載の目封止ハニカム構造体。

【００２２】

［１２］　前記ハニカム構造部の前記セルの延びる方向に垂直な断面において、前記内側セグメント及び前記外側セグメントの配置が、線対称である、前記［１］～［１１］のいずれかに記載の目封止ハニカム構造体。

【００２３】

［１３］　前記ハニカム構造部を構成する前記多孔体の気孔率が、２０～５０％である、前記［１］～［１２］のいずれかに記載の目封止ハニカム構造体。

【００２４】

［１４］　前記ハニカム構造部の前記隔壁の表面及び前記隔壁の細孔のうちの少なくとも一方に、排ガス浄化用の触媒が担持されている、前記［１］～［１３］のいずれかに記載の目封止ハニカム構造体。

【発明の効果】

【００２５】

本発明の目封止ハニカム構造体は、セグメント構造のハニカム構造部を備えたものである。このセグメント構造のハニカム構造部は、ハニカム構造部の外周側に配置される外側セグメントと、当該外側セグメントよりも当該断面において内側に配置される内側セグメントと、を有している。そして、本発明の目封止ハニカム構造体においては、上述した外側セグメントを構成する材料は、内側セグメントを構成する材料よりも単位体積当たりの熱容量が小さいものである。本発明の目封止ハニカム構造体は、粒子状物質を捕集するフィルタとして好適に使用することができる。そして、上述した構成を採用することにより

、粒子状物質を燃焼させて除去する再生時に、フィルタの外周部分と中心部分との双方で、粒子状物質の燃え残りが生じ難く、フィルタの再生回数を従来に比して減少させることができる。また、フィルタの再生時において、従来の目封止ハニカム構造体に比して、フィルタの外周部分の温度が高くなり易いため、フィルタの外周部分と中心部分の温度差が小さくなり、目封止ハニカム構造体の耐熱衝撃性を向上させることができる。

【図面の簡単な説明】

【００２６】

【図１】本発明の目封止ハニカム構造体の一の実施形態を流入端面側からみた模式的な斜視図である。

【図２】図１に示す目封止ハニカム構造体を流入端面側からみた模式的な平面図である。

【図３】図１に示す目封止ハニカム構造体を流出端面側からみた模式的な平面図である。

【図４】図２のＡ－Ａ’断面を模式的に示す断面図である。

【図５】図１に示す目封止ハニカム構造体の流入端面を模式的に示す平面図である。

【図６Ａ】実施例１のハニカムセグメントの接合体の端面を模式的に示す平面図である。

【図６Ｂ】実施例１のハニカムセグメントの接合体の端面を模式的に示す平面図である。

【発明を実施するための形態】

【００２７】

次に本発明を実施するための形態を図面を参照しながら詳細に説明する。本発明は以下の実施形態に限定されるものではなく、本発明の趣旨を逸脱しない範囲で、当業者の通常の知識に基づいて、適宜設計の変更、改良等が加えられることが理解されるべきである。

【００２８】

本発明の目封止ハニカム構造体の一の実施形態は、図１～図５に示すような、柱状のハニカム構造部４と、セル２の開口部に配設された目封止部５と、を備えた目封止ハニカム構造体１００である。ハニカム構造部４は、複数個のハニカムセグメント６と、この複数個のハニカムセグメント６の互いの側面同士が対向するようにハニカムセグメント６同士を接合する接合層７と、を有するものである。ハニカムセグメント６は、流体の流路となる第一端面１１から第二端面１２まで延びる複数のセル２を区画形成する多孔質の隔壁１を有するものである。図１～図５に示すハニカムセグメント６は、隔壁１を取り囲むように配設された外壁８を更に有するものである。目封止部５は、複数のセル２のいずれか一方の開口部に配設され、当該セル２の開口部を封止するものである。図１～図５においては、目封止部５が、第一端面１１における所定のセル２ｂ（以下、単に「セル２ｂ」ともいう）の開口部、及び第二端面１２における残余のセル２ａ（以下、単に「セル２ａ」ともいう）の開口部に配設されている。このように構成された目封止ハニカム構造体１００は、内燃機関、又は各種燃焼装置から排出される排ガスを浄化するパティキュレートフィルタとして用いることができる。図１～図５に示す目封止ハニカム構造体１００は、ハニカム構造部４の最外周に位置する外周壁３を更に有している。複数個のハニカムセグメント６の互いの側面同士が対向するように隣接して配置された状態で接合されたハニカム構造部４を、以下、「セグメント構造のハニカム構造部４」ということがある。

【００２９】

ハニカム構造部４は、複数個のハニカムセグメント６として、外側セグメント６ｂと、内側セグメント６ａと、を有する。外側セグメント６ｂは、セル２の延びる方向に垂直な断面において、ハニカム構造部４の外周側に配置されるハニカムセグメント６である。内側セグメント６ａは、当該外側セグメント６ｂよりも上記断面において内側に配置されるハニカムセグメント６である。そして、本実施形態の目封止ハニカム構造体１００において、外側セグメント６ｂを構成する材料は、内側セグメント６ａを構成する材料よりも単位体積当たりの熱容量が小さいものである。

【００３０】

ここで、図１は、本発明の目封止ハニカム構造体の一の実施形態を流入端面側からみた模式的な斜視図である。図２は、図１に示す目封止ハニカム構造体を流入端面側からみた模式的な平面図である。図３は、図１に示す目封止ハニカム構造体を流出端面側からみた

模式的な平面図である。図４は、図２のＡ－Ａ’断面を模式的に示す断面図である。図５は、図１に示す目封止ハニカム構造体の流入端面を模式的に示す平面図である。図５においては、隔壁が省略されている。

【００３１】

本実施形態の目封止ハニカム構造体１００は、粒子状物質を捕集するフィルタとして好適に使用することができる。そして、上述した構成を採用することにより、粒子状物質を燃焼させて除去する再生時に、フィルタの外周部分１６と中心部分１５との双方で、粒子状物質の燃え残りが生じ難く（別言すれば、再生効率が高く）、フィルタの再生回数を従来に比して減少させることができる。また、フィルタの再生時において、従来の目封止ハニカム構造体に比して、フィルタの外周部分１６の温度が高くなり易いため、フィルタの外周部分１６と中心部分１５の温度差が小さくなり、目封止ハニカム構造体１００の耐熱衝撃性を向上させることができる。

【００３２】

外側セグメントを構成する材料の単位体積当たりの熱容量が、内側セグメントを構成する材料の単位体積当たりの熱容量と比較して、０．６０～０．９５倍の値であることが好ましく、０．７０～０．９０倍の値であることが更に好ましく、０．７０～０．８５倍の値であることが特に好ましい。外側セグメントを構成する材料の単位体積当たりの熱容量が小さいほうが、再生効率がより高くなる。一方、外側セグメントを構成する材料の単位体積当たりの熱容量が小さいと、再生時の内側セグメントの最高温度が少しずつ高くなってしまうことがある。外側セグメントを構成する材料の単位体積当たりの熱容量を、上述した数値範囲とすることにより、フィルタの外周部分と中心部分の温度差を良好に低減しつつ、目封止ハニカム構造体の耐熱衝撃性を良好に向上させることができる。

【００３３】

「外側セグメントを構成する材料の単位体積当たりの熱容量」及び「内側セグメントを構成する材料の単位体積当たりの熱容量」を総称して、以下、「ハニカムセグメントを構成する材料の単位体積当たりの熱容量」ということがある。本明細書において、特に断りのない限り、「熱容量」とは、６００℃における熱容量のことである。本明細書において、特に断りのない限り、「熱容量」及び「単位体積当たりの熱容量」の値は、１ｃｍ^{3}当たりの熱容量（Ｊ／Ｋ／ｃｍ^3）として示す。

【００３４】

「ハニカムセグメントを構成する材料の単位体積当たりの熱容量」は、以下のように測定することができる。アルバック理工社製の断熱型比熱測定装置を用いて、ハニカムセグメントを構成する材料の６００℃における単位質量あたりの熱容量（Ｊ／Ｋ／ｇ）を測定する。得られた単位質量あたりの熱容量（Ｊ／Ｋ／ｇ）に、室温においてアルキメデス法で測定したハニカムセグメントを構成する材料の真密度（ｇ／ｃｍ^3）を乗算することで、ハニカムセグメントを構成する材料の単位体積あたりの熱容量Ｃ１（Ｊ／Ｋ／ｃｍ^3）を算出する。熱容量の測定は、ハニカムセグメントの隔壁を構成する多孔体から所定の大きさの試験片（サンプル）を切り出して作製し、当該試験片を用いて行うことができる。

【００３５】

ここで、上述した「ハニカムセグメントを構成する材料の単位体積当たりの熱容量（Ｊ／Ｋ／ｃｍ^3）」における「ハニカムセグメントを構成する材料」とは、気孔等が形成されていない密実な材料のことを意味する。したがって、本明細書において、「材料の単位体積当たりの熱容量」とは、気孔等が形成されていない密実な材料において計測された熱容量のことを意味する。例えば、「ハニカムセグメントを構成する材料の単位体積当たりの熱容量（Ｊ／Ｋ／ｃｍ^3）」とは、ハニカムセグメントの隔壁に形成された気孔を考慮せず、ハニカムセグメントの隔壁を構成する材料自体の熱容量のことである。以下、本明細書において、ハニカムセグメントの隔壁に形成された気孔を考慮した熱容量については、「ハニカムセグメントの隔壁を構成する多孔体の単位体積当たりの熱容量」、或いは「隔壁を構成する多孔体の単位体積当たりの熱容量」と記し、上述した「材料の単位体積当たりの熱容量」とは区別するものとする。「材料の単位体積当たりの熱容量」を、単に「

材料の熱容量」ということがある。また、「ハニカムセグメントの単位体積当たりの熱容量（Ｊ／Ｋ／ｃｍ^3）」という場合は、ハニカムセグメントに形成されたセルを含めたハニカムセグメントの体積を分母とした、当該ハニカムセグメントの単位体積当たりの熱容量（Ｊ／Ｋ／ｃｍ^3）を意味する。

【００３６】

「ハニカムセグメントの隔壁を構成する多孔体の単位体積当たりの熱容量（Ｊ／Ｋ／ｃｍ^3）」は、上述した「ハニカムセグメントを構成する材料の単位体積あたりの熱容量Ｃ１（Ｊ／Ｋ／ｃｍ^3）」から、下記式（１）に従い、隔壁を構成する多孔体の単位体積当たりの熱容量Ｃ２（Ｊ／Ｋ／ｃｍ^3）を算出する。なお、下記式（１）における「多孔体の気孔率」は、ＪＩＳ　Ｒ　１６３４に準拠して、アルキメデス法により測定することができる。

熱容量Ｃ２＝熱容量Ｃ１×（１００－ｐ）／１００　・・・　（１）

（但し、上記式（１）において、ｐは、多孔体の気孔率（％）を示す。）

【００３７】

外側セグメントの圧力損失が、内側セグメントの圧力損失と比較して、０．９０～１．１０倍の値であることが好ましく、０．９０～１．０５倍であることが更に好ましく、０．９５～１．０５倍であることが特に好ましい。外側セグメントの圧力損失が、上述した数値範囲を外れると、粒子状物質を捕集するフィルタとして用いた場合に、粒子状物質が偏って溜まってしまうことがある。そのため、フィルタの再生時に、再生制御が困難になることがある。ここで、「再生制御」とは、フィルタの再生時における、煤の燃焼熱による、各部の温度上昇の制御のことである。

【００３８】

外側セグメントを構成する多孔体は、内側セグメントを構成する多孔体と比較して、熱伝導率が高いものである。このように構成することによって、目封止ハニカム構造体をフィルタとして用いた場合に、再生効率がより高くなる。熱伝導率は、レーザーフラッシュ法などにより測定することができる。

【００３９】

外側セグメントを構成する多孔体は、内側セグメントを構成する多孔体と比較して、熱膨張係数が大きいものであることが好ましい。このように構成することによって、目封止ハニカム構造体をフィルタとして用いた場合に、再生時におけるクラックの発生を有効に抑制することができる。外側セグメントは、内側セグメントと比較して、熱膨張係数が１．２０～１．６０倍であることが好ましく、１．４０～１．６０倍であることが更に好ましく、１．４０～１．５０倍であることが特に好ましい。再生時におけるクラックの発生を抑制する効果は、熱膨張係数が十分に大きくないと得られ難い。但し、外側セグメントの熱膨張係数が過剰に大きくなると、クラックの発生が再び多くなることがある。

【００４０】

外側セグメントの材料、及び内側セグメントの材料については特に制限はない。ただし、これまでに説明したように、本実施形態の目封止ハニカム構造体においては、外側セグメントを構成する材料の単位体積当たりの熱容量が、内側セグメントを構成する材料の単位体積当たりの熱容量よりも小さいものである。そのため、外側セグメント及び内側セグメントのそれぞれの材料の熱容量を考慮して、適宜、それぞれの材料の種類を選定することが好ましい。例えば、内側セグメントが、チタン酸アルミニウムを含む材料、又はチタン酸アルミニウム及びα－Al_2O_3を含む材料のいずれか一方からなるものであってもよい。チタン酸アルミニウムを含む材料、又はチタン酸アルミニウム及びα－Al_2O_3を含む材料は、従来公知の目封止ハニカム構造体のハニカムセグメントに用いられる材料に比して、その熱容量が相対的に大きなものである。このため、内側セグメントが上述した材料からなるものであると、内側セグメントの温度上昇を有効に抑制することができる。また、外側セグメントについては、ＳｉＣ、Ｓｉ、Si_3N_4、コージェライト、ムライト、又はこれら材料のうち少なくとも２種類以上を含む材料からなるものであってもよい。このような材料からなる外側セグメントは、外側セグメントを構成する材料の単位体

積当たりの熱容量が、内側セグメントを構成する材料の単位体積当たりの熱容量よりも小さくなり易い。

【００４１】

内側セグメントを構成する材料の６００℃における熱容量（すなわち、上記式（１）における「熱容量Ｃ１」）が、３．８０～４．５０Ｊ／Ｋ／ｃｍ^{3}であること好ましく、４．２５～４．５０Ｊ／Ｋ／ｃｍ^{3}であることが更に好ましく、４．３０～４．５０Ｊ／Ｋ／ｃｍ^{3}であることが特に好ましい。内側セグメントを構成する材料の熱容量が上記数値範囲であると、内側セグメントの温度上昇を有効に抑制することができる。

【００４２】

ハニカム構造部のセルの延びる方向に垂直な断面における、内側セグメントと外側セグメントの面積比率が、７０／３０～１０／９０であることが好ましく、６０／４０～２０／８０であることが更に好ましく、５０／５０～２０／８０であることが特に好ましい。以下、「ハニカム構造部のセルの延びる方向に垂直な断面における、内側セグメントと外側セグメントの面積比率」のことを、単に「内側セグメントと外側セグメントの面積比率」ということがある。内側セグメントと外側セグメントの面積比率が、上記数値範囲であると、粒子状物質を燃焼させて除去する再生時に、フィルタの外周部分と中心部分との双方で、粒子状物質の燃え残りがより生じ難くなる。内側セグメントの面積及び外側セグメントの面積は、以下のようにして求めることができる。まず、複数のハニカムセグメントから、内側セグメントと外側セグメントとを判別（別言すれば、内側セグメントと外側セグメントとの境界を判別）する。内側セグメントと外側セグメントとの判別は、各ハニカムセグメントを構成する材料の熱容量を測定することによって行う。次に、各ハニカムセグメントの面積を求め、内側セグメントと外側セグメントの面積比率を算出する。なお、接合層及び外周壁の面積は、ハニカムセグメントの面積に含まず、接合層及び外周壁によって囲われる範囲を、各ハニカムセグメントの面積とする。

【００４３】

ハニカム構造部のセルの延びる方向に垂直な断面において、内側セグメント及び外側セグメントの配置が、線対称であることが好ましい。このように構成することによって、粒子状物質を燃焼させて除去する再生時に、フィルタの外周部分と中心部分との双方で、粒子状物質の燃え残りがより生じ難くなる。例えば、上記断面において、内側セグメント及び外側セグメントの配置が非対称であると、上記断面における外周部分と中心部分の温度差を小さくする効果が得られ難くなることがある。

【００４４】

各ハニカムセグメントを構成する多孔体の気孔率が、２０～５０％であることが好ましく、２５～５０％であることが更に好ましく、２５～４５％であることが特に好ましい。ハニカムセグメントを構成する多孔体の気孔率が、２０％未満であると、目封止ハニカム構造体の圧力損失が増大することがある。ハニカムセグメントを構成する多孔体の気孔率が、５０％超であると、目封止ハニカム構造体の隔壁が脆くなり欠落し易くなることがある。また、多孔体の気孔率が高すぎると、多孔体の熱容量が小さくなるため、目封止ハニカム構造体が温度上昇しやすくなることがある。ハニカムセグメントを構成する多孔体の気孔率とは、ハニカムセグメントの隔壁の気孔率のことである。ハニカムセグメントを構成する多孔体の気孔率は、ＪＩＳ　Ｒ　１６３４に準拠して、アルキメデス法により測定することができる。内側セグメントを構成する多孔体の気孔率と、外側セグメントを構成する多孔体の気孔率とは、同じ値であってもよいし、異なる値であってもよい。

【００４５】

各ハニカムセグメントを構成する多孔体の平均細孔径が、５～２０μｍであることが好ましく、８～１５μｍであることが更に好ましく、８～１２μｍであることが特に好ましい。ハニカムセグメントを構成する多孔体の平均細孔径が、５μｍ未満であると、目封止ハニカム構造体の圧力損失が大きくなることがある。ハニカムセグメントを構成する多孔体の平均細孔径が、２０μｍ超であると、目封止ハニカム構造体をＤＰＦ等のフィルタとして用いた際に、排ガス中のＰＭの一部が隔壁を通過することがあり、当該フィルタの捕

集効率が低くなることがある。多孔体の平均細孔径は、ＪＩＳ　Ｒ　１６５５に準拠して、水銀圧入法により測定することができる。内側セグメントを構成する多孔体の平均細孔径と、外側セグメントを構成する多孔体の平均細孔径とは、同じ値であってもよいし、異なる値であってもよい。

【００４６】

各ハニカムセグメントの隔壁の厚さについては特に制限はないが、１００～５００μｍであることが好ましく、１５０～４００μｍであることが更に好ましく、１５０～３００μｍであることが特に好ましい。隔壁の厚さをこのような範囲にすることにより、目封止ハニカム構造体の隔壁の強度を保ちつつ、圧力損失の上昇を抑制することができる。内側セグメントの隔壁の厚さと、外側セグメントの隔壁の厚さとは、同じ値であってもよいし、異なる値であってもよい。

【００４７】

各ハニカムセグメントのセル密度については特に制限はないが、１５～１００セル／ｃｍ^{2}であることが好ましく、３０～６５セル／ｃｍ^{2}であることが更に好ましく、３０～５０セル／ｃｍ^{2}であることが特に好ましい。セル密度をこのような範囲にすることにより、目封止ハニカム構造体をＤＰＦ等に用いた場合には、圧力損失を抑制しつつ、捕集効率を向上させることができる。内側セグメントのセル密度と、外側セグメントのセル密度とは、同じ値であってもよいし、異なる値であってもよい。

【００４８】

各ハニカムセグメントに形成されるセルの形状については特に制限はない。ここで、「セルの形状」とは、ハニカムセグメントのセルの延びる方向に直交する断面における、セルの形状のことである。セルの形状としては、例えば、四角形、六角形、八角形、又はこれらの組み合わせを挙げることができる。内側セグメントに形成されるセルの形状と、外側セグメントに形成されるセルの形状とは、同じ形状であってもよいし、異なる形状であってもよい。

【００４９】

ここで、本実施形態の目封止ハニカム構造体においては、内側セグメントと外側セグメントとが、それぞれの隔壁の厚さ、セル密度、セルの形状が同じであってもよい。すなわち、内側セグメントと外側セグメントとは、隔壁の厚さ、セル密度、及びセルの形状といった形状的な構成の差異がなく、その材質の違いにより、単位体積当たりの熱容量が異なっていることが好ましい。「形状的な構成の差異がない」とは、内側セグメントと外側セグメントと作製する際に、意図的に形状的な構成に変化を持たせていないことを意味する。したがって、作製過程における意図しない変形、製造ロットによる微差、ハニカムセグメント毎の個体差などは、形状的な構成の差異には含まないものとする。また、ハニカム構造部の全体形状を所定の形状にするために行われる研削加工によって生じた、内側セグメントと外側セグメントとの形状的な差異は、上述した「形状的な構成の差異」に含まないものとする。

【００５０】

ハニカム構造部の形状は、特に限定されず、例えば、底面が円形の柱状（円柱形状）、底面がオーバル形状の柱状、底面が多角形（四角形、五角形、六角形、七角形、八角形等）の柱状等の形状とすることができる。

【００５１】

ハニカム構造部の第一端面から第二端面までの長さ、及びハニカム構造部のセルの延びる方向に直交する断面の大きさは、本実施形態の目封止ハニカム構造体を排ガス浄化のフィルタとして用いた際に、最適な浄化性能を得るように適宜選択すればよい。例えば、ハニカム構造部の第一端面から第二端面までの長さは、１００～５００ｍｍであることが好ましく、１００～３００ｍｍであることが更に好ましい。ハニカム構造部のセルの延びる方向に直交する断面の面積は、７０００～７００００ｍｍ^{2}であることが好ましく、７０００～３００００ｍｍ^{2}であることが更に好ましい。

【００５２】

ハニカム構造部の隔壁の表面及び隔壁の細孔のうちの少なくとも一方に、排ガス浄化用の触媒が担持されていてもよい。触媒としては、例えば、多孔質なγ－Al_2O_3に白金族金属を担持したものを挙げることができる。なお、ハニカム構造部の隔壁に担持された触媒は、隔壁（別言すれば、多孔体）とは異なる構成要素であるため、これまでに説明した「ハニカムセグメントを構成する材料」には、当該触媒は含まないものとする。

【００５３】

次に、本実施形態の目封止ハニカム構造体の製造方法について説明する。本実施形態の目封止ハニカム構造体を製造する際には、まず、内側セグメントを作製するための第一成形原料と、外側セグメントを作製するための第二成形原料とを、２種調製する。そして、第二成形原料として、当該第二成形原料を焼成することによって得られる材料の単位体積当たりの熱容量が、第一成形原料を焼成することによって得られる材料の単位体積当たりの熱容量よりも低くなるような原料を選択する。第一成形原料としては、例えば、所望量の、Al_2O_3、TiO_2、タルク、マイカ、粘土等を配合して調製することができる。第二成形原料としては、ＳｉＣ、Ｓｉ、Si_3N_4、コージェライト、ムライト等を配合して調製することができる。また、第一成形原料及び第二成形原料には、上述した原料に加えて、分散媒や添加剤を更に加えてもよい。

【００５４】

添加剤としては、バインダー、造孔材等を挙げることができる。分散媒としては、水等を挙げることができる。

【００５５】

バインダーとしては、メチルセルロース、ヒドロキシプロポキシルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、ポリビニルアルコール等を挙げることができる。造孔材としては、焼成後に気孔となるものであれば特に限定されるものではなく、例えば、澱粉、発泡樹脂、吸水性樹脂、シリカゲル等を挙げることができる。

【００５６】

次に、得られた第一成形原料を混練して第一坏土を形成する。また、得られた第二成形原料を混練して第二坏土を形成する。第一坏土及び第二坏土を形成する方法としては、特に制限はなく、例えば、ニーダー、真空土練機等を用いる方法を挙げることができる。

【００５７】

次に、得られた第一坏土を押出成形して、第一ハニカムセグメント成形体を作製する。また、得られた第二坏土を押出成形して、第二ハニカムセグメント成形体を作製する。第一ハニカムセグメント成形体は、内側セグメントとなる成形体であり、第二ハニカムセグメント成形体は、外側セグメントとなる成形体である。第一ハニカムセグメント成形体及び第二ハニカムセグメント成形体の作製方法は、従来公知のセグメント構造の目封止ハニカム構造体の製造方法に準じて行うことができる。押出成形は、所望のセル形状、隔壁厚さ、セル密度を有する口金を用いて行うことができる。

【００５８】

次に、得られた第一ハニカムセグメント成形体及び第二ハニカムセグメント成形体を乾燥させてもよい。乾燥方法は、特に限定されるものではないが、例えば、熱風乾燥、マイクロ波乾燥、誘電乾燥、減圧乾燥、真空乾燥、凍結乾燥等を挙げることができ、これらの中でも、誘電乾燥、マイクロ波乾燥又は熱風乾燥を単独で又は組合せて行うことが好ましい。また、乾燥条件としては、乾燥温度３０～１５０℃、乾燥時間１分～２時間とすることが好ましい。

【００５９】

次に、得られた第一ハニカムセグメント成形体（或いは、乾燥体）及び第二ハニカムセグメント成形体（或いは、乾燥体）のセルの開口部を、目封止材によって目封止する。セルの開口部を目封止する方法としては、セルの開口部に目封止材を充填する方法を挙げることができる。目封止材を充填する方法としては、従来公知の目封止ハニカム構造体の製造方法に準じて行うことができる。目封止材を形成するためのセラミック原料については特に制限はない。第一ハニカムセグメント成形体に使用する目封止材（以下、「第一目封

止材」ともいう）と、第二ハニカムセグメント成形体に使用する目封止材（以下、「第二目封止材」ともいう）とで、それぞれの目封止材を形成するためのセラミック原料が異なっていてもよい。第一目封止材のセラミック原料として、第一ハニカムセグメント成形体の作製に用いた第一成形原料を使用することが好ましい。第二目封止材のセラミック原料として、第二ハニカムセグメント成形体の作製に用いた第二成形原料を使用することが好ましい。目封止材によって形成される目封止部の気孔率や細孔径などを調節するために、セラミック原料粉末の粒子径及び配合量、並びに添加する造孔材粉末の粒子径及び配合量について適宜変更してもよい。

【００６０】

次に、目封止材をセルの開口部に充填した第一ハニカムセグメント成形体（或いは、乾燥体）及び第二ハニカムセグメント成形体（或いは、乾燥体）を焼成する。これにより、第一ハニカムセグメント成形体の焼成体である内側セグメントと、第二ハニカムセグメント成形体の焼成体である外側セグメントとが作製される。焼成温度、焼成時間及び焼成雰囲気は、第一成形原料及び第二成形原料の材質に応じて、適宜選択することができる。焼成は、例えば、大気中、水蒸気雰囲気中、炭化水素ガス燃焼雰囲気中、アルゴン雰囲気中、又は窒素雰囲気中にて行うことができる。

【００６１】

次に、内側セグメント及び外側セグメントを接合する接合層を形成するための接合材を作製する。接合材については、従来公知のセグメント構造の目封止ハニカム構造体の製造方法に準じて行うことができる。

【００６２】

次に、複数個の内側セグメント及び外側セグメントの側面同士を、接合材で接合しながら所定の形状に組み合わせて、ハニカムセグメントの接合体を作製する。この際、ハニカムセグメントの接合体のセルの延びる方向に垂直な断面において、接合体の外周側に外側セグメントが配置され、この外側セグメントよりも上記断面において内側に内側セグメントが配置される。ハニカムセグメントの接合体を作製した後に、ハニカムセグメントの接合体を乾燥させてもよい。

【００６３】

次に、得られた接合体の外周部分を、所定の形状に研削加工してもよい。また、接合体の外周部分に外周壁を形成する場合には、まず、得られた接合体、又は研削加工した接合体の外周面に、外周コート材を塗布して外周壁の前駆体を形成する。そして、得られた外周壁の前駆体を、乾燥又は焼成して外周壁を形成する。外周コート材としては、従来公知のセグメント構造の目封止ハニカム構造体の製造方法に準じて調製することができる。

【００６４】

以上のようにして、本実施形態の目封止ハニカム構造体を製造することができる。ただし、本実施形態の目封止ハニカム構造体の製造方法は、上述した製造方法に限定されることはない。

【実施例】

【００６５】

以下、本発明を実施例によって更に具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例によって何ら限定されるものではない。

【００６６】

以下に示す実施例においては、表１に示す７種類のハニカムセグメントを作製し、この７種類のハニカムセグメントから、内側セグメントと外側セグメントを選択し、目封止ハニカム構造体を作製した。表１の「ハニカムセグメントＮｏ．」の欄の、１～７が、本実施例において、各ハニカムセグメントに付された番号である。以下、表１の「ハニカムセグメントＮｏ．」の欄の「１～７」に示される各ハニカムセグメントを、「ハニカムセグメント１～７」とする。すなわち、表１の「ハニカムセグメントＮｏ．」の欄の「１」に示されるハニカムセグメントは、「ハニカムセグメント１」である。以下、ハニカムセグメント１～７の製造方法について説明する。

【００６７】
【表１】

ハニカムセグメントNo.	材料	気孔率(%)	平均細孔径(μm)	真密度(g/cm^3)	熱容量C1($J/K/cm^3$)	熱容量C2($J/K/cm^3$)	熱伝導率(W/m/K)	熱膨張係数(ppm/K)	圧力損失(kPa)
1	チタン酸アルミニウム/α-Al_2O_3	39	10	3.76	4.41	2.69	1	4.5	6.3
2	チタン酸アルミニウム/α-Al_2O_3	39	10	3.73	4.32	2.64	1	3.1	6.3
3	SiC	39	9	3.22	3.76	2.29	52	4.5	6.5
4	Si_3N_4/SiC	39	9	3.28	3.74	2.28	25	3.9	6.7
5	Si/SiC/コージェライト/ムライト	39	10	2.83	3.10	1.89	37	4.6	6.2
6	チタン酸アルミニウム	45	9	3.54	3.84	2.11	1	0.5	5.3
7	コージェライト	45	12	2.52	3.19	1.75	1	0.5	5.0

【００６８】
（ハニカムセグメント１）
まず、α－Al_2O_3粉末を３７５０ｇ、TiO_2粉末を７５０ｇ、タルク粉末を３５０ｇ、マイカ粉末を１５０ｇ、澱粉を５００ｇ、メチルセルロースを２００ｇ、を混合した粉末に水を適量添加して、成形原料を調製した。α－Al_2O_3粉末の平均粒子径は３２μｍであった。TiO_2粉末の平均粒子径は０．４μｍであった。タルク粉末の平均粒子径は３μｍであった。マイカ粉末の平均粒子径は４２μｍであった。
【００６９】
次に、得られた成形原料をニーダーで混練し、次に、真空土練機で土練して、坏土を形成した。次に、得られた坏土を押出成形して、ハニカムセグメント成形体を作製した。ハニカムセグメント成形体は、焼成後において、隔壁の厚さが３００μｍとなり、セル密度が４６．５セル／cm^2となるものとした。ハニカムセグメント成形体のセルの形状は、焼成後において、正方形となるものとした。また、ハニカムセグメント成形体は、正方形の端面を有する四角柱形状のものとした。四角柱形状のハニカムセグメント成形体のそれぞれの端面の一辺の長さは、焼成後において、３５ｍｍとなるものとした。
【００７０】
次に、ハニカムセグメント成形体を乾燥させて、ハニカムセグメント乾燥体を得た。乾燥は、まず、マイクロ波乾燥を行い、その後、熱風乾燥を行った。その後、ハニカムセグメント乾燥体の一方の端面から他方の端面の長さが、焼成後において、１５０ｍｍとなるように切断した。
【００７１】
次に、得られたハニカムセグメント乾燥体のセルの開口部に目封止材を充填した後、熱風乾燥を行って、セルの開口部に目封止部を形成した。目封止材は、α－Al_2O_3粉末を３７５０ｇ、TiO_2粉末を７５０ｇ、タルク粉末を３５０ｇ、マイカ粉末を１５０ｇ、澱粉を５００ｇ、メチルセルロースを１０ｇ、を混合した粉末に適量の水を添加した後、ミキサーで混練して作製した。
【００７２】
次に、目封止部を形成したハニカムセグメント乾燥体を脱脂した。脱脂は、大気中、４５０℃で５時間行った。次に、脱脂したハニカムセグメント乾燥体を焼成して、ハニカムセグメント１を得た。焼成は、大気中、１５００℃で４時間行った。
【００７３】
（ハニカムセグメント２）
以下に示す方法で、成形原料及び目封止材を調製した以外は、ハニカムセグメント１と同様の方法で、ハニカムセグメント２を作製した。ハニカムセグメント２における成形原料は、α－Al_2O_3粉末を３５００ｇ、TiO_2粉末を１０００ｇ、タルク粉末を３５０ｇ、マイカ粉末を１５０ｇ、澱粉を４５０ｇ、メチルセルロースを２００ｇ、を混合した粉末に水を適量添加して調製した。ハニカムセグメント２における目封止材は、α－Al_2O_3粉末を３５００ｇ、TiO_2粉末を１０００ｇ、タルク粉末を３５０ｇ、マイカ粉末を１５０ｇ、澱粉を５００ｇ、メチルセルロースを１０ｇ、を混合した粉末に適量の水を添加した後、ミキサーで混練して作製した。成形原料及び目封止材の各原料粉末の平均粒子径は、以下の通りである。α－Al_2O_3粉末の平均粒子径は３２μｍであった。TiO_2粉末の平均粒子径は０．４μｍであった。タルク粉末の平均粒子径は３μｍであった。マイカ粉末の平均粒子径は４２μｍであった。
【００７４】
（ハニカムセグメント３）
以下に示す方法で、成形原料及び目封止材を調製し、且つ、焼成を、アルゴン雰囲気中、２２００℃で２時間行ったこと以外は、ハニカムセグメント１と同様の方法で、ハニカムセグメント３を作製した。ハニカムセグメント３における成形原料は、平均粒子径が１２μｍのα－ＳｉＣ粉末を３０００ｇ、平均粒子径が２μｍのα－ＳｉＣ粉末を２０００ｇ、メチルセルロースを３００ｇ、を混合した粉末に適量の水を添加して調製した。目封

止材は、平均粒子径が１２μｍのα－ＳｉＣ粉末を３０００ｇ、平均粒子径が２μｍのα－ＳｉＣ粉末を２０００ｇ、澱粉を５００ｇ、メチルセルロースを１０ｇ、を混合した粉末に適量の水を添加した後、ミキサーで混練して作製した。

【００７５】

（ハニカムセグメント４）

以下に示す方法で、成形原料及び目封止材を調製し、且つ、焼成を、アルゴン雰囲気中、１４５０℃で２時間行い、その後、温度を下げずに雰囲気を窒素に切り替え、１０時間焼成を行ったこと以外は、ハニカムセグメント１と同様の方法で、ハニカムセグメント４を作製した。ハニカムセグメント４における成形原料は、α－ＳｉＣ粉末を４０００ｇ、Ｓｉ粉末を１０００ｇ、$SrCO_3$粉末を５０ｇ、$Al(OH)_3$粉末を３０ｇ、粘土を５０ｇ、澱粉を１００ｇ、メチルセルロースを３００ｇ、を混合した粉末に水を適量添加して調製した。目封止材は、α－ＳｉＣ粉末を４０００ｇ、Ｓｉ粉末を１０００ｇ、$SrCO_3$粉末を５０ｇ、$Al(OH)_3$粉末を３０ｇ、粘土を５０ｇ、澱粉を５００ｇ、メチルセルロースを１０ｇ、を混合した粉末に適量の水を添加した後、ミキサーで混練して作製した。α－ＳｉＣ粉末の平均粒子径は２５μｍであった。Ｓｉ粉末の平均粒子径は５μｍであった。$SrCO_3$粉末の平均粒子径は１μｍであった。$Al(OH)_3$粉末の平均粒子径は１μｍであった。

【００７６】

（ハニカムセグメント５）

以下に示す方法で、成形原料及び目封止材を調製し、且つ、焼成を、アルゴン雰囲気中、１４５０℃で２時間行い、その後、大気中、１２５０℃で５時間の熱処理を行ったこと以外は、ハニカムセグメント１と同様の方法で、ハニカムセグメント５を作製した。ハニカムセグメント５における成形原料は、α－ＳｉＣ粉末を３５００ｇ、Ｓｉ粉末を１５００ｇ、タルク粉末を８５ｇ、カオリン粉末を１３０ｇ、α－Al_2O_3粉末を７０ｇ、粘土を５０ｇ、澱粉を２００ｇ、メチルセルロースを３００ｇ、を混合した粉末に水を適量添加して調製した。目封止材は、α－ＳｉＣ粉末を３５００ｇ、Ｓｉ粉末を１５００ｇ、タルク粉末を８５ｇ、カオリン粉末を１３０ｇ、α－Al_2O_3粉末を７０ｇ、粘土を５０ｇ、澱粉を５００ｇ、メチルセルロースを１０ｇ、を混合した粉末に適量の水を添加した後、ミキサーで混練して作製した。α－ＳｉＣ粉末の平均粒子径は２５μｍであった。Ｓｉ粉末の平均粒子径は５μｍであった。タルク粉末の平均粒子径は２４μｍであった。カオリン粉末の平均粒子径は３μｍであった。α－Al_2O_3粉末の平均粒子径は５μｍであった。

【００７７】

（ハニカムセグメント６）

以下に示す方法で、成形原料及び目封止材を調製したこと以外は、ハニカムセグメント１と同様の方法で、ハニカムセグメント６を作製した。ハニカムセグメント６における成形原料は、α－Al_2O_3粉末を２５５０ｇ、TiO_2粉末を１９５０ｇ、タルク粉末を３５０ｇ、マイカ粉末を１５０ｇ、澱粉を５０ｇ、メチルセルロースを２００ｇ、を混合した粉末に水を適量添加して調製した。目封止材は、α－Al_2O_3粉末を２５５０ｇ、TiO_2粉末を１９５０ｇ、タルク粉末を３５０ｇ、マイカ粉末を１５０ｇ、澱粉を５００ｇ、メチルセルロースを１０ｇ、を混合した粉末に適量の水を添加した後、ミキサーで混練して作製した。α－Al_2O_3粉末の平均粒子径は３２μｍであった。TiO_2粉末の平均粒子径は０．４μｍであった。タルク粉末の平均粒子径は３μｍであった。マイカ粉末の平均粒子径は４２μｍであった。

【００７８】

（ハニカムセグメント７）

以下に示す方法で、成形原料及び目封止材を調製し、且つ、焼成を、１４２０℃で４時間行ったこと以外は、ハニカムセグメント１と同様の方法で、ハニカムセグメント７を作製した。ハニカムセグメント７における成形原料は、カオリン粉末を１１１０ｇ、タルク粉末を２１３５ｇ、α－Al_2O_3粉末を１２１０ｇ、SiO_2粉末を５４０ｇ、澱粉を

１００ｇ、メチルセルロースを２００ｇ、を混合した粉末に水を適量添加して調製した。目封止材は、カオリン粉末を１１１０ｇ、タルク粉末を２１３５ｇ、α－Al_2O_3粉末を１２１０ｇ、SiO_2粉末を５４０ｇ、澱粉を５００ｇ、メチルセルロースを１０ｇ、を混合した粉末に適量の水を添加した後、ミキサーで混練して作製した。カオリン粉末の平均粒子径は３μｍであった。タルク粉末の平均粒子径は２４μｍであった。α－Al_2O_3粉末の平均粒子径は６μｍであった。SiO_2粉末の平均粒子径は２１μｍであった。

【００７９】

表１に、ハニカムセグメント１～７の「材料」を示す。また、ハニカムセグメント１～７について、以下の方法で、気孔率、平均細孔径、真密度、熱容量Ｃ１、熱容量Ｃ２、熱伝導率、熱膨張係数、圧力損失を測定した。表１に、「気孔率（％）」、「平均細孔径（μｍ）」、「真密度（ｇ／ｃｍ^3）」、「熱容量Ｃ１（Ｊ／Ｋ／ｃｍ^3）」、「熱容量Ｃ２（Ｊ／Ｋ／ｃｍ^3）」、「熱伝導率（Ｗ／ｍ／Ｋ）」、「熱膨張係数（ｐｐｍ／Ｋ）」、「圧力損失（ｋＰａ）」の値を示す。

【００８０】

気孔率（％）及び真密度（ｇ／ｃｍ^3）は、アルキメデス法（ＪＩＳ　Ｒ　１６３４）により測定した。平均細孔径（μｍ）は、水銀圧入法（ＪＩＳ　Ｒ　１６５５）により測定した。

【００８１】

熱容量Ｃ１（Ｊ／Ｋ／ｃｍ^3）は、ハニカムセグメント１～７を構成するそれぞれの材料（すなわち、ハニカムセグメント１～７の隔壁を構成するそれぞれの材料）の単位体積あたりの熱容量Ｃ１（Ｊ／Ｋ／ｃｍ^3）を示す。熱容量Ｃ１（Ｊ／Ｋ／ｃｍ^3）は、以下の方法で測定した。まず、アルバック理工社製の断熱型比熱測定装置を用いて、ハニカムセグメント１～７を構成するそれぞれの材料の６００℃における単位質量あたりの熱容量（Ｊ／Ｋ／ｇ）を測定した。次に、得られた単位質量あたりの熱容量（Ｊ／Ｋ／ｇ）に、ハニカムセグメント１～７の隔壁を構成する材料の真密度（ｇ／ｃｍ^3）を乗算することで、ハニカムセグメントを構成する材料の単位体積あたりの熱容量Ｃ１（Ｊ／Ｋ／ｃｍ^3）を算出した。「ハニカムセグメント１～７の隔壁を構成する材料の真密度（ｇ／ｃｍ^3）」は、室温においてアルキメデス法で測定した。

【００８２】

熱容量Ｃ２（Ｊ／Ｋ／ｃｍ^3）は、ハニカムセグメント１～７の隔壁を構成する多孔体の単位体積あたりの熱容量（Ｊ／Ｋ／ｃｍ^3）を示す。熱容量Ｃ２（Ｊ／Ｋ／ｃｍ^3）は、下記式（２）より算出した。

熱容量Ｃ２＝熱容量Ｃ１×（１００－ｐ）／１００　・・・　（２）

（但し、上記式（２）において、熱容量Ｃ１は、ハニカムセグメントを構成するそれぞれの材料の単位体積あたりの熱容量（Ｊ／Ｋ／ｃｍ^3）を示す。ｐは、ハニカムセグメント１～７の隔壁を構成する多孔体のそれぞれの気孔率（％）を示す。）

【００８３】

熱伝導率（Ｗ／ｍ／Ｋ）は、以下の方法で測定した。まず、室温でレーザーフラッシュ法により熱拡散率（ｃｍ^2／ｓｅｃ）を測定した。また、別途、示差走査熱量計（ＤＳＣ）にて室温で単位質量当たりの熱容量（Ｊ／Ｋ／ｇ）を測定した。更に、別途、室温でアルキメデス法にてかさ密度（ｇ／ｃｍ^3）を測定した。そして、得られた熱拡散率（ｃｍ^2／ｓｅｃ）、熱容量（Ｊ／Ｋ／ｇ）、及びかさ密度（ｇ／ｃｍ^3）を、乗算（熱拡散率×熱容量×かさ密度）することで、熱伝導率を算出した。熱膨張係数（ｐｐｍ／Ｋ）は、示差検出型の熱膨張計にて、４０～８００℃の平均熱膨張係数（ＣＴＥ）を測定して求めた。圧力損失（ｋＰａ）は、室温で一定流量の空気を流通させたときの、ハニカムセグメントの入口側の空気の圧力と出口側の空気の圧力との差を測定して求めた。ハニカムセグメントの入口側の空気の圧力とは、例えば、ハニカムセグメントの第一端面側の空気の圧力であり、ハニカムセグメントの出口側の空気の圧力とは、例えば、ハニカムセグメントの第二端面側の空気の圧力である。

【００８４】
（実施例１）
実施例１においては、まず、図６Ａに示すように、内側セグメント３６ａとして、表１に示すハニカムセグメント１を４個使用し、外側セグメント３６ｂとして、表１に示すハニカムセグメント３を１２個使用して、ハニカムセグメントの接合体３４ａを作製した。図６Ａは、実施例１のハニカムセグメントの接合体の端面を模式的に示す平面図である。図６Ａにおいては、ハニカムセグメントの接合体３４ａの中央部分に、４個の内側セグメント３６ａが縦横２個ずつ配列し、この内側セグメント３６ａを取り囲むように、１２個の外側セグメント３６ｂが外周部分に配置されている。内側セグメント３６ａ及び外側セグメント３６ｂは、以下に示すような調製された接合材によって接合した。接合材は、α－ＳｉＣ粉末を１５００ｇ、シリカゾルを２０００ｇ、セラミック繊維を１５００ｇ、造孔材を５０ｇ、バインダーを２０ｇ、更に適量の水を混合することで作製した。α－ＳｉＣ粉末の平均粒子径は２μｍであった。また、接合材によって内側セグメント３６ａ及び外側セグメント３６ｂを接合した後、熱風乾燥を行った。図６Ａにおける符号３７は、接合材によって形成された接合層を示す。
【００８５】
次に、ハニカムセグメントの接合体３４ａの外周を研削した。具体的には、図６Ｂに破線で描かれた円形を残すように、ハニカムセグメントの接合体３４ａの上記円形の外側を研削した。このような研削によって、円柱状のセグメント構造のハニカム構造部３４を作製した。図６Ｂは、実施例１のハニカムセグメントの接合体の端面を模式的に示す平面図である。
【００８６】
次に、得られた円柱状のセグメント構造のハニカム構造部の外周面に、外周コート材を塗布して外周壁の前駆体を形成した。外周コート材は、接合層の形成に用いた接合材と同じ方法で調製したものを用いた。その後、外周壁の前駆体を形成したハニカム構造部を熱風乾燥し、更に、８００℃で焼成して、実施例１の目封止ハニカム構造体を製造した。実施例１の目封止ハニカム構造体は、内側セグメントと外側セグメントの面積比率が３２／６８であった。
【００８７】
表２の「使用セグメント」の「内側」及び「外側」の欄に、実施例１の目封止ハニカム構造体の作製に使用した内側セグメント及び外側セグメントの種類を示す。「使用セグメント」の「内側」及び「外側」の欄に記載された数値は、表１のハニカムセグメント１～７に付された数値に対応している。
【００８８】

【表２】

	使用セグメント		内外セグメントの特性比較				最高温度変化率	再生効率変化率	温度差変化率	F値	クラック
	内側	外側	熱容量C1	熱伝導率	熱膨張係数	圧力損失					
比較例1	1	1	1.00	1	1.00	1.00	0%	0%	0%	0%	少ない
実施例1	1	3	0.85	52	1.00	1.03	2%	30%	−36%	28%	非常に少ない
実施例2	1	4	0.85	25	0.87	1.06	2%	23%	−30%	21%	少ない
実施例3	1	5	0.70	37	1.02	0.98	4%	42%	−54%	38%	非常に少ない
比較例2	2	2	1.00	1	1.00	1.00	0%	0%	0%	0%	非常に少ない
実施例4	2	3	0.87	52	1.45	1.03	1%	27%	−33%	26%	なし
実施例5	2	4	0.87	25	1.26	1.06	2%	21%	−27%	19%	なし
実施例6	2	5	0.72	37	1.48	0.98	4%	40%	−51%	36%	なし
比較例3	6	6	1.00	1	1.00	1.00	0%	0%	0%	0%	なし
参考例7	6	7	0.83	1	1.00	0.94	2%	20%	−26%	18%	なし

【００８９】

表２の「内外セグメントの特性比較」の「熱容量Ｃ１」、「熱伝導率」、「熱膨張係数」、及び「圧力損失」欄に、下記式（３）によって算出された特性比較を示す。

特性比較＝外側セグメントの特性値Ａ１／内側セグメントの特性値Ａ２　・・・　（３）

（但し、上記式（３）において、外側セグメントの特性値Ａ１とは、外側セグメントの、熱容量Ｃ１（Ｊ／Ｋ／ｃｍ^3）、熱伝導率（Ｗ／ｍ／Ｋ）、熱膨張係数（ｐｐｍ／Ｋ）、又は圧力損失（ｋＰａ）の値を示す。内側セグメントの特性値Ａ２とは、内側セグメント

の、熱容量Ｃ１（Ｊ／Ｋ／ｃｍ^3）、熱伝導率（Ｗ／ｍ／Ｋ）、熱膨張係数（ｐｐｍ／Ｋ）、又は圧力損失（ｋＰａ）の値を示す。）

【００９０】

より具体的には、表２の「内外セグメントの特性比較」の「熱容量Ｃ１」の欄には、下記式（４）によって算出された値が示されている。

特性比較（熱容量Ｃ１）＝外側セグメントの熱容量Ｃ１／内側セグメントの熱容量Ｃ１　・・・　（４）

【００９１】

また、実施例１の目封止ハニカム構造体について、以下の方法で、「最高温度変化率」、「再生効率変化率」、「温度差変化率」を求めた。結果を表２に示す。表２の「Ｆ値」の欄に、再生効率変化率から最高温度変化率を引いた値を示す。以下、再生効率変化率から最高温度変化率を引いた値を、単に「Ｆ値」ということがある。Ｆ値の値が高いほど、目封止ハニカム構造体の最高温度を高くせずに、再生効率が向上したことを表している。

【００９２】

（最高温度変化率，再生効率変化率、温度差変化率）

まず、目封止ハニカム構造体に一定量の煤を堆積させた後、目封止ハニカム構造体の再生制御を行い、そのときの内側セグメント及び外側セグメントの最高温度（℃）を測定した。また再生後に、目封止ハニカム構造体の質量を測定し、下記式（５）によって再生効率（％）を算出した。なお、再生効率が高いということは、燃え残りの煤が少ないことを意味し、再生効率は高い方が、目封止ハニカム構造体にとって好ましいと言える。

再生効率（％）＝（ｍ１－ｍ２）÷（ｍ３－ｍ４）×１００　・・・　（５）

（但し、上記式（５）において、ｍ１は、再生制御前の目封止ハニカム構造体の質量を示す。ｍ２は、再生制御後の目封止ハニカム構造体の質量を示す。ｍ３は、煤堆積後の目封止ハニカム構造体の質量を示す。ｍ４は、煤堆積前の目封止ハニカム構造体の質量を示す。ここで、再生制御前の目封止ハニカム構造体の質量ｍ１と、煤堆積後の目封止ハニカム構造体の質量ｍ３とは、同じ値である（すなわち、「ｍ１＝ｍ３」である）。

【００９３】

実施例１～３においては、比較例１の目封止ハニカム構造体に対する最高温度及び再生効率の変化率を求め、最高温度変化率及び再生効率変化率とした。実施例４～６においては、比較例２の目封止ハニカム構造体に対する最高温度及び再生効率の変化率を求め、最高温度変化率及び再生効率変化率とした。参考例７においては、比較例３の目封止ハニカム構造体に対する最高温度及び再生効率の変化率を求め、最高温度変化率及び再生効率変化率とした。例えば、実施例１の目封止ハニカム構造体の、最高温度変化率，及び再生効率変化率は、下記式（６）によって算出した。なお、再生効率変化率が大きいということは、再生効率が高い値を示していることを意味する。また、最高温度変化率が小さいということは、最高温度が高くなっていない（すなわち、再生時の温度上昇が抑制されている）ことを意味する。

最高温度変化率，再生効率変化率（％）＝（実施例１の目封止ハニカム構造体の測定値Ｂ１－比較例１の目封止ハニカム構造体の測定値Ｂ２）／比較例１の目封止ハニカム構造体の測定値Ｂ２×１００　・・・　（６）

（但し、上記式（６）において、実施例１の目封止ハニカム構造体の測定値Ｂ１とは、実施例１の目封止ハニカム構造体の、最高温度（℃）、又は再生効率（％）の値を示す。比較例１の目封止ハニカム構造体の測定値Ｂ２とは、比較例１の目封止ハニカム構造体の、最高温度（℃）、又は再生効率（％）の値を示す。）

【００９４】

また、例えば、実施例１の目封止ハニカム構造体の温度差変化率（％）は、下記式（７）によって算出した。この温度差変化率（％）が小さいということは、内側セグメントの温度上昇が抑制され、内側セグメントの温度と外側セグメントの温度との差が小さくなっていることを意味する。

温度差変化率（％）＝（実施例１の目封止ハニカム構造体の温度差Ｃ１－比較例１の目

封止ハニカム構造体の温度差Ｃ２）／比較例１の目封止ハニカム構造体の温度差Ｃ２×１００　・・・　（７）
（但し、上記式（７）において、実施例１の目封止ハニカム構造体の温度差Ｃ１とは、実施例１の目封止ハニカム構造体の、内側セグメントの最高温度Ｔ１（℃）と外側セグメントの最高温度Ｔ２（℃）の温度差（Ｔ１－Ｔ２）（℃）の値を示す。比較例１の目封止ハニカム構造体の温度差Ｃ２とは、比較例１の目封止ハニカム構造体の、内側セグメントの最高温度Ｔ３（℃）と外側セグメントの最高温度Ｔ４（℃）の温度差（Ｔ３－Ｔ４）（℃）の値を示す。）

【００９５】

また、最高温度変化率を測定する際の再生を行った後、目封止ハニカム構造体を観察することにより、クラックの発生量を確認した。表２の「クラック」の欄に、クラックの発生量を比較した結果を示す。クラックは、ハニカム構造体の外周部を目視で観察し、クラックの数及び長さを測定した。それを全ての実施例及び比較例において相対比較し、「なし」、「非常に少ない」、及び「少ない」の３段階で評価した。「なし」の評価は、クラックの発生が目視で確認されなかったことを示す。「なし」、「非常に少ない」、「少ない」の順で、クラックの発生頻度が多くなっている。

【００９６】

（実施例２～６、及び比較例１，２）

表２に示すような内側セグメント及び外側セグメントを使用したこと以外は、実施例１と同様の方法で、目封止ハニカム構造体を製造した。

【００９７】

（参考例７、及び比較例３）

以下のように作製された接合材及び外周コート材を用いたこと以外は、実施例１と同様の方法で、目封止ハニカム構造体を製造した。接合材及び外周コート材は、コージェライト粉末を１２００ｇ、シリカゾルを２０００ｇ、セラミック繊維を１５００ｇ、造孔材を５０ｇ、バインダーを２０ｇ、更に適量の水を混合することで作製した。コージェライト粉末の平均粒子径は２μｍであった。

【００９８】

実施例２～６及び参考例７の目封止ハニカム構造体における「内外セグメントの特性比較」の値を、表２の「内外セグメントの特性比較」の「熱容量Ｃ１」、「熱伝導率」、「熱膨張係数」、及び「圧力損失」欄に示す。各特性比較の値は、上記式（３）によって算出された値である。また、最高温度変化率、再生効率変化率、温度差変化率、「Ｆ値」の値、及びクラックの発生量の確認結果についても、表２に示す。

【００９９】

（結果）

実施例１～６及び参考例７の目封止ハニカム構造体は、再生効率変化率から最高温度変化率を引いた値である「Ｆ値」の値が大きく、目封止ハニカム構造体の最高温度を高くせずに、再生効率が向上したものであった。また、「Ｆ値」が大きいほど、温度差変化率が小さくなるため、粒子状物質を捕集するフィルタとして好適に使用することができる。具体的には、比較例１に対して、実施例１～３は特性比較（熱容量Ｃ１）が小さいため、Ｆ値が大きくなるという結果が得られた。同様なことが、比較例２に対する実施例４～６や、比較例３に対する参考例７でも確認できた。また、実施例１と実施例２、実施例４と実施例５をそれぞれ比較すると、熱伝導率が高いほうが、再生効率変化率が大きくなり、Ｆ値も大きくなるという傾向が確認された。

【０１００】

また、実施例４～６は、外側セグメントを構成する多孔体の熱膨張係数が大きいものであるため、実施例１～３と比較して、「Ｆ値」が小さいにも関わらず、クラックが少なくなることが確認された。したがって、外側セグメントを構成する多孔体は、内側セグメントを構成する多孔体と比較して、熱膨張係数が高いものであることが好ましいと言える。特に、外側セグメントを構成する多孔体の熱膨張係数が、内側セグメントを構成する多孔

体の熱膨張係数と比較して、１．２０～１．６０倍であると、クラックが少なくなった。

【産業上の利用可能性】

【０１０１】

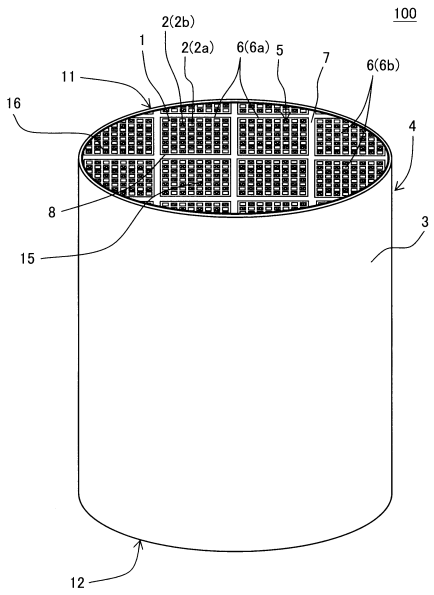
本発明の目封止ハニカム構造体は、排ガスを浄化する排ガス浄化用のフィルタとして利用することができる。

【符号の説明】

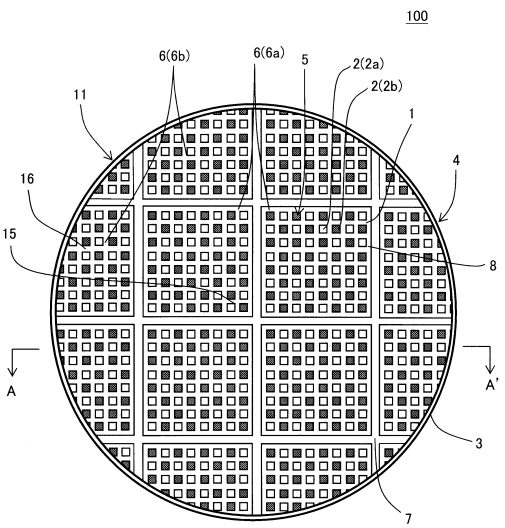
【０１０２】

１：隔壁、２：セル、２ａ：セル、２ｂ：セル、３：外周壁、４：ハニカム構造部、５：目封止部、６：ハニカムセグメント、６ａ，３６ａ：内側セグメント、６ｂ，３６ｂ：外側セグメント、７，３７：接合層、８：外壁（ハニカムセグメントの外壁）、１１：第一端面（端面）、１２：第二端面（端面）、１５：中央部分、１６：外周部分、３４：セグメント構造のハニカム構造部、３４ａ：ハニカムセグメントの接合体、１００：目封止ハニカム構造体。

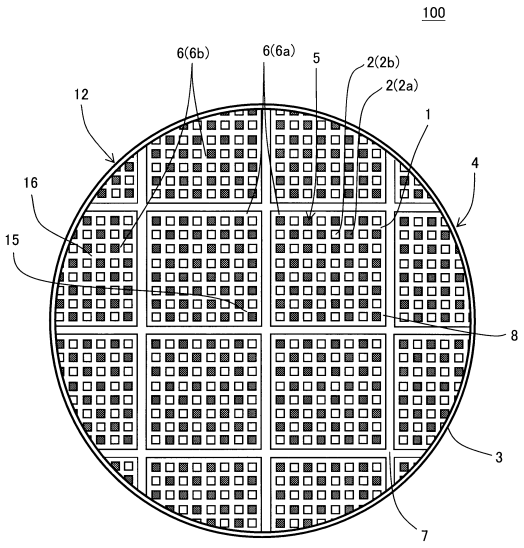
【図１】



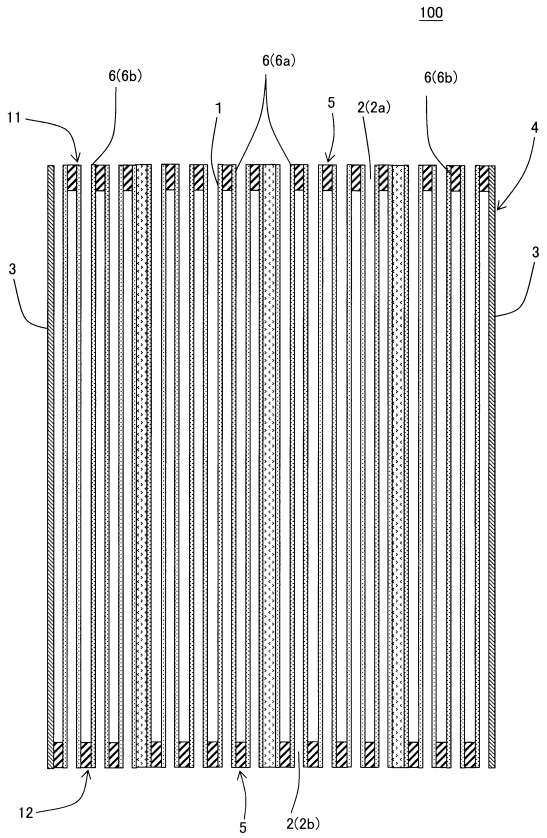
【図２】



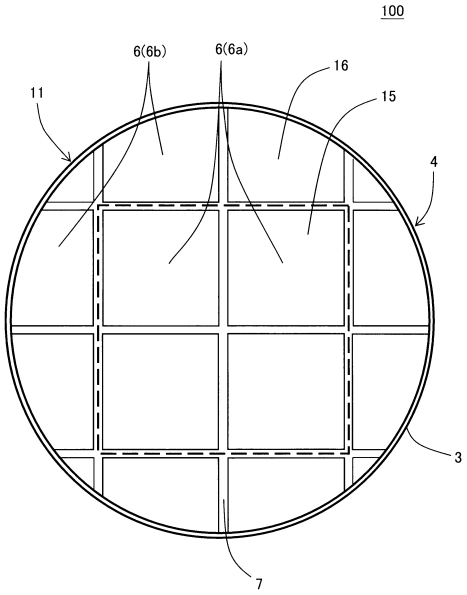
【図３】



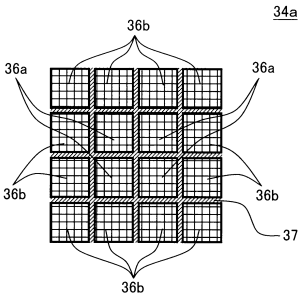
【図４】



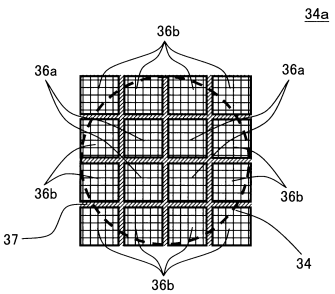
【図５】



【図６Ａ】



【図６Ｂ】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.			FI		
B01J	***27/224***	***(2006.01)***	B01J	27/224	A
B01J	***27/24***	***(2006.01)***	B01J	27/24	A
B01J	***21/10***	***(2006.01)***	B01J	21/10	A
F01N	***3/022***	***(2006.01)***	F01N	3/022	C

(56)参考文献 特開２００３－２５４０３４（ＪＰ，Ａ）
国際公開第２０１３／０４７７９０（WO，Ａ１）
特開２００３－１１７３２０（ＪＰ，Ａ）

(58)調査した分野(Int.Cl.，ＤＢ名)
Ｂ０１Ｄ　３９／２０
Ｂ０１Ｄ　４６／００
Ｂ０１Ｊ　２１／００－３８／７４
Ｃ０４Ｂ　３８／００
Ｆ０１Ｎ　３／０２２