

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第3983117号  
(P3983117)

(45) 発行日 平成19年9月26日(2007.9.26)

(24) 登録日 平成19年7月13日(2007.7.13)

(51) Int. Cl.	F I	
FO1N 3/02 (2006.01)	FO1N 3/02	3O1C
BO1D 39/20 (2006.01)	BO1D 39/20	D
BO1D 53/06 (2006.01)	BO1D 53/36	C
BO1J 35/04 (2006.01)	BO1J 35/04	3O1E
B2BB 3/26 (2006.01)	BO1J 35/04	3O1J
請求項の数 10 (全 15 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号	特願2002-194803 (P2002-194803)	(73) 特許権者	000004064
(22) 出願日	平成14年7月3日(2002.7.3)		日本碍子株式会社
(65) 公開番号	特開2003-161136 (P2003-161136A)		愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号
(43) 公開日	平成15年6月6日(2003.6.6)	(74) 代理人	100088616
審査請求日	平成17年1月19日(2005.1.19)		弁理士 渡邊 一平
(31) 優先権主張番号	特願2001-232506 (P2001-232506)	(72) 発明者	浜中 俊行
(32) 優先日	平成13年7月31日(2001.7.31)		愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号
(33) 優先権主張国	日本国(JP)		日本碍子株式会社内
		(72) 発明者	伊藤 匡人
			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	亀田 貴志
			最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ハニカム構造体及びその製造方法

(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とともに、隣接する流通孔が互いに反対側となる一方の端部で目封止されたハニカム構造体であって、流路セパレーター（複数のハニカムセグメントを接合層により一体化してハニカム構造体を形成する場合には、その接合層を除く。）が、流入口側端部を封止することにより、封止された流通孔が連続して連なるように形成されてなることを特徴とするハニカム構造体。

【請求項2】

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ハニカム構造体であって、流路セパレーター（複数のハニカムセグメントを接合層により一体化してハニカム構造体を形成する場合には、その接合層を除く。）が、流入口側端部及び流出口側端部を封止することにより、封止された流通孔が連続して連なるように形成されてなることを特徴とするハニカム構造体。

【請求項3】

流路セパレーターが断熱層となり、前記流路セパレーターを挟んだ熱の移動が妨げられることを特徴とする請求項1又は2に記載のハニカム構造体。

【請求項4】

20 から 800 までの熱膨張係数が  $2 \times 10^{-6} /$  以上である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構造体。

【請求項5】

10

20

複数のハニカムセグメントが一体化されてなるハニカム構造体であって、前記ハニカムセグメントの少なくとも1つに流路セパレーターが形成されてい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構造体。

【請求項6】

流通孔の垂直方向における断面積が $900\text{ mm}^2 \sim 10000\text{ mm}^2$ であるハニカムセグメントを含むことを特徴とする請求項5に記載のハニカム構造体。

【請求項7】

ハニカムセグメントの熱膨張係数との差が $1.5 \times 10^{-6} /$ 以下の接合材を用いてハニカムセグメントを接合することにより一体化されていることを特徴とする請求項5又は6に記載のハニカム構造体。

【請求項8】

窒化ケイ素、炭化珪素、珪素-炭化珪素系複合材料、ムライト、炭化珪素-コーゼライト系複合材料、アルミナから選ばれた1種又は2種以上の材料を主成分とする請求項1乃至7の何れか1項に記載のハニカム構造体。

【請求項9】

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とともに、隣接する流通孔が互いに反対側となる一方の端部で目封じされ、流路セパレーター（複数のハニカムセグメントを接合層により一体化してハニカム構造体を形成する場合には、その接合層を除く。）が、流入口側端部を封止することにより、封止された流通孔が連続して連なるように形成されてなる、請求項1、3乃至8の何れか1項に記載されたハニカム構造体の製造方法であって、流路セパレーターを目封じにより形成することを特徴とするハニカム構造体の製造方法。

【請求項10】

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し、流路セパレーター（複数のハニカムセグメントを接合層により一体化してハニカム構造体を形成する場合には、その接合層を除く。）が、流入口側端部及び流出口側端部を封止することにより、封止された流通孔が連続して連なるように形成されてなる、請求項2乃至8の何れか1項に記載されたハニカム構造体の製造方法であって、流路セパレーターを目封じにより形成することを特徴とするハニカム構造体の製造方法。

【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構造体及びその製造方法に関し、特に使用時の熱応力により破損することが少なく、経済的に有利な工程により製造することができるハニカム構造体及びその製造方法に関する。

【0002】

【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（以下DPFという）や排ガス浄化用の触媒担体等にハニカム構造体が用いられている。

【0003】

このような目的で使用されるハニカム構造体は、一般に、図18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。さらに、DPF用には通常、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目封じされた構造を有する。このような構造を有するハニカム構造体において、被処理流体は流入口側端部42が目封じされていない流通孔3、即ち流出孔側端部44が目封じされている流通孔3に流入し、多孔質の隔壁2を通過して隣の流通孔3、即ち流入孔側端部42が目封じされ、流出孔側端部44が目封じ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ート（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構造体は、排気ガ

10

20

30

40

50

スの急激な温度変化や局所的な発熱によって八ニカム構造体内の温度分布が不均一となり、八ニカム構造体にクラックを生ずる等の問題があった。特にDPF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避けられないため、大きな熱応力が発生し易く、クラックが発生し易かった。

#### 【0004】

このため、八ニカム構造体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、多数の八ニカム体を不連続な接合材で接合する八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八ニカム構造のマトリックスセグメントを押し出し成形し、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鉋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、コーゼライトの八ニカムセグメントを同じくコーゼライトセメントで接合したセラミック八ニカム構造体が開示されている。さらに特開平8-28246号公報には、八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繊維、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八ニカム構造体が開示されている。

#### 【0005】

この様に複数に分割したセグメントを一体化することにより、局所的な温度上昇を抑制することは有効な方法であるが、1つの八ニカム構造体を製造するために、多くのセグメントを製造した後これらを一体化するという工程を必要とし、特に多数のセグメントに分割することが必要な場合には経済的には好ましくない。

#### 【0006】

##### 【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、セグメント化することなく、又はより少ないセグメントを一体化することで、局所的な温度上昇を抑制し使用時の熱応力により破損することが少ない八ニカム構造体、及びその製造方法を提供することにある。

#### 【0007】

##### 【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とともに、隣接する流通孔が互いに反対側となる一方の端部で目封止された八ニカム構造体であって、流路セパレーター（複数の八ニカムセグメントを接合層により一体化して八ニカム構造体を形成する場合には、その接合層を除く。）が、流入口側端部を封止することにより、封止された流通孔が連続して連なるように形成されてなることを特徴とする八ニカム構造体を提供するものである。

また、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八ニカム構造体であって、流路セパレーター（複数の八ニカムセグメントを接合層により一体化して八ニカム構造体を形成する場合には、その接合層を除く。）が、流入口側端部及び流出口側端部を封止することにより、封止された流通孔が連続して連なるように形成されてなることを特徴とする八ニカム構造体を提供するものである。

#### 【0008】

本発明において、流路セパレーターが断熱層となり、前記流路セパレーターを挟んだ熱の移動が妨げられることが好ましい。また、本発明の八ニカム構造体は20 から800までの熱膨張係数が $2 \times 10^{-6} /$ 以上であることが好ましく、複数の八ニカム構造セグメントが一体化されてなる八ニカム構造体であって、かつ該八ニカム構造セグメントの少なくとも1つに流路セパレーターが形成されていることが好ましい。さらに、流通孔の垂直方向における断面積が $900 \text{ mm}^2 \sim 10000 \text{ mm}^2$ である八ニカム構造セグメントを含むことが好ましい。さらに、八ニカム構造セグメントの熱膨張係数との差が $1.5 \times$

10

20

30

40

50

10<sup>-6</sup> / 以下の接合材を用いて八ニカム構造セグメントを接合することにより一体化されていることが好ましい。さらに、本発明の八ニカム構造体は窒化ケイ素、炭化珪素、珪素 - 炭化珪素系複合材料、ムライト、炭化珪素 - コージェライト系複合材料、アルミナから選ばれた1種又は2種以上の材料からなることが好ましい。

#### 【0009】

本発明はさらに、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とともに、隣接する流通孔が互いに反対側となる一方の端部で目封じされ、流路セパレーターが、流入口側端部を封止することにより、封止された流通孔が連続して連なるように形成されてなる八ニカム構造体の製造方法であって、流路セパレーターを目封じにより形成することを特徴とする八ニカム構造体の製造方法を提供するものである。

10

#### 【0010】

本発明はまた、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し、流路セパレーターが、流入口側端部及び流出口側端部を封止することにより、封止された流通孔が連続して連なるように形成されてなる八ニカム構造体の製造方法であって、流路セパレーターを目封じにより形成することを特徴とする八ニカム構造体の製造方法を提供するものである。

#### 【0011】

##### 【発明の実施の形態】

以下、DPF用の八ニカム構造体を例に、図面に従って本発明の八ニカム構造体構造体及びその製造方法の内容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。尚、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。

20

#### 【0012】

図1(a)~(c)及び図2(a)、(b)は、本発明の八ニカム構造体の一形態を示す模式図であり、図1(a)、(c)及び図2(a)~(c)において、上側が流入孔側端部42、即ち排ガスなどの被処理流体が流入する側の端部である。本発明の八ニカム構造体は、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。図1(a)~(c)及び図2(a)、(b)に示すDPF用の八ニカム構造体は、さらに、端面が市松模様状を呈するように、流通孔の端部31において隣接する流通孔3が互いに反対側となる一方の端部で目封じ材5により目封じされている。本発明の重要な特徴は、八ニカム構造体に流路セパレーター6が形成されていることである。流路セパレーターとは、流路セパレーター6を挟んだ両側の流通孔3において、一方の流通孔3から他方の流通孔3へ被処理流体の流通が実質的に起こらない層、又は流通を大きく阻害する層である。なお、本願における流路セパレーターは、セグメントに分割された八ニカム構造体を接合する際に形成される接合層とは異なるものであって、このような接合層は、本願の流路セパレーターからは除かれる。この様な流路セパレーター6を備えることにより、流路セパレーター6を挟んだ流体の流通が実質的に遮断され又は阻害され、被処理流体の流路が流路セパレーター6により分離される。さらに、流路セパレーター6が断熱層となり、流路セパレーターを挟んだ熱の移動が妨げられる。また、流路セパレーター部が十分な熱容量を持つことによりスートの燃焼熱を吸収かつ熱拡散に寄与して急激なスート燃焼を制御する働きをする。これらの効果により、本発明の八ニカム構造体を特にDPFとして用いた場合に、堆積したスート燃焼の連鎖が抑制され、爆発的なスートの燃焼などによる熱的な暴走を防止することができる。流路セパレーターによりこのような効果が得られることから、八ニカム構造体をセグメントに分割せずに、又は少ない分割数で熱応力による破損を抑制することが可能となる。なお、上述のような流路セパレーターの効果は、八ニカム構造体をDPFとして用いた場合に、より効果的に得られるが、その他の用途、例えば触媒担体や他のフィルターとして用いた場合にも本発明の効果が得られることはいうまでもない。

30

40

#### 【0013】

流路セパレーターは、図1(b)及び図2(b)に示すように流入口側端部42を線状に封止することによって形成することができる。この場合には、封止された図1(b)に示

50

す流路セパレーター 6 のラインに沿って X 軸方向に空気の層が形成され、これが流路セパレーターの役割を果たす。また、この場合において流出口側端部 4 4 をさらに封止することも、断熱性、流通の遮断性の観点から好ましい。さらに、図 2 ( c ) に示すように、X 軸方向全体にわたってセラミックス等の部材を充填することにより流路セパレーターが形成されていても良い。また、X 軸方向の一部にセラミックス等の部材を充填することにより流路セパレーターが形成されていても良い。流路セパレーター 6 を形成するために、流入口側端部 4 2 及び好ましくは、さらに流出口側端部 4 4 を封止する場合、封止材は、後述するハニカム構造体に好適な材料と同様のセラミックス及び / 又は金属等を例として挙げることができる。この場合において、これらの中から選ばれた実際に使用するハニカム構造体の材料と同様の材料を封止材の材料として用いることも好ましい。また、ハニカム構造体の材料とは異なる材質の材料を封止材に用いることも可能であり、この場合には熱膨張係数をハニカム構造体の材料に近似させ、例えば熱膨張係数の差を  $1 \times 10^{-6} /$  以下にすることが好ましい。

10

**【 0 0 1 4 】**

本発明において、流路セパレーターの幅に特に制限はないが、幅が狭すぎると本発明の効果が得られにくくなり、広すぎるとハニカム構造体としての処理能力の減少、D P F に用いた場合のスート再生効率の低下などが生じるため、各々好ましくない。好ましい流路セパレーターの幅は、 $300 \mu\text{m} \sim 3000 \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは、 $400 \mu\text{m} \sim 2000 \mu\text{m}$ 、最も好ましくは、 $500 \mu\text{m} \sim 1000 \mu\text{m}$  である。この範囲は使用するハニカム構造体のセル構造により定められるが、ハニカム構造体の隔壁厚さよりも  $50 \mu\text{m}$  以上幅が大きいことが好ましい。

20

流路セパレーターの長さや数に特に制限はなく、当業者は、ハニカム構造体の材質、大きさや用途などによって、熱応力による破損が起こりにくかつハニカム構造体としての処理能力の減少、D P F に用いた場合のスート再生効率の低下などがあまり起こらない範囲で、選択することができる。但し、断熱効果や連鎖反応の抑制という観点から、図 3、図 4 に示されるように、流路セパレーターによりハニカム構造体が複数に仕切られていることが好ましい。図 3 は、後述する封止法により貫通孔を封止することにより流路セパレーター 6 を形成したものであり、図 4 は後述する一体形成法により流路セパレーター 6 を形成したものである。また、ハニカム構造体の断面中心部側は、より高温になり易いため、図 3、図 4 に示すように、中心部側により多くの流路セパレーター 6 を設けることも好ましい。

30

**【 0 0 1 5 】**

本発明の流路セパレーターが形成されているハニカム構造体は、特に熱膨張係数が大きい場合に効果的である。本発明のハニカム構造体は、20 から 800 までの熱膨張係数が、好ましくは  $2 \times 10^{-6} /$  以上、さらに好ましくは  $2.5 \times 10^{-6} /$  以上、最も好ましくは  $3 \times 10^{-6} /$  である場合により効果的となる。具体的には線膨張係数  $4 \times 10^{-6} /$  レベルの炭化珪素質、珪素 - 炭化珪素質複合材のハニカム構造体において特に有効である。

**【 0 0 1 6 】**

本発明のハニカム構造体は、図 5 ( a )、( b ) に示すように複数のセグメント 1 2 に分割されたものが接合材 8 によって接合されたものでもよい。この場合は、分割されたセグメント 1 2 の何れかに流路セパレーターが設けられていればよく、図 6 ( a ) ~ ( d ) に示すように種々の形態の流路セパレーター 6 を設けることができる。この様に流路セパレーターを設けることにより、熱応力による破損を防止できるために、従来は、より小さいセグメントに分割することが必要な場合であっても、小さいセグメントに分割することなく、同様の効果を得ることができる。この場合においても、上述と同様の理由から、ハニカム構造体の外周部側のセグメントにおける流路セパレーターの数を少なくし又は流路セパレーターを設けず、中心部側のセグメントに、より多くの流路セパレーターを設けることが好ましい。

40

**【 0 0 1 7 】**

50

上述のように、複数の八ニカムセグメントを一体化する場合には、接合材 8 を用いて一体化するが、接合材 8 と八ニカムセグメント 1 2 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。接合材と八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  $1.5 \times 10^{-6}/$ 、さらに好ましくは  $1 \times 10^{-6}/$ 、最も好ましくは  $0.8 \times 10^{-6}/$  以下である。好ましい接合材は、後述する八ニカム構造体の主成分として好適に用いられる材料から選ぶことができる。また、各セグメントの断面積が小さすぎると本発明の流路セパレーターを備える必要性が低くなり、断面積が大きすぎると断面積に対するセパレーターの面積が大きくなり高圧力損失となり好ましくない。本発明において、八ニカムセグメントの断面積は、好ましくは  $900 \text{ mm}^2 \sim 10000 \text{ mm}^2$ 、さらに好ましくは  $950 \text{ mm}^2 \sim 5000 \text{ mm}^2$ 、最も好ましくは  $1000 \text{ mm}^2 \sim 2500 \text{ mm}^2$  である。八ニカムセグメントの形状に特に制限はないが、図 5 ( b ) に示すように四角柱状を基本形状とし、図 5 ( a ) に示すように一体化した場合の八ニカム構造体の形状に合わせて外周側の八ニカムセグメントの形状を適宜選択することができる。

10

**【 0 0 1 8 】**

本発明において、八ニカム構造体 1 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、熱伝導率の高い炭化珪素や珪素 - 炭化珪素系複合材料は、放熱し易いという点で特に好ましく、特に、炭化珪素は放熱し易い点で好ましい一方、熱膨張係数が比較的大きいために局所的な高温化が生じた場合の熱応力に対する対策が必要であるという点からも、本発明の八ニカム構造体に特に適している。ここで、「主成分」とは、八ニカム構造体の 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。

20

**【 0 0 1 9 】**

また、本発明において、八ニカム構造体が金属珪素 ( Si ) と炭化珪素 ( SiC ) とからなる場合、八ニカム構造体の  $Si / ( Si + SiC )$  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ず、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い。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。

30

**【 0 0 2 0 】**

本発明において、八ニカム構造体 1 の隔壁 2 は、上述のようにフィルターの役割や触媒担体の役割を果たす多孔質体であることが好ましい。隔壁 2 の厚さに特に制限はないが、隔壁 2 が厚すぎると被処理流体の処理能力の低下や大きな圧力損失を招き、隔壁 2 が薄すぎると八ニカム構造体としての強度が不足し各々好ましくない。隔壁 2 の厚さは、好ましくは  $100 \sim 1000 \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは  $150 \sim 750 \mu\text{m}$ 、最も好ましくは  $250 \sim 500 \mu\text{m}$  の範囲である。

**【 0 0 2 1 】**

本発明の八ニカム構造体において、流通孔 3 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。また、セル密度、即ち八ニカム構造体 1 の断面上における単位面積当たりの流通孔 3 ( セル ) の数に特に制限はないが、セル密度が小さすぎると、八ニカム構造体としての強度や有効濾過面積が不足し、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、 $50 \sim 1000$  セル / 平方インチ (  $7.75 \sim 155$  セル /  $\text{cm}^2$  )、さらに好ましくは  $75 \sim 500$  セル / 平方インチ (  $11.6 \sim 77.5$  セル /  $\text{cm}^2$  )、最も好ましくは  $100 \sim 400$  セル / 平方インチ (  $15.5 \sim 62.0$  セル /  $\text{cm}^2$  ) の範囲である。本発明の八ニカム構造体の断面形状に特に制限はなく、円形その他、楕円形、長円形、オーバル形、略三角形、略四角形などの多角形などあらゆる形状をとることができる。

40

50

## 【0022】

本発明の八ニカム構造体を、触媒担体として内燃機関等の熱機関若しくはボイラー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、本発明の八ニカム構造体に触媒、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種を八ニカム構造体に担持させることが好ましい。

## 【0023】

本発明の八ニカム構造体は、端面42及び44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目封じされていることが好ましいが、目封じに用いる材料としては、上述の八ニカム構造体に好適に用いることができるセラミックス又は金属を好適に用いることができる。

10

## 【0024】

次に本発明の八ニカム構造体の製造方法を説明する。

八ニカム構造体の原料粉末として、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/又は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、可塑性の坯土を作製する。この坯土を押出成形することにより、図2(c)及び図4(a)、(b)に示すように、坯土が一定の幅、例えば500µmの幅で充填された流路セパレーターを備える八ニカム構造体を得る。

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八ニカム構造体の製造に用いた材料と同様の材料で目封じし、さらに乾燥した後、例えばN<sub>2</sub>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本発明の八ニカム構造体を得ることができる。この様に押出時に流路セパレーターを形成させる方法を、以後、一体形成法という。

20

## 【0025】

さらに、別の好ましい本発明の八ニカム構造体の製造方法は、上述と同様に坯土を作製した後、この坯土を押出成形により、例えば図18に示されるような八ニカム構造体を成形する。

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、隣接する前記流通孔が互いに反対側となる一方の端部で八ニカム構造体の製造に用いた材料と同様の材料で目封じする際に、図2(b)及び図3に示すように連続して一列に連なる貫通孔を一緒に封止して、さらに乾燥後、例えばN<sub>2</sub>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。これにより、封止された連続して一列に連なる貫通孔が流路セパレーターの層となり、本発明の八ニカム構造体を得ることができる。この様に成形後封止することにより流路セパレーターを形成する方法を、以後、封止法という。この場合において、流路セパレーターを形成するための貫通孔は、通常の流通孔とは異なる形状とすることができ、例えば図2(b)に示すように予め他の流通孔よりも狭くしておくことが好ましい。

30

## 【0026】

本発明の八ニカム構造体を、複数のセグメントを一体化することにより製造する場合には、例えば上述した方法のうちいずれかの方法で、八ニカムセグメントを作成し、これを例えばセラミックス質ファイバーとセラミックスを主成分とするセラミックスセメントを接合材に用い接合した後、上述と同様に乾燥、焼成することによって本発明の八ニカム構造体を得ることができる。

40

## 【0027】

この様にして種々の方法で製造された八ニカム構造体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。

## 【0028】

## 【実施例】

50

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。

【0029】

(実施例1)

原料として、SiC粉80質量%及び及び金属Si粉20質量%の混合粉末を使用し、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、可塑性の坯土を作製した。この坯土を押出成形し、マイクロ波及び熱風で乾燥して隔壁の厚さが380 $\mu$ m、セル密度が200セル/平方インチ(31.0セル/cm<sup>2</sup>)であって、断面が直径144mmの円の1/4扇状、長さが152mmの八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八ニカム構造体の製造に用いた材料と同様の材料で目封じする際に、図7に示すように連続して一列に連なる流通孔を一緒に封止して、乾燥させた後、N<sub>2</sub>雰囲気中約400 で脱脂し、その後Ar不活性雰囲気中で約1550 で焼成して、八ニカム構造体のセグメントを得た。得られた4つのセグメントを、アルミノシリケート質、炭化珪素粉及びシリカゾルに及び無機質のバインダーの混合物を用いて接合した後、200 で乾燥硬化し、DPF用の円柱状八ニカム構造体を得た。得られた八ニカム構造体の特性を表1に示す。

【0030】

【表1】

組成	SiC80%、Si20%
熱膨張係数 ( $\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ )	4.1 (40-800 $^{\circ}\text{C}$ )
気孔率(%)	45
平均細孔径 ( $\mu\text{m}$ )	12
熱伝導率 (W/Km)	20
曲げ強度 (MPa)	20

【0031】

(実施例2)

実施例1と同様の方法で、図8に示す流路セパレーターを備える、実施例1で得られたものと同じ大きさの円柱状DPF用八ニカム構造体を作成した。

(実施例3)

実施例1と同様の方法で坯土を作製し、図9に示す500 $\mu$ mの流路セパレーターを十字形に備えた一体押出成形品(セグメント化されていない成形品)を成形し(一体形成法)、封止法を用いなかった以外は実施例1と同様に乾燥、目封じ、脱脂、焼成を行い、実施例1で得られたものと同じ大きさの円柱状のDPF用八ニカム構造体を得た。

(比較例1)

流路セパレーターを設けなかったことを除いて、実施例1と同様の材料、方法で図10(a)、(b)に示す、実施例1で得られたものと同じ大きさの円柱状DPF用八ニカム構造体を得た。

【0032】

(実施例4)



図 1 1 に示す、一辺が 5 8 m m の正方形である断面形状のセグメントを基本セグメントとして用いたこと、及び図 2 ( c ) に示す一体形成法による幅 5 0 0  $\mu$  m の流路セパレーターを形成したことを除いて、実施例 1 と同様の材料、方法で D P F 用八ニカム構造体を得た。

( 実施例 5 )

図 1 2 に示す幅 5 0 0  $\mu$  m の流路セパレーターを形成したことを除いて、実施例 4 と同様の材料、方法で、実施例 4 で得られたものと同じ大きさの円柱状 D P F 用八ニカム構造体を得た。

( 実施例 6 )

図 1 3 に示す流路セパレーターを封止法で形成したことを除いて実施例 4 と同様の材料、方法で、実施例 4 で得られたものと同じ大きさの円柱状 D P F 用八ニカム構造体を得た。

10

( 比較例 2 )

流路セパレーターを設けなかったことを除いて、実施例 4 と同様の材料、方法で図 1 4 ( a )、( b ) に示す、実施例 4 で得られたものと同じ大きさの円柱状 D P F 用八ニカム構造体を得た。

【 0 0 3 3 】

( 実施例 7 )

図 1 5 に示す、一辺が 3 5 m m 正方形である断面形状のセグメントを基本セグメントとして用いたこと、及び図 2 ( c ) に示すような幅 5 0 0  $\mu$  m の流路セパレーターを一体形成法により形成したことを除いて、実施例 1 と同様の材料、方法で D P F 用八ニカム構造体を得た。

20

( 実施例 8 )

図 1 6 に示す流路セパレーターを封止法で形成したことを除いて実施例 7 と同様の材料、方法で、実施例 7 で得られたものと同じ大きさの円柱状 D P F 用八ニカム構造体を得た。

( 比較例 3 )

流路セパレーターを設けなかったことを除いて、実施例 7 と同様の材料、方法で図 1 7 ( a )、( b ) に示す、実施例 7 で得られたものと同じ大きさの円柱状 D P F 用八ニカム構造体を得た。

【 0 0 3 4 】

実施例 1 ~ 8 及び比較例 1 ~ 3 で得られた D P F 用八ニカム構造体を、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、3 0 p p m のローディア社製 C e 燃料添加剤を含有する軽油を用いてエンジンを運転し、5 g / リットルのスートを八ニカム構造体に溜めた後、ポストインジェクションによって 5 0 0 以上に排気ガス温度を上げることでスートの再生処理を行った。この時の D P F 内出口側の最高温度を計測するとともに試験後の D P F にクラックが発生しているかどうかを光学式の実体顕微鏡で確認した。この結果を表 2 に示す。

30

【 0 0 3 5 】

【 表 2 】

No	DPF内最高温度	クラック有無
比較例1	980℃	有り
実施例1	780℃	なし
実施例2	810℃	なし
実施例3	770℃	なし
比較例2	880℃	有り
実施例4	748℃	なし
実施例5	708℃	なし
実施例6	750℃	なし
比較例3	765℃	なし
実施例7	695℃	なし
実施例8	715℃	なし

10

20

## 【0036】

比較例1と実施例1～3を比較すると、比較例1で得られたハニカム構造体は、最高温度が高く、クラックが発生したのに対して、実施例1～3で得られたハニカム構造体は、最高温度が低く抑えられ、クラックの発生もみられなかった。

30

比較例2と実施例4～6を比較すると、比較例2で得られたハニカム構造体は最高温度が高くクラックが発生したのに対して、実施例4～6で得られたハニカム構造体は、最高温度が低く抑えられ、クラックの発生もみられなかった。

比較例3と実施例7及び8を比較すると、比較例3で得られたハニカム構造体はクラックの発生はみられなかったが、最高温度が高かったのに対して、実施例7及び8で得られたハニカム構造体は、最高温度が低く抑えられた。

## 【0037】

## 【発明の効果】

以上述べてきたように本発明のハニカム構造体は、流路セパレーターが形成されているため、セグメント化することなく、又はより少ないセグメントを一体化することで、局所的な温度上昇を抑制し使用時の熱応力により破損しにくいものである。さらに、本発明のハニカム構造体の製造方法を用いることにより、比較的簡単に流路セパレーターを形成することができた。

40

## 【図面の簡単な説明】

【図1】 (a)は本発明のハニカム構造体の模式的な斜視図、(b)は模式的な平面図、(c)は模式的な側面図である。

【図2】 (a)は図1(c)におけるII-II矢視断面の模式的な断面図である。(b)は(a)の一部拡大図である。(c)は本発明の別の形態を示す一部拡大図である。

【図3】 (a)は本発明のハニカム構造体の一実施形態における模式的な平面図、(b)はその拡大図である。

50

【図4】 (a) は本発明の八ニカム構造体の一実施形態における模式的な平面図、(b) はその拡大図である。

【図5】 (a)、(b) はセグメント化された八ニカム構造体の一例を示す模式的な斜視図である。

【図6】 (a)、(b)、(c)、(d) は各々、本発明の八ニカム構造体の一実施形態を示す模式的な平面図である。

【図7】 実施例1で得られた八ニカム構造体の模式的な平面図である。

【図8】 実施例2で得られた八ニカム構造体の模式的な平面図である。

【図9】 実施例3で得られた八ニカム構造体の模式的な平面図である。

【図10】 (a) は比較例1で得られた八ニカム構造体の模式的な斜視図、(b) はセグメントの模式的な斜視図である。

【図11】 実施例4で得られた八ニカム構造体の模式的な平面図である。

【図12】 実施例5で得られた八ニカム構造体の模式的な平面図である。

【図13】 実施例6で得られた八ニカム構造体の模式的な平面図である。

【図14】 (a) は比較例2で得られた八ニカム構造体の模式的な斜視図、(b) はセグメントの模式的な斜視図である。

【図15】 実施例7で得られた八ニカム構造体の模式的な平面図である。

【図16】 実施例8で得られた八ニカム構造体の模式的な平面図である。

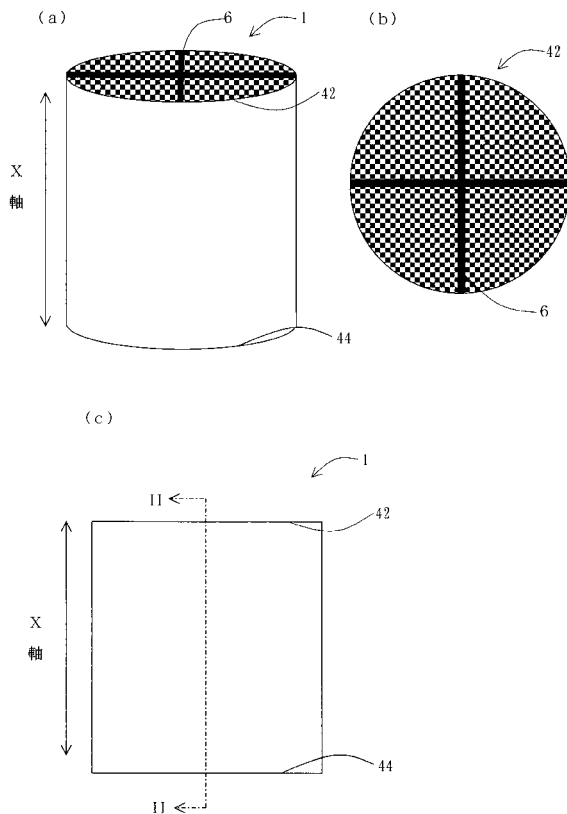
【図17】 (a) は比較例3で得られた八ニカム構造体の模式的な斜視図、(b) はセグメントの模式的な斜視図である。

【図18】 (a) は従来の八ニカム構造体を示す模式的な斜視図、(b) はその一部拡大図である。

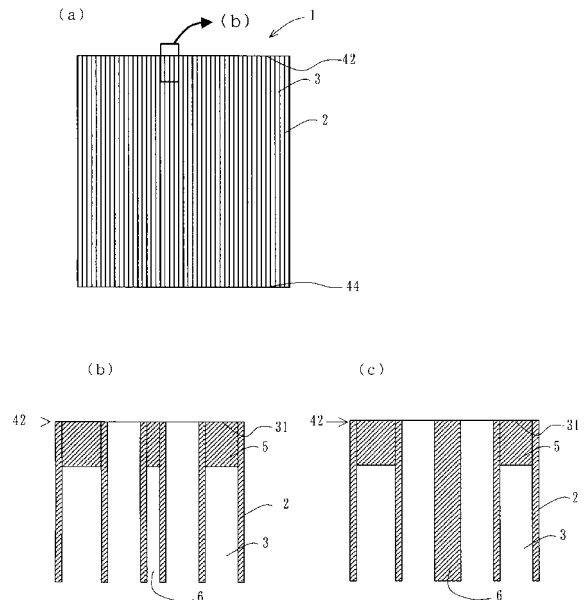
【符号の説明】

1 ... 八ニカム構造体、2 ... 隔壁、3 ... 流通孔、5 ... 目封じ材、6 ... 流路セパレーター、8 ... 接合材、12 ... 八ニカムセグメント、42 ... 流入口側端部、44 ... 流出口側端部。

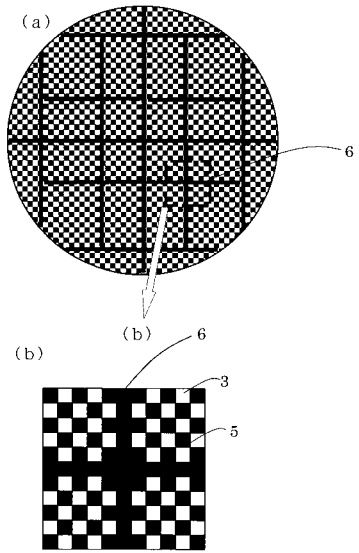
【図1】



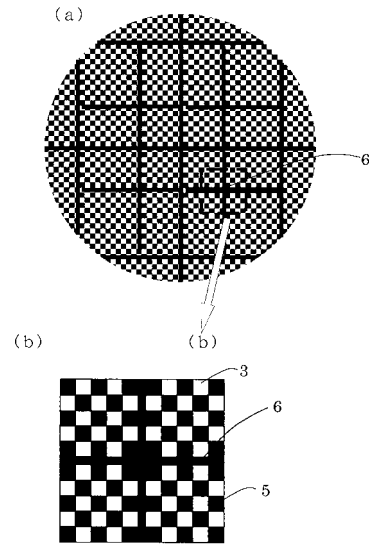
【図2】



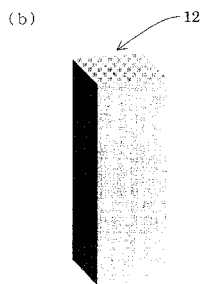
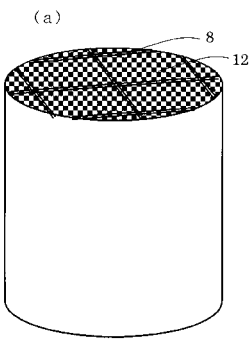
【 図 3 】



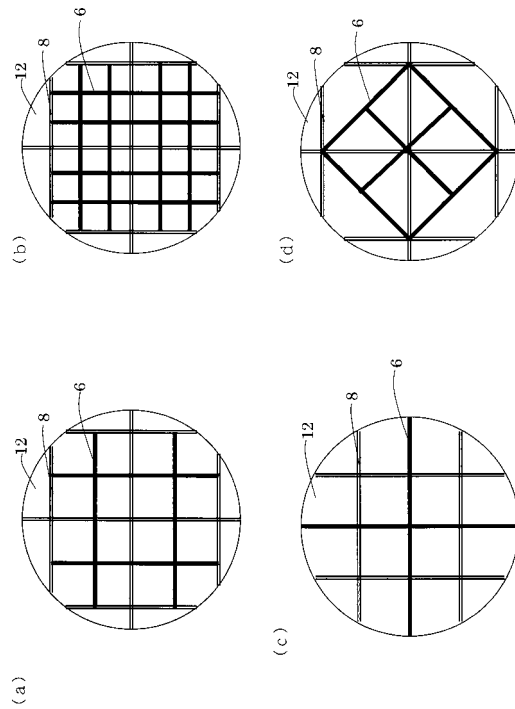
【 図 4 】



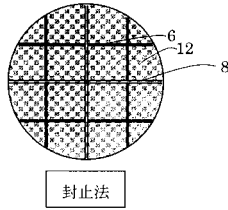
【 図 5 】



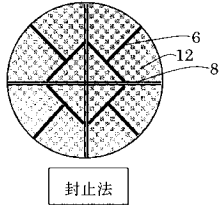
【 図 6 】



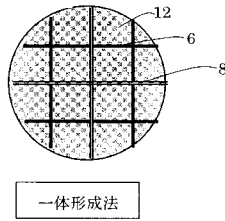
【図7】



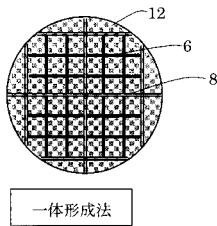
【図8】



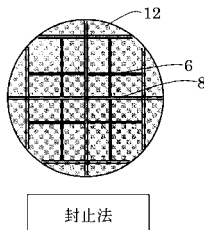
【図9】



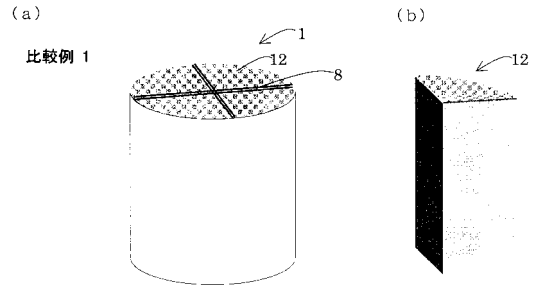
【図12】



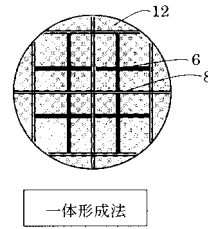
【図13】



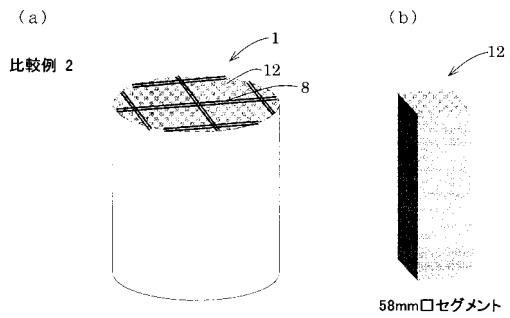
【図10】



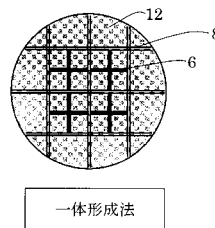
【図11】



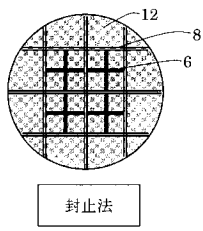
【図14】



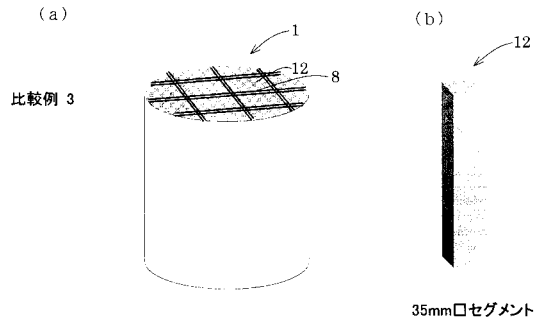
【図15】



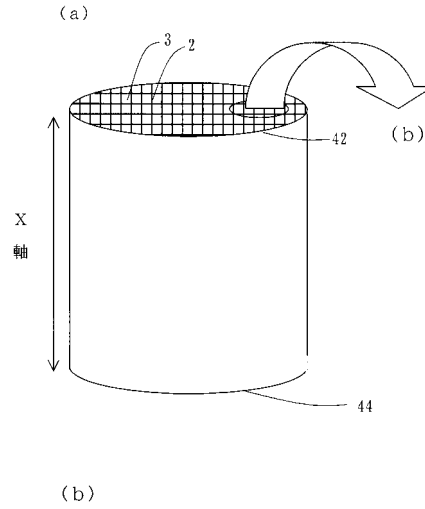
【図16】



【図17】



【図18】



## フロントページの続き

(51) Int.Cl.

F I

B 0 1 J 35/04 3 0 1 P

B 2 8 B 3/26

(56) 参考文献 特開平 0 5 - 2 2 2 9 1 3 ( J P , A )  
特開平 0 5 - 1 2 5 9 2 2 ( J P , A )  
特開平 0 7 - 2 4 1 4 2 2 ( J P , A )  
特開平 0 2 - 2 7 7 9 1 5 ( J P , A )  
特開 2 0 0 0 - 2 7 9 7 2 9 ( J P , A )  
特開昭 5 6 - 1 2 9 0 2 0 ( J P , A )  
実開昭 5 7 - 1 9 1 4 2 1 ( J P , U )

(58) 調査した分野(Int.Cl. , DB名)

F01N 3/02

F01N 3/28

B28B 3/26

B01D 39/20

B01D 53/86

B01J 35/04