

不同催化剂负载量柴油机颗粒捕集器的性能研究

张允华, 徐焱鑫, 楼狄明, 房亮

(同济大学汽车学院, 上海 201804)

摘要: 柴油机颗粒捕集器(DPF)是减少柴油机颗粒排放的高效技术手段, 其性能与催化剂负载量密切相关。本文基于重型柴油机台架试验系统研究催化剂负载量对CDPF(Catalyzed Diesel Particulate Filter)压降、气态物及颗粒物减排性能的影响并结合CDPF再生探究其对NO的氧化特性的影响。结果表明: CDPF排气背压随催化剂负载量的增大呈线性增大趋势, 当催化剂负载量从0 g/ft³分别增至5、10、20g/ft³时, 平均排气背压从2.94kPa依次增大至3.44、3.96和4.51kPa。催化剂负载量越高, CDPF对CO和THC(Total Hydrocarbon)的减排效果越好。当催化剂负载量从0 g/ft³分别增至5、10、20g/ft³时, CO排放浓度从78.94×10⁻⁶依次降至71.39×10⁻⁶、68.12×10⁻⁶和63.30×10⁻⁶, THC排放浓度则从57.34×10⁻⁶依次降至48.31×10⁻⁶、46.93×10⁻⁶和44.51×10⁻⁶。催化剂负载量会显著影响NO氧化特性, 但对NO_x排放浓度的影响较小。CDPF可以实现95%以上的PM(Particulate Matter)和PN(Particulate Number)减排率, 增大催化剂负载量, CDPF颗粒减排效果有所提高, 核态颗粒减排效果提升更为显著。研究结论对设计高性能CDPF具有重要参考价值。

关键词: CDPF; 气态物; 颗粒物; 减排率; 催化剂负载量

柴油机因其动力性强、热效率高和可靠性好等优点广泛应用于商用车及非道路移动机械^[1]。但燃烧过程中燃料与空气混合不充分造成柴油机颗粒排放较高, 约为同等排量汽油机的50倍^[2]。细小颗粒能够通过呼吸道进入肺部、血管和心脏等人体关键器官, 对人体健康构成严重威胁^[3]。此外, 柴油机排放的NO_x不仅污染空气、引发酸雨和光化学烟雾, 破坏臭氧层, 还对土壤和水体造成严重污染。因此, 人们致力于研究和开发高性能柴油机后处理技术, 以减少尾气排放对环境和人体健康的危害。柴油机颗粒捕集器(DPF)是目前最高效的颗粒减排技术方案。DPF凭借其壁流

式的蜂窝陶瓷结构可以捕集柴油机尾气中90%甚至更高的颗粒物^[4], 但随着DPF多孔介质载体中捕获的碳烟颗粒逐渐增多, 造成渗透率下降, 排气气流通阻力增大, 导致发动机排气背压升高, 动力性和燃油经济性下降^[5]。因而, 为了维持其长期高效的工作状态就需要促使其进行有效“再生”^[6]。通过在DPF载体孔道的滤壁表面涂覆碳烟催化剂降低碳烟活化能, 从而降低颗粒物氧化的起燃温度, 使得发动机在正常排温下实现DPF中累积颗粒的氧化燃烧^[7]。

以Pt、Pd为代表的贵金属催化剂因其高活性和稳定性而被广泛应用。贵金属催化剂可促进碳

基金项目: 国家自然科学基金(项目号52206167); 移动源污染排放控制技术国家工程实验室开放基金(NELMS2020A02)

作者简介: 张允华, 男, 1989年生, 博士, 副教授, 同济大学汽车学院, 上海201804, 电话: 8621-69589207, E-mail: zhangyunhua131@tongji.edu.cn

烟颗粒的氧化燃烧,降低颗粒排放,在减少环境污染和提升能源利用效率方面发挥着关键作用。大量学者针对 Pt、Pd 贵金属催化剂展开广泛研究。Mitsuru Hosoya 等^[8]研究发现 Pt 基氧化催化剂颗粒显著降低发动机的颗粒物排放以及 CO 和 HC (Hydrocarbon) 气态物排放。Da 等^[9]制备了一系列 Pt 取代的 $\text{LaMn}_{1-x}\text{Pt}_x\text{O}_3$ 钙钛矿碳烟催化剂,并在柴油机排气气氛下测试催化碳烟的活性。研究发现 Pt 含量越高,催化剂表面氧空位浓度越高。其中催化剂 $\text{LaMn}_{0.8}\text{Pt}_{0.2}\text{O}_3$ 具有最高的氧空位浓度和最佳的碳烟催化氧化效果。

Pd 能够改善 Pt 的分散性能,添加 Pd 到 Pt 中可以协同增强催化剂对高温烧结的抵抗力,提高其耐久性^[10]。Pt-Pd 双金属催化剂相比于单金属 Pt 催化剂,在各种催化反应中具有更强的催化性能^[11]。Tyne R.J 等^[12]研究发现,高温下 Pt 容易烧结,经 Pd 掺杂后,Pt 在高温下的烧结速率明显减缓。S. A. Yashnik 等^[13]研究发现 Pt-Pd/ $\text{MnO}_x\text{-Al}_2\text{O}_3$ 催化剂在氧化柴油颗粒物方面表现出高活性,在 NO_x 气氛下催化活性更高。Cristihan Carrillo 等^[14]研究发现 PdO 可以捕获移动的 PtO_2 , 形成 Pt-Pd 合金,同时 PtO_2 能够促进 PdO 再生。因此, Pt-Pd 催化剂可通过这种“再生捕获”机制提升其耐久性。Y Wei 等^[15]研究发现 Pt-Pd 二元组分协同有利于增强金属与载体之间的强相互作用,有利于 O_2 的吸附和活化,提高表面活性氧密度和催化剂的碳烟氧化活性。Phuoc Hoang Ho 等^[16]研究发现 Pt-Pd 协同后会形成 Pt-Pd 合金,催化剂中 Pt 的晶胞晶格收缩, Pt 的抗烧结性得到提升。此外 Pt-Pd 协同还提高催化剂对 CO 和 C 的催化活性。

提高贵金属负载量不仅能够促进更多活性位点的形成,还能通过贵金属间的协同效应,进一步优化催化性能,是一种提高 DPF 再生性能直接有效的方式^[17]。冯谦等^[18]研究了 CDPF 对柴油机气态排放物减排特性的影响,结果发现随贵金属催化剂负载量的增加,CDPF 对 CO、HC 的起燃温度依次降低,对 CO、HC 和 NO 的转化效率显著提高。Palma 等^[19]研究发现随着 DPF 催化剂负载量的增大,DPF 的平均孔径会减小,总孔体积下降。碳烟的氧化温度降低且氧化速率加快。但 DPF 涂覆催化剂后会造其初始背压增大,并且催化剂负载量越大,压力损失越大。Swanson 等^[20]研究了不同催化剂负载量 DPF 对捕集效率和压降特性的影响,结果表明,空白载体的初始捕集效率高于负载催化剂时的捕集效率,进入滤饼捕集阶段,随催化剂负载量的增大,捕集效率显著提高;DPF 的压降随催化剂负载量的增大而增大。王庐云^[21]研究发现贵金属负载量是影响催化剂活性的关键因素,负载量由 0.5% 提高至 4%,催化剂的起燃温度下降 100°C 左右。Zhang 等^[22]使用发动机排气粒径谱仪对 CDPF 前后 5.6 至 560 纳米的颗粒物进行多次采样,研究发现增加催化剂负载量能提高 CDPF 的颗粒物减排效率。此外,Zhang 等^[23]还使用 XRD、XPS 和催化活性评估方法深入研究 CDPF 的老化性能,研究发现增加贵金属负载量有利于提高 CDPF 的抗老化性能。

基于大量文献调研,现有研究针对在重型柴油机实际运行工况下催化剂负载量对 DPF 性能的影响较少,并且缺少对催化剂负载量系统性的研究。本文通过重型柴油机车架试验系统研究催

化剂负载量对 CDPF 压降、气态物及颗粒物减排性能的影响并结合 CDPF 再生探究其对 NO 的氧化特性的影响。研究结论旨在为优化催化剂负载量提升 CDPF 性能提供科学依据。

1. 材料和方法

1.1 催化剂样品制备

制备 CDPF 样品的具体流程如下：首先将一定量的 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 与硝酸和去离子水配制成载体涂层浆液，使用搅拌机进行 2 h 的搅拌，搅拌充分后再进行 12 h 的湿磨。完毕后，用浸渍法涂敷于 200 目的堇青石载体($\Phi 100\text{ mm}\times 80\text{ mm}$)上，经 1 h、125 °C 烘干处理后进行 4 h、550 °C 焙烧处理。

计算 CDPF 载体的可吸附浸渍液体积后，按照贵金属(Pt:Pd=5:1)负载量分别为 5、10 和 20 g/ft^3 以及定量 Fe_2O_3 的前驱体 $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3$ 和 CeO_2 的前驱体 $\text{Ce}(\text{NO}_3)_3$ 配制符合试验需求的主催化剂组分和助催化剂组分的催化剂浆料，对堇青石载体进行等体积浸渍涂敷，然后进行 1 h、125 °C 烘干处理，以及 550 °C 的焙烧固定涂层处理，得到贵金属负载量分别为 5、10 和 20 g/ft^3 的 CDPF 样品。

1.2 CDPF 参数设计

为探究催化剂负载量对 CDPF 性能的影响，本研究设计了 4 种不同催化剂负载量的 CDPF，具体参数如表 1 所示。CDPF 壁厚为 15mil，孔密度均为 200cps，催化剂涂层均为 Al_2O_3 。

表 1 CDPF 的参数设计

Table 1 Parameter design of CDPF

Number	Material	Pore density(cps)	Diameter/Length (mm)	Catalyst loading (g/ft^3)	Precious metal ratio (Pt:Pd)
1	Cordierite	200	267/286	0	—
2	Cordierite	200	267/286	5	5:1
3	Cordierite	200	267/286	10	5:1
4	Cordierite	200	267/286	20	5:1

1.3 重型柴油机台架试验系统

图 1 所示为搭建的重型柴油机台架试验系统示意图，该重型柴油机台架测试系统主要包括六大部分：(1) HORIBA DYNAS3 350 电力测功机；

(2) 潍柴 WP7 柴油机；(3) FQ-2100DP 油耗测试器；(4) 颗粒后处理系统 (DOC 和 CDPF)；(5) 排放测试设备 (MEXA-7200D、MEXA-6000FT 和 TSI-EEPS 3090)；(6) 温度与压力传感器。

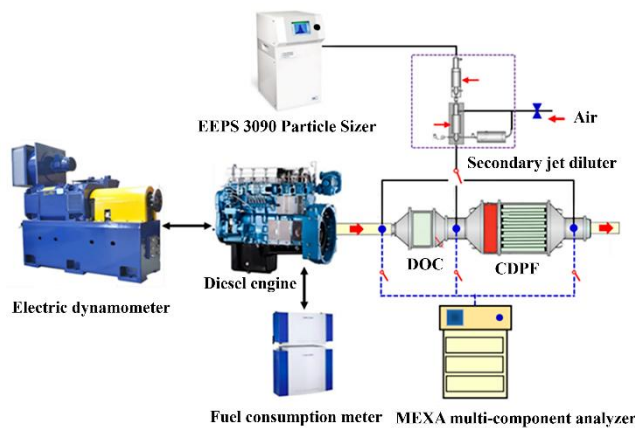


图 1 台架试验系统示意图

Fig.1 Schematic diagram of bench test system

1.4 试验方法

在试验开始之前，先对这款重型柴油发动机的基本性能进行全面评估，然后设置发动机台架控制系统边界条件，并针对每一个工况点依次进行排放测试。

颗粒后处理系统安装后开启柴油机进行热机，需要等待油温和水温达到稳定状态，然后开始进行排放测试。首先，调整试验台架的控制系统，确保柴油机运行平稳，接着对催化型颗粒捕集器（CDPF）后的排放点进行测试，并收集该条件下的排放数据。当前工况的数据收集完毕后，便转换到下一个工况。按照相同流程，连续收集不同工况下的排放数据。数据采集完成后，关闭机器并更换另一套后处理系统。

2. 结果与讨论

2.1 排气温度及压力

图 2 所示为不同催化剂负载量 CDPF 对排气温度的影响。随负荷的增大，排气温度不断升高，并且 CDPF 出口温度普遍低于入口温度，不同催化剂负载量 CDPF 的出口温度差别不大，当催化剂负载量为 0 时，CDPF 的出口平均温度为 272.8℃；当催化剂负载量分别为 5、10、20g/ft³ 时，CDPF 的出口平均温度分别达到 272.0、279.5、268.6℃。不同转速时，CDPF 出口温度随发动机转速的升高先增大后减小，CDPF 催化剂负载量依次为 0、5、10、20g/ft³ 时，其出口平均温度分别为 365.7、361.4、363.2、362.6℃。可见 CDPF 催化剂负载量对排气温度的影响相对较小。

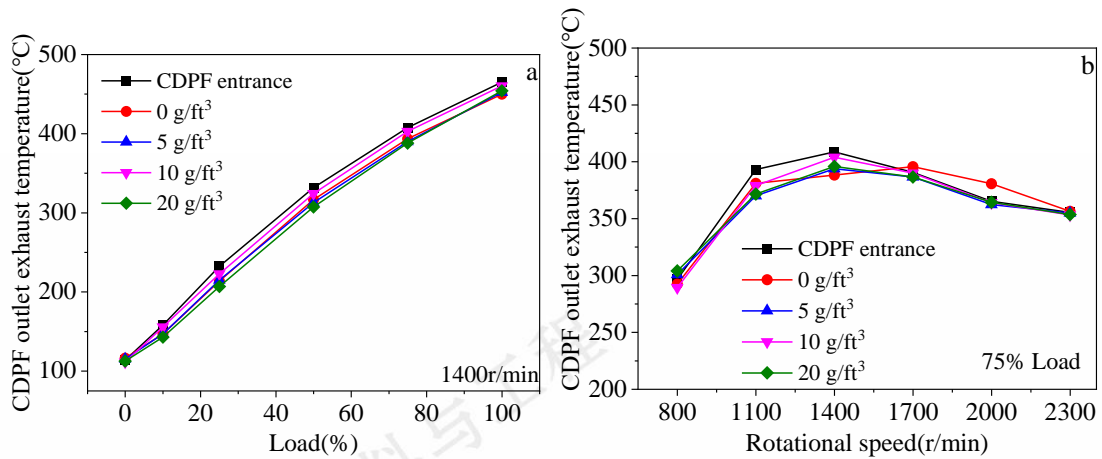


图2 不同催化剂负载量 CDPF 对排气温度的影响

Fig.2 The influence of varying catalyst amounts on the exhaust temperature of CDPF: (a) Load characteristic, (b) Speed characteristic

图3所示为不同催化剂负载量 CDPF 的排气背压特性。负荷特性下, CDPF 排气背压随负荷的升高不断增大。CDPF 催化剂负载量对排气背压的影响较大, 整体变化趋势是催化剂负载量越大, CDPF 的排气背压越高。当催化剂负载量为0时, CDPF 的最高排气背压为 6.29kPa; 当催化剂负载量依次增大至 5、10、20g/ft³时, CDPF 的最高排气背压分别为 6.71、7.16、7.54kPa; 负荷特性下, CDPF 的排气背压随转速的升高快速增大, 催化剂负载量对 CDPF 的影响规律与负荷特性是基本相同, 当 CDPF 催化剂负载量分别为 0、5、10、20g/ft³时, CDPF 的最高排气背压分别达 8.71、10.50、11.74、12.42kPa。从整个试验工况来看,

CDPF 的平均排气背压随催化剂负载量的增大呈线性增大的关系, 当催化剂负载量为 0 时, CDPF 的平均排气背压为 2.94kPa; 当催化剂负载量为 5g/ft³时, CDPF 的平均排气背压为 3.44kPa, 较前者升高 17.0%; 当催化剂负载量依次提高到 10、20g/ft³时, CDPF 的平均排气背压分别增大至 3.96、4.51kPa, 与未涂覆催化剂的 CDPF 相比, 排气背压分别升高 34.4%和 53.2%。这是因为催化剂涂覆后, 涂层材料及贵金属颗粒会附着在 CDPF 的多孔介质材料壁面, 引起渗透率减小, 造成壁面压力损失增大, 而催化剂负载量越大, 壁面渗透率越小, 由此产生的壁面压力损失也就越大, 相应地排气背压也就越高^[24]。

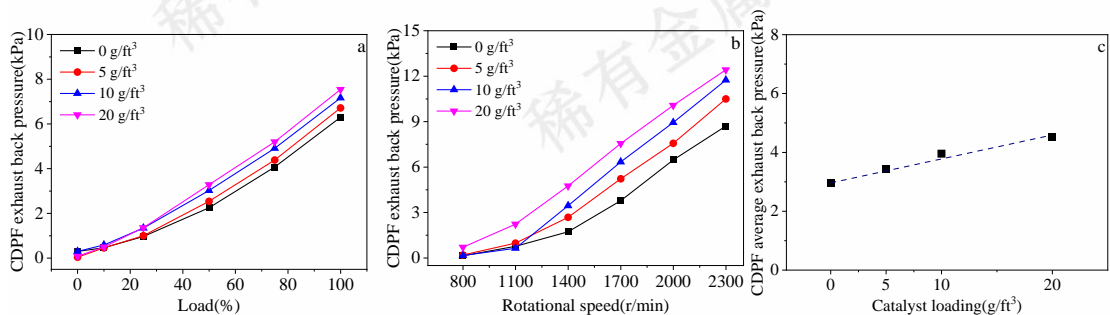


图3 不同催化剂负载量 CDPF 对排气背压的影响

Fig.3 The influence of varying catalyst amounts on the exhaust back pressure of CDPF: (a) Load characteristic, (b) Speed characteristic, (c) Average exhaust back pressure

2.2 气态物排放特性

图4所示为不同催化剂负载量CDPF的CO减排特性。可以看出,CO排放浓度随发动机负荷的增大先减小后增大。CDPF后CO体积浓度显著下降,尤其当排气温度高于150℃时,CO降幅在95%以上。排气温度较低时不同催化剂负载量CDPF的CO减排特性有所不同。排气温度为113.7℃时,当催化剂负载量为0g/ft³,CDPF后的CO排放浓度为78.94×10⁻⁶,较原机降幅为35.7%。显然白载体无法对CO进行催化氧化,CO的减少主要是前端DOC(Diesel Oxidation Catalyst)的减排作用引起的。当催化剂负载量为5g/ft³时,CDPF后的CO排放浓度为71.39×10⁻⁶,较原机降幅为41.8%;当催化剂负载量依次增大至10、

20g/ft³,CDPF后的CO排放浓度进一步下降至68.12×10⁻⁶、63.30×10⁻⁶,较原机降幅分别达44.5%、48.4%。可见,CDPF催化剂负载量越高,其对CO的减排效果越好。催化剂负载量越高,CDPF壁面的活性位相对越多,对CO的催化活性也就越强。而当CDPF催化剂负载量成倍增加时,CO减排率却未出现相同比例的升高,一方面是因为前端的DOC对CO起主要催化氧化作用,而CDPF只是对残余的CO进行氧化氧化,因此CDPF的CO减排作用非常有限;另一方面,催化剂负载量较高时,贵金属颗粒会在CDPF壁面发生重叠,活性位无法成比例增加,影响催化活性。

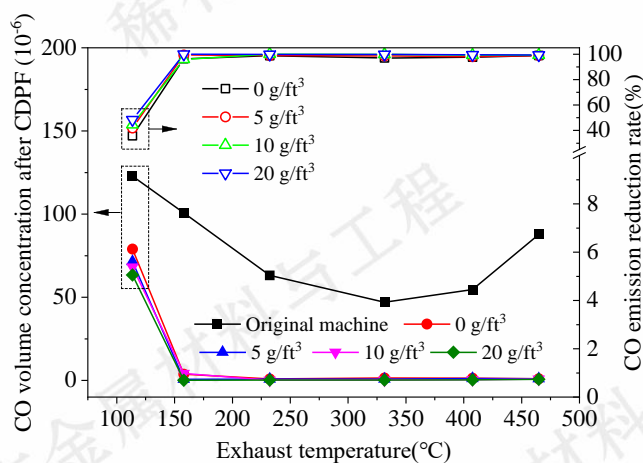


图4 不同催化剂负载量CDPF的CO减排特性

Fig.4 CO emission reduction characteristics of CDPF with different catalyst loadings

图5所示为不同催化剂负载量CDPF的THC减排特性。随负荷的增大,THC排放浓度逐渐降低。CDPF后THC排放浓度显著下降,尤其在排气温度高于225℃时,THC排放浓度基本降至8×10⁻⁶以内,降幅均保持在85%以上。排气温度较低时,CDPF的THC减排率稍低,并且受催化剂负载量的影响较大。其中,排气温度为113.7℃

时,当催化剂负载量为0g/ft³,CDPF后的THC排放浓度为57.34×10⁻⁶,较原机降幅为25.0%;当催化剂负载量为5g/ft³时,CDPF后的THC排放浓度为48.31×10⁻⁶,较原机降幅为36.8%;当催化剂负载量分别为10、20g/ft³时,CDPF后的THC排放浓度依次为46.93×10⁻⁶、44.51×10⁻⁶,较原机降幅为分别达38.6%、41.8%。可见,CDPF涂覆

催化剂后,其对 THC 的减排效果大幅提升,并且催化剂负载量越高,CDPF 的 THC 减排效果越好。同样是因为催化剂负载量增大,CDPF 壁面的活性位增多,带来更高的 THC 催化氧化效率。排气温度升至 158.0°C时,催化剂负载量对 CDPF 的

THC 减排性能的影响规律基本不变,即催化剂负载量越高,CDPF 的 THC 减排性能越好。但成倍增加催化剂负载量时,CDPF 的 THC 减排效率却未出现成比例低升高。

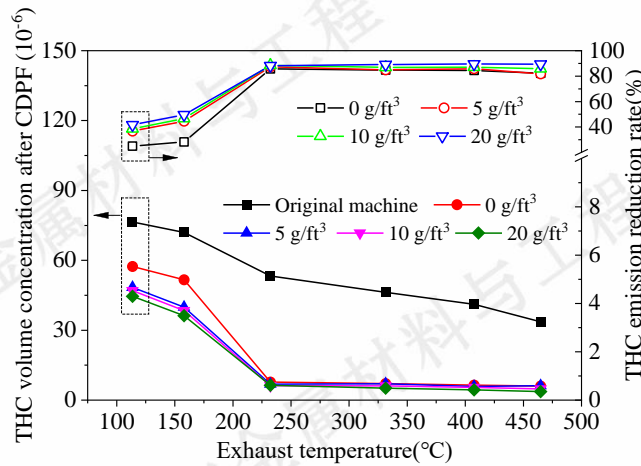


图 5 不同催化剂负载量 CDPF 的 THC 减排特性

Fig.5 THC emission reduction characteristics of CDPF with different catalyst loadings

图 6 所示为不同贵金属负载量 CDPF 对 NO_x 排放特性的影响。可以看出,随排气温度的升高,NO_x 排放浓度逐渐增大。排气温度低于 180°C时,NO₂ 占比相对较小,随排气温度的升高 NO₂ 占比迅速增大。不同催化剂负载量 CDPF 后的 NO_x 排放浓度相差不大,对于催化剂负载量为 0g/ft³ 的

CDPF, NO_x 最高排放浓度为 2059×10⁻⁶,而对于催化剂负载量分别为 5、10、20g/ft³ 的 CDPF, NO_x 最高排放浓度分别为 2018×10⁻⁶、2163×10⁻⁶ 和 2024×10⁻⁶。但从 NO₂ 占比来看,CDPF 催化剂负载量越高,NO₂ 占比相对越大。

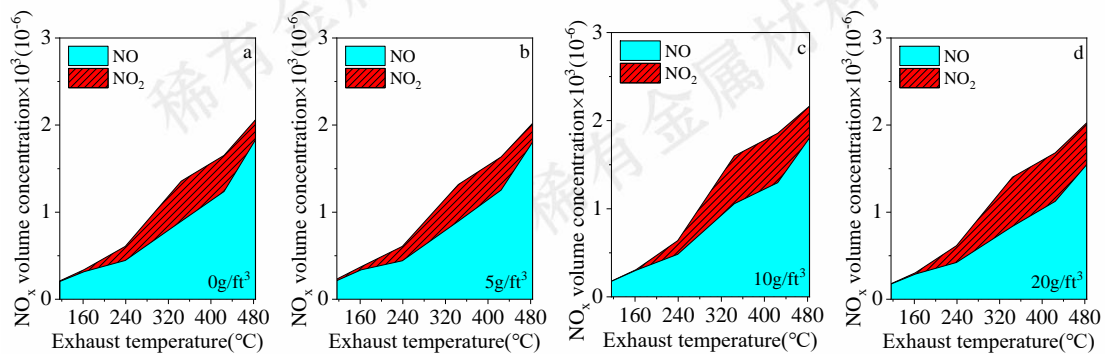


图 6 不同催化剂负载量 CDPF 对 NO_x 排放特性的影响

Fig.6 The impact of different catalyst loadings on the emission characteristics of NO_x in CDPF: (a) 0g/ft³, (b) 5g/ft³, (c) 10g/ft³, (d) 20g/ft³

图 7 所示为不同催化剂负载量 CDPF 的 NO 氧化特性。可以看出,NO₂ 占比随排气温度的升

高先增大后减小，在 330℃附近由于热力约束达到最大值。不同催化剂负载量 CDPF 的 NO 氧化特性有所不同。当催化剂负载量为 0g/ft³ 时，CDPF 后的 NO₂ 最高占比为 34.0%，该部分 NO₂ 主要是通过 DOC 对 NO 的氧化产生的。当催化剂负载量分别为 5、10g/ft³ 时，CDPF 后的 NO₂ 最高占比分别达到 32.0%、33.9%，与自载体时的 NO₂ 最高占比相比反而有所下降，这与 CDPF 内部再生强度高，消耗的 NO₂ 较多有关，当催化剂负载量为 20g/ft³ 时，CDPF 后的 NO₂ 最高占比升至 40.4%，明显高于其他三者。这是因为 CDPF 催化剂负载量较高时，其对 NO 的氧化能力增强，尽管再生反应会消耗部分 NO₂，但因氧化生成的 NO₂ 较多使得 NO₂ 最高占比增大。

在催化氧化反应中，NO 的转化由两部分组成：与 O₂ 的自反应和催化氧化反应。在低温阶段，气相中 NO 与 O₂ 生成 NO₂ 的自反应属放热反应，随着温度升高，这一部分的 NO 转化率逐渐下降；在催化氧化过程，随着温度升高，催化剂对 NO 的转化率增加。两类反应共同作用下，NO 的转化率在低温阶段上升缓慢，随温度进一步升高，催化氧化作用逐渐占主导地位^[25]。一般来讲，在催化氧化过程中，吸附态的 NO 首先被氧化成 NO₂，一部分 NO₂ 继续

被氧化，以亚硝酸或硝酸盐的形式存储在催化剂表面；一部分 NO₂ 发生脱附被释放到气相中^[26]。由于 CO 和 HC 等还原剂能将未脱附的 NO₂ 还原成 NO，CO 和 HC 等物质不仅与 NO 在催化剂活性位上发生竞争吸附，抑制 NO 在活性位吸附，也会导致 NO₂ 在活性位的成键和脱附行为受到抑制作用^[27]。

在温度低于 100℃ 时，NO₂ 产率会达到一次峰值，该峰值属于 NO 自氧化阶段，由于 NO 的自氧化反应是放热过程，随着温度升高，自反应转换率下降，NO₂ 产率开始下降。随着温度升高，NO 的催化氧化反应占主导地位，在 200~300℃ 范围再次出现 NO₂ 产率峰值，该峰值是 NO 的催化氧化反应为主和自氧化反应为辅共同结果。在 300℃ 温度附近，随着温度升高，NO₂ 产率增势趋缓，并出现降低趋势。这是因为当 NO₂ 产率增加到一定程度，NO₂ 在贵金属 Pt 活性位形成氧单层覆盖，NO₂ 在 Pt 上具有更高的黏附系数，产生的 NO₂ 不易脱附并对 NO 在贵金属活性位上的吸附和活化形成一定的自抑制作用。当温度继续升高时，NO₂ 产率明显增加，在高温范围，在催化剂表面以硝酸盐形式存储的 NO_x 由于热力学不稳定而分解释放 NO₂，导致 NO₂ 的产率有所增加。

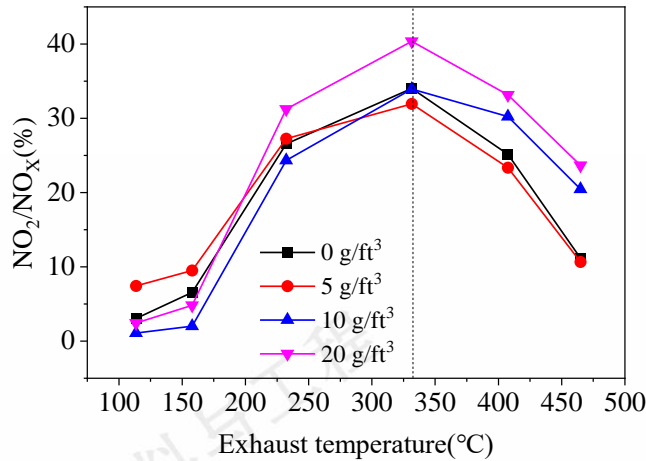


图7 不同催化剂负载量CDPF的NO氧化特性

Fig.7 NO oxidation characteristics of CDPF with different catalyst loadings

2.3 颗粒物排放特性

图8所示为不同催化剂负载量CDPF的PN减排特性。可以看出,PN排放随负荷的升高不断减小,CDPF后PN排放显著降低,并且CDPF催化剂负载量越高,PN降幅越大。具体而言,当催化剂负载量为0g/ft³时,即CDPF为白载体,PN平均降幅仍高达97.0%,这是因为CDPF的壁流式结构自身具有较高的颗粒捕集效率,尽管无法对少部分SOF(Soluble Organic Fractions)、未燃油滴进行催化氧化,但基于多种捕集机理仍可过滤掉绝大部分的颗粒物。而当CDPF涂覆催化剂后,颗粒物中的少部分SOF、未燃油滴就会被催化氧化,PN的降幅达到98%以上,其中,催化剂

负载量为5g/ft³时,CDPF对PN的平均减排率为98.5%;而当催化剂负载量依次提升至10、20g/ft³时,CDPF对PN的平均减排率分别达到99.0%、99.3%。速度特性时,随发动机转速的升高,PN排放呈先减小后增大的变化趋势,CDPF后PN降幅在96%以上,对于催化剂负载量为0g/ft³的白载体,PN平均降幅为97.4%;而当催化剂负载量分别为5、10、20g/ft³时,CDPF对PN的平均减排率分别达分别达98.4%、98.7%、98.9%。可见CDPF催化剂负载量越高,其对PN的减排效果相对越好。主要原因是催化剂负载量越大,CDPF的催化活性越强,对颗粒物中的SOF、未燃油滴的转化率越高,从而带来更好的PN减排效果。

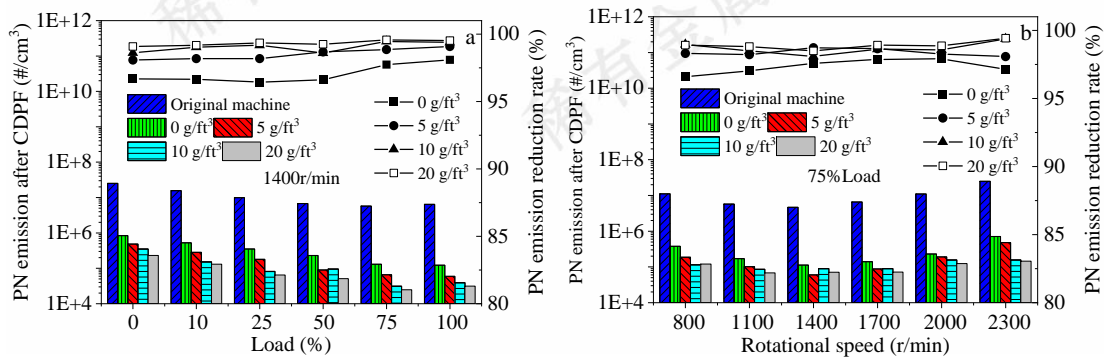


图8 不同催化剂负载量CPPF的PN减排特性

Fig.8 PN emission reduction characteristics of CPPF with different catalyst loadings: (a) Load characteristic, (b) Speed characteristic

图 9 所示为不同催化剂负载量 CDPF 的 PM 减排特性。随负荷的升高, PM 排放先增大后减小。CDPF 后 PM 排放显著下降, 并且催化剂负载量越高, PM 排放越低。很显然, 催化剂负载量为 $0\text{g}/\text{ft}^3$ 时, CDPF 的 PM 减排效果最差, 平均减排率为 96.9%。这是因为白载体仅能够对颗粒排放进行物理捕集, 无法对颗粒组分中的 SOF 等进行催化氧化, 因此对 PM 的减排效果稍差。涂覆催化剂后, CDPF 的 PM 减排效果有所提升, 当催化剂负载量分别为 5、10、 $20\text{g}/\text{ft}^3$ 时, CDPF 对

PM 的平均减排率分别达 99.1%、99.5%和 99.6%。不同转速特性时, PM 排放随发动机转速的升高先减小后增大, 催化剂负载量对 CDPF 的 PM 减排特性的影响规律与负荷特性时基本相同, 即催化剂负载量越高, CDPF 的 PM 减排效果相对越好。当催化剂负载量由 $0\text{g}/\text{ft}^3$ 依次增大至 5、10、 $20\text{g}/\text{ft}^3$, CDPF 对 PM 的平均减排率则由 97.7% 分别提高到 98.8%、99.3%、99.3%。催化剂负载量越高, CDPF 的催化活性越强, 从而可以氧化更多的 SOF 等物质, 造成更高幅度的 PM 下降。

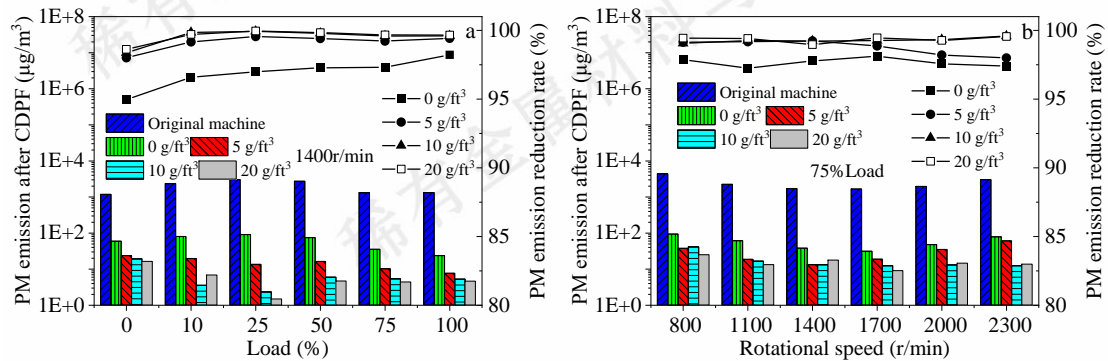


图 9 不同催化剂负载量 CPPF 的 PM 减排特性

Fig.9 PM emission reduction characteristics of CPPF with different catalyst loadings: (a) Load characteristic, (b) Speed characteristic

图 10 所示为不同催化负载量 CDPF 对粒径分布特性的影响。可以看出, 柴油机颗粒物排放呈双峰分布, 核态颗粒占比较大, 积聚态颗粒占比相对较小。而 CDPF 后颗粒排放仍呈双峰分布, 但核态颗粒占比明显增大, 说明 CDPF 对核态颗粒的减排效果相对较差, 从图中也可以看出, CDPF 后 10nm 以内的核态颗粒降幅较小。相比较而言, 催化剂负载量越高, CDPF 后的颗粒排放浓度越低, 说明催化剂负载量增大有助于提升 CDPF 的颗粒减排性能。从核态、积聚态颗粒排放特性来看, 当催化剂负载量为 $0\text{g}/\text{ft}^3$ 时, CDPF 后的这两部分颗粒排放浓度分别为

$5.47 \times 10^5 \#/\text{cm}^3$ 、 $5.21 \times 10^4 \#/\text{cm}^3$, 较原机降幅分别为 85.2%和 97.5%; 当催化剂负载量为 $5\text{g}/\text{ft}^3$ 时, CDPF 后的核态、积聚态颗粒排放浓度有所下降, 分别为 $3.82 \times 10^5 \#/\text{cm}^3$ 、 $2.91 \times 10^4 \#/\text{cm}^3$, 降幅分别达到 89.6%和 98.6%。当催化剂负载量为 $10\text{g}/\text{ft}^3$ 时, CDPF 后的核态、积聚态颗粒排放浓度分别降至 $2.52 \times 10^5 \#/\text{cm}^3$ 、 $3.20 \times 10^4 \#/\text{cm}^3$, 降幅分别为 93.1%和 99.8%; 当催化剂负载量增大至 $20\text{g}/\text{ft}^3$ 时, CDPF 后的核态、积聚态颗粒排放浓度最低, 分别为 $5.91 \times 10^4 \#/\text{cm}^3$ 、 $1.75 \times 10^3 \#/\text{cm}^3$, 降幅分别达 98.4%和 99.9%。可见, 提高 CDPF 的贵金属负载量对核态颗粒减排效果提升更为显著。这

是因为核态颗粒包含更多未燃油滴、SOF 等有机物，CDPF 对该部分物质的催化效果更为显著。

碳烟的氧化过程是一个包含物理吸附、化学吸附/解离/氧化等多种反应的复杂过程。柴油机排放的颗粒物中，核态颗粒主要包含未燃油滴和可溶性有机物 (SOF) 等有机成分，这些物质在催化反应中的行为与积聚态颗粒存在显著差异^[28]。

未燃油滴主要由未完全燃烧的燃料组成，在催化剂的作用下，这些燃料分子更容易与氧气发生反应。催化剂表面的金属原子 (如 Pt、Pd 等) 可以吸附燃料分子和氧气分子，形成活性中间体。这些金属原子的 d 轨道与燃料分子的 π 轨道相互作用，降低了反应的活化能，从而加速了燃料分

子的氧化反应。同样，在催化剂的作用下，SOF 更容易被氧化。催化剂表面的活性位点可以吸附 SOF 分子，并通过电子转移和化学键的断裂，促进 SOF 与氧气的反应。有效减少了核态颗粒的排放。

催化剂的活性位点数量对反应效率有着直接影响。催化剂负载量的增加意味着活性位点的增多，这些活性位点能够吸附和活化更多的反应物，从而显著提高反应速率^[29]。Pt 和 Pd 等贵金属催化剂在高温下具有较高的活性，其表面的金属原子可以通过 d 轨道的电子重新分布和 d 带中心的调节，优化对反应物的吸附和活化，从而提高反应效率。

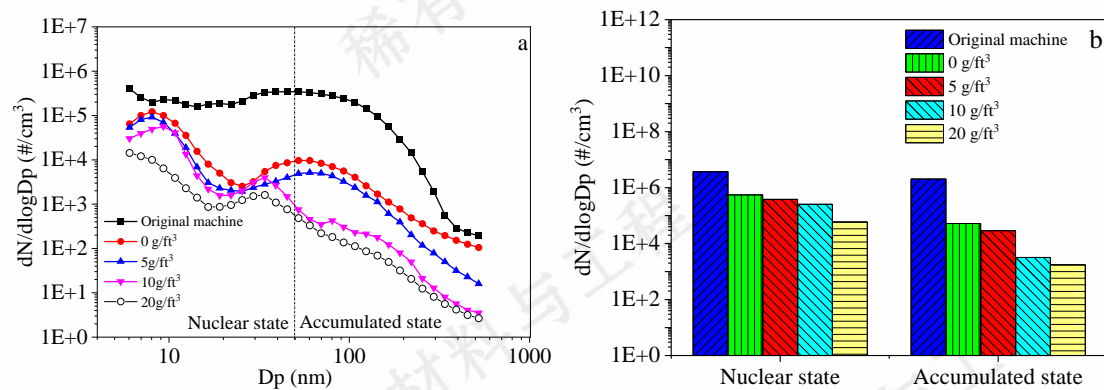


图 10 不同催化剂负载量 CPPF 对柴油机粒径分布的特性的影响

Fig.10 The influence of different catalyst loadings on the particle size distribution characteristics of diesel engines using CPPF: (a) Size distribution, (b) Particle emission reduction

3. 结论

本文基于重型柴油机台架试验系统研究催化剂负载量对 CDPF 压降、气态物及颗粒物减排性能的影响并结合 CDPF 再生探究其对 NO 的氧化特性的影响。主要研究结论如下。

(1) CDPF 排气背压随催化剂负载量的增大呈线性增大趋势，排气温度受催化剂负载量的影响较小。当催化剂负载量从 0 g/ft³ 分别增至 5、

10、20g/ft³ 时，平均排气背压从 2.94kPa 依次增大至 3.44、3.96 和 4.51kPa。

(2) 催化剂负载量越高，CDPF 对 CO 和 THC 的减排效果越好。当催化剂负载量从 0 g/ft³ 分别增至 5、10、20g/ft³ 时，CO 排放浓度从 78.94×10^{-6} 依次降至 71.39×10^{-6} 、 68.12×10^{-6} 和 63.30×10^{-6} ，THC 排放浓度则从 57.34×10^{-6} 依次降至 48.31×10^{-6} 、 46.93×10^{-6} 和 44.51×10^{-6} 。

(3) NO_x 排放浓度受催化剂负载量的影响较小, 但催化剂负载量越高, NO₂ 占比越大。催化剂负载量会显著影响 NO 氧化特性。当催化剂负载量为 0g/ft³ 时, NO₂ 最高占比为 34.0%, 增大催化剂负载量至 5、10g/ft³ 时, NO₂ 最高占比分别为 32.0%、33.9%。进一步增大催化剂负载量至 20g/ft³ 时, NO₂ 最高占比增至 40.4%。

(4) 增大催化剂负载量, PM 和 PN 的减排率有所提高, 尤其对核态颗粒减排效果提升更为显著。催化剂负载量从 0g/ft³ 分别增至 5、10、20g/ft³ 时, PM 平均减排率从 96.9% 依次增至 99.1%、99.5% 和 99.6%, PN 平均减排率则从 97.0% 依次增至 98.5%、99.0% 和 99.3%。

参考文献 References

- [1] Ahire V, Shewale M, Razban A. Archives of Computational Methods in Engineering[J], 2021: 1-19
- [2] Zhang Yunhua(张允华), Zheng sen(郑森), Lou diming(楼狄明) et al. Rare Metal Materials and Engineering(稀有金属材料与工程)[J], 2024,53(05):1391-1400
- [3] Zhang Z, Dong R, Tan D et al. Energy[J], 2023, 271: 127025
- [4] Dong R, Zhang Z, Ye Y et al. Processes[J], 2022, 10(5): 993
- [5] Tang dong(汤东), Liu yang(刘阳), Liu sheng(刘胜) et al. Automotive Engineering(汽车工程)[J], 2020,42(07):867-873
- [6] Jia Liwei(贾莉伟), Wan Taoming(万涛明), Wang Jun(王军) et al. Rare Metal Materials and Engineering (稀有金属材料与工程)[J], 2018,47(05):1562-1566
- [7] Wang Pan(王攀), Luo Dong(罗冬), Li Zhenguo(李振国) et al. Chinese Internal Combustion Engine Engineering(内燃机工程)[J], 2020,41(02):86-92
- [8] Hosoya M, Shimoda M. Applied Catalysis B: Environmental[J], 1996, 10(1-3): 83-97
- [9] Da Y, Zeng L, Wang C et al. Catalysis Today[J], 2019, 327: 73-80
- [10] Lou D, Song G, Xu K et al. Energies[J], 2024, 17(7): 1737
- [11] Xiaodong Z, Renzhi R, Bin G, et al. Materials Today Chemistry[J], 2023,34
- [12] Johns T R, Goeke R S, Ashbacher V et al. Journal of Catalysis[J], 2015, 328: 151-164
- [13] Yashnik S A, Ismagilov Z R. Kinetics and Catalysis[J], 2019, 60: 453-464
- [14] Carrillo C, DeLaRiva A, Xiong H et al. Applied Catalysis B: Environmental[J], 2017, 218: 581-590
- [15] Wei Y, Wu Q, Xiong J et al. Catalysis Today[J], 2019, 327: 143-153
- [16] Ho P H, Shao J, Yao D et al. Journal of Environmental Chemical Engineering[J], 2022, 10(4): 108217
- [17] Bi F, Wei J, Gao B et al. Environmental science & technology[J], 2024, 58(44): 19797-19806
- [18] Feng Qian(冯谦), Lou Diming(楼狄明), Tan Piqiang(谭丕强) et al. Journal of Fuel Chemistry and Technology(燃料化学学报)[J], 2014, 42(12): 1513-1521
- [19] Palma V, Ciambelli P, Meloni E et al. Catalysis today[J], 2013, 216: 185-193
- [20] Swanson J, Watts W, Kittelson D et al. Aerosol Science and Technology[J], 2013, 47(4): 452-461
- [21] Wang Luyun(王庐云). 浙江工业大学[D], 2013
- [22] Zhang Y, Lou D, Tan P et al. Journal of Environmental Sciences[J], 2024, 136: 35-44
- [23] Zhang Y, Lou D, Tan P et al. Scientific Reports[J], 2020, 10(1): 19761
- [24] Jiaqiang E, Zhao X, Xie L et al. Energy[J], 2019, 169: 719-729.
- [25] Dong F, Yamazaki K. Catalysis Today[J], 2020,376(prepublish):47-54
- [26] Jochen S, Heike S, Patrick L et al. Catalysts[J], 2021,11(3):300-300
- [27] Hoang P H, Jieling S, Dawei Y et al. Journal of Environmental Chemical Engineering[J], 2022,10(4)
- [28] Zhang Y, Zheng S, Lou D et al. Energy[J], 2025,315134488-134488
- [29] Gao J, Huang J, Wang S et al. Journal of the Energy Institute[J], 2024,116101754-101754

Study on the Performance of diesel particulate filter under Different catalyst loading

Yunhua Zhang, Yaoxin Xu, Diming Lou, Liang Fang

School of Automotive studies, Tongji University, Shanghai 201804, China

Abstract: Diesel particulate filter is an effective technology to reduce diesel particulate emissions, and its performance is closely related to catalyst loading. Based on the platform test system of heavy diesel engine, the influence of catalyst amount on the pressure drop, gas state and particulate emission reduction performance of diesel CDPF regeneration was studied. The results show that the exhaust back pressure of catalyst increases linearly with the increase of catalyst loading. When catalyst loading increases from 0 g/ft³ to 5, 10 and 20 g/ft³, the average exhaust back pressure increases from 2.94 kPa to 3.44, 3.96 and 4.51 kPa, respectively. The higher the amount of catalyst, the better the emission reduction effect of the catalytic converter on CO and THC. When catalyst loading increases from 0 g/ft³ to 5, 10 and 20 g/ft³, CO emission decreases from 78.94×10^{-6} to 71.39×10^{-6} , 68.12×10^{-6} and 63.30×10^{-6} , and THC emission concentration decreases from 57.34×10^{-6} to 48.31×10^{-6} , 46.93×10^{-6} and 44.51×10^{-6} , respectively. The amount of catalyst had a significant effect on NO oxidation, but not on NO_x emission concentration. CDPF can achieve a reduction rate of more than 95% for PM and PN. Increasing catalyst loading improves the particulate emission reduction effect of CDPF, with a more significant improvement in the reduction effect of nucleation particles. The results of this study have important reference value for the design of high-performance CDPF.

Key words: CDPF; gaseous emission; particulate matter; emission reduction rate; Catalyst loading

Corresponding author: Yunhua Zhang, Ph. D., Associate Professor, School of Automotive studies, Tongji University, Shanghai 201804, P. R. China, Tel: 0086-21-69589207, E-mail: zhangyunhua131@tongji.edu.cn