

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges

Eigentum

Internationales Büro

(43) Internationales

Veröffentlichungsdatum

24. August 2017 (24.08.2017)



(10) Internationale Veröffentlichungsnummer

WO 2017/140583 A1

(51) Internationale Patentklassifikation:

B01D 39/20 (2006.01) B01D 53/94 (2006.01)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2017/052963

(22) Internationales Anmeldedatum:

10. Februar 2017 (10.02.2017)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:

10 2016 202 610.0

19. Februar 2016 (19.02.2016)

DE

(71) Anmelder: DÜRR SYSTEMS AG [DE/DE]; Carl-Benz-Str. 34, 74321 Bietigheim-Bissingen (DE).

(72) Erfinder: SCHRÖTER, Martin; 1821 Pontiac Trail, Ann Arbor, Michigan 48105 (US). RIEDER, Erhard; Im Seele 68, 71083 Herrenberg (DE).

(74) Anwalt: PRÜFER & PARTNER MBB
PATENTANWÄLTE RECHTSANWÄLTE;
Sohnckestr. 12, 81479 München (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK,

DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), europäisches (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Erklärungen gemäß Regel 4.17:

— hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, die Priorität einer früheren Anmeldung zu beanspruchen (Regel 4.17 Ziffer iii)

Veröffentlicht:

— mit internationalem Recherchenbericht (Artikel 21 Absatz 3)

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING A POROUS FUNCTIONAL BODY

(54) Bezeichnung : VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG EINES PORÖSEN FUNKTIONSKÖRPERS

(57) Abstract: The invention relates to a method for producing a porous functional body, in particular a catalytically active particle filter, wherein the functional material, in particular the catalytically active material, can have a local concentration gradient. Said method comprises the following steps: providing a carrier substrate, which is formed at least partially of a porous and/or fibrous filter material, filling a predetermined section of an inner volume of the carrier substrate with a hydrophobic liquid, removing a predetermined portion of the hydrophobic liquid from the carrier substrate, introducing a hydrophilic liquid, which contains a functional material or a precursor material of a functional material, in particular a catalytically active material or a precursor of a catalytically active material, into the carrier substrate, and coating the carrier substrate with the functional material or the precursor material of a functional material.

(57) Zusammenfassung: Ein Verfahren zur Herstellung eines porösen Funktionskörpers, insbesondere eines katalytisch aktiven Partikelfilters, bei welchem das Funktionsmaterial, insbesondere das katalytisch aktive Material einen lokalen Konzentrationsgradienten aufweisen kann, weist die folgenden Schritte auf: Bereitstellen eines Trägersubstrats, das zumindest teilweise aus einem porösen und/oder faserigen Filtermaterial gebildet ist, Füllen eines vorbestimmten Abschnitts eines inneren Volumens des Trägersubstrats mit einer hydrophoben Flüssigkeit, Entfernen eines vorbestimmten Anteils der hydrophoben Flüssigkeit aus dem Trägersubstrat, Einbringen einer hydrophilen Flüssigkeit, die ein Funktionsmaterial oder ein Vorstufematerial eines Funktionsmaterials, insbesondere ein katalytisch aktives Material oder einen Vorläufer eines katalytisch aktiven Materials enthält, in das Trägersubstrat und Beschichten des Trägersubstrats mit dem Funktionsmaterial oder dem Vorstufematerial eines Funktionsmaterials.

WO 2017/140583 A1

Verfahren zur Herstellung eines porösen Funktionskörpers

Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung eines porösen

5 Funktionskörpers, insbesondere eines katalytisch aktiven Partikelfilters.

Es sind verschiedenste poröse Funktionskörper bekannt, die dazu vorgesehen und ausgebildet sind, mit flüssigen und/oder gasförmigen Fluiden in Wechselwirkung zu treten, wobei das Fluid oder zumindest Teile des Fluids in eine poröse Struktur des

10 Funktionskörpers eindringen und mit einem im Funktionskörper angeordneten oder vorgesehenen Funktionsmaterial derart in Wechselwirkung treten, dass das Fluid eine Änderung einer seiner Zustandsgrößen, seiner chemischen Eigenschaften und/oder seiner Zusammensetzung erfährt. Neben beispielsweise Wärmespeicherkörpern bilden Partikelfilter, wie beispielsweise Dieselpartikelfilter, Beispiele von porösen Funktions-
15 körpern. Dieselpartikelfilter werden dabei üblicherweise mit katalytisch aktivem Material als Funktionsmaterial durch Ausfällen in wässriger Lösung gelöster Salze oder direkte Kristallisation in wässrigen Flüssigkeiten enthaltener Gele beschichtet. In der Regel benetzt die Flüssigkeit der Lösung oder des Gels den kompletten Körper des Trägersubstrats während des Ausfäll- oder Kristallisationsprozesses im Wesentlichen homogen.
20 Als Folge wird auch das katalytisch aktive Material homogen über den gesamten Körper des Trägersubstrats verteilt.

In Fällen, in denen ein lokaler Konzentrationsgradient des katalytisch aktiven Materials oder eines Vorläufers eines katalytisch aktiven Materials erwünscht ist, insbesondere in

25 Fällen, in denen ein gesteuerter lokaler Konzentrationsgradient in nur einer Raumrichtung erwünscht ist, wie beispielsweise für eine reine Oberflächenkatalyse, wurden bereits verschiedene Herstellungsverfahren probiert. Bekannt sind zum Beispiel eine Sprüh-
imprägnierung oder eine nach Partikelgrößen des katalytisch aktiven Materials differenzierte Washcoat-Beschichtung. Es ist jedoch bisher kein Verfahren bekannt, das ohne zu
30 großen Aufwand eine Beschichtung eines Trägersubstrats mit katalytisch aktivem Material mit einem gezielten lokalen Konzentrationsgradienten in zuverlässiger Weise ermöglicht.

Der Erfindung liegt daher die Aufgabe zugrunde, ein verbessertes Verfahren zur Herstellung eines porösen Funktionskörpers, insbesondere eines katalytisch aktiven Partikel-

filters zu schaffen, mit welchem ein lokaler Konzentrationsgradient des Funktionsmaterials, insbesondere des katalytisch aktiven Materials erzielt werden kann.

Diese Aufgabe wird gelöst durch ein Verfahren zur Herstellung eines porösen Funktionskörpers, insbesondere eines katalytisch aktiven Partikelfilters mit den in Anspruch 1 angegebenen Verfahrensschritten. Vorteilhafte Ausgestaltungen der Erfindung sind Gegenstand der abhängigen Ansprüche.

Das erfindungsgemäße Verfahren zur Herstellung eines porösen Funktionskörpers, insbesondere eines katalytisch aktiven Partikelfilters, weist die folgenden Schritte auf:

- a) Bereitstellen eines Trägersubstrats, das zumindest teilweise aus einem porösen und/oder faserigen Filtermaterial gebildet ist;
- b) Füllen eines vorbestimmten Abschnitts eines inneren Volumens des Trägersubstrats mit einer hydrophoben Flüssigkeit;
- c) Entfernen eines vorbestimmten Anteils der hydrophoben Flüssigkeit aus dem Trägersubstrat;
- d) Einbringen einer hydrophilen Flüssigkeit, die ein Funktionsmaterial oder eine Vorstufematerial eines Funktionsmaterials, insbesondere ein katalytisch aktives Material oder einen Vorläufer eines katalytisch aktiven Materials enthält, in das Trägersubstrat; und
- e) Beschichten des Trägersubstrats mit dem Funktionsmaterial oder dem Vorstufematerial eines Funktionsmaterials.

Mit dem erfindungsgemäßen Verfahren können auf relativ einfache und kostengünstige Weise poröse Funktionskörper, insbesondere katalytisch aktive Partikelfilter hergestellt werden, die einen lokalen Konzentrationsgradienten des Funktionsmaterials, insbesondere des katalytisch aktiven Materials aufweisen. Der lokale Konzentrationsgradient kann dabei gezielt beeinflusst werden und ist nicht notwendigerweise auf eine Raumrichtung beschränkt. Die Erfindung macht sich das physikalische Phänomen der Oberflächenspannung an der Grenzfläche zwischen hydrophilen und hydrophoben Flüssigkeiten zu Nutze.

Das erfindungsgemäße Verfahren kann herkömmliche Verfahren ersetzen und kann insbesondere bei der Herstellung von kundenspezifischen, multifunktionalen Katalysatoren

von Vorteil sein. Es ist allgemein bekannt, dass Edelmetalle im Vergleich zu anderen katalytisch aktiven Materialien sehr aktiv und selektiv sein können. Aus wirtschaftlichen Gründen soll die Menge der eingesetzten Edelmetalle möglichst begrenzt werden. Das Herstellungsverfahren der Erfindung bietet die Möglichkeit, die Menge an teuren Rohmaterialien zu reduzieren oder sogar zu minimieren, indem das mit katalytisch aktivem Material aktivierte Volumen des Katalysators begrenzt werden kann.

Im Rahmen der Erfindung soll dabei unter einem Funktionsmaterial insbesondere sowohl ein Material, welches eine Wechselwirkung mit dem Fluid oder einem Teil des Fluids wahlweise herbeiführt, ermöglicht, begünstigt (z.B. Katalysatoren, Reaktanden, Sorbenzien, ...) oder aber unterbindet oder unterdrückt (z.B. Inhibitoren, ...), als auch ein Vorstufematerial für ein vorgenanntes Funktionsmaterial verstanden werden.

Im Rahmen der Erfindung soll dabei unter einem „katalytisch aktiven Material“ vorzugsweise sowohl ein Material, das als solches eine katalytische Wirkung auf zumindest eine chemische Umsetzungsreaktion entfaltet bzw. entfalten kann oder zumindest eine Komponente oder einen Anteil umfasst, welche bzw. welcher als solche bzw. solches eine katalytische Wirkung auf zumindest eine chemische Umsetzungsreaktion entfaltet bzw. entfalten kann, als auch ein Material, welches ein katalytisch aktivierbares Material oder ein Vorstufematerial zur Bereitstellung einer katalytischen Wirkung auf zumindest eine chemische Umsetzungsreaktion im Rahmen eines Aktivierungsprozesses umfasst, verstanden werden.

Die Verfahrensschritte a) bis e) des erfindungsgemäßen Verfahrens werden vorzugsweise nacheinander als separate Schritte ausgeführt. Insbesondere die Verfahrensschritte b), c) und d) werden vorzugsweise nacheinander als separate Schritte ausgeführt.

In einer vorteilhaften Ausgestaltung der Erfindung weist der Schritt b) einen Schritt des Entgasens des Trägersubstrats auf. Vorzugsweise wird in Schritt b) dem Trägersubstrat und/oder der hydrophoben Flüssigkeit Energie zugeführt, zum Beispiel in Form von Schallwellen, Ultraschallwellen und/oder durch mechanisches Rütteln des Trägersubstrats.

In einer vorteilhaften Ausgestaltung der Erfindung ist die hydrophobe Flüssigkeit ausgewählt aus n-Paraffinen, Iso-Paraffinen oder einem Gemisch / einer Mischung daraus. Vorzugsweise können für die hydrophobe Flüssigkeit n-Paraffin C10-C13, Isopar C, Isopar E, Isopar L und Isopar V verwendet werden.

5

In einer vorteilhaften Ausgestaltung der Erfindung wird zum Durchführen des Schritts c) ein Lösemittel für die hydrophobe Flüssigkeit verwendet. Unter einem Lösemittel wird dabei im Rahmen der Erfindung insbesondere eine Flüssigkeit verstanden, die dazu geeignet ist, die hydrophobe Flüssigkeit aus dem Trägersubstrat herauszulösen, heraus-
10 zuwaschen oder zu entfernen. Dabei bleibt die hydrophobe Flüssigkeit vorzugsweise chemisch unverändert. Vorzugsweise ist das Lösemittel für die hydrophobe Flüssigkeit ausgewählt aus Ketonen, Alkoholen oder Paraffinen mit einem gegenüber der hydrophoben Flüssigkeit niedrigeren Siedepunkt, bevorzugt Aceton, Ethanol oder n-Hexan. Insbesondere ist der Siedepunkt des Lösemittels dabei mindestens 25K, bevorzugt
15 mindestens 50K niedriger als der Siedepunkt der hydrophoben Flüssigkeit. Das Lösemittel kann zur Durchführung eines erfindungsgemäßen Schrittes c) jedoch auch dazu vorgesehen oder ausgebildet sein, die hydrophobe Flüssigkeit in ihren physikalischen und/oder chemischen Eigenschaften derart zu verändern, dass die hydrophobe Flüssigkeit lokal aus dem Trägersubstrat entweichen kann oder ausgetrieben werden kann.

20

Das restliche Lösemittel wird vorzugsweise ausgetrieben. Ein Austreiben kann dabei beispielsweise mittels Spülung mit einer wässrigen Lösung oder einem Gasstrom (z.B. Luft, Stickstoff, inertes Gas) als Spülmittel erfolgen. Vorzugsweise weist das Spülmittel dazu eine kontrollierte Temperatur auf. Aceton und Ethanol sind zum Beispiel gute
25 Lösungsmittel für langkettige Alkane und Wasser, n-Hexan dagegen muss durch einen Luftstrom ausgetrieben werden und erfordert typischerweise einen zwischengeschalteten Trocknungsschritt.

30

In einer vorteilhaften Ausgestaltung der Erfindung ist die hydrophile Flüssigkeit Wasser.

In einer vorteilhaften Ausgestaltung der Erfindung ist das Filtermaterial des Trägersubstrats ausgewählt aus Aluminiumoxid, Titandioxid, Siliziumdioxid, Zirkoniumoxid, Ceroxid und Gemischen davon.

In einer weiteren vorteilhaften Ausgestaltung der Erfindung ist der Grad des Entferns der hydrophoben Flüssigkeit aus dem Trägersubstrat in Schritt c) variabel einstellbar. Dies kann vorzugsweise durch ein variables Einstellen einer Einwirkzeit des Lösemittels erfolgen. Die Einwirkzeit des Lösemittels kann zum Beispiel eine Tiefe der katalytisch aktiven Schicht beeinflussen, die während der nachfolgenden Schritte d) und e) gebildet wird.

In einer vorteilhaften Ausgestaltung der Erfindung erfolgt das Beschichten in Schritt e) durch einen Ausfällvorgang, einen Kristallisationsvorgang oder einen Washcoat-Vorgang.

In einer weiteren vorteilhaften Ausgestaltung der Erfindung können die Schritte b) bis e) wiederholt durchgeführt werden. Vorzugsweise werden die Schritte b) bis e) mit unterschiedlichen vorbestimmten Abschnitten des inneren Volumens des Trägersubstrats in Schritt b) und/oder mit unterschiedlichen Funktionsmaterialien oder Vorstufematerialien von Funktionsmaterialien, insbesondere katalytisch aktiven Materialien oder unterschiedlichen Vorläufern eines katalytisch aktiven Materials in Schritt d) wiederholt. Auf diese Weise können poröse Funktionskörper, insbesondere Partikelfilter mit mehreren Funktionsmaterialien, insbesondere mehreren katalytisch aktiven Materialien und/oder mit verschiedenen lokalen Konzentrationsgradienten von Funktionsmaterialien, insbesondere katalytisch aktiven Materialien hergestellt werden. Ferner kann es Vorteil sein, wenn ein Funktionskörper nach dem im Vorherigen dargelegten iterativen Verfahren zur Herstellung eines Funktionskörpers sowohl mit mindestens einem Funktionsmaterial und mit mindestens einem katalytisch aktiven Material versehen oder beschichtet wird.

Optional kann nach Schritt e) ein Schritt des Trocknens und/oder ein Schritt des Fixierens durchgeführt werden.

Mit dem erfindungsgemäßen Verfahren zur Herstellung eines porösen Funktionskörpers, insbesondere katalytisch aktiven Partikelfilters können insbesondere die folgenden Vorteile erzielt werden:

- selektives Auswählen der Stellen mit einem lokalen Konzentrationsgradienten;
- selektives Bestimmen einer Tiefe einer Schicht mit einem lokalen Konzentrationsgradienten;

- mögliches Präparieren von multifunktionalen, katalytisch aktiven Materialien an verschiedenen Stellen des Trägersubstrats, sodass eine zeitliche Abfolge von katalytischen Reaktionen möglich ist;
- Einstellen einer definierten Verweildauer eines zu reinigenden Fluids in speziellen katalytischen Funktionen;
- Vermeiden von Einschränkungen für den Zugang des katalytisch aktiven Materials zum Trägersubstrat;
- Vermeiden von Oberflächendeckschichten.

Das oben beschriebene Verfahren der Erfindung kann vorzugsweise zur Herstellung von katalytisch aktiven Partikelfiltern und multifunktionalen Katalysatoren eingesetzt werden. Typische Anwendungen solcher multifunktionaler Katalysatoren sind zum Beispiel Schlupfanwendungen zur Emissionsbegrenzung von beispielsweise Ammoniak in der SCR-DeNO_x-Reaktion oder CO in der Oxidationsreaktion. Während die gewünschte Reaktion der SCR-DeNO_x oder Oxidation mit einem selektiven Katalysator oder einem vergleichsweise günstigen Basismetall-Katalysator durchgeführt wird, wird die Schlupffunktion in einem kleinen Volumen durchgeführt, das mit einem Edelmetall wie Pd, Rh oder Pt am Ausgang des Katalysatorträgers aktiviert ist. Ebenso typisch sind multifunktionale Katalysatoren in Zündanwendungen, die die vergleichsweise niedrige Zündtemperatur von Edelmetall nutzen, um chemische Verbindungen in einer exothermen Reaktion selektiv umzusetzen, wodurch die Energie zum Zünden für unselektivere Reaktionen an einem billigeren Basismetall-Katalysator oder einem Katalysator für eine andere Reaktion zugeführt wird. Dies kann für die Oxidation von CO und VOC-haltigem Gas durch Zünden des CO bei niedriger Temperatur in einem kleinen Volumen des Katalysators, der im Einlass des Katalysatorträgers mit Pd aktiviert ist, erfolgreich durchgeführt werden, wobei die Energie zum Zünden der verbleibenden VOCs auf einem billigeren Basismetall-Katalysator, der für das verbleibende Volumen des Katalysatorträgers verwendet wird, zugeführt wird. Bekannt sind auch selektive Anwendungen, bei denen spezifische Reaktionen in definierten Zonen des Katalysators getrennt werden, wie zum Beispiel bei der Kombination einer selektiven katalytischen Ammoniak-Oxidation in einem kleinen Volumen am Einlass des mit Edelmetall aktivierten Katalysatorträgers, gefolgt von einer SCR-Reaktion an einem Metalloxid-Katalysator im mittleren Volumen des Katalysatorträgers, der die Temperatur für eine selektive N₂O-Reduktion in einem

kleinen Volumen am Ausgang des mit zum Beispiel Zeolithen aktivierten Katalysator-trägers erhöht. Schließlich können derartige Anwendungen auch kombiniert werden, wie z.B. Zündanwendungen mit Schlupfanwendungen bei Oxidationsreaktionen, wobei kleine Volumen eines mit Edelmetall aktivierten Katalysators am Einlass und Auslass des

5 Katalysatorträgers angeordnet werden. Sie können auch mit selektiven Anwendungen kombiniert werden, wie zum Beispiel dem Platzieren eines kleinen Volumens eines mit Edelmetall aktivierten Katalysators stromabwärts des Zeolithen am Ausgang des Katalysatorträgers für die Ammoniak-Schlupfsteuerung. Beispielsweise kann das erfindungsgemäße Herstellungsverfahren auch zur Herstellung von multifunktionalen

10 Abgas-Katalysatoren eingesetzt werden wie sie in der EP 2 590 730 B1 beschrieben sind.

Gegenstand der Erfindung ist auch ein poröser Funktionskörper, der gemäß dem oben beschriebenen Verfahren der Erfindung hergestellt worden ist. Bei dem porösen Funktionskörper handelt es sich bevorzugt um einen katalytisch aktiven Partikelfilter.

15 Obige sowie weitere Vorteile, Merkmale und Anwendungsmöglichkeiten der Erfindung werden aus der nachfolgenden Beschreibung von verschiedenen Ausführungsbeispielen des Herstellungsverfahrens besser verständlich.

20 Nachfolgend wird die Erfindung am Beispiel von Herstellungsverfahren für katalytisch aktive Partikelfilter näher beschrieben. Wie oben erwähnt, kann das erfindungsgemäße Herstellungsverfahren aber vorteilhaft allgemein bei porösen Funktionskörpern eingesetzt werden.

25 Ein erstes Ausführungsbeispiel beschreibt ein Verfahren zur Herstellung eines einfachen, katalytisch aktiven Partikelfilters. Die Oberflächenabscheidung des katalytisch aktiven Materials oder eines Vorläufers des katalytisch aktiven Materials soll zum Beispiel durch Ausfällen von Salzen und/oder Kristallisation von Gelen erfolgen, um Zeolith-Strukturen zu bilden.

30 In einem ersten Schritt wird ein Trägersubstrat bereitgestellt, das zumindest teilweise aus einem porösen oder faserigen Filtermaterial gebildet ist. Das Filtermaterial ist zum Beispiel Aluminiumoxid (Al_2O_3), Titandioxid (TiO_2), Siliziumdioxid (SiO_2), Zirkoniumoxid (ZrO_2), Ceroxid (CeO_2) oder ein Gemisch dieser Verbindungen. Das Trägersubstrat hat

zum Beispiel die Form eines Monolithen mit zahlreichen Längskanälen, die in Längsrichtung durch poröse Wände getrennt sind, wobei die Dispersionsseite der Kanäle ein offenes Einlassende und ein geschlossenes Auslassende hat und die Permeationsseite der Kanäle ein geschlossenes Einlassende und ein offenes Auslassende hat.

5

Dieses Trägersubstrat wird in eine hydrophobe Flüssigkeit wie beispielsweise n-Paraffin C10-C13 oder Isopar C bis Isopar V getaucht bis sein inneres Volumen mit der hydrophoben Flüssigkeit gefüllt ist. Dies kann zum Beispiel durch Zuführen von Energie zur Flüssigkeit erfolgen, um das poröse System des Trägersubstrats zu entgasen. Die Energie wird zum Beispiel mittels Schallwellen, vorzugsweise Ultraschallwellen, oder ähnliche kontaktlose Energieübertragungssysteme in die hydrophobe Flüssigkeit eingespeist.

10

Falls die Oberflächenabscheidung des katalytisch aktiven Materials oder seines Vorläufers auf einen Teil der physikalischen Ausdehnung des Trägersubstrats oder einen Teil der inneren Oberfläche beschränkt werden soll, so kann dies durch eine entsprechende Begrenzung der Benetzung mit der hydrophoben Flüssigkeit auf nur diesen bevorzugten Teil des Trägersubstrats erreicht werden. Dieses Verfahren ist zum Beispiel bevorzugt für monolithische, katalytisch aktive Trägersubstrate, beispielsweise des Waben- oder Plattentyps, die eine spezielle Funktionalität am Einlass oder Auslass des Strömungskanals erhalten sollen.

15

20

Das mit der hydrophoben Flüssigkeit gefüllte bzw. getränkte Trägersubstrat wird dann mit einem Lösemittel für die hydrophobe Flüssigkeit gespült oder gewaschen oder in ein Bad mit einem solchen Lösemittel getaucht. Bei dem Lösemittel handelt es sich zum Beispiel um Acteton, n-Decan oder Ethanol.

25

Bei Bedarf, falls der katalytisch aktive Partikelfilter zum Beispiel als Crossflow-Typ eingesetzt werden soll, kann die Einwirkzeit des Lösemittels die Tiefe der Oberflächenschicht bestimmen, in welcher das katalytisch aktive Material oder sein Vorläufer abgeschieden werden soll. Die nach dem Einsatz des Lösemittels verbleibende Füllhöhe mit der hydrophoben Flüssigkeit im Trägersubstrat bestimmt die Tiefe der katalytisch aktiven Schicht, die während der nachfolgenden Schritte gebildet wird. Diese katalytisch aktive Schichttiefe bestimmt im hergestellten Partikelfilter dann die Verweildauer eines zu

30

reinigenden Fluids in der speziellen, katalytisch aktiven Schicht mit einer bestimmten Funktionalität, die auf den jeweiligen Anwendungsfall des Partikelfilters abgestimmt ist.

5 Im Anschluss wird das (restliche) hydrophobe Lösungsmittel ausgetrieben, vorzugsweise mit einer hydrophilen Flüssigkeit mit einer kontrollierten Temperatur.

Anschließend wird das Trägersubstrat mit seiner präparierten Oberfläche mit einer hydrophilen Flüssigkeit in Kontakt gebracht, die das katalytisch aktive Material, seine Salze, Gele oder andere Vorläufer oder Gemische davon enthält. Bei der hydrophilen Flüssigkeit
10 handelt es sich vorzugsweise um Wasser. Aufgrund des physikalischen Phänomens der Oberflächenspannung an der Grenzfläche zwischen der hydrophoben Flüssigkeit und der hydrophilen Flüssigkeit benetzt die hydrophile Flüssigkeit nur jene Abschnitte des Trägersubstrats, an denen zuvor mit Hilfe des Lösemittels die hydrophobe Flüssigkeit entfernt worden ist.

15 Die Beschichtung des Trägersubstrats mit dem katalytisch aktiven Material erfolgt dann durch dem Fachmann allgemein bekannte Ausfäll-, Kristallisations- oder Washcoat-Prozesse mit bekannten Prozessbedingungen. Optional folgen auf diesen Beschichtungsvorgang ein Trocknungsprozess und/oder ein Fixierungs- oder Kalzinationsprozess
20 (Wärmebehandlung).

Ein zweites Ausführungsbeispiel beschreibt ein Verfahren zur Herstellung eines katalytisch aktiven Partikelfilters mit mehreren unterschiedlichen, katalytisch aktiven Materialien mit unterschiedlichen lokalen Konzentrationsgradienten.

25 In einem ersten Schritt wird das Trägersubstrat mit einem katalytisch aktiven Material beschichtet, wobei das katalytisch aktive Material oder sein Vorläufer über den gesamten Körper des Trägersubstrats ohne nennenswerten Konzentrationsgradienten homogen verteilt sein darf. Anschließend wird das Trägersubstrat getrocknet.

30 In einem zweiten Schritt wird das so vorbereitete Trägersubstrat oder ein vorbestimmter Abschnitt davon mit Unterstützung eines Entgasungsvorgangs mit einer hydrophoben Flüssigkeit benetzt, wie oben in Zusammenhang mit dem ersten Ausführungsbeispiel beschrieben.

In einem dritten Schritt wird das mit der hydrophoben Flüssigkeit benetzte Trägersubstrat mit einem Lösemittel für hydrophobe Flüssigkeiten in Kontakt gebracht, wie oben in Zusammenhang mit dem ersten Ausführungsbeispiel beschrieben.

5

In einem vierten Schritt wird eine hydrophile Flüssigkeit, die das katalytisch aktive Material, seine Salze, Gele oder anderen Vorläufer enthält, mit dem Trägersubstrat oder zumindest mit Teilen davon in Kontakt gebracht. Es folgt auch in diesem Fall ein Ausfäll-, Kristallisations- oder Washcoat-Prozess mit bekannten Prozessbedingungen, gefolgt von

10 einem Trocknungs-prozess und/oder einem Fixierungs- oder Kalzinationsprozess.

Die Abfolge der obigen Schritte 2 bis 4 kann beliebig wiederholt werden, um den katalytisch aktiven Partikelfilter fertigzustellen.

15 Zusätzlich oder alternativ können auch die lokale Größenverteilung und/oder die Aktivierungspotenziale oder andere die lokale Aktivität des katalytisch aktiven Materials beeinflussende Eigenschaften in der gleichen Weise variiert werden.

ANSPRÜCHE

- 5 1. Verfahren zur Herstellung eines porösen Funktionskörpers, insbesondere eines katalytisch aktiven Partikelfilters, aufweisend die Schritte:
- a) Bereitstellen eines Trägersubstrats, das zumindest teilweise aus einem porösen und/oder faserigen Filtermaterial gebildet ist;
- 10 b) Füllen eines vorbestimmten Abschnitts eines inneren Volumens des Trägersubstrats mit einer hydrophoben Flüssigkeit;
- c) Entfernen eines vorbestimmten Anteils der hydrophoben Flüssigkeit aus dem Trägersubstrat;
- 15 d) Einbringen einer hydrophilen Flüssigkeit, die ein Funktionsmaterial oder ein Vorstufematerial eines Funktionsmaterials, insbesondere ein katalytisch aktives Material oder einen Vorläufer eines katalytisch aktiven Materials enthält, in das Trägersubstrat; und
- 20 e) Beschichten des Trägersubstrats mit dem Funktionsmaterial oder dem Vorstufematerial eines Funktionsmaterials.
2. Verfahren nach Anspruch 1, bei welchem der Schritt b) einen Schritt des Entgasens des Trägersubstrats aufweist.
- 25 3. Verfahren nach Anspruch 2, bei welchem in Schritt b) dem Trägersubstrat und/oder der hydrophoben Flüssigkeit Energie zugeführt wird.
- 30 4. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, bei welchem die hydrophobe Flüssigkeit ausgewählt ist aus n-Paraffinen, Iso-Paraffinen oder einer Mischung daraus.

5. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, bei welchem zum Durchführen des Schritts c) ein Lösemittel für die hydrophobe Flüssigkeit verwendet wird.
- 5 6. Verfahren nach Anspruch 5, bei welchem das Lösemittel für die hydrophobe Flüssigkeit ausgewählt ist aus Ketonen, Alkoholen oder n-Alkanen mit einem gegenüber der hydrophoben Flüssigkeit niedrigeren Siedepunkt oder einer Mischung daraus.
- 10 7. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, bei welchem die hydrophile Flüssigkeit Wasser ist.
- 15 8. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, bei welchem der Grad des Entferns der hydrophoben Flüssigkeit aus dem Trägersubstrat in Schritt c) variabel einstellbar ist.
9. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, bei welchem das Beschichten in Schritt e) durch einen Ausfällvorgang, einen Kristallisationsvorgang oder einen Washcoat-Vorgang erfolgt.
- 20 10. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, bei welchem die Schritte b) bis e) wiederholt durchgeführt werden.
- 25 11. Verfahren nach Anspruch 10, bei welchem die Schritte b) bis e) mit unterschiedlichen vorbestimmten Abschnitten des inneren Volumens des Trägersubstrats in Schritt b) und/oder mit unterschiedlichen Funktionsmaterialien oder Vorstufematerialien von Funktionsmaterialien in Schritt d) wiederholt werden.
- 30 12. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, bei welchem nach Schritt e) ein Schritt des Trocknens und/oder ein Schritt des Fixierens durchgeführt werden.
13. Poröser Funktionskörper, insbesondere katalytisch aktiver Partikelfilter, hergestellt gemäß einem Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2017/052963

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
INV. B01D39/20 B01D53/94
ADD.

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
B01D

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 2015/099622 A1 (KO CHANG HYUN [KR] ET AL) 9 April 2015 (2015-04-09)	1-3,5-13
Y	paragraphs [0023], [0030], [0049] - [0061], [0067], [0073], [0078], [0093], [0125]; claims 1, 10; figure 1	4
Y	----- WO 2009/000667 A2 (BOSCH GMBH ROBERT [DE]; JOCKEL JOERG [CZ]; KRUSE MATTHIAS [DE]; HAUBER) 31 December 2008 (2008-12-31)	4
A	abstract; figure 2 page 4, lines 15-20, 30	1-3,5-13
A	----- WO 2011/122603 A1 (TANAKA PRECIOUS METAL IND [JP]; KUBO HITOSHI [JP]; OHSHIMA YUUSUKE [JP] 6 October 2011 (2011-10-06) abstract	1-13
	----- -/-	



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents :

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

24 April 2017

Date of mailing of the international search report

03/05/2017

Name and mailing address of the ISA/

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Artos Fernández, V

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No

PCT/EP2017/052963

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2009/065719 A1 (BOSCH GMBH ROBERT [DE]; DIETZHAUSEN HOLGER [DE]; JOCKEL JOERG [CZ]; KR) 28 May 2009 (2009-05-28) abstract; figure 1 -----	1-13
A	US 2007/149399 A1 (KU ANTHONY Y [US] ET AL) 28 June 2007 (2007-06-28) abstract -----	1-13

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2017/052963

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 2015099622 A1	09-04-2015	US 2015099622 A1	09-04-2015
		US 2017072385 A1	16-03-2017
WO 2009000667 A2	31-12-2008	DE 102007029418 A1	08-01-2009
		WO 2009000667 A2	31-12-2008
WO 2011122603 A1	06-10-2011	CN 102821855 A	12-12-2012
		JP 4861537 B2	25-01-2012
		US 2012316055 A1	13-12-2012
		WO 2011122603 A1	06-10-2011
WO 2009065719 A1	28-05-2009	DE 102007056213 A1	28-05-2009
		WO 2009065719 A1	28-05-2009
US 2007149399 A1	28-06-2007	NONE	

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
INV. B01D39/20 B01D53/94
ADD.

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
B01D

Recherchierte, aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US 2015/099622 A1 (KO CHANG HYUN [KR] ET AL) 9. April 2015 (2015-04-09)	1-3,5-13
Y	Absätze [0023], [0030], [0049] - [0061], [0067], [0073], [0078], [0093], [0125]; Ansprüche 1, 10; Abbildung 1	4
Y	----- WO 2009/000667 A2 (BOSCH GMBH ROBERT [DE]; JOCKEL JOERG [CZ]; KRUSE MATTHIAS [DE]; HAUBER) 31. Dezember 2008 (2008-12-31)	4
A	Zusammenfassung; Abbildung 2 Seite 4, Zeilen 15-20, 30	1-3,5-13
A	----- WO 2011/122603 A1 (TANAKA PRECIOUS METAL IND [JP]; KUBO HITOSHI [JP]; OHSHIMA YUUSUKE [JP]) 6. Oktober 2011 (2011-10-06) Zusammenfassung	1-13
	----- -/-	



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" frühere Anmeldung oder Patent, die bzw. das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

24. April 2017

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

03/05/2017

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Artos Fernández, V

C. (Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	WO 2009/065719 A1 (BOSCH GMBH ROBERT [DE]; DIETZHAUSEN HOLGER [DE]; JOCKEL JOERG [CZ]; KR) 28. Mai 2009 (2009-05-28) Zusammenfassung; Abbildung 1 -----	1-13
A	US 2007/149399 A1 (KU ANTHONY Y [US] ET AL) 28. Juni 2007 (2007-06-28) Zusammenfassung -----	1-13

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2017/052963

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument			Datum der Veröffentlichung		Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung	
US 2015099622	A1	09-04-2015	US	2015099622	A1	09-04-2015		
			US	2017072385	A1	16-03-2017		

WO 2009000667	A2	31-12-2008	DE	102007029418	A1	08-01-2009		
			WO	2009000667	A2	31-12-2008		

WO 2011122603	A1	06-10-2011	CN	102821855	A	12-12-2012		
			JP	4861537	B2	25-01-2012		
			US	2012316055	A1	13-12-2012		
			WO	2011122603	A1	06-10-2011		

WO 2009065719	A1	28-05-2009	DE	102007056213	A1	28-05-2009		
			WO	2009065719	A1	28-05-2009		

US 2007149399	A1	28-06-2007	KEINE					
