

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2008-537510
(P2008-537510A)

(43) 公表日 平成20年9月18日(2008.9.18)

(51) Int.Cl.	F 1	テーマコード (参考)
B01J 27/224 (2006.01)	B01J 27/224	Z A B A 3 G O 9 0
B01J 35/04 (2006.01)	B01J 35/04	3 O 1 E 3 G O 9 1
B01D 53/94 (2006.01)	B01J 35/04	3 O 1 J 4 D O 1 9
B01D 39/20 (2006.01)	B01J 35/04	3 O 1 P 4 D O 4 8
B01D 46/00 (2006.01)	B01J 35/04	3 O 1 Z 4 D O 5 8

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 17 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2008-504819 (P2008-504819)	(71) 出願人	507332815 サンゴバン サントル ドゥ ルシェル シェ エ デトゥーデ ユーロパン フランス国, エフ-92400 クールブ ボワ, アブニュ ダルザス 18
(86) (22) 出願日	平成18年4月7日 (2006.4.7)	(74) 代理人	100099759 弁理士 青木 篤
(85) 翻訳文提出日	平成19年11月29日 (2007.11.29)	(74) 代理人	100077517 弁理士 石田 敬
(86) 國際出願番号	PCT/FR2006/050314	(74) 代理人	100087413 弁理士 古賀 哲次
(87) 國際公開番号	W02006/106275	(74) 代理人	100146466 弁理士 高橋 正俊
(87) 國際公開日	平成18年10月12日 (2006.10.12)		
(31) 優先権主張番号	0550914		
(32) 優先日	平成17年4月8日 (2005.4.8)		
(33) 優先権主張国	フランス (FR)		
(31) 優先権主張番号	0551594		
(32) 優先日	平成17年6月14日 (2005.6.14)		
(33) 優先権主張国	フランス (FR)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 制御された多孔性を有するコーティング及び／又はジョイントを含む、気体を透過するための触媒フィルタ

(57) 【要約】

本発明は、ハニカム型モノリシックエレメントの組立によって形成されたフィルタ構造体を触媒溶液に含浸することによって得られる、煤粒子及び気体汚染物質を含むガスを汚染除去するための触媒フィルタに関し、コーティング及び／又はジョイント及び／又はプラグとして使用されるセメントの多孔度は、そのエレメントを構成する材料の多孔度より低い。

【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

煤粒子及び一酸化炭素CO、窒素酸化物NO_x、硫黄酸化物SO_x、炭化水素HCなどの気相にある汚染物質を含んだガスを濾過するためのフィルタを得る方法であって、

a) 第1の構造体の製造工程であって、該第1の構造体が、

- ジョイントセメントによって連結されたハニカムとして複数のフィルタエレメントを含む中央部分であって、該エレメント又は複数の該エレメントが、多孔質壁で区切られた互いに平行の軸を有する一組の隣接するダクト又は流路を含み、該ガスが該多孔質壁を通過するように、これらのダクトがそれらの一端又は他端でプラグによって閉じられて、ガス吸入面に開放している吸気室及びガス排出面に開放している排気室を画定する、中央部分と；

- 該エレメント又は複数の該エレメントを保護するコーティングセメントからなる周縁部分とを含んでなり、

該ジョイントセメントの多孔度及び/又は該コーティングセメントの多孔度及び/又は該プラグを形成するセメントの多孔度が、該壁を構成する材料の多孔度よりも低い、第1の構造体の製造工程と；

b) 水などの溶媒に溶解した触媒前駆体又は触媒を含有する溶液、又は水などの溶媒中の触媒粒子の懸濁液に、該構造体を含浸する工程と

を含む、方法。

【請求項 2】

前記エレメント、前記コーティングセメント、前記ジョイントセメント及び前記プラグが、1種の同じセラミック材料に基づく、好ましくは炭化ケイ素SiCに基づくことを特徴とする、請求項1に記載の方法。

【請求項 3】

前記コーティング及び/又は前記ジョイント及び/又は前記プラグに使用する前記セメントの多孔度が、前記フィルタエレメントの多孔度より、少なくとも5%低く、好ましくは少なくとも10%低く、より好ましくは少なくとも15%低く、さらには20%低いことを特徴とする、請求項1又は2のいずれかに記載の方法。

【請求項 4】

前記ハニカムフィルタエレメントの多孔度が、30%～70%、好ましくは35%～60%であることを特徴とする、請求項1～3のいずれか1つに記載の方法。

【請求項 5】

前記コーティング及び/又は前記ジョイント及び/又は前記プラグに使用する前記セメントの多孔度が、20%～60%、好ましくは25%～45%であることを特徴とする、請求項1～4のいずれか1つに記載の方法。

【請求項 6】

前記含浸が、前記構造体を通して前記溶液をポンピングすることによって、真空もしくは負圧を与えることによって、又は前記構造体の少なくとも一端全体を、前記含浸溶液を含む液体の圧力下に置いて、あるいはこれらの様々な手法を組みあわせることによって、行われることを特徴とする、請求項1～5のいずれか1つに記載の方法。

【請求項 7】

前記コーティング及び/又はジョイントセメント及び/又はプラグの多孔度が、例えば、動的圧縮モデルを用いることによって、前記構造体の製造工程中に、前記セメントの組成及び/又は粒状物の粒度分布及び/又は前記粒状物と混合する水の量に加えて前記セメントの組成物に組み入れられる他の液体成分の量の関数として、調節されることを特徴とする、請求項1～6のいずれか1つに記載の方法。

【請求項 8】

前記コーティング及び/又はジョイントセメント及び/又はプラグの多孔度が、前記構造体の製造工程中に、大きさが前記セメントの空孔の大きさに調節された充填材又はフィラーを導入することによって調節されることを特徴とする、請求項1～7のいずれか1つ

10

20

30

40

50

に記載の方法。

【請求項 9】

前記フィルタエレメント又は複数のエレメントの多孔度と比較して、前記コーティング及び／又は前記ジョイント及び／又は前記プラグを構成する前記セメントの多孔度が低いこと、及び前記セメント上に存在する触媒量が最小限であることに特徴がある、請求項1～8のいずれか1つに記載の方法によって得られる触媒フィルタ。

【請求項 10】

前記コーティング及び／又は前記ジョイント及び／又は前記プラグを構成する前記セメントの多孔度が、前記フィルタエレメント又は複数のフィルタエレメントの多孔度より、少なくとも5%低く、好ましくは少なくとも10%低く、より好ましくは少なくとも15%低いことを特徴とする、請求項9に記載の触媒フィルタ。

10

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、内燃機関におけるディーゼル燃料の燃焼によって通常生成する煤を除去するための、エンジンの排気管に使用される粒子フィルタの分野に関する。より正確には、本発明は、フィルタに触媒特性を与える材料をさらに含む粒子フィルタに関し、またそのフィルタを製造する方法にも関する。

【背景技術】

【0002】

内燃機関の排ガスに含まれる煤用のフィルタ構造体は先行技術で周知である。これらの構造体はハニカム構造を有することが最も多く、その構造体の片面は濾過する排ガスの吸入を可能にし、他面は濾過した排ガスの排出を可能にする。構造体は、吸入面及び排出面の間に、多孔質のフィルタ壁で区切られ、互いに平行な軸を有する、一組の隣接するダクト又は流路を含んでおり、これらのダクトはそれらの端部のいずれか一方で閉じられて、吸入面に開放している吸気室及び排出面に開放している排気室を画定する。良好にシールするために、構造体の周辺部分がセメント（本明細書で以降コーティングセメントと呼ぶ）で取り囲まれている。排出流路と接合するために、排ガスがハニカム本体を通過する際に吸入流路の側壁を通過するような順序で、流路が交互に閉じられている。このようにして、粒子又は煤がフィルタ本体の多孔質壁上に堆積及び蓄積する。フィルタ本体は多孔質セラミック材料、例えばコードライト（corderite）又は炭化ケイ素で構成されるのが有利である。

20

【0003】

使用中に既知の方法で、粒子フィルタは一連の濾過フェーズ（煤の蓄積）及び再生フェーズ（煤の除去）を経る。濾過フェーズ中、エンジンから放出された煤粒子はフィルタ内部に保持されて堆積する。再生フェーズ中、濾過特性を回復するために、煤粒子はフィルタ内部で燃やされる。その結果、多孔質構造体は強い熱応力及び機械的応力を受け、これらの応力は、ユニットの濾過性能の重大な損失、又はさらには完全な不活性化を経時で引き起こす可能性があるマイクロクラックを生じさせる場合がある。この現象は特に大径モノリシックフィルタで観察される。

30

【0004】

これらの課題を解決してフィルタの耐用年数を増やすために、フィルタブロックにおいていくつかのハニカムモノリシックエレメントを組み合わせた、より複雑なフィルタ構造体が最近になって提案されている。セラミックの性質のセメント（本明細書で以降ジョイントセメントと呼ぶ）を用いた接着により、エレメントを一体に組み立てるのが一般的である。そのようなフィルタ構造体の例は、例えば、特許出願EP816065、EP1142619、EP1455923又はWO2004/090294に記載されている。

40

【0005】

この種類の構造体では、応力のより良好な緩和を確保するため、構造体の様々な部分（フィルタエレメント、コーティングセメント、ジョイントセメント）の熱膨張係数が大体

50

同じ位でなければならない。従って、これらの部分は1種の同じ材料、最も多くは炭化ケイ素S i C又はコーデライトに基づいて合成される。その上、この選択によって、フィルタの再生中の熱分布の均一化が可能になる。「1種の同じ材料に基づく」との表現は、本明細書の記載の意味において、その材料が少なくとも25質量%、好ましくは少なくとも45質量%、より好ましくは少なくとも70質量%の同じ材料から構成されていることを意味するものと理解される。

【0006】

上述の煤フィルタ又は多孔質フィルタ構造体は、ディーゼルエンジンの排ガス用の汚染規制装置において大規模に主に使用されている。

【0007】

煤を処理する問題に加えて、気相汚染排出物（すなわち、主に窒素酸化物（NO_x）もしくは硫黄酸化物（SO_x）、及び一酸化炭素（CO）、又はさらに不燃焼の炭化水素）をより害のない気体（例えば気体窒素（N₂）又は二酸化炭素（CO₂））に変換するには追加の触媒的処理が必要である。

【0008】

第1の技術によれば、全ての汚染物質を除去するために、内燃機関の排気管には触媒浄化部材と粒子フィルタが直列に含まれている。

【0009】

一般に開放ハニカム構造を有する触媒浄化部材は気相汚染物質を処理するのに適している一方で、粒子フィルタはエンジンによって放出された煤粒子を除去するのに適している。この解決方法を実施する複雑さとその費用のみならず、排気管にフィルタエレメントを連続させることは、エンジン性能に影響する可能性のある、その排気管中の無視できない圧力損失の原因となる。

【0010】

これらの問題を解決するために、触媒機能をモノリシック型粒子フィルタに移すことが試みられてきた。従来使用されている方法によれば、ハニカム構造体は、触媒又は触媒前駆体を含有する溶液に含浸される。

【0011】

そのような方法は、水（又は他の溶媒）に溶解した触媒前駆体又は触媒を含有する溶液、あるいは触媒粒子の水中懸濁液のいずれかに浸漬する工程を一般に含む。そのような方法の一例が米国特許第5866210号に記載されている。この方法によれば、フィルタの他端に負圧を与えることにより、その後構造体中に溶液を上昇させて、最終的にハニカム構造体の内壁を被覆することが可能になる。

【0012】

ハニカムフィルタを含浸する方法の他の実施態様によれば、ポンピングすることによって、真空を与えることによって、又はモノリスの少なくとも一端全体を、含浸溶液を含む液体の圧力下に置いて、含浸物を得てもよい。一般に、記載された方法は、連続工程中にこれらの様々な手法を組み合わせることに特徴があり、最終工程では加圧空気の導入又は吸引によってフィルタ中の過剰な溶液が除去される。これらの方法の実施が狙いとする主な目的の1つは、構造体の内部を構成して排ガスが通過する流路の、多孔質壁の少なくとも一部の上、さらにはその内部に、触媒の均一なコーティングを製造することである。

【0013】

そのような方法及びこれらの方法を実施するための装置は、例えば、U S 2 0 0 3 / 0 4 4 5 2 0、W O 2 0 0 4 / 0 9 1 7 8 6、U S 6 1 4 9 9 7 3、U S 6 6 2 7 2 5 7、U S 6 4 7 8 8 7 4、U S 4 6 0 9 5 6 3、U S 4 5 5 0 0 3 4、U S 6 5 9 9 5 7 0、U S 4 2 0 8 4 5 4又はU S 5 4 2 2 1 3 8の特許出願又は特許に記載されている。いずれの方法を使用したとしても、酸化物支持体上に白金族（Pt、Pd、Rh）からの貴金属を一般に含有する、堆積した触媒のコストは、含浸処理の全体のコストの無視できない部分を占める。従って、本発明によれば、触媒がフィルタの流路の壁上に均一に堆積されるだけではなく、濾過するガス又は煤と直接接觸しないハニカム構造体の部分に堆積する

10

20

30

40

50

触媒の量が最小限であることが重要である。その部分とは、主にモノリシック構造体用のコーティングセメントであり、加えて上述のようなフィルタブロックの場合のジョイントセメント、言い換えるといくつかのハニカムモノリシックエレメントを結合するジョイントセメントや、それより程度は少ないが流路を交互に閉じるプラグとして使用されるセメントである。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0014】

従って本発明の主題は、ハニカム構造を有する粒子フィルタを含浸するための処理中に、濾過するガス又は煤と直接接触しない構造体の部分に存在する触媒量を制限することである。

10

【課題を解決するための手段】

【0015】

より正確には、第1の態様によれば、本発明は、煤粒子及び一酸化炭素CO、窒素酸化物NO_x、硫黄酸化物SO_x、炭化水素HCなどの気相にある汚染物質を含んだガスを濾過するためのフィルタを得る方法に関し、その方法は、

a) 第1の構造体の製造工程であって、該第1の構造体が、

- ジョイントセメントによって連結されたハニカムとして複数のフィルタエレメントを含む中央部分であって、該エレメント又は複数の該エレメントが、多孔質壁で区切られた互いに平行の軸を有する一組の隣接するダクト又は流路を含み、該ガスが該多孔質壁を通過するように、これらのダクトがそれらの一端又は他端でプラグによって閉じられて、ガス吸入面に開放している吸気室及びガス排出面に開放している排気室を画定する、中央部分と；

20

- 該エレメント又は複数の該エレメントを保護するコーティングセメントからなる周縁部分とを含んでなり、

該ジョイントセメントの多孔度及び/又は該コーティングセメントの多孔度及び/又は該プラグを形成するセメントの多孔度が、該壁を構成する材料の多孔度よりも低い、第1の構造体の製造工程と；

b) 水などの溶媒に溶解した触媒前駆体又は触媒を含有する溶液、又は水などの溶媒中の触媒粒子の懸濁液に、該構造体を含浸する工程と

30

を含む。

【0016】

前記エレメント、コーティングセメント、ジョイントセメント及びプラグは、1種の同じセラミック材料に基づくこと、好ましくは炭化ケイ素SiCに基づくことが好ましい。

【0017】

コーティング及び/又はジョイント及び/又はプラグに使用するセメントの多孔度は、フィルタエレメントの多孔度より、少なくとも5%低いことが有利であり、少なくとも10%低いことが好ましく、少なくとも15%、さらには20%低いことがより好ましい。本記載の意味において、5、10、15又は20%という差は、問題としているフィルタエレメント又は複数のエレメントの多孔度の百分率に対する、フィルタエレメント又は複数のフィルタエレメントとコーティングセメント又はジョイントセメントとの多孔度の百分率差に基づき計算される。

40

【0018】

一般に、ハニカムフィルタエレメントの多孔度は30%~70%であり、35%~60%であることが好ましい。

【0019】

通常、コーティング及び/又はジョイント及び/又はプラグに使用するセメントの多孔度は、20%~60%であり、25%~45%であることが好ましい。

【0020】

本発明によれば、構造体の含浸は、本技術分野で知られる任意の方法によって行っても

50

よく、特に、構造体を通して溶液をポンピングすることによって、真空又は負圧を与えることによって、又は構造体の少なくとも一端全体を、含浸溶液を含む液体の圧力下に置いて、行うことができる。良好な含浸は、連続工程中にこれらの様々な手法を組み合わせることによって一般に得られ、一般に最終工程では吸引又は加圧空気の導入によってフィルタ中の過剰な溶液が除去される。

【0021】

本発明によれば、先行技術で知られている方法及び／又は装置により、含浸工程を行ってもよく、特に上述の特許又は特許出願に記載された方法又は装置の1つによって行うことができる。

【0022】

コーティング及び／又はジョイント及び／又はプラグに使用されるセメントの多孔度は、いくつかの製造方法に従って調節できる。

【0023】

第1の方法によれば、所望の多孔度を得るために、セメントの調製工程中、かつフィルタ部分へのセメントの適用前に、セメントの組成及び／又はセメント組成物に組み入れられる粒状物の粒度分布及び／又は粒状物と混合する水の量が調節され、他の液体成分の量も調節される。例として、本発明によれば、使用する様々な粉末の粒度等級の相対比率を特に利用することによって、セメントの最大圧縮を得ることを可能にする、動的圧縮モデルを使用することが可能である。

【0024】

他の可能な方法によれば、コーティング及び／又はジョイントセメント及び／又はプラグの多孔度は、調製工程中に、大きさがセメントの空孔の大きさに調節されたフィラーを導入することによって調節される。セメントの空孔を少なくとも部分的に占有することによって、フィラーは触媒前駆体又は触媒が気孔の中に浸入することを防ぐ。

【0025】

典型的には、フィラーは例えば有機分子又は無機分子であって、その大きさは前駆体又は触媒の大きさとほぼ同一であるかそれより小さい。

【0026】

方法の有効性をさらに改善するために、当然ながら、本発明の範囲から外れることなく、上述した2つの方法を組みあわせて使用することも可能である。

【0027】

第2の態様によれば、本発明は、上述したような製造方法によって得ることが可能であり、フィルタエレメント又は複数のエレメントの多孔度と比較して、コーティング及び／又はジョイント及び／又はプラグを構成するセメントの多孔度が低いこと、及びセメント上に存在する触媒量が最小限であることに特徴がある、触媒フィルタに関する。「量が最小限」という表現は、本記載の意味において、フィルタエレメントの多孔度と同じ多孔度を有するセメントに含有される触媒の理論量に対して、より少量の触媒を意味するものと理解される。コーティング及び／又はジョイント及び／又はプラグを構成するセメントの多孔度が、フィルタエレメント又は複数のエレメントの多孔度より、少なくとも5%低い、好ましくは少なくとも10%低い、より好ましくは少なくとも15%低いことが、触媒フィルタの特徴であることが好ましい。

【0028】

本発明及びその利点は、以下の例を読むとより良好に理解される。当然ながら、記載されたいかなる態様においても、これらの例が発明を限定するものと見なしてはならない。

【実施例】

【0029】

例1：ジョイントセメントによって連結された、一組の炭化ケイ素フィルタエレメントを含むフィルタ構造体を、特許E P 1 1 4 2 6 1 9に記載された手法に従って組み立てた。

【0030】

10

20

30

40

50

正方形の横断面を有する 16 のモノリシックフィルタエレメントを、例えば E P 114 2619 に記載された周知の手法に従って、最初に押し出し、乾燥してから硬化した。特許出願 E P 114 2619 に記載されているモデルでは、エレメントの流路は、モノリシックエレメントの押出工程に使用したものと同じペーストから作ったプラグによって交互に閉じられている。

【0031】

次に、ジョイント及びコーティング用のセメントを、以下を混合することによって調製した。

- 粒度 10 μm 未満の SiC 粉末 15 質量 %
- 粒度 50 μm 未満の SiC 粉末 20 質量 %
- 粒度 200 μm 未満の SiC 粉末 50 質量 %
- Almatis の販売するか焼アルミナ粉末 4 質量 %
- Almatis の販売する反応性アルミナ粉末 10 質量 %
- セルロース型の一時的な可塑化バインダー 0.9 質量 %
- NaTPP (トリポリリン酸ナトリウム) 型の解膠剤 0.1 質量 %

10

【0032】

この混合物の質量の 10 % に相当する量の水を添加して、十分な粘度のセメントを得た。

【0033】

このセメントを用いてモノリスを組み立てて、次にこうして得られた構造体の外表面を機械加工した後、外表面をコーティングするために同じセメントでその外表面を覆った。フィルタ及びエレメントの十分な結合を確実にするのに十分な温度で、その組立体を再硬化した。

20

【0034】

このようにして組み立てた未完成のフィルタ構造体の特性を表 1 に示す。

【0035】

【表 1】

表 1 : 未完成の構造体の特性 (含浸前)

30

流路形状	正方形
流路密度	180 流路 / 平方インチ (1インチ = 2.54cm、 すなわち約 70 流路 / cm^2)
壁厚	350 μm
組み立てたエレメント数	16
構造体形状	円筒状
長さ	6 インチ (15.2cm)
体積	2.48L
フィルタエレメントの多孔度	47%
セメントの多孔度	43%
フィルタエレメント / セメントの 相対多孔度差	8.5%
エレメント及びプラグの質量 %	80% (エレメント 76%、プラグ 4%)
ジョイントセメントの質量 %	13%
コーティングセメントの質量 %	7%

40

【0036】

50

次に、特許出願公開 E P 1 3 3 8 3 2 2 A 1 に記載されている原理に従って、この未完成の構造体を、 H_2PtCl_6 の状態の白金前駆体、並びに（硝酸セリウムの状態の）酸化セリウム CeO_2 前駆体及び（硝酸ジルコニウムの状態の）酸化ジルコニウム ZrO_2 前駆体を適当量含有する水溶液の浴に含浸した。フィルタを、特許 U S 5 8 6 6 2 1 0 に記載されたものと同様の実施方法に従い、溶液で含浸した。次に、フィルタを約 150 度で乾燥し、その後温度約 600 度で加熱した。

【0037】

このようにして得られた触媒フィルタの主な特性を表 2 に示す。

【0038】

【表 2】

10

表 2 : 触媒フィルタの特性

フィルタエレメント	触媒の位置	壁の内側、SiC粒状物の周り
	組成	$Pt-CeO_2-ZrO_2$
	BET比表面積	5.1 m^2/g
	エレメントの多孔度	43%
セメント	ジョイントセメント上の触媒の存在	あり
	コーティングセメント上の触媒の存在	あり
	ジョイントセメント中の触媒の存在	あり
	コーティングセメント中の触媒の存在	あり
	多孔度	40%

20

【0039】

30

化学分析から、合計 Pt 濃度が 5.2 g / ft³ ($1 g / ft^3 = 0.035 kg / m^3$) 、言い換えると、濃度が 1.82 kg / m³、すなわち 4.5 グラムがフィルタの様々な部分にわたって不均一に広がっていることが示された。

【0040】

より正確には、分析から以下の分布が明らかになった。

- モノリシックエレメント中の白金 0.25 質量%、すなわち 4.0 グラム（ハニカムエレメント壁の空孔中の 3.8 グラム及びプラグ中の 0.2 グラムを含む）
- コーティングセメント中の白金 0.13 質量%、すなわち 0.25 グラム（セメントの外表面から始まる数十 μm の厚さにわたる）
- ジョイントセメント中の白金 0.08 質量%、すなわち 0.25 グラム（白金はセメントの全体の厚さに均一に分布している）

40

【0041】

例 2 : コーティング及びジョイントに使用するセメントを、以下の量の様々な構成成分から調製した他は、触媒フィルタを例 1 の工程と同様の工程を繰り返して製造した。

- 粒度 10 μm 未満の SiC 粉末 21 質量%
- 粒度 50 μm 未満の SiC 粉末 9 質量%
- 粒度 200 μm 未満の SiC 粉末 55 質量%
- Almati's の販売するか焼アルミナ粉末 4 質量%
- Almati's の販売する反応性アルミナ粉末 10 質量%
- セルロース型の一時的な可塑化バインダー 0.9 質量%

50

- N a T P P 型の解膠剤 0 . 1 質量 %

【 0 0 4 2 】

十分な粘度のセメントを得るために、この混合物の質量の 1 0 % に相当する量の水を添加した。

【 0 0 4 3 】

この例では、セメントの多孔度を減少するために、異なる粒度分布の S i C 粒状物を使用して実施した。

【 0 0 4 4 】

未完成の構造体及びこの例に従って含浸後に得られたフィルタの特性は、例 1 について得られた特性とほぼ同じであり、表 1 及び 2 に示す。主な違いは、

10

- 未完成の構造体中のジョイントセメント及びコーティングセメントの多孔度は 3 6 . 5 % であった。これは、フィルタエレメントの多孔度とセメントの多孔度との多孔度差 (2 2 . 3 %) に対応した。

- (含浸後の) フィルタ中のジョイントセメント及びコーティングセメントの多孔度は、この場合 3 5 % であった。これは、フィルタエレメントの多孔度とセメントの多孔度との多孔度差 (1 8 . 6 %) に対応した。

【 0 0 4 5 】

化学分析から、合計 P t 濃度が 4 8 g / f t ³ (1 . 6 8 k g / m ³) 、すなわち 4 . 2 グラムがフィルタの様々な部分にわたって広がっていることが示された。

20

【 0 0 4 6 】

より正確には、分析から以下の分布が明らかになった。

- ハニカムエレメント中の白金 0 . 2 5 質量 % 、すなわち 4 . 0 グラム (ハニカムエレメント壁の空孔中の 3 . 8 グラム及びプラグ中の 0 . 2 グラムを含む)

- コーティングセメント中の白金 0 . 0 8 質量 % 、すなわち 0 . 1 グラム

- ジョイントセメント中の白金 0 . 0 5 質量 % 、すなわち 0 . 1 グラム

【 0 0 4 7 】

フィルタの様々な構成成分のそれぞれの多孔度を選択することによって、P t についてかなりの節約が実現可能であることも明らかである。

【 0 0 4 8 】

例 1 及び 2 から得られた結果を比較して示されるのは、本発明の方法を適用すると、無視できない量の触媒、特に貴金属 (フィルタあたり 0 . 3 グラム) の節約が可能になるため、構造体に触媒を堆積する処理の全体コストがかなり節約されることである。

30

【 0 0 4 9 】

例 2 b : プラグを作るために使用した材料が、エレメントの組み立てに使用した押出ペーストと同一ではないが、硬化後に低い多孔度が得られる特定の混合物であったことを除き、触媒フィルタを例 2 の工程と同様の工程を繰り返して製造した。使用した混合物の様々な構成成分の量は以下の通りであった。

- 粒度 1 0 μ m 未満の S i C 粉末 2 1 質量 %
- 粒度 5 0 μ m 未満の S i C 粉末 1 9 質量 %
- 粒度 2 0 0 μ m 未満の S i C 粉末 5 9 質量 %
- セルロース型の一時的な可塑化バインダー 0 . 9 質量 %
- ケイ酸 N a 型の解膠剤 0 . 1 質量 %

40

【 0 0 5 0 】

上述したように、ハニカムエレメントの流路の端部に堆積される混合物を得るために、この混合物の質量の 1 5 % に相当する量の水を添加した。

【 0 0 5 1 】

未完成の構造体及びこの例に従って含浸後に得られたフィルタの特性は、例 1 について得られた特性とほぼ同じであり、表 1 及び表 2 に示す。

【 0 0 5 2 】

化学分析から、合計 P t 濃度が 4 7 g / f t ³ 、すなわち 4 . 1 グラムがフィルタの様

50

々な部分にわたって広がっていることが示された。

【0053】

より正確には、分析から以下の分布が明らかになった。

- ハニカムエレメント中の白金 0.24 質量%、すなわち 3.9 グラム（ハニカムエレメント壁の空孔中の 3.8 グラム及びプラグ中の 0.1 グラムを含む）
- コーティングセメント中の白金 0.08 質量%、すなわち 0.1 グラム
- ジョイントセメント中の白金 0.05 質量%、すなわち 0.1 グラム

【0054】

フィルタの様々な構成成分のそれぞれの多孔度を選択することによって、Pt についてかなりの節約が実現可能であることも明らかである。

10

【0055】

例 1、2 及び 2b から得られた結果を比較して示されるのは、本発明の方法によれば、さらにより大量の触媒、特に貴金属（フィルタあたり 0.4 グラム）の節約が可能になるため、構造体に触媒を堆積する処理の全体コストがかなり節約されることである。

【0056】

十分に理解されることは、本発明はこの簡単な実施態様と等しい訳ではなく、フィラーの導入又は添加剤の焼結などの、セメント及び/又はフィルタエレメント及び/又はプラグの多孔度に作用する任意の知られている手段が、本発明の範囲に包含されると見なさなければならないことである。本発明の範囲から逸脱することなく、その多孔度をさらにより良好に制御するための手段を組みあわせて使用することも可能である。

20

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No PCT/FR2006/050314

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
INV. B01J35/04 B01J37/02 F01N3/022 C04B37/00 B01D53/94
B01D46/24

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)
F01N B01J C04B 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 practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ, COMPENDEX

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 1 495 791 A (IBIDEN CO., LTD) 12 January 2005 (2005-01-12) paragraphs [0061] - [0063], [0080] - [0082], [0089], [0142], [0145], [0148] - [0151], [0161] - [0165]	1-10
X	EP 1 493 479 A (IBIDEN CO., LTD) 5 January 2005 (2005-01-05) paragraphs [0101] - [0106], [0110] - [0113], [0118], [0148] - [0151], [0153], [0156], [0162], [0164]	1-10
X	EP 1 508 355 A (IBIDEN CO., LTD) 23 February 2005 (2005-02-23) paragraphs [0016], [0020], [0035] - [0037], [0056] - [0058], [0087], [0070] - [0091], [0102], [0115] - [0123]	1-10 -/-

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 document 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	Date of mailing of the International search report
---	--

25 September 2006

04/10/2006

Name and mailing address of the ISA/

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Gosselin, Daniel

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No PCT/FR2006/050314

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	FR 2 857 695 A (SAINT-GOBAIN CENTRE DE RECHERCHES ET D'ETUDES EUROPEEN) 21 January 2005 (2005-01-21) page 1, line 28 – page 2, line 2 page 5, line 19 – line 24 -----	1
P,A	FR 2 864 575 A (SAINT-GOBAIN CENTRE DE RECHERCHES ET D'ETUDES EUROPEEN) 1 July 2005 (2005-07-01) page 2, line 11 – line 16 page 9, lines 16-19 -----	1

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No
PCT/FR2006/050314

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)		Publication date
EP 1495791	A 12-01-2005	CN	1671459 A	21-09-2005
		CN	1671460 A	21-09-2005
		EP	1502640 A1	02-02-2005
		WO	2004024293 A1	25-03-2004
		WO	2004024294 A1	25-03-2004
		US	2005016141 A1	27-01-2005
		US	2005011174 A1	20-01-2005
EP 1493479	A 05-01-2005	CN	1671458 A	21-09-2005
		WO	2004024295 A1	25-03-2004
		US	2005016140 A1	27-01-2005
EP 1508355	A 23-02-2005	EP	1516659 A1	23-03-2005
		EP	1508356 A1	23-02-2005
		EP	1508358 A1	23-02-2005
		EP	1508357 A1	23-02-2005
		EP	1666121 A2	07-06-2006
		EP	1688171 A1	09-08-2006
FR 2857695	A 21-01-2005	AU	2004257854 A1	27-01-2005
		BR	PI0412096 A	05-09-2006
		CA	2532339 A1	27-01-2005
		CN	1823211 A	23-08-2006
		EP	1649149 A1	26-04-2006
		WO	2005008037 A1	27-01-2005
FR 2864575	A 01-07-2005	US	2006191245 A1	31-08-2006
		WO	2005064132 A1	14-07-2005

RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Demande Internationale n°
PCT/FR2006/050314

A. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMANDE				
INV.	B01J35/04	B01J37/02	F01N3/022	C04B37/00
B01D46/24 B01D53/94				
Selon la classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois selon la classification nationale et la CIB				
B. DOMAINES SUR LESQUELS LA RECHERCHE A PORTE				
Documentation minimale consultée (système de classification suivi des symboles de classement)				
F01N B01J C04B B01D				
Documentation consultée autre que la documentation minimale dans la mesure où ces documents relèvent des domaines sur lesquels a porté la recherche				
Base de données électronique consultée au cours de la recherche internationale (nom de la base de données, et si cela est réalisable, termes de recherche utilisés)				
EPO-Internal, WPI Data, PAJ, COMPENDEX				
C. DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS				
Catégorie*	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents			no. des revendications visées
X	EP 1 495 791 A (IBIDEN CO., LTD) 12 janvier 2005 (2005-01-12) alinéas [0061] - [0063], [0080] - [0082], [0089], [0142], [0145], [0148] - [0151], [0161] - [0165]			1-10
X	EP 1 493 479 A (IBIDEN CO., LTD) 5 janvier 2005 (2005-01-05) alinéas [0101] - [0106], [0110] - [0113], [0118], [0148] - [0151], [0153], [0156], [0162], [0164]			1-10
X	EP 1 508 355 A (IBIDEN CO., LTD) 23 février 2005 (2005-02-23) alinéas [0016], [0020], [0035] - [0037], [0056] - [0058], [0087], [0070] - [0091], [0102], [0115] - [0123]			1-10
				-/-
<input checked="" type="checkbox"/> Voir la suite du cadre C pour la fin de la liste des documents		<input checked="" type="checkbox"/> Les documents de familles de brevets sont indiqués en annexe		
<p>* Catégories spéciales de documents cités:</p> <p>"A" document définissant l'état général de la technique, non considéré comme particulièrement pertinent</p> <p>"E" document antérieur, mais publié à la date de dépôt international ou après cette date</p> <p>"L" document pouvant éter un doute sur une revendication de priorité ou cité pour déterminer la date de publication d'une autre citation ou pour une raison spéciale (telle qu'indiquée)</p> <p>"O" document se référant à une divulgation orale, à un usage, à une exposition ou tous autres moyens</p> <p>"P" document publié avant la date de dépôt international, mais postérieurement à la date de priorité revendiquée</p> <p>"T" document ultérieur publié après la date de dépôt international ou la date de priorité et n'appartenant pas à l'état de la technique pertinent, mais cité pour comprendre le principe ou la théorie constituant la base de l'invention</p> <p>"X" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme nouvelle ou comme impliquant une activité inventive par rapport au document considéré isolément</p> <p>"Y" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme impliquant une activité inventive lorsque le document est associé à un ou plusieurs autres documents de même nature, cette combinaison étant évidente pour une personne du métier</p> <p>"&" document qui fait partie de la même famille de brevets</p>				
Date à laquelle la recherche internationale a été effectivement achevée		Date d'expédition du présent rapport de recherche internationale		
25 septembre 2006		04/10/2006		
Nom et adresse postale de l'administration chargée de la recherche internationale		Fonctionnaire autorisé		
Office Européen des Brevets, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Gosselin, Daniel		

RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Demande internationale n° PCT/FR2006/050314
--

C(suite). DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS		
Catégorie*	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
A	FR 2 857 695 A (SAINT-GOBAIN CENTRE DE RECHERCHES ET D'ETUDES EUROPEEN) 21 janvier 2005 (2005-01-21) page 1, ligne 28 – page 2, ligne 2 page 5, ligne 19 – ligne 24 -----	1
P,A	FR 2 864 575 A (SAINT-GOBAIN CENTRE DE RECHERCHES ET D'ETUDES EUROPEEN) 1 juillet 2005 (2005-07-01) page 2, ligne 11 – ligne 16 page 9, ligne 16-19 -----	1

RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Renseignements relatifs aux membres de familles de brevets

Demande internationale n°
PCT/FR2006/050314

Document brevet cité au rapport de recherche	Date de publication		Membre(s) de la famille de brevet(s)		Date de publication
EP 1495791	A	12-01-2005	CN CN EP WO WO US US	1671459 A 1671460 A 1502640 A1 2004024293 A1 2004024294 A1 2005016141 A1 2005011174 A1	21-09-2005 21-09-2005 02-02-2005 25-03-2004 25-03-2004 27-01-2005 20-01-2005
EP 1493479	A	05-01-2005	CN WO US	1671458 A 2004024295 A1 2005016140 A1	21-09-2005 25-03-2004 27-01-2005
EP 1508355	A	23-02-2005	EP EP EP EP EP EP	1516659 A1 1508356 A1 1508358 A1 1508357 A1 1666121 A2 1688171 A1	23-03-2005 23-02-2005 23-02-2005 23-02-2005 07-06-2006 09-08-2006
FR 2857695	A	21-01-2005	AU BR CA CN EP WO US	2004257854 A1 PI0412096 A 2532339 A1 1823211 A 1649149 A1 2005008037 A1 2006191245 A1	27-01-2005 05-09-2006 27-01-2005 23-08-2006 26-04-2006 27-01-2005 31-08-2006
FR 2864575	A	01-07-2005	WO	2005064132 A1	14-07-2005

フロントページの続き

(51)Int.Cl.	F I	テーマコード(参考)
B 0 1 D 39/14 (2006.01)	B 0 1 D 53/36 1 0 4 A	4 G 1 6 9
F 0 1 N 3/02 (2006.01)	B 0 1 D 53/36 1 0 4 B	
F 0 1 N 3/28 (2006.01)	B 0 1 D 39/20 D	
B 0 1 J 23/63 (2006.01)	B 0 1 D 46/00 3 0 2	
	B 0 1 D 39/14 B	
	F 0 1 N 3/02 3 0 1 C	
	F 0 1 N 3/02 3 2 1 A	
	F 0 1 N 3/28 3 0 1 P	
	B 0 1 J 23/56 3 0 1 A	

(81)指定国 AP(BW,GH,GM,KE,LS,MW,MZ,NA,SD,SL,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,MD,RU,TJ,TM),EP(AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV,MC,NL,PL,PT,RO,SE,SI,SK,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KM,KN,KP,KR,KZ,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LV,LY,MA,MD,MG,MK,MN,MW,MX,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PG,PH,PL,PT,RO,RU,SC,SD,SE,SG,SK,SL,SM,SY,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,YU,ZA,ZM,ZW

(72)発明者 アンディ , パトリシア

フランス国 , エフ - 8 4 3 0 0 レ タヤデ , ラギュイユ ニュメロ 5 , シエ マダム ピアン
コッティ

(72)発明者 バードン , セバスチャン

フランス国 , エフ - 7 5 0 2 0 パリ , リュ ソルビア 9

(72)発明者 ブリオ , アンソニー

フランス国 , エフ - 8 4 0 0 0 アビニヨン , アブニュ ドゥ ラ ピヨレット 2 7

F ターム(参考) 3G090 AA02 AA03 BA01

3G091 AA18 AB13 BA10 BA13 BA39 GA06 GA16 GB04W GB06W GB17X
4D019 AA01 BA05 BB06 BC07 BD01 CA01 CB04 CB06
4D048 AA02 AA06 AA13 AA14 AA18 AB01 AB02 AB05 BA06X BA30X
BA45X BB02 BB14
4D058 JA38 JB06 SA08 TA06
4G169 AA01 AA03 AA08 AA12 BA13A BA13B BA16A BA16B BB15A BB15B
BC75B BD05A BD05B CA03 CA07 CA08 CA12 CA13 CA14 CA15
CA18 EA18 EA20 EB12X EB12Y EB20 FA01 FA03 FB14 FB67
FB71 FB78 FC05