

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7603203号
(P7603203)

(45)発行日 令和6年12月20日(2024.12.20)

(24)登録日 令和6年12月12日(2024.12.12)

(51)国際特許分類		F I	
F 0 1 N	3/28 (2006.01)	F 0 1 N	3/28 3 0 1 J
B 0 1 J	23/30 (2006.01)	B 0 1 J	23/30 A Z A B
B 0 1 J	23/44 (2006.01)	B 0 1 J	23/44 A
B 0 1 J	29/76 (2006.01)	B 0 1 J	29/76 A
B 0 1 J	23/42 (2006.01)	B 0 1 J	23/42 A
		請求項の数 26 (全47頁) 最終頁に続く	
(21)出願番号	特願2021-564348(P2021-564348)	(73)特許権者	524318674
(86)(22)出願日	令和2年4月27日(2020.4.27)		ビーエーエスエフ モバイル エミッショ ンズ カタリスツ エルエルシー
(65)公表番号	特表2022-530639(P2022-530639 A)		B A S F M o b i l e E m i s s i o n s C a t a l y s t s L L C
(43)公表日	令和4年6月30日(2022.6.30)		アメリカ合衆国 ニュージャージー州 0 8 8 3 0 イズリン ウッド アヴェニュー
(86)国際出願番号	PCT/EP2020/061596		サウス 3 3
(87)国際公開番号	WO2020/221682		3 3 W o o d A v e n u e S o u t h , I s e l i n , N e w J e r s
(87)国際公開日	令和2年11月5日(2020.11.5)		e y 0 8 8 3 0 , U S A
審査請求日	令和5年4月27日(2023.4.27)	(74)代理人	100100354
(31)優先権主張番号	19171571.3		弁理士 江藤 聡明
(32)優先日	平成31年4月29日(2019.4.29)	(74)代理人	100167106
(33)優先権主張国・地域又は機関	欧州特許庁(EP)		弁理士 倉脇 明子
前置審査			最終頁に続く

(54)【発明の名称】 超低NOxとコールドスタートのための排気ガス処理システム

(57)【特許請求の範囲】
【請求項1】

内燃機関から排出される排気ガス流を処理する排気ガス処理システムであって、該排気ガス処理システムが、該排気ガス流を該排気ガス処理システムに導入するための上流端を有し、該排気ガス処理システムが、

(i) 入口端及び出口端を有し、かつ、コーティング及び第1の基材を具備する第1の触媒であって、ここで、第1の基材が、入口端、出口端、及び該第1の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、内壁によって画定される複数の通路を備え、ここで、該通路と内壁との間の界面が、内壁の表面によって画定されており、ここで、該コーティングが第1の基材の内壁の表面上に配置され、該コーティングが、チタンを含有する第1の酸化物担体に担持されたバナジウム酸化物を含むものである、第1の触媒、

(ii) (i)に記載の第1の触媒の出口端を出る排気ガス流に、炭化水素を含む流体を注入するための炭化水素噴射装置、

(iii) 入口端及び出口端を有し、かつ、コーティング及び第2の基材を具備する第2の触媒であって、ここで、第2の基材が、入口端、出口端、及び該第2の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、内壁によって画定される複数の通路を備え、ここで、該通路と内壁との間の界面が、内壁の表面によって画定されており、ここで、該コーティングが第2の基材の内壁の表面上に配置され、該コーティングが、ジルコニウム、ケイ素、及びアルミニウムのうちの1種以上を含有する第2の酸化物担体に担持されたパラジウムを含むものである、第2の触媒

を備えており、

ここで、(i)に記載の第1の触媒が、排気ガス処理システムの上流端よりも下流側に設けた排気ガス処理システムの第1の触媒であり、第1の触媒の入口端が、第1の触媒の出口端の上流側に配置され、

ここで、排気ガス処理システムにおいて、(iii)に記載の第2の触媒が、(i)に記載の第1の触媒の下流で、かつ、(ii)に記載の炭化水素噴射装置の下流に位置し、第2の触媒の入口端が、第2の触媒の出口端の上流に配置されており、且つチタンを含有する第1の酸化物担体が、タングステン及びケイ素をさらに含む、ことを特徴とする排気ガス処理システム。

【請求項2】

第1の触媒のコーティングが、第1の酸化物担体の質量に基づいて、1.0～10質量%の範囲の量で該バナジウム酸化物を含む、請求項1に記載のシステム。

【請求項3】

第1の酸化物担体の、80～98質量%がチタニアからなる、請求項1に記載のシステム。

【請求項4】

第1の酸化物担体の、2～10質量%がタングステンとケイ素、又はアンチモンとケイ素からなる（それぞれ WO_3 と SiO_2 、又は Sb_2O_3 と SiO_2 として計算）請求項3に記載のシステム。

【請求項5】

(iii)に記載の第2の触媒のコーティングに含まれる第2の酸化物担体が、ジルコニウム及びアルミニウムのうちの1種以上を含む、請求項1～4のいずれか一項に記載のシステム。

【請求項6】

第2の酸化物担体の、90～100質量%がアルミニウム及び酸素からなる、請求項5に記載のシステム。

【請求項7】

第2の酸化物担体の、60～95質量%がアルミナからなり、及び第2の酸化物担体の、5～40質量%がジルコニアからなる、請求項5に記載のシステム。

【請求項8】

(iii)に記載の第2の触媒のコーティングが、5～90 g / ft³の範囲の量でパラジウムを含む、請求項1～7のいずれか一項に記載のシステム。

【請求項9】

パラジウムが、(iii)に記載の第2の触媒のコーティング中に存在する唯一の白金族金属である、請求項8に記載のシステム。

【請求項10】

第2の触媒のコーティングの98～100質量%が、ジルコニウム、ケイ素、アルミニウム及びチタンのうちの1種以上を含む第2の酸化物担体に担持されたパラジウムからなる、請求項1～9のいずれか一項に記載のシステム。

【請求項11】

(iii)に記載の第2の触媒のコーティングが、ゼオライト材料をさらに含み、該ゼオライト材料が、Cu及びFeのうちの1種以上を含有する、請求項1～9のいずれか一項に記載のシステム。

【請求項12】

第2の触媒のコーティングに含まれるゼオライト材料が、骨格型AEI、GME、CHA、MFI、BEA、FAU、MOR又はそれらの2種以上の混合物を有する、請求項11に記載のシステム。

【請求項13】

(iii)に記載の第2の触媒のコーティングが、酸化物バインダーをさらに含む、請求項11に記載のシステム。

【請求項14】

10

20

30

40

50

前記酸化物バインダーが、アルミナ、シリカ、ジルコニア、及びそれらの２種以上の混合物からなる群から選択される、請求項１３に記載のシステム。

【請求項１５】

第２の触媒のコーティングが、ゼオライト材料の総質量を基準にして、０．５～１０質量％の範囲の量で前記酸化物バインダーを含む、請求項１３に記載のシステム。

【請求項１６】

さらに、

(i v) 入口端及び出口端を有し、かつ、コーティング及び第３の基材を具備する第３の触媒であって、ここで、第３の基材が、入口端、出口端、及び該第３の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、内壁によって画定される複数の通路を備え、ここで、該通路と内壁との間の界面が、内壁の表面によって画定されており、ここで、該コーティングが第３の基材の内壁の表面上に配置され、該コーティングが、バナジウム酸化物の１種以上と、Cu及びFeのうちの１種以上を含有するゼオライト材料を含むものである、第３の触媒を備え、

ここで、排気ガス処理システムにおいて、(i v)に記載の第３の触媒が、(i i i)に記載の第２の触媒の下流に位置し、第３の触媒の入口端は、第３の触媒の出口端の上流に配置されている、請求項１～１５のいずれか一項に記載のシステム。

【請求項１７】

(i i i)に記載の第２の触媒の出口端が、(i v)に記載の第３の触媒の入口端と流体連通しており、排気ガス処理システムにおいて、(i i i)に記載の第２の触媒の出口端と(i v)に記載の第３の触媒の入口端との間には、第２の触媒を出る排気ガス流を処理する触媒が配置されていない、請求項１６に記載のシステム。

【請求項１８】

(i v)に記載の第３の触媒のコーティングが、Cu及びFeのうちの１種以上を含有するゼオライト材料を含む、請求項１６又は１７に記載のシステム。

【請求項１９】

第３の触媒のコーティングに含まれるゼオライト材料が、骨格型A E I、G M E、C H A、M F I、B E A、F A U、M O R又はそれらの２種以上の混合物を有する、請求項１８に記載のシステム。

【請求項２０】

(i i i)に記載の第２の触媒のコーティングが、ジルコニウム、ケイ素、アルミニウム及びチタンのうちの１種以上を含有する第２の酸化物担体に担持されたパラジウムを含み、ここで、(i v)に記載の第３の触媒のコーティングが、Cu及びFeのうちの１種以上を含有するゼオライト材料を含む、請求項８又は９に記載のシステム。

【請求項２１】

前記システムが、さらに、第４の触媒を備え、第４の触媒が、アンモニア酸化触媒、触媒付すすフィルタ、及び選択的接触還元触媒のうちの１種以上であり、

ここで、第４の触媒が、入口端及び出口端を有し、かつ、コーティング及び第４の基材を具備し、第４の基材が、入口端、出口端、及び該第４の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、内壁によって画定される複数の通路を備え、該通路と内壁との間の界面が、内壁の表面によって画定されており、ここで、該コーティングが第４の基材の内壁の表面上に配置され、該コーティングがアンモニア酸化成分を含み、

ここで、排気ガス処理システムにおいて、該第４の触媒が、(i v)に記載の第３の触媒の下流に位置し、第４の触媒の入口端が第４の触媒の出口端よりも上流に配置されている、請求項１６～２０のいずれか一項に記載のシステム。

【請求項２２】

第４の触媒が、アンモニア酸化触媒である、請求項２１に記載のシステム。

【請求項２３】

(i v)に記載の第３の触媒の出口端が、第４の触媒の入口端と流体連通しており、排

10

20

30

40

50

気ガス処理システムにおいて、第3の触媒の出口端と第4の触媒の入口端との間には、第3の触媒を出る排気ガスを処理する触媒が配置されていない、請求項21に記載のシステム。

【請求項24】

さらに、内燃機関を出る排気ガス流に流体を注入する噴射装置を備え、該噴射装置が、第1の触媒の上流で、排気ガス処理システムの上流端の下流に位置し、

ここで、第1の触媒の上流で、排気ガス処理システムの上流端の下流には、炭化水素噴射装置が配置されていない、請求項1～20のいずれか一項に記載のシステム。

【請求項25】

前記流体は、尿素水溶液である、請求項24に記載のシステム。

10

【請求項26】

内燃機関から排出される排気ガス流を処理する方法であって、

(1) 内燃機関からの排気ガス流を用意すること、ここで、該排気ガス流が、 NO_x 、アンモニア、一酸化窒素及び炭化水素のうちの1種以上を含むものであり、

(2) (1) で用意された排気ガス流を、請求項1～25のいずれか一項に記載の排気ガス処理システムに通すこと

を含むことを特徴とする方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

20

本発明は、第1のバナジウム含有触媒、炭化水素噴射装置、及び第2の触媒を備えた内燃機関から出る排気ガス流を処理するための排気ガス処理システム、第1のバナジウム含有触媒を製造する方法、及び該排気ガス処理システムを用いた内燃機関から出る排気ガス処理方法に関する。

【背景技術】

【0002】

例えば、クローズドカップルドSCR(ccSCR)を備えたシステムが、超低 NO_x 及び N_2O 排出量(CARBなど)を満たすように設計されていることが知られている。US2018/025881A1には、銅で活性化されたゼオライトを含むコーティング(被膜)を具備する第1の還元触媒装置と(この第1の還元触媒装置は排気処理システムにおける第1番の活性部品である)、バナジウムを具備する第2の還元触媒装置とを備える排気処理システムが開示されている。また、US2017/0152780A1には、第1の還元触媒装置と、微粒子フィルタであって、第1の還元触媒装置の下流に、すす(煤)粒子を捕捉し、窒素酸化物の1種又は複数種を酸化させる触媒酸化コーティングを少なくとも部分的に備えたものと、該フィルタの下流に、 NO_x を還元するための第2の還元触媒装置とを備える排気処理システムが開示されている。

30

【0003】

上記ccSCR(Cu-ゼオライトSCRをベースにしている場合)は、上流に酸化触媒がないにもかかわらず、エンジンから発生する SO_3 及びSCRで発生した内部の SO_3 が原因で、時間の経過とともにサルフェート化(sulfated)する可能性がある。そのため、時間の経過とともに、ccSCRは、超低排出ガス(エミッション)規制を満たすのに十分なDe NO_x を行うことができなくなる。WO2018/224651A2は、酸化物材料に担持したパラジウムとSCR成分を具備する第1の触媒(排気ガス処理システムの第1番の活性部品である)と、下流に、白金族金属と、バナジウム酸化物の1種以上と、銅と鉄のうちの1種以上を含有するゼオライト材料とを具備する第2の触媒を備えた排気ガス処理システムを開示している。しかし、環境的要求を満たすためには、サルフェーション(硫酸塩化:sulfating)を防止し、De NO_x を向上させた排気ガス処理システムを、コストを抑えながら実現する必要がある。

40

【先行技術文献】

【特許文献】

50

【0004】

【文献】US2018/025881A1

【文献】US2017/0152780A1

【文献】WO2018/224651A2

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

したがって、本発明の一目的は、サルフェーションを防止し、化学的なファウリング（付着・汚損）及びポイズニング（被毒）に対する一般的なロバスト性を向上させ、環境要件を満たすために改善されたDeNO_xを示し、特に過渡的な条件下で高速のDeNO_x応答性を有するとともに、コスト的にも効率的な排気ガス処理システムを提供することである。

10

【発明の効果】

【0006】

驚くべきことに、本発明による排気ガス処理システムは、サルフェーションを防止し、化学的なファウリング及びポイズニングに対する一般的なロバスト性を向上させるものであり、特に過渡的な条件下で高速のDeNO_x応答性を持つことによって環境要件を満たすため改善されたDeNO_xを示すものであり、その一方で、コスト的にも効率的であることが分かった。

【図面の簡単な説明】

20

【0007】

【図1】参考例4のV-SCR触媒の、2つの異なる温度、すなわち200℃と250℃におけるNO_x変換率を示す。NO_x変換率は、空間速度が50,000/hr、NOが500ppm、NH₃が500ppmの条件で測定した。この図から明らかなように、V-SCR触媒の効率は温度が高いほど向上し、特に、DeNO_xは、200℃では約78%であるが、250℃では95%を超えるまで増加している。

【図2】参考例4の触媒（V-SCR触媒）と参考例6の触媒（Cu-SCR触媒）の応答性を示す。DeNO_xは210℃、空間速度50,000/hrで測定した。

【図3】エンジンと、これに続く本発明に係る排気ガス処理システムの概略図である。詳細には、排気ガス処理システムは、SCR触媒、すなわちV-SCR触媒と、V-SCR触媒の下流に位置するPd-DOCとを備えている。さらに、V-SCR触媒の出口端とPd-DOCの入口端の間にはHC噴射装置が設置され、V-SCR触媒の入口端の上流には第1の尿素噴射装置が設置されている。さらに、このシステムは、第1のアンモニア酸化触媒、SCR触媒、及びDOC/SCR混合触媒のうちの1種を備え、これはPd-DOCの下流に位置している。このシステムは、さらに、第2のアンモニア酸化（AMOX）触媒と、任意に、その出口端にDOCを備えている。このシステムは、さらに、第2のAMOX触媒の下流側でSCR触媒の上流側に触媒付すす（煤）フィルター（CSF）をさらに備えている。さらに、CSFとSCR触媒の間には、第2の尿素噴射装置が設置されている。最後に、このシステムは、さらに、SCR触媒又はAMOX触媒を備えている。

30

【図4】比較例1のシステムのV-SCR触媒の入口端及び出口端の温度と、比較例1のシステムのPd-DOCの出口端の温度とを、時間に対して示す。

40

【図5】実施例1のシステムにおけるPd-DOCの入口端と出口端の温度を、炭化水素の注入イベント（事象）中の時間に対して示す。また、上流側のV-SCRの温度も示す。

【図6】システム1及びシステム2の出口で、定常状態条件下215℃で測定したNO_x変換率を示す。

【図7】290℃（定常状態）における、システムA、B、Cを形成する各種触媒の出口端でのNO_x変換率を示す。

【図8】290℃（定常状態）における、システムA、B、Cを形成する各種触媒の出口端で生成する亜酸化窒素を示す。

50

【図 9】WHTC（過渡状態）における、システム A、B、C を形成する各種触媒の出口端での NO_x 変換率を示す。

【図 10】WHTC（過渡状態）における、システム A、B、C を形成する各種触媒の出口端で生成された亜酸化窒素を示す。

【発明を実施するための形態】

【0008】

したがって、本発明は、内燃機関から排出される排気ガス流を処理する排気ガス処理システムであって、該排気ガス処理システムが、該排気ガス流を該排気ガス処理システムに導入するための上流端を有し、該排気ガス処理システムが、

(i) 入口端及び出口端を有し、かつ、コーティング（被膜）及び第 1 の基材を具備する第 1 の触媒であって、ここで、第 1 の基材が、入口端、出口端、及び該第 1 の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、内壁によって画定される複数の通路を備え、ここで、該通路と内壁との間の界面が、内壁の表面によって画定されており、ここで、該コーティングが第 1 の基材の内壁の表面上に配置され、該コーティングが、チタンを含有する第 1 の酸化物担体に担持されたバナジウム酸化物を含むものである、第 1 の触媒、

(ii) (i) に記載の第 1 の触媒の出口端を出る排気ガス流に、炭化水素を含む流体を注入するための炭化水素噴射装置、

(iii) 入口端及び出口端を有し、かつ、コーティング及び第 2 の基材を具備する第 2 の触媒であって、ここで、第 2 の基材が、入口端、出口端、及び該第 2 の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、内壁によって画定される複数の通路を備え、ここで、該通路と内壁との間の界面が、内壁の表面によって画定されており、ここで、該コーティングが第 2 の基材の内壁の表面上に配置され、該コーティングが、ジルコニウム、ケイ素、アルミニウム、及びチタンのうちの 1 種以上を含有する第 2 の酸化物担体に担持されたパラジウムを含むものである、第 2 の触媒を備えており、

ここで、(i) に記載の第 1 の触媒が、排気ガス処理装置の上流端よりも下流側に設けた排気ガス処理システムの第 1 の触媒であり、第 1 の触媒の入口端が、第 1 の触媒の出口端の上流側に配置され、

排気ガス処理システムにおいて、(iii) に記載の第 2 の触媒が、(i) に記載の第 1 の触媒の下流で、かつ、(ii) に記載の炭化水素噴射装置の下流に位置し、第 2 の触媒の入口端が、第 2 の触媒の出口端の上流に配置されている、排気ガス処理システムに関する。

【0009】

(i) に記載の第 1 の触媒の出口端は、(iii) に記載の第 2 の触媒の入口端と流体連通しており、(i) に記載の第 1 の触媒の出口端と (iii) に記載の第 2 の触媒の入口端との間には、第 1 の触媒を出る排気ガス流を処理する触媒が排気ガス処理システムに配置されていないことが好適である。

【0010】

第 1 の触媒は、窒素酸化物 (NO_x) 還元成分を含むことが好適である。

【0011】

第 1 の触媒に含まれるバナジウム酸化物は、酸化バナジウム (V)、酸化バナジウム (IV)、及び酸化バナジウム (III) のうち 1 種以上であることが好適である。

【0012】

第 1 の触媒のコーティングに関しては、第 1 の酸化物担体の質量に基づいて、1.0 ~ 10 重量%、より好ましくは 2.0 ~ 8.0 重量%、さらに好ましくは 2.5 ~ 6.0 重量% の範囲内の量のバナジウム酸化物を含むことが好適である。

【0013】

チタンを含有する第 1 の酸化物担体が、さらにタングステン、ケイ素、ジルコニウム、及びアンチモンのうち 1 種以上、より好ましくはタングステン、ケイ素、及びアンチモン

のうち１種以上を含むことが好適である。第１の酸化物担体が、タングステンとケイ素をさらに含むことがより好適である。あるいは、第１の酸化物担体が、アンチモンとケイ素をさらに含むことがより好適である。

【００１４】

したがって、好ましくは、本発明は、内燃機関から排出される排気ガス流を処理する排気ガス処理システムであって、該排気ガス処理システムが、該排気ガス流を該排気ガス処理システムに導入するための上流端を有し、該排気ガス処理システムが、

(i) 入口端及び出口端を有し、かつ、コーティング（被膜）及び第１の基材を具備する第１の触媒であって、ここで、第１の基材が、入口端、出口端、及び該第１の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、内壁によって画定される複数の通路を備え、ここで、該通路と内壁との間の界面が、内壁の表面によって画定されており、ここで、該コーティングが第１の基材の内壁の表面上に配置され、該コーティングが、チタンを含有する第１の酸化物担体に担持されたバナジウム酸化物を含むものである、第１の触媒、

10

ここで、該コーティングは、バナジウム酸化物を、第１の酸化物担体の質量に基づいて、１．０～１０質量％の範囲、より好ましくは２．０～８．０質量％の範囲の量で含み、また、チタンを含有する第１の酸化物担体が、タングステン、ケイ素、ジルコニウム及びアンチモンのうち１種以上、より好ましくはタングステン、ケイ素及びアンチモンのうち１種以上をさらに含み、

(ii) (i) に記載の第１の触媒の出口端を出る排気ガス流に、炭化水素を含む流体を注入するための炭化水素噴射装置、

20

(iii) 入口端及び出口端を有し、かつ、コーティング及び第２の基材を具備する第２の触媒であって、ここで、第２の基材が、入口端、出口端、及び該第２の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、内壁によって画定される複数の通路を備え、ここで、該通路と内壁との間の界面が、内壁の表面によって画定されており、ここで、該コーティングが第２の基材の内壁の表面上に配置され、該コーティングが、ジルコニウム、ケイ素、アルミニウム、及びチタンのうちの１種以上を含有する第２の酸化物担体に担持されたパラジウムを含むものである、第２の触媒を備えており、

ここで、(i) に記載の第１の触媒が、排気ガス処理装置の上流端よりも下流側の排気ガス処理システムの第１の触媒であり、第１の触媒の入口端が、第１の触媒の出口端の上流側に配置され、

30

ここで、排気ガス処理システムにおいて、(iii) に記載の第２の触媒が、(i) に記載の第１の触媒の下流で、かつ、(ii) に記載の炭化水素噴射装置の下流に位置し、第２の触媒の入口端が、第２の触媒の出口端の上流に配置されている、排気ガス処理システムに関する。

【００１５】

本発明の観点からは、第１の酸化物担体の８０～９８質量％、より好ましくは８５～９５質量％がチタニアからなることが好適である。第１の酸化物担体の２～１０質量％、より好ましくは５～１５質量％がタングステンとケイ素からなることが好適である（ WO_3 と SiO_2 として計算）。あるいは、第１の酸化物担体の２～１０質量％、より好ましくは５～１５質量％が、アンチモンとケイ素からなることが好適である（ Sb_2O_3 と SiO_2 として計算）。

40

【００１６】

第１の触媒のコーティングは、 $1 \sim 10 \text{ g/in}^3$ の範囲、より好ましくは $2 \sim 7 \text{ g/in}^3$ の範囲、より好ましくは $3 \sim 5.5 \text{ g/in}^3$ の範囲の装填量（担持量）で第１の酸化物担体を含むことが好適である。

【００１７】

第１の触媒のコーティングが、酸化物バインダーをさらに含むことが好適である。酸化物バインダーは、アルミナ、シリカ、ジルコニア、及びそれらの２種以上の混合物からな

50

る群から選択されること、より好ましくは、アルミナ、シリカ、及びそれらの２種以上の混合物からなる群から選択されること、さらに好ましくは、シリカであることがより好適である。

【００１８】

第１の触媒のコーティングは、酸化物バインダー、より好ましくは前記で開示した酸化物バインダーを、第１の酸化物担体の質量を基準にして、０．５～１０質量％の範囲、より好ましくは２～８質量％の範囲、さらに好ましくは３～６質量％の範囲の量で含むことが好適である。

【００１９】

第１の触媒については、そのコーティングが、チタン、より好ましくはチタニアを含有する第１の酸化物担体に担持されたバナジウム酸化物を含むことが好適であり、ここで、より好ましくは、第１の酸化物担体がさらにタングステン及びケイ素を含み、また、ここで、上記コーティングが、より好ましくは、上記で定義した酸化物バインダーをさらに含むことが好適である。

10

【００２０】

本発明との関連では、第１の触媒のコーティングの９５～１００質量％、より好ましくは９８～１００質量％、より好ましくは９９～１００質量％、より好ましくは９９．５～１００質量％が、チタン、より好ましくはチタニアを含有する第１の酸化物担体上に担持されたバナジウム酸化物、及び、より好ましくは前記で定義した酸化物バインダーをからなることが好適である。また、第１の酸化物担体が、タングステンとケイ素をさらに含むことがより好適である。

20

【００２１】

第１の触媒のコーティングの最大０．００１質量％、より好ましくは０～０．００１質量％、さらに好ましくは０～０．０００１質量％、より好ましくは０～０．００００１質量％が、パラジウムから、好ましくはパラジウムとロジウムとから、より好ましくはパラジウムと白金とロジウムとから、さらに好ましくは白金族金属からなることが好適である。

【００２２】

第１の触媒のコーティングの最大０．１質量％、より好ましくは０～０．１質量％、さらに好ましくは０～０．０１質量％、より好ましくは０～０．００１質量％が、ゼオライト材料、より好ましくはモレキュラーシーブからなることが好適である。

30

【００２３】

第１の基材は、コーディエライト、チタン酸アルミニウム及び炭化ケイ素のうちの１種以上、より好ましくは、コーディエライト及び炭化ケイ素のうちの１種以上、より好ましくは、コーディエライトを含むこと、より好ましくは、（前述したもの）からなることが好適である。

【００２４】

第１の基材は、好ましくはウォールフロー（wall-flow）フィルタ基材又はフロースルー（flow-through）基材であり、より好ましくはフロースルー基材であり、より好ましくはコーゼライトフロースルー基材であることが好適である。

【００２５】

あるいは、第１の基材が、金属物質を含み、より好ましくは、金属物質からなり、該金属物質が、より好ましくは、酸素と、鉄、クロム及びアルミニウムのうちの１種以上とを含み、より好ましくは、（前述したもの）からなることが好適である。第１の基材は、ウォールフローフィルタ基材又はフロースルー基材であること、より好ましくはフロースルー基材であること、さらに好ましくは金属製フロースルー基材であることがより好適である。

40

【００２６】

第１の触媒は、１．５～１２ g / in³の範囲の装填量でコーティングを含み、より好ましくは２．５～８ g / in³の範囲、さらに好ましくは３．５～６ g / in³の範囲の装填量でコーティングを含むこと好適である。

50

【0027】

第1の触媒のコーティングは、第1の基材の軸方向の長さの95～100%、より好ましくは98～100%、さらに好ましくは99～100%にわたって広がって、すなわち延在していることが好適である。

【0028】

(i)に記載の第1の触媒は、コーティングと第1の基材からなることが好適である。

【0029】

(iii)に記載の第2の触媒については、第2の触媒のコーティングに含まれる第2の酸化物担体が、ジルコニウム及びアルミニウムのうちの1種以上を含み、より好ましくはアルミニウムと、任意にジルコニウムを含むことが好適である。

10

【0030】

第2の触媒のコーティングの第2の酸化物担体の90～100質量%、より好ましくは95～100質量%、より好ましくは98～100質量%、より好ましくは99～100質量%が、アルミニウム、酸素、及び、任意にジルコニウムからなることが好適である。

【0031】

第2の酸化物担体の60～95質量%、より好ましくは75～85質量%がアルミナからなり、第2の酸化物担体の5～40質量%、より好ましくは15～25質量%がジルコニアからなることがより好適である。

【0032】

(iii)に記載の第2の触媒のコーティングは、 $0.25 \sim 5 \text{ g/in}^3$ の範囲、より好ましくは $0.5 \sim 5 \text{ g/in}^3$ の範囲、より好ましくは $0.75 \sim 4 \text{ g/in}^3$ の範囲、より好ましくは $1 \sim 2 \text{ g/in}^3$ の範囲の装填量で第2の酸化物担体を含むことが好適である。

20

【0033】

(iii)に記載の第2の触媒のコーティングが、 $5 \sim 90 \text{ g/ft}^3$ の範囲、好ましくは $10 \sim 70 \text{ g/ft}^3$ の範囲、より好ましくは $30 \sim 60 \text{ g/ft}^3$ の範囲の量のパラジウムを含むことが好適である。

【0034】

第2の触媒に関しては、パラジウムが、(iii)に記載の第2の触媒のコーティング中に存在する唯一の白金族金属であることが好適である。

30

【0035】

第2の基材は、コーディエライト、チタン酸アルミニウム及び炭化ケイ素のうちの1種以上、より好ましくは、コーディエライト及び炭化ケイ素のうちの1種以上、より好ましくは、コーディエライトを含むこと、より好ましくは、(前述したもの)からなることが好適である。

【0036】

第2の基材は、ウォールフローフィルタ基材又はフロースルー基材であり、より好ましくはフロースルー基材であり、より好ましくはコージェライトフロースルー基材であることが好適である。

【0037】

あるいは、第2の基材が、金属物質を含み、より好ましくは、金属物質からなり、該金属物質が、より好ましくは、酸素と、鉄、クロム及びアルミニウムのうちの1種以上とを含み、より好ましくは、(前述したもの)からなることが好適である。第2の基材は、ウォールフローフィルタ基材又はフロースルー基材であること、より好ましくはフロースルー基材であること、さらに好ましくは金属製フロースルー基材であることがより好適である。

40

【0038】

(iii)に記載の第2の触媒は、コーティングと第2の基材からなることが好適である。

【0039】

50

第2の触媒のコーティングの最大0.1質量%、より好ましくは0～0.1質量%、さらに好ましくは0～0.01質量%、より好ましくは0～0.001質量%が、バナジウム酸化物からなることが好適である。

【0040】

(iii)に記載の第2の触媒については、第2の触媒のコーティングが、ジルコニウム、ケイ素、アルミニウム、及びチタンのうちの1種以上、より好ましくはアルミニウムとジルコニウムを含有する第2の酸化物担体上に担持されたパラジウムを含むことが好適である。

【0041】

第2の触媒のコーティングの98～100質量%、好ましくは99～100質量%、より好ましくは99.5～100質量%が、ジルコニウム、ケイ素、アルミニウム、及びチタンのうちの1種以上、より好ましくはアルミニウムとジルコニウムを含有する第2の酸化物担体上に担持されたパラジウムからなることが好適である。

【0042】

したがって、好ましくは、本発明は、内燃機関から排出される排気ガス流を処理する排気ガス処理システムであって、該排気ガス処理システムが、該排気ガス流を該排気ガス処理システムに導入するための上流端を有し、該排気ガス処理システムが、

(i) 入口端及び出口端を有し、かつ、コーティング及び第1の基材を具備する第1の触媒であって、ここで、第1の基材が、入口端、出口端、及び該第1の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、内壁によって画定される複数の通路を備え、ここで、該通路と内壁との間の界面が、内壁の表面によって画定されており、ここで、該コーティングが第1の基材の内壁の表面上に配置され、該コーティングが、チタンを含有する第1の酸化物担体に担持されたバナジウム酸化物を含むものである、第1の触媒、

ここで、該コーティングが、該バナジウム酸化物を、第1の酸化物担体の質量に基づいて、1.0～10質量%の範囲、より好ましくは2.0～8.0質量%の範囲の量で含み、また、チタンを含有する第1の酸化物担体が、タングステン、ケイ素、ジルコニウム及びアンチモンのうち1種以上、より好ましくはタングステン、ケイ素及びアンチモンのうち1種以上をさらに含み、

(ii) (i)に記載の第1の触媒の出口端を出る排気ガス流に、炭化水素を含む流体を注入するための炭化水素噴射装置、

(iii) 入口端及び出口端を有し、かつ、コーティング及び第2の基材を具備する第2の触媒であって、ここで、第2の基材が、入口端、出口端、及び該第2の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、内壁によって画定される複数の通路を備え、ここで、該通路と内壁との間の界面が、内壁の表面によって画定されており、ここで、該コーティングが第2の基材の内壁の表面上に配置され、該コーティングは、アルミニウム及びジルコニウムの1種以上を含有する第2の酸化物担体に担持されたパラジウムを含み、ここで、第2の触媒のコーティングの98～100質量%が、アルミニウム及びジルコニウムの1種以上を含有する第2の酸化物担体に担持されたパラジウムからなる、第2の触媒

を備えており、

ここで、(i)に記載の第1の触媒が、排気ガス処理装置の上流端よりも下流側の排気ガス処理システムの第1の触媒であり、第1の触媒の入口端が、第1の触媒の出口端の上流側に配置され、

排気ガス処理システムにおいて、(iii)に記載の第2の触媒が、(i)に記載の第1の触媒の下流で、かつ、(ii)に記載の炭化水素噴射装置の下流に位置し、第2の触媒の入口端が、第2の触媒の出口端の上流に配置されている、

排気ガス処理システムに関する。

【0043】

第2の触媒のコーティングの最大0.1質量%、より好ましくは0～0.1質量%、さらに好ましくは0～0.01質量%、より好ましくは0～0.001質量%が、ゼオライ

ト材料、より好ましくはモレキュラーシーブからなることが好適である。

【0044】

本発明の観点から、代替案によれば、(iii)に記載の第2の触媒のコーティングが、ゼオライト材料をさらに含み、該ゼオライト材料がCu及びFeのうちの1種以上を含有することが好適である。

【0045】

第2の触媒のコーティングに含まれるゼオライト材料が、骨格型AEI、GME、CHA、MFI、BEA、FAU、MOR又はそれらの2種以上の混合物を有し、より好ましくは骨格型AEI、CHA、BEA又はそれらの2種以上の混合物を有し、より好ましくは骨格型CHA又はAEIを有し、より好ましくは骨格型CHAを有することが好適である。

10

【0046】

第2の触媒のコーティングに含まれるゼオライト材料が銅を含有することが好適であり、ゼオライト材料に含有される銅の量は、CuOとして計算すると、ゼオライト材料の総質量を基準にして、より好ましくは0.5～10質量%の範囲、より好ましくは1～7質量%の範囲、さらに好ましくは2.5～6質量%の範囲である。ゼオライト材料中の鉄の量は、Fe₂O₃として計算すると、ゼオライト材料の総質量を基準にして、0～0.01質量%、より好ましくは0～0.001質量%、さらに好ましくは0～0.0001質量%の範囲であることがより好適である。

【0047】

第2の触媒のコーティングに含まれるゼオライト材料の骨格構造の95～100質量%、より好ましくは98～100質量%、さらに好ましくは99～100質量%、より好ましくは99.5～100質量%が、Si、Al、O及びHからなることが好適であり、この場合、骨格構造中、SiとAlのモル比（モルSiO₂：Al₂O₃として計算）は、より好ましくは2：1～50：1の範囲、より好ましくは4：1～45：1の範囲、より好ましくは10：1～40：1の範囲、より好ましくは15：1～35：1の範囲である。

20

【0048】

第2の触媒のコーティングに含まれるゼオライト材料が鉄を含有することが好適であり、この場合、ゼオライト材料に含有される鉄の量は、Fe₂O₃として計算すると、ゼオライト材料の総質量を基準にして、より好ましくは0.1～10.0質量%の範囲、より好ましくは1.0～7.0質量%の範囲、さらに好ましくは2.5～5.5質量%の範囲である。ゼオライト材料の骨格構造の95～100質量%、より好ましくは98～100質量%、さらに好ましくは99～100質量%、より好ましくは99.5～100質量%が、Si、Al、O及びHからなることがより好適であり、この場合、骨格構造中、SiとAlのモル比（モルSiO₂：Al₂O₃として計算）は、より好ましくは2：1～50：1の範囲、より好ましくは4：1～45：1の範囲、より好ましくは10：1～40：1の範囲、より好ましくは15：1～35：1の範囲である。

30

【0049】

第2の触媒のコーティングに含まれるゼオライト材料であって、より好ましくは、骨格型CHAを有するものは、走査型電子顕微鏡で測定した平均結晶粒径（mean crystallite size）が少なくとも0.1マイクロメートル、より好ましくは0.1～3.0マイクロメートルの範囲、より好ましくは0.3～1.5マイクロメートルの範囲、より好ましくは0.4～1.0マイクロメートルの範囲であることが好適である。

40

【0050】

第2の触媒のコーティングは、0.2～8 g/in³の範囲、より好ましくは0.5～6 g/in³の範囲、より好ましくは1～4 g/in³の範囲の装填量でゼオライト材料を含むこと、及び、(iii)に記載の第2の触媒のコーティングは0.3～0.75 g/in³、より好ましくは0.4～0.6 g/in³の範囲の装填量で第2の酸化物担体を含むことが好適である。

【0051】

50

ゼオライト材料を含む、第2の触媒のコーティングについては、当該コーティングがさらに酸化物バインダーを含むことが好適である。酸化物バインダーは、アルミナ、シリカ、ジルコニア、及びそれらの2種以上の混合物からなる群から選択されること、より好ましくは、アルミナ、ジルコニア、及びそれらの2種以上の混合物からなる群から選択されること、さらに好ましくは、ジルコニアであることがより好適である。第2の触媒のコーティングが、ゼオライト材料の総質量を基準にして、0.5～10質量%の範囲、好ましくは2～8質量%の範囲、より好ましくは3～6質量%の範囲の量で該酸化物バインダーを含むことがより好適である、

第2の触媒のコーティングの95～100質量%、より好ましくは98～100質量%、さらに好ましくは99～100質量%、より好ましくは99.5～100質量%が、ジルコニウム、ケイ素、アルミニウム、及びチタンのうちの1種以上を含有する第2の酸化物担体上に担持されたパラジウム、Cu及びFeのうちの1種以上を含有するゼオライト材料、及び、さらに好ましくは前記で定義した酸化物バインダーからなることが好適である。

10

【0052】

本発明の観点からは、第2の触媒は、0.3～5 g/in³の範囲の装填量でコーティングを含み、より好ましくは1～4 g/in³の範囲、さらに好ましくは1.5～4.6 g/in³の範囲の装填量でコーティングを含むことが好適である。

【0053】

第2の触媒のコーティングは、第2の基材の軸方向の長さの95～100%、より好ましくは98～100%、さらに好ましくは99～100%にわたって広がっていることが好適である。

20

【0054】

本発明のシステムは、さらに、

(iv) 入口端及び出口端を有し、かつ、コーティング及び第3の基材を具備する第3の触媒であって、ここで、第3の基材が、入口端、出口端、及び該第3の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、内壁によって画定される複数の通路を備え、ここで、該通路と内壁との間の界面が、内壁の表面によって画定されており、ここで、該コーティングが第3の基材の内壁の表面上に配置され、該コーティングが、バナジウム酸化物の1種以上と、Cu及びFeのうちの1種以上を含有するゼオライト材料を含むものである、第3の触媒を備えることが好適であり、

30

ここで、排気ガス処理システムにおいて、(iv)に記載の第3の触媒が、(iii)に記載の第2の触媒の下流に位置し、第3の触媒の入口端が、第3の触媒の出口端の上流に配置されていることが好適である。

【0055】

したがって、好ましくは、本発明は、内燃機関から排出される排気ガス流を処理する排気ガス処理システムであって、該排気ガス処理システムが、該排気ガス流を該排気ガス処理システムに導入するための上流端を有し、該排気ガス処理システムが、

(i) 入口端及び出口端を有し、かつ、コーティング及び第1の基材を具備する第1の触媒であって、ここで、第1の基材が、入口端、出口端、及び該第1の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、内壁によって画定される複数の通路を備え、ここで、該通路と内壁との間の界面が、内壁の表面によって画定されており、ここで、該コーティングが第1の基材の内壁の表面上に配置され、該コーティングが、チタンを含有する第1の酸化物担体に担持されたバナジウム酸化物を含むものである、第1の触媒、

40

(ii) (i)に記載の第1の触媒の出口端を出る排気ガス流に、炭化水素を含む流体を注入するための炭化水素噴射装置、

(iii) 入口端及び出口端を有し、かつ、コーティング及び第2の基材を具備する第2の触媒であって、ここで、第2の基材が、入口端、出口端、及び該第2の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、内壁によって画定される複数の通路を備え

50

、ここで、該通路と内壁との間の界面が、内壁の表面によって画定されており、ここで、該コーティングが第2の基材の内壁の表面上に配置され、該コーティングが、ジルコニウム、ケイ素、アルミニウム、及びチタンのうちの1種以上を含有する第2の酸化物担体上に担持されたパラジウムを含むものである、第2の触媒、

(i v) 入口端及び出口端を有し、かつ、コーティング及び第3の基材を具備する第3の触媒であって、ここで、第3の基材が、入口端、出口端、及び該第3の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、内壁によって画定される複数の通路を備え、ここで、該通路と内壁との間の界面が、内壁の表面によって画定されており、ここで、該コーティングが第3の基材の内壁の表面上に配置され、該コーティングが、バナジウム酸化物の1種以上と、Cu及びFeのうちの1種以上を含有するゼオライト材料を含むものである、第3の触媒を備え、

ここで、(i) に記載の第1の触媒が、排気ガス処理装置の上流端よりも下流側の排気ガス処理システムの第1の触媒であり、第1の触媒の入口端が、第1の触媒の出口端の上流側に配置され、

排気ガス処理システムにおいて、(i i i) に記載の第2の触媒が、(i) に記載の第1の触媒の下流で、かつ、(i i) に記載の炭化水素噴射装置の下流に位置し、第2の触媒の入口端が、第2の触媒の出口端の上流に配置されており、

ここで、排気ガス処理システムにおいて、(i v) に記載の第3の触媒が、(i i i) に記載の第2の触媒の下流に位置し、第3の触媒の入口端が、第3の触媒の出口端の上流に配置されている、排気ガス処理システムに関する。

【0056】

本発明の観点では、(i i i) に記載の第2の触媒の出口端が、(i v) に記載の第3の触媒の入口端と流体連通しており、また、この排気ガス処理システムでは、(i i i) に記載の第2の触媒の出口端と(i v) に記載の第3の触媒の入口端との間に、第2の触媒を出る排気ガス流を処理する触媒が配置されていないことが好適である。

【0057】

(i v) に記載の第3の触媒に関して、第1の態様によれば、(i v) に係る第3の触媒のコーティングが、Cu及びFeのうちの1種以上を含有するゼオライト材料を含むことが好適である。

【0058】

第3の触媒のコーティングに含まれるゼオライト材料が、骨格型A E I、G M E、C H A、M F I、B E A、F A U、M O R又はそれらの2種以上の混合物を有し、より好ましくは骨格型A E I、C H A、B E A又はそれらの2種以上の混合物を有し、より好ましくは骨格型C H A又はA E Iを有することが好適である。さらに、第3の触媒のコーティングに含まれるゼオライト材料が、骨格型C H Aを有することが好適である。

【0059】

第3の触媒のコーティングに含まれるゼオライト材料が銅を含有し、この場合、ゼオライト材料に含有される銅の量は、CuOとして計算して、ゼオライト材料の総質量を基準にして、より好ましくは0.5~10質量%、より好ましくは1~8質量%、さらに好ましくは2~7質量%、さらに好ましくは3~6質量%の範囲であることが好適である。また、ゼオライト材料中の鉄の量は、Fe₂O₃として計算すると、ゼオライト材料の総質量を基準にして、0~0.01質量%、より好ましくは0~0.001質量%、さらに好ましくは0~0.0001質量%の範囲であることがより好適である。

【0060】

第3の触媒のコーティングに含まれるゼオライト材料の骨格構造の95~100質量%、より好ましくは98~100質量%、さらに好ましくは99~100質量%、より好ましくは99.5~100質量%が、Si、Al、O及びHからなり、この場合、骨格構造中、SiとAlのモル比(モルSiO₂:Al₂O₃として計算)は、より好ましくは2:1~50:1の範囲、より好ましくは4:1~45:1の範囲、より好ましくは10:1

10

20

30

40

50

～40：1の範囲、より好ましくは15：1～35：1の範囲であることが好適である。

【0061】

第3の触媒のコーティングに含まれるゼオライト材料が鉄を含有し、この場合、ゼオライト材料に含有される鉄の量は、 Fe_2O_3 として計算すると、ゼオライト材料の総質量を基準にして、より好ましくは0.1～10.0質量%の範囲、より好ましくは1.0～7.0質量%の範囲、さらに好ましくは2.5～5.5質量%の範囲であることが好適である。また、ゼオライト材料の骨格構造の95～100質量%、より好ましくは98～100質量%、さらに好ましくは99～100質量%、より好ましくは99.5～100質量%が、Si、Al、O及びHからなり、この場合、骨格構造中、Si：Alのモル比（モル SiO_2 ： Al_2O_3 として計算）は、より好ましくは2：1～50：1の範囲、より好ましくは4：1～45：1の範囲、より好ましくは10：1～40：1の範囲、より好ましくは15：1～35：1の範囲であることがより好適である。

10

【0062】

第3の触媒のコーティングに含まれるゼオライト材料であって、より好ましくは、骨格型CHAを有するものは、走査型電子顕微鏡で測定した平均結晶粒径が少なくとも0.1マイクロメートル、より好ましくは0.1～3.0マイクロメートルの範囲、より好ましくは0.3～1.5マイクロメートルの範囲、より好ましくは0.4～1.0マイクロメートルの範囲であることが好適である。

【0063】

第3の触媒のコーティングは、0.5～8 g/in³の範囲、より好ましくは0.75～5 g/in³の範囲、さらに好ましくは1～3.5 g/in³の範囲の装填量でゼオライト材料を含むことがより好適である。

20

【0064】

(iv)に記載の第3の触媒のコーティングとしては、酸化物バインダーをさらに含むことが好適である。

【0065】

酸化物バインダーとしては、アルミナ、シリカ、ジルコニア、及びそれらの2種以上の混合物からなる群から選択されること、より好ましくは、アルミナ、ジルコニア、及びそれらの2種以上の混合物からなる群から選択されること、さらに好ましくは、ジルコニアであることがより好適である。

30

【0066】

第3の触媒のコーティングが、ゼオライト材料の総質量を基準にして、0.5～10質量%の範囲、好ましくは2～8質量%の範囲、より好ましくは3～6質量%の範囲の量の該酸化物バインダーを含むことがより好適である、

第1の態様による(iv)に記載の第3の触媒に関しては、コーティングが、Cu及びFeのうちの1種以上を含有するゼオライト材料を含み、ここで、ゼオライト材料が、骨格型AEI、GME、CHA、MFI、BEA、FAU、MOR又はそれらの2種以上の混合物を有し、より好ましくは骨格型AEI、CHA、BEA又はそれらの2種以上の混合物を有し、より好ましくは骨格型CHA又はAEIを有し、より好ましくは骨格型CHAを有すること、及び、さらに好ましくはコーティングが酸化物バインダーをさらに含むことが好適である。

40

【0067】

第3の触媒のコーティングの最大0.001質量%、より好ましくは0～0.001質量%、さらに好ましくは0～0.0001質量%、より好ましくは0～0.00001質量%が、パラジウム、白金、及びロジウムとから、好ましくは白金族金属からなることが好適である。

【0068】

第3の触媒のコーティングの最大0.1質量%、より好ましくは0～0.1質量%、さらに好ましくは0～0.01質量%、より好ましくは0～0.001質量%が、バナジウム酸化物からなることが好適である。

50

【0069】

第3の触媒のコーティングの95～100質量%、より好ましくは98～100質量%、さらに好ましくは99～100質量%、より好ましくは99.5～100質量%が、Cu及びFeのうちの1種以上を含有するゼオライト材料と、さらに好ましくは前記で定義した酸化物バインダーとからなることが好適である。

【0070】

本発明の観点からは、(iii)に記載の第2の触媒のコーティングは、ジルコニウム、ケイ素、アルミニウム及びチタンのうちの1種以上、好ましくはアルミニウム及び任意にジルコニウムを含有する第2の酸化物担体に担持されたパラジウムを含む、より好ましくは、かかるパラジウムからなることが好適である。また、(iv)に記載の第3の触媒のコーティングが、Cu及びFeのうちの1種以上を含有するゼオライト材料と、より好ましくは前記で定義した酸化物バインダーを含む、より好ましくは、からなることが好適である。

【0071】

したがって、好ましくは、本発明は、内燃機関から排出される排気ガス流を処理する排気ガス処理システムであって、該排気ガス処理システムが、該排気ガス流を該排気ガス処理システムに導入するための上流端を有し、該排気ガス処理システムが、

(i) 入口端及び出口端を有し、かつ、コーティング及び第1の基材を具備する第1の触媒であって、ここで、第1の基材が、入口端、出口端、及び該第1の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、内壁によって画定される複数の通路を備え、ここで、該通路と内壁との間の界面が、内壁の表面によって画定されており、ここで、該コーティングが第1の基材の内壁の表面上に配置され、該コーティングが、チタンを含有する第1の酸化物担体に担持されたバナジウム酸化物を含むものである、第1の触媒、

ここで、該コーティングは、バナジウム酸化物を、第1の酸化物担体の質量に基づいて、1.0～10質量%の範囲、より好ましくは2.0～8.0質量%の範囲の量で含み、また、チタンを含有する第1の酸化物担体が、タングステン、ケイ素、ジルコニウム及びアンチモンのうち1種以上、より好ましくはタングステン、ケイ素及びアンチモンのうち1種以上をさらに含み、

(ii) (i)に記載の第1の触媒の出口端を出る排気ガス流に、炭化水素を含む流体を注入するための炭化水素噴射装置、

(iii) 入口端及び出口端を有し、かつ、コーティング及び第2の基材を具備する第2の触媒であって、ここで、第2の基材が、入口端、出口端、及び該第2の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、内壁によって画定される複数の通路を備え、ここで、該通路と内壁との間の界面が、内壁の表面によって画定されており、ここで、該コーティングが第2の基材の内壁の表面上に配置され、該コーティングが、ジルコニウム、ケイ素、アルミニウム、及びチタンのうちの1種以上、好ましくは、アルミニウムと任意のジルコニウムを含有する第2の酸化物担体上に担持されたパラジウムを含むものである、第2の触媒、

(iv) 入口端及び出口端を有し、かつ、コーティング及び第3の基材を具備する第3の触媒であって、ここで、第3の基材が、入口端、出口端、及び該第3の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、内壁によって画定される複数の通路を備え、ここで、該通路と内壁との間の界面が、内壁の表面によって画定されており、ここで、該コーティングが第3の基材の内壁の表面上に配置され、該コーティングが、Cu及びFeのうちの1種以上を含有するゼオライト材料と、より好ましくは、前記で定義された酸化物バインダーとを含むものである、第3の触媒を備え、

ここで、(i)に記載の第1の触媒が、排気ガス処理装置の上流端よりも下流側の排気ガス処理システムの第1の触媒であり、第1の触媒の入口端が、第1の触媒の出口端の上流側に配置され、

排気ガス処理システムにおいて、(iii)に記載の第2の触媒が、(i)に記載の第

10

20

30

40

50

1の触媒の下流で、かつ、(ii)に記載の炭化水素噴射装置の下流に位置し、第2の触媒の入口端が、第2の触媒の出口端の上流に配置されており、
ここで、排気ガス処理システムにおいて、(iv)に記載の第3の触媒が、(iii)に記載の第2の触媒の下流に位置し、第3の触媒の入口端が、第1の態様に係る第3の触媒の出口端の上流に配置されている、排気ガス処理システムに関する。

【0072】

第2の態様に係る(iv)に記載の第3のコーティングについては、第3の触媒のコーティングはバナジウム酸化物を含むことが好適であり、この場合、該バナジウム酸化物が、酸化バナジウム(V)、酸化バナジウム(IV)、及び酸化バナジウム(III)のうち1種以上であることが好適である。

【0073】

また、前記バナジウムが第3の酸化物担体に担持されていることがより好適であり、この場合、第3の触媒のコーティングは、第3の酸化物担体の質量を基準にして、より好ましくは1.5～10質量%の範囲、より好ましくは2.5～8質量%の範囲、さらに好ましくは3～6質量%の範囲の量の該バナジウム酸化物を含む。

【0074】

第3の酸化物担体がチタンを含有し、この場合、第3の酸化物担体が、さらにタングステン、ケイ素、ジルコニウム、及びアンチモンのうち1種以上、好ましくはタングステン、ケイ素、及びアンチモンのうち1種以上を含むことが好適である。また、第3の酸化物担体がさらにタングステン及びケイ素を含むこと、あるいは第3の酸化物担体がさらにアンチモン及びケイ素を含むことが、より好適である。

【0075】

第3の酸化物担体の80～98質量%、より好ましくは85～95質量%がチタニアからなることがより好適である。第3の酸化物担体の2～10質量%、より好ましくは5～15質量%がタングステンとケイ素からなることが一層好適である(WO₃とSiO₂として計算)。あるいは、第3の酸化物担体の2～10質量%、より好ましくは5～15質量%が、アンチモンとケイ素からなることが一層好適である(Sb₂O₃とSiO₂として計算)。

【0076】

第3の触媒のコーティングは、1～10 g/in³の範囲、より好ましくは2～7 g/in³の範囲、より好ましくは3～5.5 g/in³の範囲の装填量で第3の酸化物担体を含むことが好適である。

【0077】

バナジウム酸化物を含む、第3の触媒のコーティングに関しては、第3の触媒のコーティングが酸化物バインダーをさらに含むことが好適である。酸化物バインダーは、アルミナ、シリカ、ジルコニア、及びそれらの2種以上の混合物からなる群から選択されること、より好ましくは、アルミナ、シリカ、及びそれらの2種以上の混合物からなる群から選択されること、さらに好ましくは、シリカであることがより好適である。

【0078】

前記コーティングとしては、第3の酸化物担体の質量を基準にして、0.5～10質量%の範囲、好ましくは2～8質量%の範囲、より好ましくは3～6質量%の範囲の量の該酸化物バインダーを含むことが好適である。

第2の態様に係る(iv)に記載の第3のコーティングについては、第3の触媒のコーティングが、白金族金属成分をさらに含むことが好適であり、この場合、白金族金属成分が、パラジウム、白金及びロジウムのうちの1種以上、より好ましくは、パラジウム及び白金のうちの1種以上であることが好適である。

【0079】

前記白金族金属成分は、白金及びパラジウムであることが好適であり、この場合、白金族金属の元素として計算した、白金のパラジウムに対する質量比、Pt:Pdが、より好ましくは2:1～18:1の範囲、より好ましくは5:1～15:1の範囲、より好まし

10

20

30

40

50

くは 8 : 1 ~ 12 : 1 の範囲であることが好適である。

【0080】

第3の触媒のコーティングは、 $1 \sim 30 \text{ g/in}^3$ の範囲、より好ましくは $2 \sim 15 \text{ g/in}^3$ の範囲、より好ましくは $5 \sim 12 \text{ g/in}^3$ の範囲の装填量で該白金族金属成分を含むことが好適である。

【0081】

前記白金族金属成分は酸化物材料上に担持されていることが好適であり、この場合、酸化物材料は、より好ましくはアルミナ、シリカ、ジルコニア及びチタニアのうちの1種以上、より好ましくはアルミナ、シリカ及びジルコニアのうちの1種以上、より好ましくはアルミナ及びシリカのうちの1種以上であり、この場合、酸化物材料は、より好ましくはアルミナにジルコニアをドーブしたものであることが好適である。第3の触媒のコーティングは、 $0.1 \sim 4 \text{ g/in}^3$ の範囲、より好ましくは $0.2 \sim 2 \text{ g/in}^3$ の範囲、さらに好ましくは $0.5 \sim 1.5 \text{ g/in}^3$ の範囲の装填量で白金族金属成分を担持する酸化物材料を含むことがより好適である。

10

【0082】

第2の態様に係る (iv) に記載の第3の触媒に関して、第3の触媒のコーティングのうち、95 ~ 100 質量%、より好ましくは 98 ~ 100 質量%、より好ましくは 99 ~ 100 質量%、より好ましくは 99.5 ~ 100 質量%が、白金族成分、より好ましくは前記で定義された酸化物材料上に担持された白金族成分と、第3の酸化物担体上に担持されたバナジウム酸化物と、より好ましくは前記で定義された酸化物バインダーからなることが好適である。

20

【0083】

第2の態様に係る (iv) に記載の第3の触媒に関して、第3の触媒のコーティングのうち、95 ~ 100 質量%、より好ましくは 98 ~ 100 質量%、より好ましくは 99 ~ 100 質量%、より好ましくは 99.5 ~ 100 質量%が、白金族成分、より好ましくは前記で定義された酸化物材料上に担持された白金族成分と、Cu 及び Fe のうちの1種以上を含有するゼオライト材料と、より好ましくは前記で定義された酸化物バインダーからなることが好適である。

【0084】

本発明の観点から、(iv) に記載の第3の触媒については、第3の基材は、コーディエライト、チタン酸アルミニウム及び炭化ケイ素のうちの1種以上、より好ましくは、コーディエライト及び炭化ケイ素のうちの1種以上、より好ましくは、コーディエライトを含むこと、より好ましくは、(前述のもの) からなることが好適である。

30

【0085】

第3の基材は、ウォールフローフィルタ基材又はフロースルー基材であり、より好ましくはフロースルー基材であり、より好ましくはコーゼライトフロースルー基材であることが好適である。また、第3の基材は、前述の第1及び第2の基材と同様に金属製とすることも可能である。

【0086】

第3の触媒は、 $0.75 \sim 10 \text{ g/in}^3$ の範囲、より好ましくは $1 \sim 7 \text{ g/in}^3$ の範囲、さらに好ましくは $1.5 \sim 5.5 \text{ g/in}^3$ の範囲の装填量で前記コーティングを含むことが好適である。

40

【0087】

第3の触媒のコーティングは、第3の基材の軸方向の長さの 95 ~ 100 %、より好ましくは 98 ~ 100 %、さらに好ましくは 99 ~ 100 % にわたって広がっていることが好適である。

【0088】

第3の触媒の第3の基材については、 $2.54 \sim 25.4 \text{ cm}$ (1 ~ 10 インチ) の範囲、より好ましくは $3.81 \sim 17.78 \text{ cm}$ (1.5 ~ 7 インチ) の範囲、さらに好ましくは $5.08 \sim 10.16 \text{ cm}$ (2 ~ 4 インチ) の範囲の基材長を有することが好適で

50

ある。

【0089】

第3の触媒の第3の基材は、10.16～43.18 cm (4～17インチ)の範囲、より好ましくは17.78～38.10 cm (7～15インチ)の範囲、さらに好ましくは22.86～30.48 cm (9～12インチ)の範囲の基材幅を有することが好適である。

【0090】

(iv)に記載の第3の触媒は、コーティングと第3の基材とからなることが好適である。

【0091】

第1の触媒の第1の基材については、2.54～25.4 cm (1～10インチ)の範囲、より好ましくは5.08～20.32 cm (2～8インチ)の範囲、さらに好ましくは7.62～15.24 cm (3～6インチ)の範囲の基材長を有することが好適である。

【0092】

第1の触媒の第1の基材は、2.54～50.8 cm (1～20インチ)の範囲、より好ましくは12.7～43.18 cm (5～17インチ)の範囲、さらに好ましくは20.32～38.1 cm (8～15インチ)の範囲の基材幅を有することが好適である。

【0093】

第2の触媒の第2の基材については、2.54～25.4 cm (1～10インチ)の範囲、より好ましくは3.81～17.78 cm (1.5～7インチ)の範囲、さらに好ましくは5.08～10.16 cm (2～4インチ)の範囲の基材長を有することが好適である。

【0094】

第2の触媒の第2の基材は、10.16～50.8 cm (4～20インチ)の範囲、より好ましくは17.78～43.18 cm (7～17インチ)の範囲、さらに好ましくは22.86～38.1 cm (9～15インチ)の範囲の基材幅を有することが好適である。

【0095】

本発明の観点からは、当該システムが第4の触媒をさらに含むことが好適であり、この場合、第4の触媒は、アンモニア酸化触媒、触媒付す(煤)フィルタ、及び選択的接触(catalytic)還元触媒のうちの1種以上であることが好適である。

【0096】

第4の触媒としてはアンモニア酸化触媒であることが好適であり、この場合、第4の触媒は、入口端と出口端を有し、コーティングと第4の基材を具備することが好適である。第4の基材は、入口端、出口端、及び第4の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、かつ、内壁によって画定される複数の通路を備え、ここで、該通路と内壁の間の界面は内壁の表面によって画定されている。第4の触媒のコーティングは、第4の基材の内壁の表面に配置されており、該コーティングはアンモニア酸化成分を含む。排気ガス処理システムでは、第4触媒が(iv)に記載の第3の触媒の下流に位置し、第4の触媒の入口端が第4の触媒の出口端の上流に配置されている。(iv)に記載の第3の触媒の出口端は、第4の触媒の入口端と流体連通しており、排気ガス処理システムでは第3の触媒の出口端と第4の触媒の入口端との間には、第3の触媒を出る排気ガスを処理する触媒が配置されていない。

【0097】

第4の触媒のコーティングのアンモニア酸化成分が、白金族金属成分と、バナジウム酸化物の1種以上と、Cu及びFeのうちの1種以上を含有するゼオライト材料を含み、より好ましくは、白金族金属成分と、Cu及びFeのうちの1種以上を含有するゼオライト材料を含むことが好適である。

【0098】

第4の触媒のコーティングのアンモニア酸化成分としては、酸化物担体に担持された白金族金属成分、より好ましくはパラジウム及び白金の1種以上と、ゼオライト材料、より

10

20

30

40

50

好ましくは、骨格型CHAを有し、Cuを含有するゼオライト材料とを含む、より好ましくは、(前述のもの)からなることが好適である。

【0099】

したがって、好ましくは、本発明は、内燃機関から排出される排気ガス流を処理する排気ガス処理システムであって、該排気ガス処理システムが、該排気ガス流を該排気ガス処理システムに導入するための上流端を有し、該排気ガス処理システムが、

(i) 入口端及び出口端を有し、かつ、コーティング及び第1の基材を具備する第1の触媒であって、ここで、第1の基材が、入口端、出口端、及び該第1の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、内壁によって画定される複数の通路を備え、ここで、該通路と内壁との間の界面が、内壁の表面によって画定されており、ここで、該コーティングが第1の基材の内壁の表面上に配置され、該コーティングが、チタンを含有する第1の酸化物担体に担持されたバナジウム酸化物を含むものである、第1の触媒、

10

ここで、該コーティングが、より好ましくは、該バナジウム酸化物を、第1の酸化物担体の質量に基づいて、1.0~10質量%の範囲、より好ましくは2.0~8.0質量%の範囲の量で含み、また、チタンを含有する第1の酸化物担体が、より好ましくは、タングステン、ケイ素、ジルコニウム及びアンチモンのうち1種以上、より好ましくはタングステン、ケイ素及びアンチモンのうち1種以上をさらに含み、

(ii) (i)に記載の第1の触媒の出口端を出る排気ガス流に、炭化水素を含む流体を注入するための炭化水素噴射装置、

(iii) 入口端及び出口端を有し、かつ、コーティング及び第2の基材を具備する第2の触媒であって、ここで、第2の基材が、入口端、出口端、及び該第2の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、内壁によって画定される複数の通路を備え、ここで、該通路と内壁との間の界面が、内壁の表面によって画定されており、ここで、該コーティングが第2の基材の内壁の表面上に配置され、該コーティングが、ジルコニウム、ケイ素、アルミニウム、及びチタンのうちの1種以上を含有する第2の酸化物担体に担持されたパラジウムからなるものである、第2の触媒、

20

(iv) 入口端及び出口端を有し、かつ、コーティング及び第3の基材を具備する第3の触媒であって、ここで、第3の基材が、入口端、出口端、及び該第3の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、内壁によって画定される複数の通路を備え、ここで、該通路と内壁との間の界面が、内壁の表面によって画定されており、ここで、該コーティングが第3の基材の内壁の表面上に配置され、該コーティングが、Cu及びFeのうちの1種以上を含有するゼオライト材料を含むものである、第3の触媒を備え、

30

ここで、(i)に記載の第1の触媒が、排気ガス処理装置の上流端よりも下流側の排気ガス処理システムの第1の触媒であり、第1の触媒の入口端が、第1の触媒の出口端の上流側に配置され、

排気ガス処理システムにおいて、(iii)に記載の第2の触媒が、(i)に記載の第1の触媒の下流で、かつ、(ii)に記載の炭化水素噴射装置の下流に位置し、第2の触媒の入口端が、第2の触媒の出口端の上流に配置されており、

ここで、排気ガス処理システムにおいて、(iv)に記載の第3の触媒が、(iii)に記載の第2の触媒の下流に位置し、第3の触媒の入口端が、第1の態様に係る第3の触媒の出口端の上流に配置されており、

40

ここで、該システムが第4の触媒をさらに含み、ここで、第4の触媒が、アンモニア酸化触媒、触媒付すすフィルタ、及び選択的接触還元触媒のうちの1種以上、より好ましくは、アンモニア酸化触媒であり、ここで、第4の触媒が、入口端及び出口端を有し、かつ、コーティング及び第4の基材を具備し、

ここで、第4の基材が、入口端、出口端、及び該第4の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、内壁によって画定される複数の通路を備え、ここで、該通路と内壁との間の界面が、内壁の表面によって画定されており、ここで、第4の触媒のコーティングが第4の基材の内壁の表面上に配置され、該コーティングがアンモニア酸化成

50

分を含み、

ここで、排気ガス処理システムにおいて、第4の触媒が(i v)に記載の第3の触媒の下流に位置し、第4の触媒の入口端が第4の触媒の出口端の上流に配置され、(i v)に記載の第3の触媒の出口端が第4の触媒の入口端と流体連通しており、排気ガス処理システムでは、第3の触媒の出口端と第4の触媒の入口端の間には、排気ガス処理システムにおいて第3の触媒を出た排気ガスを処理する触媒が配置されていない、排気ガス処理システムに関する。

【0100】

本発明の観点からは、本発明のシステムは、第5の触媒をさらに備えることが好適である。この場合には、第5の触媒としては、アンモニア酸化触媒、ディーゼル酸化触媒、触媒付すすフィルタ及び選択的接触還元触媒のうちの1種以上であり、より好ましくは触媒付煤フィルタであることが好適である。

10

【0101】

第5の触媒は、入口端と出口端を有し、かつ、第5の基材上に、より好ましくはウォールフローフィルタ基材上に設けたコーティングを有することが好適である。ここで、排気ガス処理システムにおいて、第4の触媒が、(i v)に記載の第3の触媒の下流に位置し、第4の触媒の入口端が第4の触媒の出口端よりも上流に配置されており、また、第4の触媒の出口端は、第5の触媒の入口端と流体連通しており、第4の触媒の出口端と第5の触媒の入口端との間には、排気ガス処理システム内の第4の触媒を出た排気ガスを処理する触媒が配置されていない。

20

【0102】

本発明のシステムは、第6の触媒をさらに備えることが好適であり、この場合、第6の触媒は、アンモニア酸化触媒、触媒付すすフィルタ及び選択的接触還元触媒のうちの1種以上、より好ましくは選択的接触還元触媒であることが好適である。前記選択的接触還元触媒が、バナジウム酸化物の1種以上と、Cu及びFeのうちの1種以上を含有するゼオライト材料とを含み、より好ましく、Cu及びFeのうちの1種以上を含有するゼオライト材料を含むことがより好適である。

【0103】

第6の触媒が入口端と出口端を有し、第6の基材に設けたコーティングを具備することが好適であり、排気ガス処理システムにおいて、第6の触媒は第5の触媒の下流に配置され、第6の触媒の入口端が第6の触媒の出口端の上流に配置され、第5の触媒の出口端が第6の触媒の入口端と流体連通し、第5の触媒の出口端と第6の触媒の入口端の間に、排気ガス処理システム内の第5の触媒を出た排気ガスを処理するための触媒が設けられていないことが好適である。

30

【0104】

本システムは、内燃機関から排出される排気ガス流に流体を注入する噴射装置をさらに備えてなり、該噴射装置は、第6の触媒の上流及び第5の触媒の下流に設置され、その流体は、より好ましくは、尿素水溶液であることが好適である。

【0105】

上記のようにする代わりに、第5の触媒がディーゼル酸化触媒であり、第6の触媒が触媒付すすフィルタであることがより好ましい。

40

【0106】

第5の触媒は、入口端と出口端を有し、かつ、第5の基材上に、より好ましくはウォールフローフィルタ基材上に設けたコーティングを有することが一層好適である。ここで、排気ガス処理システムにおいて、第5の触媒が、第4の触媒の下流に位置し、第5の触媒の入口端が第5の触媒の出口端よりも上流に配置されており、また、第4の触媒の出口端は、第5の触媒の入口端と流体連通しており、第4の触媒の出口端と第5の触媒の入口端との間には、排気ガス処理システム内の第4の触媒を出た排気ガスを処理する触媒が配置されていない。

【0107】

50

第6の触媒が入口端と出口端を有し、かつ、第6の基材に設けたコーティングを具備することがより好適であり、排気ガス処理システムにおいて、第6の触媒は第5の触媒の下流に配置され、第6の触媒の入口端が第6の触媒の出口端の上流に配置され、第5の触媒の出口端が第6の触媒の入口端と流体連通し、第5の触媒の出口端と第6の触媒の入口端の間に、排気ガス処理システム内の第5の触媒を出た排気ガス进行处理するための触媒が設けられていないことがより好適である。

【0108】

本発明のシステムは、内燃機関から排出される排気ガス流に流体を注入するための噴射装置をさらに備え、前記噴射装置は、第1触媒の上流側かつ排気ガス処理システムの上流側端部の下流に配置されていることが好適であり、該流体は、尿素水溶液であることがより好ましい。

10

【0109】

本発明のシステムは、内燃機関から排出される排気ガス流に流体を注入するための噴射装置をさらに備えており、噴射装置（複数も含む）は選択的接触還元触媒の上流に位置することが好適であり、該流体は尿素水溶液であることがより好ましい。

【0110】

(i)に記載の第1の触媒の上流で、かつ、排気ガス処理システムの上流端の下流には、炭化水素噴射装置が配置されていないことが好適である。

【0111】

本発明のシステムは、(i)に記載の第1の触媒、(ii)に記載の炭化水素噴射装置、(iii)に記載の第2の触媒、及び、より好ましくは前記で定義した(iv)に記載の第3の触媒、及び、さらに好ましくは前記で定義した第4～第6の触媒の1つ以上からなることが好適である。

20

【0112】

本発明は、さらに、本発明の排気ガス処理システムの第1の触媒を製造するための方法であって、

(a)水と、酸化バナジウムの溶液と、チタンを含む第1の酸化物材料とを含む混合物を準備すること、

(b)(a)で得た混合物を第1の基材の内壁の表面に配置し、スラリー処理した基材を得ること、ここで、該第1の基材が、入口端、出口端、及び第1の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、かつ、内壁によって画定された複数の通路を備えてなり、ここで、該通路と内壁との間の界面が内壁の表面によって画定されている、

30

(c)任意に、(b)で得たスラリー処理した基材を乾燥させて、コーティングをその上に配置した基材を得ること、

(d)(b)で得たスラリー処理した基材、好ましくは(c)で得た乾燥したスラリー処理した基材を焼成し、コートした(coated)基材を得ること

を含み、

また、任意で、

(b') (a)で得た混合物を、(d)で得た基材上に配置したコーティングの表面上に配置すること、

40

(c')任意に、(b')で得たスラリー処理した基材を乾燥させること、

(d') (b')で得たスラリー処理した基材、又は(c')で得た乾燥したスラリー処理した基材を焼成すること

を含み、

ここで、(d)又は(d')から、第1の触媒を得る、方法に関する。

【0113】

(a)に関し、下記の構成を含むことが好適である。すなわち、

(a.1)水と、チタンを含有する第1の酸化物担体とを含む混合物を用意する。ここで、第1の酸化物担体が、さらに、タングステン、ケイ素、ジルコニウム及びアンチモンのうちの1種以上、より好ましくは、タングステン、ケイ素及びアンチモンのうちの1種以

50

上を含有する。

(a. 2) (a. 1) で得た混合物に、酸化バナジウムの溶液、より好ましくはシュウ酸バナジウム、バナジン酸アンモニウム及び酸化バナジウムのうち1種以上の溶液、より好ましくはシュウ酸バナジウムの溶液を加える。

(a. 3) より好ましくは、酸化物バインダーの供給源を加える。酸化物バインダーの供給源は、コロイダルシリカ、アルミナ及びジルコニアの1種以上であり、より好ましくはコロイダルシリカである。

【0114】

(b) は、当該混合物を基材の軸方向の長さの95～100%、より好ましくは98～100%、さらに好ましくは99～100%にわたって配置することを含むことが好適である。

10

【0115】

(b) に記載の混合物の配置は、該混合物を基材上に噴霧するか、又は基材を該混合物に浸漬することによって行うことが好適であり、より好ましくは基材を混合物に浸漬することである。

【0116】

(c) に記載の乾燥は、90～200℃、より好ましくは120～160℃の範囲の温度のガス雰囲気中で行うことが好適である。

【0117】

(c) に記載の乾燥は、ガス雰囲気中で5～300分の範囲、より好ましくは20～60分の範囲の時間行うことが好適である。

20

【0118】

(c) で得た乾燥したスラリー処理基材は、含水率が0～30%の範囲であることが好ましく、より好ましくは5～25%の範囲、さらに好ましくは15～20%の範囲であることが好適である。

【0119】

ガス雰囲気としては、空気、希薄な空気、及び酸素の1種以上を含むこと、より好ましくは、これらの1種以上であることが好適であり、より好ましくは、空気を含むか、より好ましくは、空気である。

【0120】

(d) に記載の焼成は、300～600℃の範囲、より好ましくは400～550℃の範囲の温度のガス雰囲気中で行うことが好適である。

30

【0121】

(d) に記載の焼成は、ガス雰囲気中で5分～120分の範囲、より好ましくは20分～40分の範囲の持続時間で行うことが好適である。

【0122】

ガス雰囲気としては、空気、希薄な空気、及び酸素の1種以上を含むこと、より好ましくは、これらの1種以上であることが好適であり、より好ましくは、空気を含むか、より好ましくは、空気である。

【0123】

(b') は、基材の軸方向の長さの95～100%、より好ましくは98～100%、さらに好ましくは99～100%にわたって、混合物を配置することを含むことが好適である。

40

【0124】

(b') に記載の混合物の配置は、混合物を基材上に噴霧するか、又は基材を該混合物に浸漬することによって行うことが好適であり、より好ましくは基材を混合物に浸漬することである。

【0125】

(c') に記載の乾燥は、90～200℃の範囲の温度、より好ましくは120～160℃の範囲の温度を有するガス雰囲気中で行うことが好適である。

50

【0126】

(c')に記載の乾燥は、ガス雰囲気中で5分～300分の範囲、より好ましくは20分～60分の範囲の持続時間行うことが好適である。

【0127】

(c')で得た乾燥したスラリー処理基材は、含水率が0～30%の範囲であることが好ましく、より好ましくは5～25%の範囲、さらに好ましくは15～20%の範囲であることが好適である。

【0128】

ガス雰囲気としては、空気、希薄な空気、及び酸素の1種以上を含むこと、より好ましくは、これらの1種以上であることが好適であり、より好ましくは、空気を含むか、より好ましくは、空気である。

【0129】

(d')に記載の焼成は、300～600℃の範囲、より好ましくは400～550℃の範囲の温度のガス雰囲気中で行うことが好適である。

【0130】

(d')に記載の焼成は、ガス雰囲気中で5分～120分の範囲、より好ましくは20分～40分の範囲の持続時間で行うことが好適である。

【0131】

ガス雰囲気としては、空気、希薄な空気、及び酸素の1種以上を含むこと、より好ましくは、これらの1種以上であることが好適であり、より好ましくは、空気を含むか、より好ましくは、空気である。

【0132】

上記方法は、(a)、(b)、(c)、(d)及び任意に(b')、(c')及び(d')からなることが好適である。

【0133】

本発明は、さらに、本発明の排気ガス処理システムにおける触媒、より好ましくは(i)に記載の第1の触媒であって、本発明に係る方法によって得られた、又は得られる触媒に関するものである。

【0134】

本発明は、さらに、NO_xの選択的接触還元を用いるための本発明の触媒の使用に関するものである。

【0135】

本発明はさらに、内燃機関から出る、好ましくはディーゼルエンジンから出る排気ガスを処理するための、本発明に係る排気ガス処理システムの使用に関するものである。

【0136】

本発明は、さらに、内燃機関から出る排気ガス流を処理する方法であって、
(1) 内燃機関、好ましくはディーゼルエンジンからの排気ガス流を用意すること、ここで、該排気ガス流が、NO_x、アンモニア、一酸化窒素及び炭化水素のうちの1種以上を含むものであり、

(2) (1)で用意された排気ガス流を本発明に係る排気ガスシステムに通すことを備える方法に関する。

【0137】

本発明につき、以下の一連の実施形態と、示された従属関係と後方参照から生じる実施形態の組合せによって説明する。特に、例えば「実施形態1～4のいずれか一項に記載のシステム」といった用語に関連して、一定の範囲の実施形態に言及している項では、この範囲内の全ての実施形態を当業者に明示的に開示するものであることを意味しており、すなわち、この用語の文言は、「実施形態1、2、3及び4のいずれか一項に記載のシステム」と同義であると当業者に理解されるべきものであることに留意されたい。さらに、以下の一連の実施形態は、保護の範囲を決定する特許請求の範囲における請求項のセットではなく、本発明の一般的かつ好適な態様について適切に系統立てた説明部分を示すもので

10

20

30

40

50

あることを明示的に指摘しておきたい。

【0138】

1. 内燃機関から排出される排気ガス流を処理する排気ガス処理システムであって、該排気ガス処理システムが、該排気ガス流を該排気ガス処理システムに導入するための上流端を有し、該排気ガス処理システムが、

(i) 入口端及び出口端を有し、かつ、コーティング（被膜）及び第1の基材を具備する第1の触媒であって、ここで、第1の基材が、入口端、出口端、及び該第1の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、内壁によって画定される複数の通路を備え、ここで、該通路と内壁との間の界面が、内壁の表面によって画定されており、ここで、該コーティングが第1の基材の内壁の表面上に配置され、該コーティングが、チタンを含有する第1の酸化物担体に担持されたバナジウム酸化物を含むものである、第1の触媒、

(ii) (i) に記載の第1の触媒の出口端を出る排気ガス流に、炭化水素を含む流体を注入するための炭化水素噴射装置、

(iii) 入口端及び出口端を有し、かつ、コーティング及び第2の基材を具備する第2の触媒であって、ここで、第2の基材が、入口端、出口端、及び該第2の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、内壁によって画定される複数の通路を備え、ここで、該通路と内壁との間の界面が、内壁の表面によって画定されており、ここで、該コーティングが第2の基材の内壁の表面上に配置され、該コーティングが、ジルコニウム、ケイ素、アルミニウム、及びチタンのうちの1種以上を含有する第2の酸化物担体に担持されたパラジウムを含むものである、第2の触媒を備えており、

ここで、(i) に記載の第1の触媒は、排気ガス処理装置の上流端よりも下流側の排気ガス処理システムの第1の触媒であり、第1の触媒の入口端が、第1の触媒の出口端の上流側に配置され、

排気ガス処理システムにおいて、(iii) に記載の第2の触媒が、(i) に記載の第1の触媒の下流で、かつ、(ii) に記載の炭化水素噴射装置の下流に位置し、第2の触媒の入口端が、第2の触媒の出口端の上流に配置されている、排気ガス処理システム。

【0139】

2. (i) に記載の第1の触媒の出口端が、(iii) に記載の第2の触媒の入口端と流体連通しており、(i) に記載の第1の触媒の出口端と(iii) に記載の第2の触媒の入口端との間には、第1の触媒を出る排気ガス流を処理する触媒が排気ガス処理システムに配置されていない、実施形態1に記載のシステム。

【0140】

3. 第1の触媒が、窒素酸化物(NO_x)還元成分を具備する、実施形態1又は2に記載のシステム。

【0141】

4. 第1の触媒に含まれるバナジウム酸化物が、酸化バナジウム(V)、酸化バナジウム(IV)、及び酸化バナジウム(III)のうちの1種以上である、実施形態1～3のいずれか一項のシステム。

【0142】

5. 第1の触媒のコーティングが、第1の酸化物担体の質量に基づいて、1.0～10質量%の範囲の量、好ましくは2.0～8.0質量%の範囲の量、より好ましくは2.5～6.0質量%の範囲の量の該バナジウム酸化物を含む、実施形態1～4のいずれか一項に記載のシステム。

【0143】

6. チタンを含有する第1の酸化物担体が、タングステン、ケイ素、ジルコニウム及びアンチモンのうちの1種以上、好ましくはタングステン、ケイ素及びアンチモンのうちの1種以上をさらに含み、

第1の酸化物担体が、好ましくは、タングステンとケイ素をさらに含み、又は、第1の酸化物担体が、好ましくは、アンチモンとケイ素をさらに含む、実施形態1～5のいずれか一項に記載のシステム。

【0144】

7. 第1の酸化物担体の80～98質量%、より好ましくは85～95質量%がチタニアからなり、ここで、第1の酸化物担体の好ましくは2～10質量%、より好ましくは5～15質量%がタングステンとケイ素、又はアンチモンとケイ素からなる（それぞれ WO_3 と SiO_2 、又は Sb_2O_3 と SiO_2 として計算）、実施形態1～6のいずれか一項に記載のシステム。

【0145】

8. 第1の触媒のコーティングが、 $1 \sim 10 \text{ g} / \text{in}^3$ の範囲、好ましくは $2 \sim 7 \text{ g} / \text{in}^3$ の範囲、より好ましくは $3 \sim 5.5 \text{ g} / \text{in}^3$ の範囲の装填量で第1の酸化物担体を含む、実施形態1～7のいずれか一項に記載のシステム。

【0146】

9. 第1触媒のコーティングが、酸化物バインダーをさらに含み、該酸化物バインダーが、好ましくは、アルミナ、シリカ、ジルコニア、及びそれらの2種以上の混合物からなる群から選択され、より好ましくは、アルミナ、シリカ、及びそれらの2種以上の混合物からなる群から選択され、より好ましくは、シリカであり、

第1の触媒のコーティングが、第1の酸化物担体の質量を基準にして、0.5～10質量%の範囲、より好ましくは2～8質量%の範囲、さらに好ましくは3～6質量%の範囲の量の酸化物バインダーを含む、実施形態1～8のいずれか一項に記載のシステム。

【0147】

10. 第1の触媒のコーティングの95～100質量%、好ましくは98～100質量%、より好ましくは99～100質量%、より好ましくは99.5～100質量%が、チタン、好ましくはチタニアを含有する第1の酸化物担体上に担持されたバナジウム酸化物、ここで、より好ましくは第1の酸化物担体がさらにタングステンとケイ素を含有し、及び、好ましくは実施形態9で定義した酸化物バインダーからなる、実施形態1～9のいずれか一項に記載のシステム。

【0148】

11. 第1の触媒のコーティングの最大0.001質量%、より好ましくは0～0.001質量%、さらに好ましくは0～0.0001質量%、より好ましくは0～0.00001質量%が、パラジウムから、好ましくはパラジウムとロジウムとから、より好ましくはパラジウムと白金とロジウムとから、さらに好ましくは白金族金属からなる、実施形態1～10のいずれか一項に記載のシステム。

【0149】

12. 第1の触媒のコーティングの最大0.1質量%、好ましくは0～0.1質量%、より好ましくは0～0.01質量%、より好ましくは0～0.001質量%が、ゼオライト材料、好ましくはモレキュラーシーブからなる、実施形態1～11のいずれか一項に記載のシステム。

【0150】

13. 第1の基材が、コーディエライト、チタン酸アルミニウム及び炭化ケイ素のうちの1種以上からなり、好ましくは、コーディエライト及び炭化ケイ素のうちの1種以上からなり、より好ましくは、コーディエライトからなり、

第1の基材が、好ましくはウォールフローフィルタ基材又はフロースルー基材であり、より好ましくはフロースルー基材であり、より好ましくはコージェライトフロースルー基材であり、

第1の基材が、金属物質を含み、好ましくは、金属物質からなり、該金属物質が、酸素と、鉄、クロム及びアルミニウムのうちの1種以上とを、好ましくは、含み、より好ましくは、（前述したもの）からなり、

第1の基材が、好ましくはウォールフローフィルタ基材又はフロースルー基材であり、

10

20

30

40

50

より好ましくはフローズルー基材であり、より好ましくは金属フローズルー基材である、実施形態 1～12 のいずれか一項に記載のシステム。

【0151】

14. 第1の触媒が、 $1.5 \sim 12 \text{ g/in}^3$ の範囲、好ましくは $2.5 \sim 8 \text{ g/in}^3$ の範囲、さらに好ましくは $3.5 \sim 6 \text{ g/in}^3$ の範囲の装填量でコーティングを含み、

第1の触媒のコーティングが、第1の基材の軸方向の長さの $95 \sim 100\%$ 、より好ましくは $98 \sim 100\%$ 、さらに好ましくは $99 \sim 100\%$ にわたって広がっている、実施形態 1～13 のいずれか一項に記載のシステム。

【0152】

15. (i) に記載の第1の触媒がコーティングと第1の基材からなる、実施形態 1～14 のいずれか一項に記載のシステム。

【0153】

16. (iii) に記載の第2の触媒のコーティングに含まれる第2の酸化物担体が、ジルコニウム及びアルミニウムのうちの1種以上、好ましくはアルミニウム、及び、任意にジルコニウムを含み、

第2の酸化物担体のより好ましくは $90 \sim 100$ 質量%、より好ましくは $95 \sim 100$ 質量%、より好ましくは $98 \sim 100$ 質量%、より好ましくは $99 \sim 100$ 質量%が、アルミニウム、酸素、及び任意にジルコニウムからなり、

第2の酸化物担体のより好ましくは $60 \sim 95$ 質量%、より好ましくは $75 \sim 85$ 質量%がアルミナからなり、第2の酸化物担体のより好ましくは $5 \sim 40$ 質量%、より好ましくは $15 \sim 25$ 質量%がジルコニアからなる、実施形態 1～15 のいずれか一項に記載のシステム。

【0154】

17. (iii) に記載の第2の触媒のコーティングは、 $0.25 \sim 5 \text{ g/in}^3$ の範囲、より好ましくは $0.5 \sim 5 \text{ g/in}^3$ の範囲、より好ましくは $0.75 \sim 4 \text{ g/in}^3$ の範囲、より好ましくは $1 \sim 2 \text{ g/in}^3$ の範囲の装填量で第2の酸化物担体を含む、実施形態 1～16 のいずれか一項に記載のシステム。

【0155】

18. (iii) に記載の第2の触媒のコーティングが、 $5 \sim 90 \text{ g/ft}^3$ の範囲、好ましくは $10 \sim 70 \text{ g/ft}^3$ の範囲、より好ましくは $30 \sim 60 \text{ g/ft}^3$ の範囲の量のパラジウムを含む、実施形態 1～17 のいずれか一項に記載のシステム。

【0156】

19. パラジウムが、(iii) に記載の第2の触媒のコーティング中に存在する唯一の白金族金属である、実施形態 1～18 のいずれか一項に記載のシステム。

【0157】

20. 第2の基材が、コーディエライト、チタン酸アルミニウム、及び炭化ケイ素のうちの1種以上、好ましくはコーディエライト及び炭化ケイ素のうちの1種以上、より好ましくはコーディエライトを含み（好ましくは、からなり）、

第2の基材が、好ましくはウォールフローフィルタ基材又はフローズルー基材、より好ましくはフローズルー基材、より好ましくはコーディエライトフローズルー基材であり；又は

第2の基材が、金属物質を含み、好ましくは、金属物質からなり、該金属物質が、酸素と、鉄、クロム及びアルミニウムのうちの1種以上とを、好ましくは、含み（より好ましくは、からなり）、

第2の基材が、好ましくはウォールフローフィルタ基材又はフローズルー基材であり、より好ましくはフローズルー基材であり、より好ましくは金属フローズルー基材である、実施形態 1～19 のいずれか一項に記載のシステム。

【0158】

21. (iii) に記載の第2の触媒がコーティングと第2の基材からなる、実施形態 1～20 のいずれか一項に記載のシステム。

【0159】

22. 第2の触媒のコーティングの最大0.1質量%、好ましくは0~0.1質量%、より好ましくは0~0.01質量%、より好ましくは0~0.001質量%が、バナジウム酸化物からなる、実施形態1~21のいずれか一項に記載のシステム。

【0160】

23. 第2の触媒のコーティングの98~100質量%、好ましくは99~100質量%、より好ましくは99.5~100質量%が、ジルコニウム、ケイ素、アルミニウム、及びチタンのうちの1種以上、好ましくはアルミニウムとジルコニウムを含有する第2の酸化物担体に担持されたパラジウムからなる、実施形態1~22のいずれか一項に記載のシステム。

【0161】

24. (iii)に記載の第2の触媒のコーティングが、ゼオライト材料をさらに含み、該ゼオライト材料が、Cu及びFeのうちの1種以上を含有する、実施形態1~22のいずれか一項に記載のシステム。

【0162】

25. 第2の触媒のコーティングに含まれるゼオライト材料が、骨格型AEI、GME、CHA、MFI、BEA、FAU、MOR又はそれらの2種以上の混合物を有し、好ましくは骨格型AEI、CHA、BEA又はそれらの2種以上の混合物を有し、より好ましくは骨格型CHA又はAEIを有し、より好ましくは骨格型CHAを有する、実施形態24に記載のシステム。

【0163】

26. 第2の触媒のコーティングに含まれるゼオライト材料が銅を含有し、該ゼオライト材料に含まれる銅の量が、CuOとして計算すると、ゼオライト材料の総質量を基準にして、より好ましくは0.5~10質量%の範囲、より好ましくは1~7質量%の範囲、さらに好ましくは2.5~6質量%の範囲であり、

ゼオライト材料中の鉄の量が、Fe₂O₃として計算すると、ゼオライト材料の総質量を基準にして、より好ましくは0~0.01質量%、より好ましくは0~0.001質量%、さらに好ましくは0~0.0001質量%の範囲である、実施形態24又は25に記載のシステム。

【0164】

27. 第2の触媒のコーティングに含まれるゼオライト材料の骨格構造の95~100質量%、好ましくは98~100質量%、さらに好ましくは99~100質量%、より好ましくは99.5~100質量%が、Si、Al、O及びHからなり、骨格構造中、Si:Alのモル比(モルSiO₂:Al₂O₃として計算)が、好ましくは2:1~50:1の範囲、より好ましくは4:1~45:1の範囲、より好ましくは10:1~40:1の範囲、より好ましくは15:1~35:1の範囲である、実施形態24~26のいずれか一項に記載のシステム。

【0165】

28. 第2の触媒のコーティングに含まれるゼオライト材料が鉄を含有し、ゼオライト材料に含まれる鉄の量が、Fe₂O₃として計算して、ゼオライト材料の全質量に基づいて、好ましくは0.1~10.0質量%の範囲、より好ましくは1.0~7.0質量%の範囲、さらに好ましくは2.5~5.5質量%の範囲であり、ゼオライト材料の骨格構造の、好ましくは95~100質量%、より好ましくは98~100質量%、より好ましくは99~100質量%、さらに好ましくは99.5~100質量%が、Si、Al、O及びHからなり、骨格構造において、Si対Alのモル比が、モルSiO₂:Al₂O₃として計算して、好ましくは2:1~50:1の範囲、より好ましくは4:1~45:1の範囲、より好ましくは10:1~40:1の範囲、より好ましくは15:1~35:1の範囲である、実施形態24又は25に記載のシステム。

【0166】

29. 第2の触媒のコーティングに含まれるゼオライト材料であって、好ましくは、骨

10

20

30

40

50

格型CHAを有するゼオライト材料が、走査型電子顕微鏡で測定した平均結晶粒径 (mean crystallite size) が少なくとも0.1マイクロメートル、好ましくは0.1~3.0マイクロメートルの範囲、より好ましくは0.3~1.5マイクロメートルの範囲、より好ましくは0.4~1.0マイクロメートルの範囲である、実施形態24~28のいずれか一項に記載のシステム。

【0167】

30. 第2の触媒のコーティングは、0.2~8 g/in³の範囲、より好ましくは0.5~6 g/in³の範囲、より好ましくは1~4 g/in³の範囲の装填量でゼオライト材料を含み、(iii)に記載の第2の触媒のコーティングが0.3~0.75 g/in³、より好ましくは0.4~0.6 g/in³の範囲の装填量で第2の酸化物担体を含む、実施形態24~29のいずれか一項に記載のシステム。

10

【0168】

31. (iv)に記載の第2の触媒のコーティングが、酸化物バインダーをさらに含み、ここで、該酸化物バインダーが、好ましくは、アルミナ、シリカ、ジルコニア、及びそれらの2種以上の混合物からなる群から選択され、より好ましくは、アルミナ、ジルコニア、及びそれらの2種以上の混合物からなる群から選択され、より好ましくは、ジルコニアであり、

第2の触媒のコーティングが、好ましくは、ゼオライト材料の総質量を基準にして、0.5~10質量%の範囲、好ましくは2~8質量%の範囲、より好ましくは3~6質量%の範囲の量の該酸化物バインダーを含む、実施形態24~30のいずれか一項に記載のシステム。

20

【0169】

32. 第2の触媒のコーティングの95~100質量%、好ましくは98~100質量%、さらに好ましくは99~100質量%、より好ましくは99.5~100質量%が、ジルコニウム、ケイ素、アルミニウム、及びチタンのうちの1種以上を含有する第2の酸化物担体上に担持されたパラジウム、Cu及びFeのうちの1種以上を含有するゼオライト材料、及び、好ましくは実施形態31で定義した酸化物バインダーからなる、実施形態24~31のいずれか一項に記載のシステム。

【0170】

33. 第2の触媒が、0.3~5 g/in³の範囲、好ましくは1~4 g/in³の範囲、より好ましくは1.5~4.6 g/in³の範囲の装填量でコーティングを含み、

30

第2の触媒のコーティングが、第2の基材の軸方向の長さの95~100%、より好ましくは98~100%、さらに好ましくは99~100%にわたって広がっている、実施形態1~32のいずれか一項に記載のシステム。

【0171】

34. さらに、

(iv)入口端及び出口端を有し、かつ、コーティング及び第3の基材を具備する第3の触媒であって、ここで、第3の基材が、入口端、出口端、及び該第3の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、内壁によって画定される複数の通路を備え、ここで、該通路と内壁との間の界面が、内壁の表面によって画定されており、ここで、該コーティングが第3の基材の内壁の表面上に配置され、該コーティングが、バナジウム酸化物の1種以上と、Cu及びFeのうちの1種以上を含有するゼオライト材料を含むものである、第3の触媒を備え、

40

ここで、排気ガス処理システムにおいて、(iv)に記載の第3の触媒が、(iii)に記載の第2の触媒の下流に位置し、第3の触媒の入口端が、第3の触媒の出口端の上流に配置されている、実施形態1~33のいずれか一項に記載のシステム。

【0172】

35. (iii)に記載の第2の触媒の出口端は、(iv)に記載の第3の触媒の入口端と流体連通しており、(iii)に記載の第2の触媒の出口端と(iv)に記載の第3

50

の触媒の入口端との間には、第2の触媒を出る排気ガス流を処理する触媒が排気ガス処理システムに配置されていない、実施形態34に記載のシステム。

【0173】

36. (iv)に記載の第3触媒のコーティングが、Cu及びFeのうちの1種以上を含有するゼオライト材料を含む、実施形態34又は35に記載のシステム。

【0174】

37. 第3の触媒のコーティングに含まれるゼオライト材料が、骨格型AEI、GME、CHA、MFI、BEA、FAU、MOR又はそれらの2種以上の混合物を有し、好ましくは骨格型AEI、CHA、BEA又はそれらの2種以上の混合物を有し、より好ましくは骨格型CHA又はAEIを有し、より好ましくは骨格型CHAを有する、実施形態36に記載のシステム。

【0175】

38. 第3の触媒のコーティングに含まれるゼオライト材料が銅を含有し、この場合、ゼオライト材料に含まれる銅の量は、CuOとして計算して、ゼオライト材料の総質量を基準にして、好ましくは0.5～10質量%、より好ましくは1～8質量%、さらに好ましくは2～7質量%、さらに好ましくは3～6質量%の範囲であり、

ゼオライト材料中の鉄の量が、Fe₂O₃として計算すると、ゼオライト材料の総質量を基準にして、より好ましくは0～0.01質量%、より好ましくは0～0.001質量%、さらに好ましくは0～0.0001質量%の範囲である、実施形態36又は37に記載のシステム。

【0176】

39. 第3の触媒のコーティングに含まれるゼオライト材料の骨格構造の95～100質量%、好ましくは98～100質量%、さらに好ましくは99～100質量%、より好ましくは99.5～100質量%が、Si、Al、O及びHからなり、骨格構造中、Si：Alのモル比（モルSiO₂：Al₂O₃として計算）が、好ましくは2：1～50：1の範囲、より好ましくは4：1～45：1の範囲、より好ましくは10：1～40：1の範囲、より好ましくは15：1～35：1の範囲である、実施形態36～38のいずれか一項に記載のシステム。

【0177】

40. 第3の触媒のコーティングに含まれるゼオライト材料が鉄を含有し、ゼオライト材料に含まれる鉄の量が、Fe₂O₃として計算して、ゼオライト材料の全質量に基づいて、好ましくは0.1～10.0質量%の範囲、より好ましくは1.0～7.0質量%の範囲、さらに好ましくは2.5～5.5質量%の範囲であり、ゼオライト材料の骨格構造の、好ましくは95～100質量%、より好ましくは98～100質量%、より好ましくは99～100質量%、さらに好ましくは99.5～100質量%が、Si、Al、O及びHからなり、骨格構造において、Si対Alのモル比が、モルSiO₂：Al₂O₃として計算して、好ましくは2：1～50：1の範囲、より好ましくは4：1～45：1の範囲、より好ましくは10：1～40：1の範囲、より好ましくは15：1～35：1の範囲である、実施形態36又は37に記載のシステム。

【0178】

41. 第3の触媒のコーティングに含まれるゼオライト材料であって、好ましくは、骨格型CHAを有するものが、走査型電子顕微鏡で測定した平均結晶粒径が少なくとも0.1マイクロメートル、好ましくは0.1～3.0マイクロメートルの範囲、より好ましくは0.3～1.5マイクロメートルの範囲、より好ましくは0.4～1.0マイクロメートルの範囲である、実施形態36～40のいずれか一項に記載のシステム。

【0179】

42. 第3触媒のコーティングが、0.5～8 g/in³の範囲、好ましくは0.75～5 g/in³の範囲、より好ましくは1～3.5 g/in³の範囲の装填量でゼオライト材料を含む、実施形態36～41のいずれか一項に記載のシステム。

【0180】

43. (iv) に記載の第3の触媒のコーティングが、酸化物バインダーをさらに含み、ここで、該酸化物バインダーが、好ましくは、アルミナ、シリカ、ジルコニア、及びそれらの2種以上の混合物からなる群から選択され、より好ましくは、アルミナ、ジルコニア、及びそれらの2種以上の混合物からなる群から選択され、より好ましくは、ジルコニアである、実施形態36～42のいずれか一項に記載のシステム。

【0181】

44. 第3の触媒のコーティングが、ゼオライト材料の総質量を基準にして、0.5～10質量%の範囲、好ましくは2～8質量%の範囲、より好ましくは3～6質量%の範囲の量の該酸化物バインダーを含む、実施形態42に記載のシステム。

【0182】

45. 第3の触媒のコーティングの最大0.001質量%、好ましくは0～0.001質量%、より好ましくは0～0.0001質量%、さらに好ましくは0～0.00001質量%が、パラジウム、白金及びロジウム、好ましくは白金族金属からなる、実施形態36～44のいずれか一項に記載のシステム。

【0183】

46. 第3の触媒のコーティングの最大0.1質量%、好ましくは0～0.1質量%、より好ましくは0～0.01質量%、より好ましくは0～0.001質量%が、バナジウム酸化物からなる、実施形態36～45のいずれか一項に記載のシステム。

【0184】

47. 第3の触媒のコーティングの95～100質量%、好ましくは98～100質量%、より好ましくは99～100質量%、より好ましくは99.5～100質量%が、Cu及びFeのうちの1種以上を含有するゼオライト材料と、好ましくは実施形態43又は44に記載の酸化物バインダーからなる、実施形態36～46のいずれか一項に記載のシステム。

【0185】

48. (iii) に記載の第2の触媒のコーティングは、ジルコニウム、ケイ素、アルミニウム及びチタンのうちの1種以上、好ましくはアルミニウム及び任意にジルコニウムを含有する第2の酸化物担体に担持されたパラジウムを含み（好ましくは、からなり）、ここで、(iv) に記載の第3の触媒のコーティングが、Cu及びFeのうちの1種以上を含有するゼオライト材料、及び好ましくは実施形態43又は44に記載の酸化物バインダーを含み（好ましくは、からなる）、実施形態36～47のいずれか一項に記載のシステム。

【0186】

49. 第3触媒のコーティングがバナジウム酸化物を含み、該バナジウム酸化物が酸化バナジウム(V)、酸化バナジウム(IV)及び酸化バナジウム(III)のうちの1種以上である、実施形態34又は35に記載のシステム。

【0187】

50. 前記バナジウムが第3の酸化物担体に担持されていて、第3の触媒のコーティングが、第3の酸化物担体の質量を基準にして、好ましくは1.5～10質量%の範囲、より好ましくは2.5～8質量%の範囲、さらに好ましくは3～6質量%の範囲の量の該バナジウム酸化物を含む、実施形態49に記載のシステム。

【0188】

51. 第3の酸化物担体がチタンを含み、第3の酸化物担体が、さらに、タングステン、ケイ素、ジルコニウム、及びアンチモンのうち1種以上、好ましくはタングステン、ケイ素、及びアンチモンのうち1種以上を含む、実施形態49又は50に記載のシステム。

【0189】

52. 第3の酸化物担体が、さらに、タングステン及びケイ素を含み、あるいは第3の酸化物担体が、さらに、アンチモン及びケイ素を含む、実施形態51に記載のシステム。

【0190】

53. 第3の酸化物担体の80～98質量%、より好ましくは85～95質量%がチタ

10

20

30

40

50

ニアからなり、第3の酸化物担体の、好ましくは2～10質量%、より好ましくは5～15質量%がタングステンとケイ素、又はアンチモンとケイ素からなる（それぞれ WO_3 と SiO_2 、又は Sb_2O_3 と SiO_2 として計算）、実施形態50～52のいずれか一項に記載のシステム。

【0191】

54. 第3の触媒のコーティングが、 $1 \sim 10 \text{ g} / \text{in}^3$ の範囲、好ましくは $2 \sim 7 \text{ g} / \text{in}^3$ の範囲、より好ましくは $3 \sim 5.5 \text{ g} / \text{in}^3$ の範囲の装填量で第3の酸化物担体を含む、実施形態50～53のいずれか一項に記載のシステム。

【0192】

55. 第3の触媒のコーティングが、酸化物バインダーをさらに含み、該酸化物バインダーが、好ましくは、アルミナ、シリカ、ジルコニア、及びそれらの2種以上の混合物からなる群から選択され、より好ましくは、アルミナ、シリカ、及びそれらの2種以上の混合物からなる群から選択され、より好ましくは、シリカであり、

10

該コーティングが、第3の酸化物担体の質量を基準にして、0.5～10質量%の範囲、好ましくは2～8質量%の範囲、より好ましくは3～6質量%の範囲の量の該酸化物バインダーを含む、実施形態50～54のいずれか一項に記載のシステム。

【0193】

56. 第3の触媒のコーティングが、白金族金属成分をさらに含み、該白金族金属成分が、パラジウム、白金及びロジウムのうちの1種以上、好ましくは、パラジウム及び白金のうちの1種以上である、実施形態36～44及び49～55のいずれか一項に記載のシステム。

20

【0194】

57. 前記白金族金属成分が、白金及びパラジウムであり、元素状白金族金属として計算した、白金のパラジウムに対する質量比、 $Pt : Pd$ が、好ましくは2:1～18:1の範囲、より好ましくは5:1～15:1の範囲、より好ましくは8:1～12:1の範囲である、実施形態56に記載のシステム。

【0195】

58. 第3の触媒のコーティングが、 $1 \sim 30 \text{ g} / \text{in}^3$ の範囲、より好ましくは $2 \sim 15 \text{ g} / \text{in}^3$ の範囲、より好ましくは $5 \sim 12 \text{ g} / \text{in}^3$ の範囲の装填量で該白金族金属成分を含む、実施形態56又は57に記載のシステム。

30

【0196】

59. 前記白金族金属成分が酸化物材料上に担持されていて、酸化物材料が、好ましくはアルミナ、シリカ、ジルコニア及びチタニアのうちの1種以上、より好ましくはアルミナ、シリカ及びジルコニアのうちの1種以上、より好ましくはアルミナ及びシリカのうちの1種以上であり、酸化物材料は、より好ましくはアルミナにジルコニアをドーブしたものである、実施形態56～58のいずれか一項に記載のシステム。

【0197】

60. 第3の触媒のコーティングが、 $0.1 \sim 4 \text{ g} / \text{in}^3$ の範囲、より好ましくは $0.2 \sim 2 \text{ g} / \text{in}^3$ の範囲、さらに好ましくは $0.5 \sim 1.5 \text{ g} / \text{in}^3$ の範囲の装填量で白金族金属成分を担持する酸化物材料を含む、実施形態59に記載のシステム。

40

【0198】

61. 第3の触媒のコーティングの95～100質量%、好ましくは98～100質量%、より好ましくは99～100質量%、より好ましくは99.5～100質量%が、白金族成分、好ましくは実施形態59又は60で定義した酸化物材料に担持された白金族成分と、第3の酸化物担体に担持されたバナジウム酸化物と、好ましくは実施形態55で定義した酸化物バインダーからなる、実施形態56～60のいずれか一項に記載のシステム。

【0199】

62. 第3の触媒のコーティングの95～100質量%、好ましくは98～100質量%、より好ましくは99～100質量%、より好ましくは99.5～100質量%が、白金族成分、好ましくは実施形態59又は60で定義した酸化材料に担持された白金族成分

50

と、Cu及びFeのうちの1種以上を含有するゼオライト材料と、好ましくは実施形態43又は44に記載の酸化物バインダーからなる、実施形態56～60のいずれか一項に記載のシステム。

【0200】

63. 第3の基材が、コーディエライト、チタン酸アルミニウム、及び炭化ケイ素のうちの1種以上、好ましくはコーディエライト及び炭化ケイ素のうちの1種以上、より好ましくはコーディエライトを含み、好ましくは、なり、

第3の基材が、好ましくはウォールフローフィルタ基材又はフロースルー基材、より好ましくはフロースルー基材、より好ましくはコーディエライトフロースルー基材である、実施形態34～62のいずれか一項に記載のシステム。

10

【0201】

64. 第3の触媒が、 $0.75 \sim 10 \text{ g/in}^3$ の範囲、好ましくは $1 \sim 7 \text{ g/in}^3$ の範囲、より好ましくは $1.5 \sim 5.5 \text{ g/in}^3$ の範囲の装填量でコーティングを含み、

第3の触媒のコーティングが、第3の基材の軸方向の長さの95～100%、より好ましくは98～100%、さらに好ましくは99～100%にわたって広がっている、実施形態34～63のいずれか一項に記載のシステム。

【0202】

65. 第3の触媒の第3の基材が、 $2.54 \sim 25.4 \text{ cm}$ (1～10インチ)の範囲、好ましくは $3.81 \sim 17.78 \text{ cm}$ (1.5～7インチ)の範囲、さらに好ましくは $5.08 \sim 10.16 \text{ cm}$ (2～4インチ)の範囲の基材長を有する、実施形態34～64のいずれか一項に記載のシステム。

20

【0203】

66. 第3の触媒の第3の基材が、 $10.16 \sim 43.18 \text{ cm}$ (4～17インチ)の範囲、好ましくは $17.78 \sim 38.10 \text{ cm}$ (7～15インチ)の範囲、より好ましくは $22.86 \sim 30.48 \text{ cm}$ (9～12インチ)の範囲の基材幅を有する、実施形態34～65のいずれか一項に記載のシステム。

【0204】

67. (iv)に記載の第3の触媒が、コーティングと第3の基材からなる、実施形態34～66のいずれか一項に記載のシステム。

【0205】

68. 第1の触媒の第1の基材が、 $2.54 \sim 25.4 \text{ cm}$ (1～10インチ)の範囲、好ましくは $5.08 \sim 20.32 \text{ cm}$ (2～8インチ)の範囲、より好ましくは $7.62 \sim 15.24 \text{ cm}$ (3～6インチ)の範囲の基材長を有する、実施形態1～67のいずれか一項に記載のシステム。

30

【0206】

69. 第1の触媒の第1の基材は、 $2.54 \sim 50.8 \text{ cm}$ (1～20インチ)の範囲、好ましくは $12.7 \sim 43.18 \text{ cm}$ (5～17インチ)の範囲、より好ましくは $20.32 \sim 38.1 \text{ cm}$ (8～15インチ)の範囲の基材幅を有する、実施形態1～68のいずれか一項に記載のシステム。

【0207】

70. 第2の触媒の第2の基材が、 $2.54 \sim 25.4 \text{ cm}$ (1～10インチ)の範囲、好ましくは $3.81 \sim 17.78 \text{ cm}$ (1.5～7インチ)の範囲、さらに好ましくは $5.08 \sim 10.16 \text{ cm}$ (2～4インチ)の範囲の基材長を有する、実施形態34～64のいずれか一項に記載のシステム。

40

【0208】

71. 第2の触媒の第2の基材が、 $10.16 \sim 50.8 \text{ cm}$ (4～20インチ)の範囲、好ましくは $17.78 \sim 43.18 \text{ cm}$ (7～17インチ)の範囲、より好ましくは $22.86 \sim 38.1 \text{ cm}$ (9～15インチ)の範囲の基材幅を有する、実施形態34～65のいずれか一項に記載のシステム。

【0209】

50

72. 第4の触媒をさらに含み、第4の触媒は、アンモニア酸化触媒、触媒付すすフィルタ、及び選択的接触還元触媒のうちの1種以上である、実施形態34～71のいずれか一項に記載のシステム。

【0210】

73. 第4の触媒が、アンモニア酸化触媒であり、第4の触媒は、入口端及び出口端を有し、かつ、コーティング及び第4の基材を具備し、第4の基材が、入口端、出口端、及び該第4の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、内壁によって画定される複数の通路を備え、該通路と内壁との間の界面が、内壁の表面によって画定されており、該コーティングが第4の基材の内壁の表面上に配置され、該コーティングがアンモニア酸化成分を含み、

10

排気ガス処理システムにおいて、第4の触媒が、(iv)に記載の第3の触媒の下流に位置し、第4の触媒の入口端が第4の触媒の出口端よりも上流に配置されており、

(iv)に記載の第3の触媒の出口端が、第4の触媒の入口端と流体連通しており、排気ガス処理システムでは第3の触媒の出口端と第4の触媒の入口端の間には、第3の触媒を出る排気ガスを処理する触媒が配置されていない、実施形態72に記載のシステム。

【0211】

74. 第4の触媒のコーティングのアンモニア酸化成分が、白金族金属成分と、バナジウム酸化物の1種以上と、Cu及びFeのうちの1種以上を含有するゼオライト材料、好ましくは、白金族金属成分と、Cu及びFeのうちの1種以上を含有するゼオライト材料を含む、実施形態73に記載のシステム。

20

【0212】

75. 第4の触媒のコーティングのアンモニア酸化成分が、酸化物担体に担持された白金族金属成分、好ましくはパラジウム及び白金の1種以上と、Cuを含有する、好ましくは、骨格型CHAを有するゼオライト材料を含む、好ましくは、(前記のもの)からなる、実施形態74に記載のシステム。

【0213】

76. 第5の触媒をさらに含み、第5の触媒が、アンモニア酸化触媒、ディーゼル酸化触媒、触媒付すすフィルタ、及び選択的接触還元触媒のうちの1種以上であり、好ましくは触媒付すすフィルタである、実施形態72～75のいずれか一項に記載のシステム。

【0214】

30

77. 第5の触媒が、入口端及び出口端を有し、かつ、第5の基材、好ましくはウォールフローフィルタ基材上にコーティングを具備し、排気ガス処理システムにおいて、第5の触媒は、第4の触媒の下流に配置され、第5の触媒の入口端は、第5の触媒の出口端の上流に配置されていて、

第4触媒の出口端が第5触媒の入口端と流体連通しており、排気ガス処理システムにおいて、第4触媒の出口端と第5触媒の入口端との間に、第4触媒を出た排気ガスを処理する触媒が配置されていない、実施形態76に記載のシステム。

【0215】

78. 第6の触媒をさらに含み、第6の触媒が、アンモニア酸化触媒、触媒付すすフィルタ及び選択的接触還元触媒のうちの1種以上、好ましくは選択的接触還元触媒であり、

40

該選択的接触還元触媒が、好ましくは、バナジウム酸化物の1種以上と、Cu及びFeのうちの1種以上を含有するゼオライト材料を含み、より好ましくは、Cu及びFeのうちの1種以上を含有するゼオライト材料を含む、実施形態76又は77に記載のシステム。

【0216】

79. 第6の触媒が、入口端及び出口端を有し、かつ、第6の基材上にコーティングを具備し、排気ガス処理システムにおいて、第6の触媒は第5の触媒の下流に配置され、第6の触媒の入口端は第6の触媒の出口端の上流に配置されていて、

第5の触媒の出口端が第6の触媒の入口端と流体連通しており、排気ガス処理システムにおいて、第5の触媒の出口端と第6触媒の入口端との間に、第5触媒を出た排気ガスを処理する触媒が配置されていない、実施形態78に記載のシステム。

50

【0217】

80. さらに、内燃機関を出る排気ガス流に流体を注入する噴射装置を備え、該噴射装置は、第6の触媒の上流で第5の触媒の下流に位置し、

該流体が、好ましくは、尿素水溶液である、請求項78又は79に記載のシステム。

【0218】

81. さらに、内燃機関を出る排気ガス流に流体を注入する噴射装置を備え、該噴射装置が、第1の触媒の上流で、排気ガス処理システムの上流端の下流に位置し、

該流体が、好ましくは、尿素水溶液であり、

第1の触媒の上流、及び、排気ガス処理システムの上流端の下流には、炭化水素噴射装置が配置されていない、実施形態1～80のいずれか一項に記載のシステム。

10

【0219】

82. (i)に記載の第1の触媒、(ii)に記載の炭化水素噴射装置、(iii)に記載の第2の触媒、好ましくは実施形態34～67のいずれか一項に定義した(iv)に記載の第3の触媒、より好ましくは実施形態72～79のいずれか一項に定義した第4～第6の触媒のうちの1つ以上、さらに好ましくは実施形態80又は81に定義された噴射装置(複数を含む)からなる、実施形態1～81のいずれか一項に記載のシステム。

【0220】

83. 実施形態1～82のいずれか一項に記載の排気ガス処理システムの第1の触媒を製造する方法であって、

(a) 水と、バナジウム酸化物の溶液と、チタンを含有する第1の酸化物材料とを含む混合物を準備すること、

20

(b) (a)で得た混合物を第1の基材の内壁の表面に配置し、スラリー処理した基材を得ること、ここで、該第1の基材が、入口端、出口端、及び第1の基材の入口端から出口端まで延びる基材軸方向の長さを有し、かつ、内壁によって画定された複数の通路を備えてなり、ここで、該通路と内壁との間の界面が内壁の表面によって画定されている、

(c) 任意に、(b)で得たスラリー処理した基材を乾燥させて、コーティングをその上に配置した基材を得ること、

(d) (b)で得たスラリー処理した基材、好ましくは(c)で得た乾燥したスラリー処理した基材を焼成し、コートした基材を得ること

を含み、

30

また、任意で、

(b') (a)で得た混合物を、(d)で得た基材上に配置したコーティングの表面上に配置すること、

(c') 任意に、(b')で得たスラリー処理した基材を乾燥させること、

(d') (b')で得たスラリー処理した基材、又は(c')で得た乾燥したスラリー処理した基材を焼成すること

を含み、

(d)又は(d')から、第1の触媒を得る、

方法。

【0221】

40

84. 前記(a)が、

(a.1) 水と、チタンを含有する第1の酸化物担体とを含む混合物を用意すること、ここで、第1の酸化物担体が、さらに、タングステン、ケイ素、ジルコニウム及びアンチモンのうちの1種以上、より好ましくは、タングステン、ケイ素及びアンチモンのうちの1種以上を含むものであり、

(a.2) (a.1)で得た混合物に、酸化バナジウムの溶液、好ましくはシュウ酸バナジウム、バナジン酸アンモニウム及び酸化バナジウムのうち1種以上の溶液、より好ましくはシュウ酸バナジウムの溶液を加えること、

(a.3) 好ましくは、酸化物バインダーの供給源を加えること、ここで、酸化物バインダーの供給源が、コロイダルシリカ、アルミナ及びジルコニアの1種以上であり、より好

50

ましくはコロイダルシリカである、
を含む、実施形態 8 3 の方法。

【0 2 2 2】

8 5. 前記 (b) が、基材の軸方向の長さの 9 5 ~ 1 0 0 %、より好ましくは 9 8 ~ 1 0 0 %、さらに好ましくは 9 9 ~ 1 0 0 % にわたって、混合物を配置することを含む、実施形態 8 3 又は 8 4 の方法。

【0 2 2 3】

8 6. (b) に記載の混合物の配置を、混合物を基材上に噴霧するか、又は基材を該混合物に浸漬すること、好ましくは基材を混合物に浸漬することにより行う、実施形態 8 3 ~ 8 5 のいずれか一項に記載の方法。

【0 2 2 4】

8 7. (c) に記載の乾燥を、9 0 ~ 2 0 0 °C の範囲の温度、好ましくは 1 2 0 ~ 1 6 0 °C の範囲の温度を有するガス雰囲気中で行う、実施形態 8 3 ~ 8 6 のいずれか一項に記載の方法。

【0 2 2 5】

8 8. (c) に記載の乾燥を、ガス雰囲気中で 5 分 ~ 3 0 0 分の範囲、好ましくは 2 0 分 ~ 6 0 分の範囲の持続時間行う、実施形態 8 3 ~ 8 7 のいずれか一項に記載の方法。

【0 2 2 6】

8 9. (c) で得た乾燥したスラリー処理基材は、含水率が 0 ~ 3 0 % の範囲、好ましくは 5 ~ 2 5 % の範囲、さらに好ましくは 1 5 ~ 2 0 % の範囲である、実施形態 8 3 ~ 8 8 のいずれか 1 項に記載の方法。

【0 2 2 7】

9 0. ガス雰囲気が、空気、希薄な空気、及び酸素の 1 種以上、より好ましくは、空気を含む、好ましくは、である、実施形態 8 7 ~ 8 9 のいずれか一項に記載の方法。

【0 2 2 8】

9 1. (d) に記載の焼成を、3 0 0 ~ 6 0 0 °C の範囲の温度、好ましくは 4 0 0 ~ 5 5 0 °C の範囲の温度を有するガス雰囲気中で行う、実施形態 8 3 ~ 9 0 のいずれか一項に記載の方法。

【0 2 2 9】

9 2. (d) に記載の焼成を、ガス雰囲気中で 5 分 ~ 1 2 0 分の範囲、好ましくは 2 0 分 ~ 4 0 分の範囲の持続時間行う、実施形態 8 3 ~ 9 1 のいずれか一項に記載の方法。

【0 2 3 0】

9 3. ガス雰囲気が、空気、希薄な空気、及び酸素の 1 種以上、より好ましくは、空気を含む（好ましくは、である）、実施形態 9 1 又は 9 2 に記載の方法。

【0 2 3 1】

9 4. 前記 (b') が、基材の軸方向の長さの 9 5 ~ 1 0 0 %、より好ましくは 9 8 ~ 1 0 0 %、さらに好ましくは 9 9 ~ 1 0 0 % にわたって、混合物を配置することを含む、実施形態 8 3 ~ 9 3 のいずれか一項に記載の方法。

【0 2 3 2】

9 5. (b') に記載の混合物の配置を、混合物を基材上に噴霧するか、又は基材を該混合物に浸漬すること、好ましくは基材を混合物に浸漬することにより行う、実施形態 8 3 ~ 9 4 のいずれか一項に記載の方法。

【0 2 3 3】

9 6. (c') に記載の乾燥を、9 0 ~ 2 0 0 °C の範囲の温度、好ましくは 1 2 0 ~ 1 6 0 °C の範囲の温度を有するガス雰囲気中で行う、実施形態 8 3 ~ 9 5 のいずれか一項に記載の方法。

【0 2 3 4】

9 7. (c') に記載の乾燥を、ガス雰囲気中で 5 分 ~ 3 0 0 分の範囲、好ましくは 2 0 分 ~ 6 0 分の範囲の持続時間行う、実施形態 8 3 ~ 9 6 のいずれか一項に記載の方法。

【0 2 3 5】

10

20

30

40

50

98. (c') で得た乾燥したスラリー処理基材は、含水率が0～30%の範囲、好ましくは5～25%の範囲、さらに好ましくは15～20%の範囲である、実施形態83～97のいずれか1項に記載の方法。

【0236】

99. ガス雰囲気、空気、希薄な空気、及び酸素の1種以上、より好ましくは、空気を含む（好ましくは、である）、実施形態96又は97に記載の方法。

【0237】

100. (d') に記載の焼成を、300～600℃の範囲の温度、好ましくは400～550℃の範囲の温度を有するガス雰囲気中で行う、実施形態83～99のいずれか一項に記載の方法。

【0238】

101. (d') に記載の焼成を、ガス雰囲気中で5分～120分の範囲、好ましくは20分～40分の範囲の持続時間行う、実施形態83～100のいずれか一項に記載の方法。

【0239】

102. ガス雰囲気、空気、希薄な空気、及び酸素の1種以上、より好ましくは、空気を含む（好ましくは、である）、実施形態100又は101に記載の方法。

【0240】

103. (a)、(b)、(c)、(d) 及び任意に、(b')、(c') 及び (d') からなる、実施形態83～102のいずれか一項に記載の方法。

【0241】

104. 実施形態1～82のいずれか一項に記載の排気ガス処理システムにおける触媒、好ましくは(i) に記載の第1の触媒であって、実施形態83～103のいずれか一項に記載の方法によって得られた、又は得られる触媒。

【0242】

105. NO_x の選択的接触還元のための、実施形態104に記載の触媒の使用。

【0243】

106. 内燃機関、好ましくはディーゼルエンジンから排出される排気ガス流の処理のための、実施形態1～82のいずれか一項に記載の排気ガス処理の使用。

【0244】

107. 内燃機関から排出される排気ガス流を処理する方法であって、
(1) 内燃機関、好ましくはディーゼルエンジンからの排気ガス流を用意すること、ここで、該排気ガス流が、NO_x、アンモニア、一酸化窒素及び炭化水素のうちの1種以上を含むものであり、
(2) (1) で用意された排気ガス流を、実施形態1～82のいずれか一項に記載の排気ガスシステムに通すこと
を含む方法。

【0245】

本発明との関連では、「内壁の表面」という用語は、壁の「裸の」又は「むき出しの」又は「空白の」表面、すなわち、一表面を汚染している可能性のある不可避の不純物を除いて一当該壁の材料からなる未処理状態の壁の表面として理解されるべきである。

【0246】

さらに、本発明との関連では、「XはA、B、Cのうちの1種以上である」という用語は、Xが所与の特徴事項であり、A、B、Cのそれぞれが前記特徴事項についての特定の実現化を表す場合、Xが、A又はB又はC、AとB、AとC、BとC、又はAとBとC、のいずれかであることを開示しているものと理解される。これに関連して、当業者は、当業者であれば、上記の抽象的な用語を具体例に転換することが可能であることに留意されたい。例えば、Xは化学元素であり、A、B及びCがLi、Na、及びKのような具体的元素である場合、あるいは、Xは温度であり、A、B及びCが10℃、20℃、及び30℃のような具体的な温度である場合などなどである。また、これに関連して、さらに、当

10

20

30

40

50

業者は、上記の用語を、前記特徴のより具体的でない実現化にまで拡張することができることに留意されたい。例えば、「XはA及びBのうち1種以上である」は、XがA又はBであること、あるいは、A及びBであることを開示している。また、あるいは、上記の用語を当該特徴のより具体的な実現化に拡張することが可能であり、例えば、「XはA、B、C及びDのうちの1種以上である」は、XがA又はB又はC又はD、又はAとB、又はAとC、又はAとD、又はBとC、又はBとD、又はCとD、又はAとBとC、又はAとBとD、又はBとCとD、又はAとBとCとDのいずれかであることを開示していることに留意されたい。

【0247】

本発明との関連では、「第Xの触媒の出口端の下流には触媒が配置されていない」という用語は、第Xの触媒の出口端の下流には触媒も又は触媒成分も、配置されていないものと理解されるべきである。しかし、これは、本発明の実施形態によって例示された1種以上の噴射装置の存在を排除するものではない。

【0248】

本発明に関連して、「基材の幅」という用語は、基材が円筒形である場合には、基材の直径をいうものと理解されるべきである。

【0249】

本発明との関連では、1種又は複数の成分の質量%に関する用語「からなる (consists of)」は、当該問題となっている実体の100質量%を基準とした、当該成分の質量%量を示す。例えば、「第1の触媒のコーティングの0～0.001質量%がパラジウムからなる」という表現は、当該コーティングを構成する成分100質量%のうち、0～0.001質量%がパラジウムであることを示している。

【0250】

本発明との関連で、「近位連結型 (close coupled)」触媒という用語は、エンジンから排出される排気ガス流を受け取る最初の触媒となる (当該触媒は、他の触媒成分を間に挟むことなく、エンジンの近くに—すぐ隣接して—設置される) 触媒を定義するために使用する。

【0251】

本発明との関連では、「内燃機関」という言葉は、ディーゼルエンジン又はガソリンエンジンを指し、好ましくはディーゼルエンジンをいう。

【0252】

本発明について、以下の参考例、比較例、及び実施例によってさらに説明する。

【実施例】

【0253】

参考例1：粒度分布 (Dv90) の測定

粒度分布の測定は、Sympatec社のHELOS装置を用いた静的光散乱法により行った。試料の光学濃度は5～10%の範囲であった。

【0254】

参考例2：CuCHAゼオライトの調製

本明細書の実施例で使用する、Cuを含有する骨格構造型CHAを有するゼオライト材料を、US8293199B2の教示に従って調製した。詳細は、US8293199B2の実施例2、第15欄第26～52行を参照されたい。

【0255】

参考例3：BET比表面積の測定

アルミナのBET比表面積を、液体窒素を用いてDIN66131又はDINISO9277に従って測定した。

【0256】

参考例4：バナジウムを含むSCR触媒 (以下「V-SCR触媒」という) の調製

ドーブされたチタニア粉末 (TiO₂が87質量%、WO₃が8質量%、SiO₂が5質量%、BET比表面積が85m²/g、Dv90が2.5マイクロメータ) の水性混合物

10

20

30

40

50

に、シュウ酸バナジウムとコロイダルシリカを添加し、焼成後の触媒中のチタニア+酸化タングステン+シリカの質量に基づいて5質量%の V_2O_5 と、焼成後の触媒中の（コロイダルシリカからの）2質量%のシリカを得るようにした。最終スラリーの一部を、当技術分野でよく知られている方法に従って、未コート（uncoated）のハニカムフロースルーコーディエライトモノリス基材の全長にわたって配置した（直径：26.67 cm（10.5インチ）×長さ：15.24 cm（6インチ）の円筒形の基材で、1平方センチメートル当たり400 / (2.54)²個のセル、0.14ミリメートル（5.5ミル）の壁厚を有するもの）。そのコートした基材を乾燥及び焼成した後、最終スラリーの残りの部分をそのコートした基材の全長にわたって配置し、続いて乾燥及び焼成して、触媒中約4.5 g / in³のコーティングの最終装填量を得た。

10

【0257】

得た触媒について、触媒活性（NO_x変換率）を測定し、図1に表示した。

【0258】

参考例5：パラジウムを含むディーゼル酸化触媒（以下「Pd-DOC」という）の調製
Zrドープしたアルミナ粉末（ZrO₂が20質量%、BET 200 m² / g、Dv90が125ミクロン、全細孔容積0.425 ml / g）に、硝酸パラジウム溶液を加えた。590℃で焼成した後、最終的Pd / Zr-アルミナのPd含有量は、Zr-アルミナの質量に基づいて1.5質量%であった。この材料を水に加え、得たスラリーを、参考例1に記載されているように、得られるDv90が10ミクロンになるまで粉碎した。最終スラリーを、当技術分野でよく知られている方法に従って、未コート（uncoated）のハニカムフロースルーコーディエライトモノリス基材の全長にわたって配置した（直径：26.67 cm（10.5インチ）×長さ：7.62 cm（3インチ）の円筒形の基材で、セル数は400 / (2.54)² / 平方センチメートル、壁厚は0.1ミリメートル（4ミル）のもの）。その後、基材を乾燥させ、焼成した。触媒中の、焼成後コーティングの装填量は約91 g / l（1.5 g / in³）及びPdが40 g / ft³であった。

20

【0259】

参考例6：銅を含むSCR触媒（以下「Cu-SCR」という）の調製。

【0260】

Cu-CHA（CuOとして計算してCuが5.1質量%、SiO₂：Al₂O₃のモル比が18）の水性スラリーに、ジルコニルアセテート溶液を加え、焼成後の触媒中にCu-CHAの質量に基づいて5質量%のZrO₂を達成した。この最終スラリーを、当技術分野でよく知られている方法に従って、未コート（uncoated）のハニカムフロースルーコーディエライトモノリス基材の全長にわたって配置した（直径：26.67 cm（10.5インチ）×長さ：15.24 cm（6インチ）の円筒形の基材で、セル数が1平方センチメートル当たり400 / (2.54)²、壁の厚さが0.1ミリメートル（4ミル）のもの）。その後、基材を乾燥させ、焼成した。焼成後の装填量は128.15 g / l（2.1 g / in³）であった。

30

【0261】

参考例8.1：参考例4のV-SCR触媒と参考例6のCu-SCR触媒の比較試験

参考例4及び6の触媒のDeNO_xを、210℃、空間速度50,000 / hで測定し、参考例4の触媒（V-SCR触媒）及び参考例6の触媒（Cu-SCR触媒）の応答性を調べた。V-SCR触媒とCu-SCR触媒の双方について、エンジンアウトレベルが約550 ppm NO_xの、テストセル内のエンジンで、定常状態で試験を行った。図2からも分かるように、V-SCR触媒は約600秒後に最大のNO_x変換率を示した。この図から、参考例4のV-SCR触媒は、参考例6のCu-SCR触媒に比べて応答性が高いことが分かる。特定の理論に拘束されることなく、V-SCR触媒はCu-SCR触媒に比べて、低アンモニア貯蔵量での応答性が速く、アンモニア貯蔵量が少ないことが想定される。

40

【0262】

したがって、参考例8.1では、高速応答性が要求される場合には、Cu-SCR触媒

50

(参考例 6) よりも V-S-C-R 触媒 (参考例 4) の方が近位連結型 (close-coupled) の候補として優れていることが示された。

【0263】

比較例 1: 本発明でない排気ガス処理システムの作製

参考例 4 の触媒 (「V-S-C-R 触媒」) と参考例 5 の触媒 (「Pd-DOC」) を組み合わせ、参考例 5 の触媒を参考例 4 の下流に位置させ、参考例 4 の触媒の上流に炭化水素 (HC) 噴射装置を設置して、本発明でない排気ガス処理装置を作製した。

【0264】

実施例 1: 本発明に係る排気ガス処理システムの作製

参考例 4 の触媒 (「V-S-C-R 触媒」) と参考例 5 の触媒 (「Pd-DOC」) を組み合わせ、参考例 5 の触媒を参考例 4 の下流に位置させ、参考例 4 の触媒の下流かつ参考例 5 の触媒の上流に、炭化水素 (HC) 噴射装置を設置して、本発明に係る排気ガス処理装置を作製した。

【0265】

実施例 2: 実施例 1 及び比較例 1 の排気ガス処理システムの使用—システム内の発熱 (exotherms) の制御

この 2 基のシステムの V-S-C-R 触媒の入口端と出口端の温度、及び 2 基のシステムの Pd-DOC の入口端と出口端の温度を測定した。排気ガス処理システムは、エンジンの直下流に近位連結位置 (close-coupled position) に設置した。HC は HC 噴射装置を介して注入した。その注入時間を図 4 と図 5 に示す。

【0266】

図 4 は、HC 噴射装置を V-S-C-R 触媒の前に配置した場合の、比較例 1 の排気ガス処理システムの V-S-C-R 触媒の入口温度と出口温度及び Pd-DOC の出口温度を、時間の関数として示したものである。低温、すなわち 300°C より低い温度では、V-S-C-R にはわずかな発熱しかなく、Pd-DOC に発熱の大部分が集中しているようである。約 58 分後、HC の注入を中止し、V-S-C-R の入口端部の温度を上昇させる。特定の理論に縛られることなく、低温で HC の一部が V-S-C-R に吸着し、温度が上昇すると吸着した HC が V-S-C-R 触媒上で酸化し、600°C を超える温度の制御不能な発熱が発生すると考えられる。このように、V-S-C-R はその動作範囲 (operation window) 外の温度に曝されている。その結果、当該触媒の担体が焼結して表面積が減少し、そのため、活性が消失する可能性がある。また、上述のように 600°C に曝されることにより、バナジアの昇華が生じる可能性も発生する。

【0267】

図 5 は、本発明に係るシステムについて、HC 噴射装置を V-S-C-R 触媒の下流側で Pd-DOC の上流側に配置した場合の、V-S-C-R 及び Pd-DOC の入口温度と Pd-DOC の出口温度を時間の関数として示したものである。HC の注入を止めて入口温度を上げても、過剰な発熱は見られなかった。これにより、HC が Pd-DOC 上に、酸化せずに吸着していることが示唆される。HC 噴射装置を V-S-C-R の後に配置することによって、高濃度の HC が V-S-C-R を通過しないため、V-S-C-R が、アクティブ・リジェネレーション事象 (active regeneration event) の間、HC を吸着しないことが確かなものとなる。したがって、実施例 2 は、近位連結位置の (cc) V-S-C-R を有する排気ガス処理システムを設けることに加えて、HC 噴射装置を前記 cc-V-S-C-R の下流に設置することが重要であり、それによって、排気ガス処理システムの効率と耐久性が維持されることを示している。

【0268】

参考例 7: AMOX 触媒の調製

Zr ドープしたアルミナ粉末 (ZrO₂ が 20 質量%、BET 200m²/g、Dv90 が 125 ミクロン、全細孔容積 0.425 ml/g) に、白金アンミン溶液を加えた。590°C で焼成した後、最終的 Pt/Zr-アルミナの Pt 含有量は、Zr-アルミナの質量に基づいて 1.85 質量% であった。この材料を水に加え、得たスラリーを、参考例

10

20

30

40

50

1に記載されているように、得られるDv90が10ミクロンになるまで粉碎した。Cu-CHA (CuOとして計算してCuが5.1質量%、SiO₂:Al₂O₃のモル比が18)の水性スラリーに、ジルコニルアセテート溶液を加え、焼成後のCu-CHAの質量に基づいて5質量%のZrO₂を達成した。粉碎したPt/Zr-アルミナスラリーをZr/Cu-CHAスラリーに加えて混合した。この最終スラリーを、次いで、未コートフロースルーハニカムコーディエライトモノリス基材(直径:26.67cm(10.5インチ)×長さ:7.62cm(3インチ)、1平方センチメートル当たり400/(2.54)²のセル数、壁厚0.1ミリメートル(4ミル)の円筒形の基材)の全長にわたって配置した。その後、基材を乾燥させ、焼成した。触媒中の、焼成後のコーティングの装填量は約3.0g/in³であった。15.26g/l(0.25g/in³)のZr-アルミナ上に0.28g/l(8g/ft³)のPtの装填量、及び、158.66g/l(2.6g/in³)のCu-CHA+7.93g/l(0.13g/in³)のZrO₂を有する。

【0269】

参考例8.2:cc-V-SCR触媒又はcc-Cu-SCR触媒を用いた排気ガス処理システムの試験-耐サルフェーション性(sulfation resistance)

参考例4の触媒(V-SCR触媒)と参考例7の触媒を組み合わせ、参考例7の触媒をV-SCR触媒の下流に位置させて、第1の排気ガス処理システム(システム1)を作製した。また、参考例6の触媒(Cu-SCR触媒)と参考例7の触媒を組み合わせ、参考例7の触媒をCu-SCR触媒の下流に位置させて、第2の排気ガス処理システム(システム2)を作製した。NO_x変換率について、215℃、定常状態条件下(エンジンアウトNO_x=250ppm、SV=40k/h、アンモニア対NO_x比(ANR)0.85)で、模擬の低負荷走行中200時間にわたって測定を行った。その結果を図6に表示する。

【0270】

図6によると、cc-Cu-SCR触媒を使用した上記第2のシステムでは、初期のNO_x変換率がほぼ60%で、200時間の低温運転後には変換率が約40%まで低下することが示されている。また、cc-V-SCR触媒を備えた上記第1のシステムは、初期のNO_x変換率が約73%で、200時間以上にわたってNO_x変換率が66~68%で安定していることが示されている。したがって、この例では、Cu-CHAを含有するAMOXを持つcc-V-SCRを備えたハイブリッドシステムが、Cu-CHAを含有するAMOXを持つcc-Cu-CHAを下流側触媒とするシステムよりも安定していることが示された。特定の理論に縛られたくないのであるが、cc-V-SCR触媒は、排気ガス処理システムにおける硫酸化(サルフェーション)及び炭化水素付着物(ファウリング)の影響を低減すると考えられる。

【0271】

実施例3:本発明に係る排気ガス処理システムの実作

参考例4の触媒(「V-SCR触媒」)、炭化水素(HC)噴射装置、参考例5の触媒(「Pd-DOC」)、及び参考例6の触媒(「Cu-SCR触媒」)を直列に組み合わせ、本発明に係る排気ガス処理システムを作製した。この場合、参考例5の触媒を参考例4の触媒の下流に位置させ、参考例6の触媒を参考例5の触媒の下流に位置させ、HC噴射装置を参考例4の触媒の下流で参考例5の触媒の上流に設置した。

【0272】

参考例9:パラジウムを含むSCR触媒(「Pd/ZrO₂-Cu-SCR触媒」)の調製

ジルコニウム酸化物(細孔容積0.420ml/g)に、硝酸パラジウム溶液を加える。590℃で焼成した後、最終Pd/ジルコニアは、Zr-アルミナの質量に基づいて3.5質量%のPd含有量を有していた。この材料を水に加え、得たスラリーを、参考例1に記載されているように、得られるDv90が10ミクロンになるまで粉碎した。参考例2に従って調製したCu-CHA(CuOとして計算してCuが約3質量%、モル比Si

O₂ : Al₂O₃ 比が約 3 : 2) の水性スラリーに、焼成後の ZrO₂ が 5 質量% になるようにジルコニルアセテート溶液を加えた。この混合物を噴霧乾燥し、参考例 1 に記載されているように、得られる Dv90 が 5 ミクロンになるまで粉碎した。粉碎した Pd / ZrO₂ スラリーを Zr / Cu-CHA スラリーに加えて混合した。最終スラリーを、未コートのハニカムフロースルーコーディエライトモノリス基材 (直径 : 26.67 cm (10.5 インチ) × 長さ : 7.62 cm (3 インチ)、1 平方センチメートル当たり 400 / (2.54)² のセル数、壁の厚さ 0.1 ミリメートル (4 ミル) の円筒形の基材) の全長にわたって配置した。その後、基材を乾燥させ、焼成した。触媒中の、焼成後のコーティングの装填量は約 3.0 g / in³ であった。30.51 g / l (0.5 g / in³) の ZrO₂ 上に 1.06 g / l (30 g / ft³) の Pd を担持し、144.02 g / l (2.36 g / in³) の Cu-CHA プラス 7.32 g / l (0.12 g / in³) の ZrO₂ からなる。

【0273】

参考例 10 : 質量比 Pt : Pd が 10 : 1 の AMOX 触媒の調製

Zr ドープしたアルミナ粉末 (ZrO₂ が 20 質量%、BET 200 m² / g、Dv90 が 125 ミクロン、全細孔容積 0.425 ml / g) に、白金アンミン溶液と硝酸パラジウム溶液を Pt : Pd の質量比 10 : 1 で加えた。590 °C で焼成した後、最終の Pd / Zr-アルミナは、Zr-アルミナの質量に基づいて Pd と Pt が 1.85 質量% 含まれており、Pt : Pd の質量比は 10 : 1 であった。この材料を水に加え、得たスラリーを、参考例 1 に記載されているように、得られる Dv90 が 10 ミクロンになるまで粉碎した。参考例 2 に従って調製した Cu-CHA (CuO として計算して Cu が約 3 質量%、モル比 SiO₂ : Al₂O₃ 比が約 3 : 2) の水性スラリーに、焼成後 Cu-CHA の質量を基準にして ZrO₂ が 5 質量% になるように、ジルコニルアセテート溶液を加えた。この混合物を噴霧乾燥し、参考例 1 に記載されているように、得られる Dv90 が 5 ミクロンになるまで粉碎した。粉碎した Pd / Zr-アルミナスラリーを Zr / Cu-CHA スラリーに加えて混合した。この最終スラリーを、次いで、未コートのフロースルーハニカムコーディエライトモノリス基材 (直径 : 26.67 cm (10.5 インチ) × 長さ : 7.62 cm (3 インチ)、1 平方センチメートル当たり 400 / (2.54)² のセル数、壁厚 0.1 ミリメートル (4 ミル) の円筒形の基材) の全長にわたって配置した。その後、基材を乾燥させ、焼成した。この触媒における焼成後のコーティングの装填量は約 3 g / in³ で、Cu-CHA が 2.75 g / in³、ZrO₂ が 0.13 g / in³、Zr-アルミナが 0.25 g / in³、Pt + Pd が 8 g / ft³ 含まれていた。

【0274】

実施例 4 : 本発明に係る排気ガス処理システムの作製

参考例 4 の触媒 (「V-SCR 触媒」)、炭化水素 (HC) 噴射装置、参考例 9 の触媒 (「Pd / ZrO₂ - Cu-SCR 触媒」) 及び参考例 10 の触媒 (「AMOX 触媒」) を直列に組み合わせて、本発明に係る排気ガス処理システムを作製した。ここで、参考例 9 の触媒が参考例 4 の触媒の下流に位置し、参考例 10 の触媒が参考例 9 の触媒の下流に位置し、また、HC 噴射装置が参考例 4 の触媒の下流で参考例 9 の触媒の上流に位置するように配置した。

【0275】

実施例 5 : 本発明に係る排気ガス処理システムの作製

参考例 4 の触媒 (「V-SCR 触媒」)、炭化水素 (HC) 噴射装置、参考例 5 の触媒 (「Pd-DOC」)、参考例 6 の触媒 (「Cu-SCR 触媒」)、及び参考例 7 の触媒 (「AMOX 触媒」) を直列に組み合わせることにより、本発明に係る排気ガス処理システムを作製した。ここで、参考例 5 の触媒が参考例 4 の触媒の下流に位置し、参考例 6 の触媒が参考例 5 の触媒の下流に位置し、参考例 7 の触媒が参考例 6 の触媒の下流に位置し、HC 噴射装置が参考例 4 の触媒の下流かつ参考例 5 の触媒の上流に位置するように配置した。

【0276】

実施例 6：本発明に係る排気ガス処理システムの作製

参考例 4 の触媒（「V-SCR 触媒」）、炭化水素（HC）噴射装置、参考例 5 の触媒（「Pd-DOC」）、参考例 9 の触媒（「Pd/ZrO₂-Cu-SCR 触媒」）及び参考例 10 の触媒（「AMOX 触媒」）を直列に組み合わせて、本発明に係る排気ガス処理システムを作製した。ここで、参考例 5 の触媒が参考例 4 の触媒の下流に位置し、参考例 9 の触媒が参考例 5 の触媒の下流に位置し、参考例 10 の触媒が参考例 9 の触媒の下流に位置し、HC 噴射装置が参考例 4 の触媒の下流で参考例 5 の触媒の上流に位置するよう配置した。

【0277】

参考例 11：パラジウムを含むディーゼル酸化触媒（以下「Pd-DOC2」という）の調製

10

パラジウムの使用量を少なくしたこと以外は、参考例 5 の Pd-DOC と同様にして、参考例 11 の Pd-DOC を調製した。触媒中の、焼成後コーティングの装填量は約 9.1 g/l (1.5 g/in³) で Pd が 30 g/ft³ であった。

【0278】

実施例 7：本発明に係る排気ガス処理システムの作製

参考例 4 の触媒（「V-SCR 触媒」-Cat. 1）、炭化水素（HC）噴射装置、参考例 11 の触媒（「Pd-DOC2」-Cat. 2）及び参考例 6 の触媒（「Cu-SCR 触媒」-Cat. 3）を直列に組み合わせることによって、本発明に係る排気ガス処理システムを作製した。この場合、参考例 11 の触媒が参考例 4 の触媒の下流に位置し、参考例 6 の触媒が参考例 11 の触媒の下流に位置し、HC 噴射装置が参考例 4 の触媒の下流かつ参考例 11 の触媒の上流に位置するよう配置した。

20

【0279】

実施例 8：本発明に係る排気ガス処理システムの作製

参考例 4 の触媒（「V-SCR 触媒」-Cat. 1）、炭化水素（HC）噴射装置、参考例 9 の触媒（「Pd/ZrO₂-Cu-SCR 触媒」-Cat. 2）及び参考例 6 の触媒（「Cu-SCR 触媒」-Cat. 3）を直列に組み合わせることによって、本発明に係る排気ガス処理システムを作製した。この場合、参考例 9 の触媒が参考例 4 の触媒の下流に位置し、参考例 6 の触媒が参考例 9 の触媒の下流に位置し、HC 噴射装置が参考例 4 の触媒の下流かつ参考例 9 の触媒の上流に位置するよう配置した。

30

【0280】

参考例 12：白金を含むディーゼル酸化触媒（以下、「Pt-DOC」という）の調製
チタニア粉末（TiO₂ 100 質量%、BET 比表面積 200 m²/g、Dv90 が 20 マイクロメータ）に、白金アンミン溶液を湿式含浸させた。そのチタニアの量は、焼成後の触媒中のチタニアの装填量が 0.75 g/in³ になるように計算した。590℃で焼成した結果、最終の Pt/TiO₂ の Pt 含有量は、チタニアの質量に基づいて約 1.7 質量% であった。この材料を酢酸と水に加えて、Pt/チタニアスラリーを形成した。これと並行して、アルミナ（100 質量%、BET 比表面積約 200 m²/g）を硝酸（HNO₃）の希釈液と混合してバインダースラリーを調製した。アルミナの量は、焼成後の触媒中のアルミナ装填量が 0.2 g/in³ になるように計算した。このアルミナスラリーに、酢酸ジルコニウム溶液（酢酸と水酸化ジルコニウムとの混合液）を加えた。そのアルミナ量としては、焼成後の触媒中のアルミナ装填量が 0.25 g/in³ になるように計算した。得た混合物については、参考例 1 に記載した方法で測定した結果得られる Dv90 が 10 ミクロンになるまで粉碎した。最後に、Al/Zr 混合物と Pt/TiO₂ スラリーをオクタノールで混和し、pH が約 4.5 の最終スラリーを形成した。

40

【0281】

この最終スラリーを、次いで、当技術分野でよく知られている方法に従って、未コート
のハニカムフロースルーコーディエライトモノリス基材の全長にわたって配置した（直径
：26.67 cm（10.5 インチ）×長さ：7.62 cm（3 インチ）の円筒形の基材
で、1 平方センチメートル当たりのセル数は 400 / (2.54)²、壁の厚さが 0.1

50

ミリメートル（４ミル）のもの）。その後、基材を乾燥させ、焼成した。この触媒中の焼成後のコーティングの装填量は約 62 g/l （約 1 g/in^3 ）、Ptは約 22 g/ft^3 であった。

【０２８２】

比較例２：本発明でない排気ガス処理システムの作製

参考例４の触媒（「V-SCR触媒」-Cat. １）、炭化水素（HC）噴射装置、参考例１２の触媒（「Pt-DOC」-Cat. ２）、及び参考例６の触媒（「Cu-SCR触媒」-Cat. ３）を直列に組み合わせることにより、本発明に係るものではない排気ガス処理システムを作製した。このとき、参考例１２の触媒が参考例４の触媒の下流に位置し、参考例６の触媒が参考例１２の触媒の下流に位置し、HC噴射装置が参考例４の触媒の下流かつ参考例１２の触媒の上流に位置するよう配置した。

【０２８３】

実施例９：実施例７、８及び比較例２の排気ガス処理システムの使用-DeNOx及びN₂Oの生成

実施例７の排気ガス処理システム（システムＡ）、実施例８の排気ガス処理システム（システムＢ）及び比較例２の排気ガス処理システム（システムＣ）を、定常状態（ロードポイント：290℃で、空間速度： $1100 \text{ kg/h-E.O. NOx}=670 \text{ ppm}$ ）と過渡状態（E.O.（エンジンアウト）NOxが300g（cum）前後、サイクル中の平均温度が235℃-Tmax=330℃；Tmin=170℃-ANR（アンモニア／NOx比）=1.05のWHTCテストサイクル）で試験を行った。その結果を図７～図１０に示す。

【０２８４】

図７及び図８は、排気ガス処理システムの第２の触媒（Cat. ２）としてPt/TiO₂（Pt-DOC）を使用しても、Cat. ２の出口端で測定したNOx転換率は大きく低下しないことを示している。また、排気ガス処理システムＣ（本発明に係るものではない）の出口端で少なくとも10%の低いNOx変換率をもたらすことを示している。さらには、第２の触媒（Cat. ２）としてPt/TiO₂（Pt-DOC）を使用すると、第２の触媒（Cat. ２）と第３の触媒（Cat. ３）の出口端での、亜酸化窒素（nitrous oxide）の生成量が驚異的に増加することを示している。比較結果を図９及び図１０から見るることができる。いかなる特定の理論に縛られたくないのであるが、Pt/TiO₂からなる第２の触媒が、第１の触媒を擦り抜けた（スリップした）還元剤（reductant）（アンモニア）を亜酸化窒素に酸化し、この結果、システムの出口端部でのNOx変換率が減少すると考えられる。したがって、実施例９は、Pd-DOC又はPd/ZrO₂-Cu-SCRを排気ガス処理システムの第２の触媒として使用することで、チタニア上に白金を担持した第２の触媒と比較して、亜酸化窒素の生成を大幅に低減しつつ、NOxの還元率を向上させることができることを示している。

引用した文献

- US2017/152780A1
- US2018/258811A1
- WO2018/224651A2

10

20

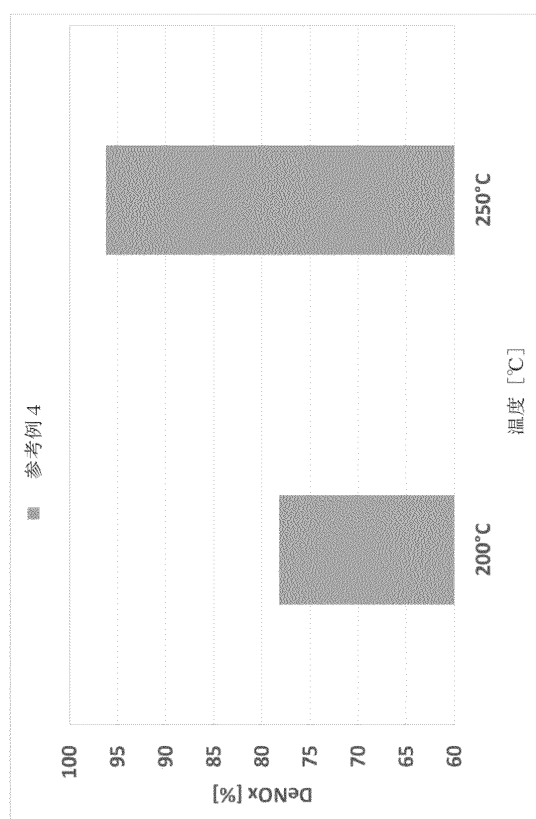
30

40

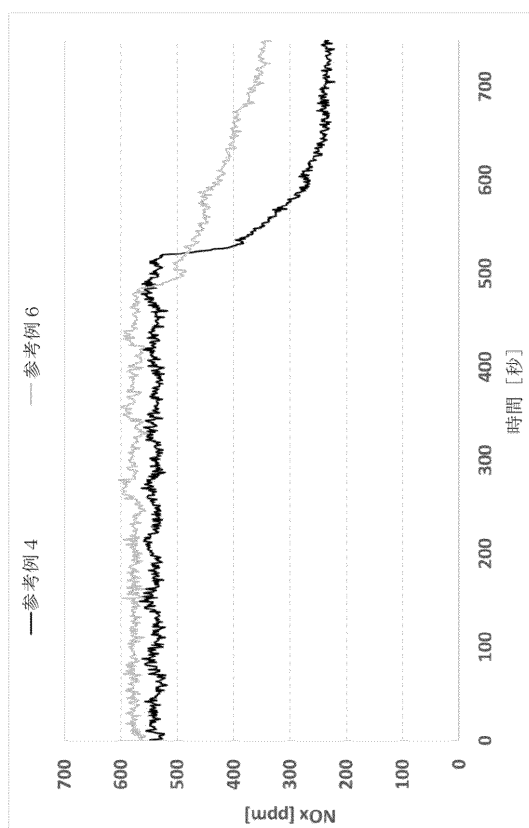
50

【図面】

【図 1】



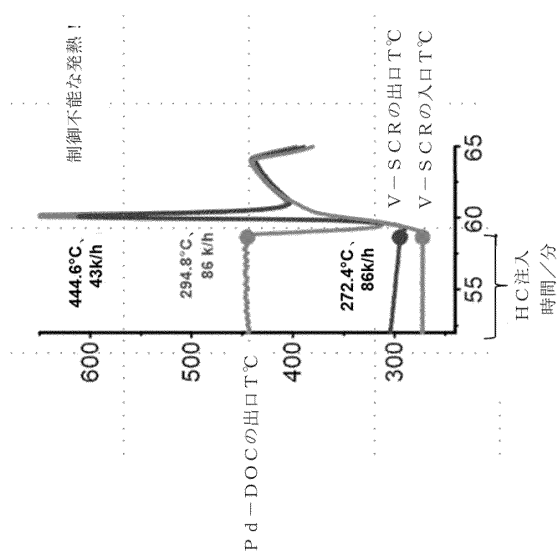
【図 2】



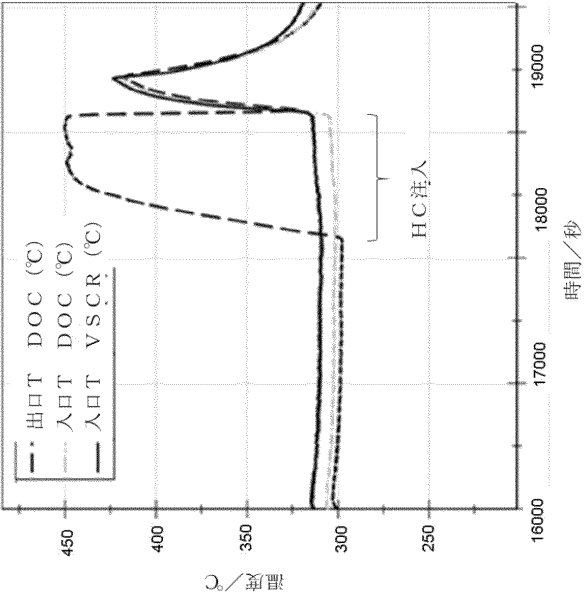
【図 3】



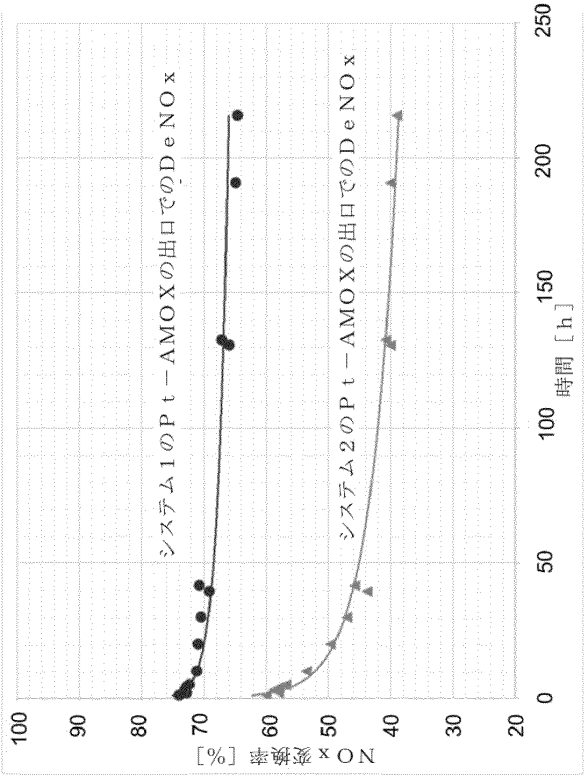
【図 4】



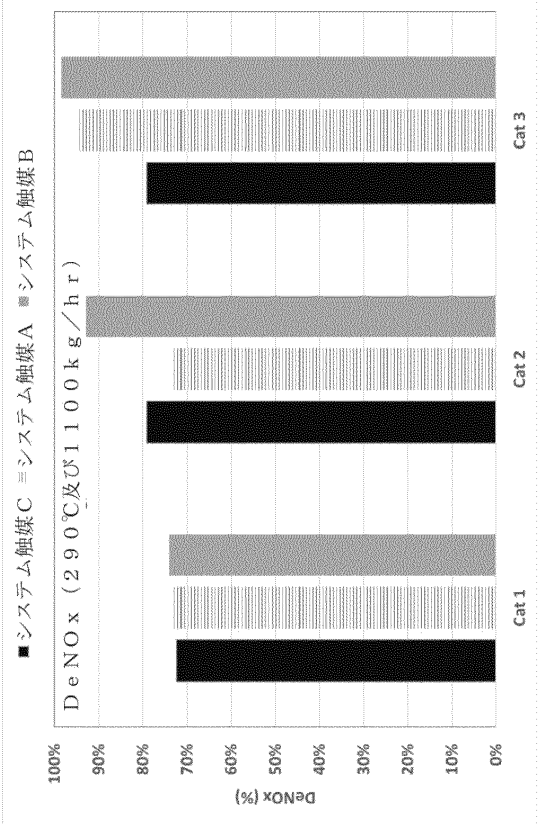
【図 5】



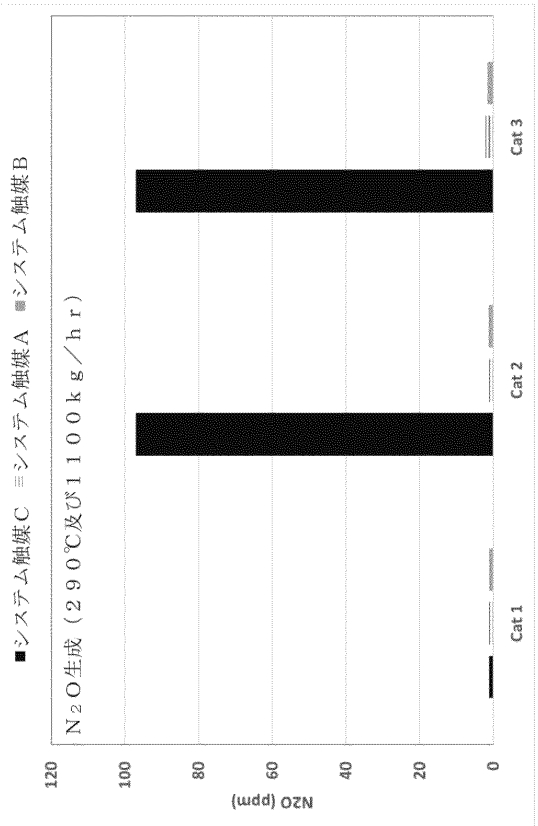
【図 6】



【図 7】



【図 8】



10

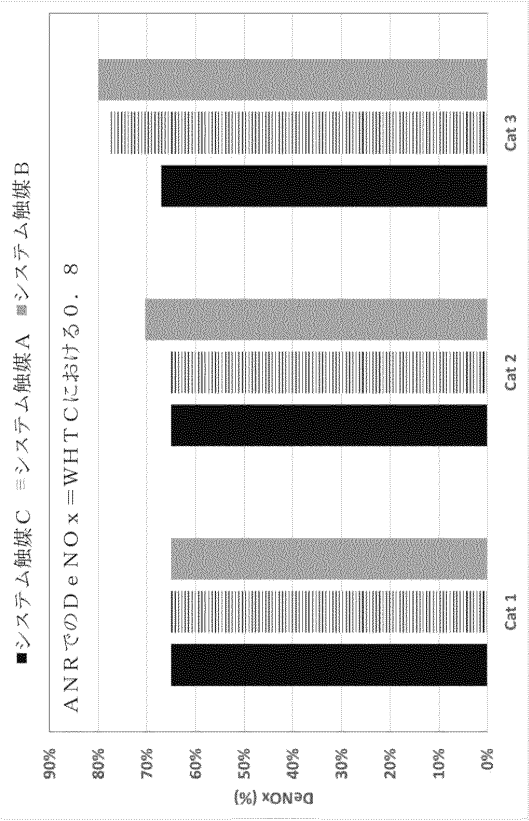
20

30

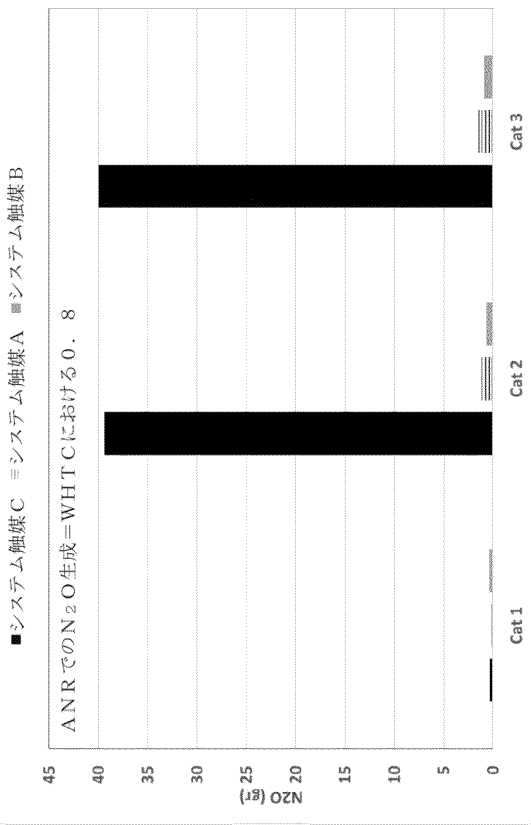
40

50

【図 9】



【図 10】



10

20

30

40

50

フロントページの続き

(51)国際特許分類

F 0 1 N 3/08 (2006.01)
F 0 1 N 3/10 (2006.01)
F 0 1 N 3/24 (2006.01)
B 0 1 D 53/94 (2006.01)
B 0 1 J 35/57 (2024.01)

F I

F 0 1 N 3/08 B
F 0 1 N 3/10 A
F 0 1 N 3/24 C
F 0 1 N 3/28 3 0 1 C
F 0 1 N 3/28 3 0 1 Q
F 0 1 N 3/24 E
B 0 1 D 53/94 2 2 2
B 0 1 D 53/94 2 2 8
B 0 1 D 53/94 2 8 0
B 0 1 D 53/94 4 0 0
B 0 1 J 35/57 E
B 0 1 J 35/57 J

(74)代理人 100194135
弁理士 山口 修

(74)代理人 100206069
弁理士 稲垣 謙司

(74)代理人 100185915
弁理士 長山 弘典

(72)発明者 ドルナー, ロベルト
ドイツ、3 0 1 7 3 ハノーファー、ゼリヒマンアレー 1

審査官 畔津 圭介

(56)参考文献 米国特許出願公開第2 0 0 9 / 0 2 6 0 3 4 6 (US, A 1)

(58)調査した分野 (Int.Cl., D B名)

F 0 1 N 3 / 2 8
B 0 1 J 3 5 / 5 7
B 0 1 J 2 3 / 3 0
B 0 1 J 2 3 / 4 4
B 0 1 J 2 9 / 7 6
B 0 1 J 2 3 / 4 2
F 0 1 N 3 / 0 8
F 0 1 N 3 / 1 0
F 0 1 N 3 / 2 4
B 0 1 D 5 3 / 9 4