

(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2018-526195

(P2018-526195A)

(43) 公表日 平成30年9月13日 (2018.9.13)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>B O 1 J 35/04 (2006.01)</b>	B O 1 J 35/04	3 O 1 L 3 G O 9 1
<b>B O 1 J 29/76 (2006.01)</b>	B O 1 J 29/76	Z A B A 3 G 1 9 0
<b>B O 1 J 37/02 (2006.01)</b>	B O 1 J 35/04	3 O 1 E 4 D 1 4 8
<b>B O 1 D 53/86 (2006.01)</b>	B O 1 J 37/02	3 O 1 C 4 G 1 6 9
<b>B O 1 D 53/94 (2006.01)</b>	B O 1 D 53/86	2 2 3
審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 49 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号 特願2017-565781 (P2017-565781)  
 (86) (22) 出願日 平成28年6月15日 (2016.6.15)  
 (85) 翻訳文提出日 平成30年2月19日 (2018.2.19)  
 (86) 国際出願番号 PCT/EP2016/063750  
 (87) 国際公開番号 W02016/202855  
 (87) 国際公開日 平成28年12月22日 (2016.12.22)  
 (31) 優先権主張番号 15172347.5  
 (32) 優先日 平成27年6月16日 (2015.6.16)  
 (33) 優先権主張国 欧州特許庁 (EP)

(71) 出願人 508020155  
 ビーエーエスエフ ソシエタス・ヨーロピア  
 BASF SE  
 ドイツ連邦共和国 67056 ルートヴィヒスハーフェン・アム・ライン カール-ボッシュ-シュトラッセ 38  
 Carl-Bosch-Strasse  
 38, 67056 Ludwigshafen am Rhein, Germany  
 (74) 代理人 100100354  
 弁理士 江藤 聡明

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 パッシブ選択的触媒還元を用いるための統合されたリーンNO<sub>x</sub>トラップ触媒を有するSCR触媒化煤フィルター

## (57) 【要約】

本発明は、触媒化煤フィルター (CSF) であって、前記CSFは、多孔質壁流基板、リーンNO<sub>x</sub>トラップ (LNT) 触媒、及び選択的触媒還元 (SCR) のための触媒を含み、

前記壁流基板が、入口端、出口端、前記入口端と前記出口端の間に延在する基板軸方向の長さ、及び前記壁流基板の内壁によって規定される複数のチャンネルを含み、前記複数のチャンネルは、開放入口端及び閉鎖出口端を有する入口チャンネル、並びに閉鎖入口端及び開放出口端を有する出口チャンネルを含み、

前記LNT触媒は、前記入口チャンネル壁の表面の一部、及び前記LNT触媒でコーティングされた前記チャンネル壁の表面下の前記チャンネル壁内の細孔の表面の少なくとも一部に供給され、前記LNT触媒でコーティングされた入口チャンネル壁の一部は、前記入口端から前記基板軸方向の長さのx%まで延在し (0 < x < 100)、

前記SCR触媒は、前記出口チャンネル壁の表面の一部、及び前記SCR触媒でコーティングされた前記チャンネル壁の表面下の前記チャンネル壁内の細孔の表面の少なくとも一部に供給され、前記SCR触媒でコーティングされた出口チャンネル壁の一部は、前記出口端から前記基板軸方向の長さの100 - x%まで延在する触媒化煤フィルターに、

並びに、前記触媒化煤フィルターを製造する方法に、前記触媒化煤フィルターを含む排出ガス処理システムに、前記触媒化煤フィルターを使用する前記排出ガス処理の方法に、及び前記排出ガス処理のための前記触媒化煤フィルターの使用方法に関連する。

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

触媒化煤フィルター（CSF）であって、

前記 CSF は、多孔質壁流基板、リーン  $\text{NO}_x$  トラップ（LNT）触媒、及び選択的触媒還元（SCR）のための触媒を含み、

前記壁流基板が、入口端、出口端、前記入口端と前記出口端の間に延在する基板軸方向の長さ、及び前記壁流基板の内壁によって規定される複数のチャンネルを含み、前記複数のチャンネルは、開放入口端及び閉鎖出口端を有する入口チャンネル、並びに閉鎖入口端及び開放出口端を有する出口チャンネルを含み、

前記 LNT 触媒は、前記入口チャンネル壁の表面の一部、及び前記 LNT 触媒でコーティングされた前記チャンネル壁の表面下の前記チャンネル壁内の細孔の表面の少なくとも一部に供給され、前記 LNT 触媒でコーティングされた入口チャンネル壁の一部は、前記入口端から前記基板軸方向の長さの  $x\%$  まで延在し（ $0 < x < 100$ ）、

前記 SCR 触媒は、前記出口チャンネル壁の表面の一部、及び前記 SCR 触媒でコーティングされた前記チャンネル壁の表面下の前記チャンネル壁内の細孔の表面の少なくとも一部に供給され、前記 SCR 触媒でコーティングされた出口チャンネル壁の一部は、前記出口端から前記基板軸方向の長さの  $100 - x\%$  まで延在する触媒化煤フィルター。

## 【請求項 2】

$x$  が 5 ~ 95 の範囲である請求項 1 に記載の触媒化煤フィルター。

## 【請求項 3】

前記多孔質壁流基板が、前記壁流基板の各壁がそれぞれ入口チャンネルの表面である第一の表面、及び出口チャンネルの表面である第二の表面を有するように、交互に塞がれた入口端及び出口端を有するハニカム基板である請求項 1 又は 2 に記載の触媒化煤フィルター。

## 【請求項 4】

前記 SCR 触媒が、1 種以上のゼオライトを含む請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載の触媒化煤フィルター。

## 【請求項 5】

前記 1 種以上のゼオライトが、1 種以上の遷移金属を含有する請求項 4 に記載の触媒化煤フィルター。

## 【請求項 6】

前記 SCR 触媒の平均粒径  $D_{90}$  が、前記基板の壁の平均細孔径の 25% 以下である請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載の触媒化煤フィルター。

## 【請求項 7】

前記 LNT 触媒が、1 種以上のアルカリ土類金属を含む請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 項に記載の触媒化煤フィルター。

## 【請求項 8】

前記 LNT 触媒が、1 種以上の白金族金属を含む請求項 1 ~ 7 のいずれか 1 項に記載の触媒化煤フィルター。

## 【請求項 9】

前記 LNT 触媒が、1 種以上の酸素貯蔵成分を含む請求項 1 ~ 8 のいずれか 1 項に記載の触媒化煤フィルター。

## 【請求項 10】

触媒化煤フィルターを製造する方法であって、

(i) 多孔質壁流基板であり、入口端、出口端、前記入口端と前記出口端の間に延在する基板軸方向の長さ、及び前記壁流基板の内壁によって規定される複数のチャンネルを含み、前記複数のチャンネルは、開放入口端及び閉鎖出口端を有する入口チャンネル、並びに閉鎖入口端及び開放出口端を有する出口チャンネルを含む多孔質壁流基板を供給する工程と、

(ii) 粒子担体材料にロジウム化合物の水溶液を含浸させる工程と、

(iii) (ii) で得られた前記含浸された粒子担体材料をか焼し、担持 Rh 粉末を供給する工程と、

10

20

30

40

50

( i v ) 粒子担体材料を蒸留水と混合し、続いて、そこにパラジウム化合物の水溶液、及び白金化合物の水溶液を添加し、第一のスラリーを供給する工程と、

( v ) 前記担持 R h 粉末、１種以上の酸素貯蔵材料、及び１種以上のアルカリ土類金属化合物を ( i v ) で得られた前記第一のスラリーに添加し、第二のスラリーを供給する工程と、

( v i ) 任意に、前記多孔質壁流基板の壁の平均細孔径の 25 % 以下である平均粒径 D 90 を示す前記第二のスラリーを粉砕する工程と、

( v i i ) 固体 S C R 触媒を蒸留水中に懸濁し、任意に結果として生じる混合物を粉砕し、前記多孔質壁流基板の壁の平均細孔径の 25 % 以下である平均粒径 D 90 を示す第三のスラリーを供給する工程と、

( v i i i ) 前記壁流基板の前記入口端を前記第二のスラリー中に、前記入口端から延在する前記基板軸方向の長さの x % まで浸すことによって、前記壁流基板の前記入口チャネル壁の一部をコーティングする工程 (  $0 < x < 100$  ) と、

( i x ) 前記第二のスラリーから前記壁流基板を除去し、前記入口チャネルから過剰なスラリーを除去する工程と、

( x ) 前記壁流基板の前記出口端を前記第三のスラリー中に、前記出口端から延在する前記基板軸方向の長さの  $100 - x$  % まで浸すことによって、前記壁流基板の前記出口チャネル壁の一部をコーティングする工程と、

( x i ) 前記第三のスラリーから前記壁流基板を除去し、前記出口チャネルから過剰なスラリーを除去する工程と、

( x i i ) 任意に前記コーティングされた壁流基板を乾燥、及び / 又は焼する工程と、  
を含む製造方法。

#### 【請求項 11】

請求項 10 の方法に従って得られ得る、及び / 又は得られる触媒化煤フィルター。

#### 【請求項 12】

請求項 1 ~ 9 のいずれか 1 項、又は請求項 11 に記載の触媒化煤フィルター ( C S F )、及び前記 C S F の上流に位置するリーン N O<sub>x</sub> トラップ ( L N T ) を含む排出ガス処理システムであって、内燃機関からの排出ガスが前記 L N T を通り、続いて前記 C S F を通って流れ得るように、前記 L N T 及び前記 C S F が、互いに流体連通し、前記 L N T が、入口端、出口端、前記入口端と前記出口端の間に延在する基板軸方向の長さ、及び壁流基板の内壁によって規定される複数のチャネルを含むフロースルー基板を含み、前記フロースルー基板が、L N T 触媒でコーティングされている排出ガス処理システム。

#### 【請求項 13】

前記 L N T 触媒が、１種以上のアルカリ土類金属を含む請求項 12 に記載の排出ガス処理システム。

#### 【請求項 14】

前記 L N T 触媒が、１種以上の白金族金属を含む請求項 12 又は 13 に記載の排出ガス処理システム。

#### 【請求項 15】

内燃機関からの排出ガスを請求項 12 ~ 14 のいずれか 1 項に記載の排出ガス処理システムを通過させる工程を含む内燃機関からの排出ガス処理の方法。

#### 【請求項 16】

請求項 1 ~ 9 のいずれか 1 項、若しくは請求項 11 に記載の触媒化煤フィルター、又は請求項 12 ~ 14 のいずれか 1 項に記載の排出ガス処理システムの、排出ガス処理のための使用方法。

#### 【発明の詳細な説明】

#### 【技術分野】

#### 【0001】

本発明は、内燃機関からの排出ガス処理 ( treatment of emission ) のための触媒化煤

10

20

30

40

50

フィルター (catalyzed soot filter)、及びその製造方法に関連する。さらに、本発明は、前記製造方法から得られる触媒化煤フィルター、並びに内燃機関からの排出ガス処理の方法、及び本発明に従う触媒化煤フィルターの使用方法に関連する。

#### 【背景技術】

##### 【0002】

DiGiulioら、Catalysis Today 2014年、231、33～45頁に要約されているように、希薄燃焼エンジン (lean-burn engine) は、従来の化学量論的燃焼エンジン (stoichiometric-burn engine) よりも燃料効率がよく、少ない  $\text{CO}_2$  を発生する。しかしながら、希薄燃焼エンジンの完全な商業的实施は、希薄燃焼排出条件 (lean-burn exhaust condition) 下で、現在の排出ガス規制を満たすことができるコスト効率の高い触媒の開発を必要とし、それは、未だに主要な技術的な課題である。1970年代の後半から、三元触媒 (three-way catalyst) (TWC) が化学量論的燃焼エンジンの排出ガスに存在する、窒素酸化物 ( $\text{NO}_x$ ) の同時還元、並びに未燃炭化水素及び一酸化炭素 ( $\text{CO}$ ) の酸化のために使用されている。しかしながら、これらのTWCは、化学量論的燃焼状態に近い非常に狭い範囲において運転される場合に、十分に汚染物質を浄化するのみであり、希薄燃焼エンジン排出において直面する、はるかに高い  $\text{O}_2$  濃度下で運転される場合は、非常に低い  $\text{NO}_x$  変換を示す。この場合、 $\text{NO}_x$  の還元のための2種の既存の解決法は、リーン  $\text{NO}_x$  トラップ (lean  $\text{NO}_x$  trap) (LNT)、及び  $\text{NH}_3$  - 選択的触媒還元 (selective catalytic reduction) ( $\text{NH}_3$  - SCR) 触媒を含む。しかしながら、LNT及び  $\text{NH}_3$  - SCR触媒技術の両方とも、異なるが、重大な障害に悩まされる。例えば、LNT触媒は、高い白金族金属負荷を必要とし、触媒当たりの著しいコストをもたらす。 $\text{NH}_3$  - SCR触媒は、より安価であるが、排出ガス流に尿素を供給するために必要な注入システムが、排出システムの総コストを増大させる。

10

20

##### 【0003】

DiGiulioら、Catalysis Today 2014年、231、33～45頁に報告されているように、最近、「パッシブアンモニア (passive-ammonia)」又は「尿素レス (urea-less)」SCRアプローチと称される新たな技術が実証されている。LNTシステムの場合と同様に、パッシブ  $\text{NH}_3$  アプローチは、周期的なリーン - リッチサイクリングに基づくが、LNT触媒を含まない。その代わり、リッチ運転の期間中に  $\text{NH}_3$  を発生させるため、TWCが使用される。したがって、発生した  $\text{NH}_3$  は、続いて、下流の床下の (under-floor) SCR触媒に貯蔵される。十分な量の  $\text{NH}_3$  が貯蔵された後、エンジンは、リーン運転に切り替わり、前記貯蔵された  $\text{NH}_3$  が、上流TWCから、未反応で進む  $\text{NO}_x$  を還元するために使用される。

30

##### 【0004】

前記技術は別として、排出ガス処理の効率を向上するため、特に、ディーゼル燃焼エンジンの使用に関わる用途で、煤フィルター中に、SCR触媒技術を組み込むことが取り組まれている。したがって、WO2012/135871A1は、排出ガス制御のための多成分 (multi-component) フィルターに関連し、特にガス透過性壁を有する壁流フィルター、加水分解触媒、及び任意に煤酸化触媒、前記壁に浸透する選択的触媒還元触媒、アンモニア酸化触媒、並びに  $\text{CO}$  及び炭化水素を酸化するための酸化触媒を含む触媒品に関連する。一方、WO2011/140251A2は、統合されたSCR及びアンモニア酸化 (AMOX) 触媒システムに関連し、特に選択的触媒還元によって窒素酸化物を減少させるための第一の区域、アンモニアを酸化するための第二の区域、及び一酸化炭素、及び炭化水素を酸化するための第三の区域を含む触媒システムに関連する。WO20011/041769A2は、ディーゼルエンジン排出ガス流中に存在する一酸化炭素、窒素酸化物、粒子状物質、及びガス状炭化水素を同時に浄化するための四元ディーゼル触媒に係る。

40

##### 【0005】

これらに加えて、高効率の排出ガス処理システムを提供しようとして、多成分システムが、さらに提案されている。したがって、WO2010/114873A2は、アンモニ

50

ア発生、及び $\text{NO}_x$ 貯蔵還元(NSR)触媒又は $\text{NO}_x$ トラップ触媒等のSCR触媒を有し、前記アンモニア発生触媒の下流に配置されたSCR触媒を有する排出ガス処理システムに関連する。

【0006】

一方、EP2428659A1は、その下流部分に銅チャバサイトを備え、その上流部分に酸化バリウム及び白金族金属を備えるフロースルー基板(flow through substrate)を用いる、ディーゼル排出ガスからの $\text{NO}_x$ を除去するための触媒に関連する。WO2004/076829A1は、内燃機関の希薄排出ガスにおける窒素酸化物の選択的触媒還元のための排出ガス浄化システムであって、SCR触媒の上流に位置するディーゼル粒子フィルターに適用された $\text{NO}_x$ 貯蔵触媒の使用を伴う排出ガス浄化システムに関連する。WO2014/072067A1は、 $\text{NO}_x$ 、及び粒子含有ディーゼル排出ガス进行处理するための触媒システムであって、白金族金属を含む触媒化煤フィルターの上流に位置する窒素酸化物貯蔵成分及び貴金属を含有する窒素酸化物貯蔵触媒の使用を伴う触媒システムに係る。

10

【0007】

それにもかかわらず、できるだけ少数の成分、それらにそれぞれ含有するできるだけ少量の白金族金属によって運転し、排出ガス中の $\text{NO}_x$ 及びCOの両方の還元について高効率を得られ、その上、その過程において、できるだけ少量の過剰なアンモニアを発生させる、高効率の排出ガス処理システムの提供の必要性が残っている。

20

【先行技術文献】

【特許文献】

【0008】

【特許文献1】WO2012/135871A1

【特許文献2】WO2011/140251A2

【特許文献3】WO20011/041769A2

【特許文献4】WO2010/114873A2

【特許文献5】EP2428659A1

【特許文献6】WO2004/076829A1

【特許文献7】WO2014/072067A1

【非特許文献】

30

【0009】

【非特許文献1】DiGiulioら、Catalysis Today 2014年、231、33～45頁。

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0010】

したがって、本発明の目的は、その中に使用される白金族金属の量に対して、特に白金の量に関して、粒子状物質のろ過に加えて、排出ガス中の $\text{NO}_x$ 及びCOの高い変換を可能にする触媒化煤フィルターを提供することであった。さらに、本発明の目的は、パッシブSCRシステム(passive SCR system)に使用される場合、すなわち、 $\text{NO}_x$ の窒素への変換のため、原位置でアンモニアを発生するが、その過程において、大量の過剰なアンモニアを発生することのない、その上流に位置する成分と組合せて使用される場合に、優れた $\text{NO}_x$ 変換効率を示す触媒化煤フィルターを提供することであった。

40

【課題を解決するための手段】

【0011】

したがって、驚くべきことに、触媒化煤フィルターの分けられた部分におけるリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒、及び選択的触媒還元のための触媒の特定の配置を用いることによって、リーン $\text{NO}_x$ トラップにおいて比較的少量の白金族金属、特に白金、パラジウム及びロジウムを用いて、 $\text{NO}_x$ 変換及びCO酸化における高い効率を得られ得ることが見出され

50

ている。さらに、全く予期しなかったことに、前記 $\text{NO}_x$ 変換及び $\text{CO}$ 酸化における特に高い効率は、前述の触媒化煤フィルターの上流で、原位置でアンモニアが発生されるパッシブ $\text{SCR}$ システムにおいて達成され得ることが見出されている。特に、そのような配置を用いることによって、前記触媒化煤フィルターから出る過剰なアンモニアを、低いレベルに維持することも可能であることが見出されている。

#### 【0012】

したがって、本発明は、触媒化煤フィルター（ $\text{CSF}$ ）であって、前記 $\text{CSF}$ は、多孔質壁流基板、リーン $\text{NO}_x$ トラップ（ $\text{LNT}$ ）触媒、及び選択的触媒還元（ $\text{SCR}$ ）のための触媒を含み、

前記壁流基板が、入口端、出口端、前記入口端と前記出口端の間に延在する基板軸方向の長さ、及び前記壁流基板の内壁によって規定される複数のチャンネルを含み、前記複数のチャンネルは、開放入口端及び閉鎖出口端を有する入口チャンネル、並びに閉鎖入口端及び開放出口端を有する出口チャンネルを含み、

前記 $\text{LNT}$ 触媒は、前記入口チャンネル壁の表面の一部、及び前記 $\text{LNT}$ 触媒でコーティングされた前記チャンネル壁の表面下の前記チャンネル壁内の細孔の表面の少なくとも一部に供給され、

前記 $\text{LNT}$ 触媒でコーティングされた入口チャンネル壁の一部は、前記入口端から前記基板軸方向の長さの $x\%$ まで延在し（ $0 < x < 100$ ）、

前記 $\text{SCR}$ 触媒は、前記出口チャンネル壁の表面の一部、及び前記 $\text{SCR}$ 触媒でコーティングされた前記チャンネル壁の表面下の前記チャンネル壁内の細孔の表面の少なくとも一部に供給され、

前記 $\text{SCR}$ 触媒でコーティングされた出口チャンネル壁の一部は、前記出口端から前記基板軸方向の長さの $100 - x\%$ まで延在する触媒化煤フィルターに関連する。

#### 【発明を実施するための形態】

#### 【0013】

前記リーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒、及び選択的触媒還元のための触媒のそれぞれが、本発明に従う触媒化煤フィルターの、入口チャンネル及び出口チャンネルのそれぞれに供給される範囲に関しては、特に制限は適用されないので、原則として、前記入口端から供給される前記パラジウム成分の長さ、及び前記出口端から供給される白金成分の長さが、合計で前記全体の基板軸方向の長さ、すなわちその $100\%$ になるという条件で、入口チャンネル壁の任意の一部は、前記入口端から、前記基板軸方向の長さの全体未満まで延在するリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒が供給され、それにより、前記出口チャンネル壁の任意の部分は、前記出口端から、前記基板軸方向の長さの全体未満まで延在する前記選択的触媒還元のための触媒が供給される。したがって、例として、 $x$ は $5 \sim 95$ の範囲に及び、 $x$ は $15 \sim 85$ 、さらに好ましくは $25 \sim 75$ 、さらに好ましくは $35 \sim 65$ 、さらに好ましくは $45 \sim 55$ の範囲に及ぶことが好ましい。その代わりに、 $x$ は $5 \sim 65$ の範囲に及んでもよく、 $x$ は $15 \sim 55$ 、さらに好ましくは $20 \sim 45$ 、さらに好ましくは $25 \sim 35$ の範囲に及ぶことが好ましい。

#### 【0014】

前記触媒化煤フィルターに使用される前記多孔質壁流基板に関しては、その形状及び寸法についても、それが作られる材料についても特に制限は適用されない。しかしながら、本発明によれば、前記多孔質壁流基板は、前記壁流基板の各壁がそれぞれ入口チャンネルの表面である第一の表面、及び出口チャンネルの表面である第二の表面を有するように、交互に塞がれた入口端及び出口端を有するハニカム基板であることが好ましい。

#### 【0015】

したがって、前記触媒化煤フィルターに含まれる前記壁流基板の壁の多孔度（porosity）に関しても同様なことが適用されるので、前記多孔度は、 $40 \sim 85\%$ の範囲に及び得るように、好ましくは $45 \sim 80\%$ 、さらに好ましくは $50 \sim 75\%$ 、さらに好ましくは $55 \sim 70\%$ 、さらに好ましくは $60 \sim 65\%$ の範囲に及び得る。本出願に定義した前記多孔度に関しては、前記多孔度は、水銀圧入法によって、さらに好ましくは $\text{ISO 159}$

10

20

30

40

50

0 1 - 1 : 2 0 0 5 に従って得られることが好ましい。

【0 0 1 6】

本発明の触媒化煤フィルターに使用される前記壁流基板の壁の平均細孔径に関しても同様に特に制限は適用されないので、任意の適切な平均細孔径を示す前記壁流基板が使用され得る。したがって、例として、前記基板の壁の平均細孔径は、5 ~ 50  $\mu\text{m}$  の範囲、好ましくは、10 ~ 40  $\mu\text{m}$ 、さらに好ましくは13 ~ 35  $\mu\text{m}$ 、さらに好ましくは15 ~ 30  $\mu\text{m}$ 、さらに好ましくは17 ~ 25  $\mu\text{m}$ 、さらに好ましくは18 ~ 22  $\mu\text{m}$  の範囲であり得る。前記多孔度に関しては、前記基板の壁の平均細孔径が、コーティングされていない壁流基板、すなわち、前記SCR触媒、並びに前記パラジウム及び白金成分がその上に供給される前のものであることに留意する。さらに、前記基板の多孔度に関して、本出願に定義した前記壁の細孔径も同様に、好ましくは水銀圧入法によって測定される平均細孔径、さらに好ましくはISO 15901 - 1 : 2005 に従って得られる平均細孔径のことを称する。

10

【0 0 1 7】

上述の通り、前記壁流基板が構成される材料に関して特に制限はないので、例として、それは、金属、金属酸化物、及びセラミック材料からなる群から選択される1種以上を含み、好ましくは、前記壁流フィルターが構成される前記材料は、コーディエライト、チタン酸アルミニウム、炭化ケイ素、ムライト、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1種以上を含み、さらに好ましくは、前記壁流基板は、コーディエライト、チタン酸アルミニウム又は炭化ケイ素から、好ましくは炭化ケイ素から作られる。

20

【0 0 1 8】

本発明によれば、前記リーンNO<sub>x</sub>トラップ触媒、及び前記選択的触媒還元のための触媒は、それぞれ前記壁流基板の前記チャンネル壁の表面に、及びそれでコーティングされた前記チャンネル壁の表面下の前記チャンネル壁内の細孔の表面の少なくとも一部に供給される。したがって、前記それぞれの触媒成分は、前記それぞれの触媒成分でコーティングされた一部の下で、前記壁流基盤の壁内に含まれる細孔の少なくとも一部が、均等にそれでコーティングされるように、それぞれその上に供給される前記壁流基板の一部において、前記チャンネル壁に浸透する。本発明によれば、前記コーティングされた部分の下の前記チャンネル壁内に位置する細孔が、前記触媒成分で、それ自体コーティングされる範囲に関して、特に制限はないので、本発明によって与えられる可能性は、それらの前記表面から直ぐ近くに位置する前記チャンネル壁内の細孔のみをコーティングすることから、前記それぞれの触媒成分でコーティングされた表面下の前記チャンネル壁内に位置する実質的に全ての細孔の表面のコーティングまで及ぶ。本発明の意味の範囲内で、前記チャンネル壁内の前記細孔の表面のコーティングは、それぞれの触媒成分でコーティングされている一定の細孔内の表面の一部のみを包囲する。したがって、例として、リーンNO<sub>x</sub>トラップ触媒に関して、それは、前記リーンNO<sub>x</sub>トラップ触媒でコーティングされた前記入口チャンネル壁の表面から、前記コーティングされていない基板の壁の厚さの10%以上の深さまで延在する前記リーンNO<sub>x</sub>トラップ触媒でコーティングされた前記チャンネル壁の表面下の前記チャンネル壁内の前記細孔の表面の少なくとも一部に供給され得る。しかしながら、本発明によれば、リーンNO<sub>x</sub>トラップ触媒は、前記リーンNO<sub>x</sub>トラップ触媒でコーティングされた前記入口チャンネル壁の表面から、前記コーティングされていない基板の壁の厚さの15%以上の深さまで、さらに好ましくは前記コーティングされていない基板の壁の厚さの20%以上、さらに好ましくは35%以上、さらに好ましくは40%以上、さらに好ましくは50%以上の深さまで、さらに好ましくは70%以上の深さまで延在する前記リーンNO<sub>x</sub>トラップ触媒でコーティングされた前記チャンネル壁の表面下の前記チャンネル壁内の前記細孔の表面の少なくとも一部に供給されることが好ましい。

30

40

【0 0 1 9】

したがって、前記SCR触媒に関しても同様なことが適用されるので、本発明によれば、前記SCR触媒は、例として、前記SCR触媒でコーティングされた前記出口チャンネル壁の表面から、前記コーティングされていない基板の壁の厚さの10%以上の深さまで延

50

在する前記SCR触媒でコーティングされた前記チャンネル壁の一部の表面下の前記チャンネル壁内の前記細孔の表面の少なくとも一部に供給され得、好ましくは、前記SCR触媒は、前記SCR触媒でコーティングされた前記表面から、前記コーティングされていない基板の壁の厚さの15%以上の深さまで、さらに好ましくは20%以上、さらに好ましくは35%以上、さらに好ましくは40%以上、さらに好ましくは50%以上の深さまで、さらに好ましくは70%以上の深さまで延在する前記SCR触媒でコーティングされた前記チャンネル壁の一部の表面下の前記チャンネル壁内の前記細孔の表面の少なくとも一部に供給される。

#### 【0020】

本発明の特定の及び好ましい実施形態に従って、前記チャンネル壁内の前記リーノ<sub>x</sub>トラップ触媒、及び前記選択的触媒還元のための触媒のそれぞれの浸透度が測定され得る方法に関しては特に制限は適用されないので、任意の考えられる方法が、この目的で使用され得る。しかしながら、本発明によれば、前記リーノ<sub>x</sub>トラップ触媒、及び前記選択的触媒還元のための触媒が、それぞれ前記チャンネル壁内に延在する深さは、前記コーティングされた基板の横断面の走査型電子顕微鏡(SEM)によって測定されることが好ましい。

10

#### 【0021】

本発明に従う触媒化煤フィルターに含まれるSCR触媒に関しては、それに含有される材料に関連して、アンモニアによる還元を介するNO<sub>x</sub>のN<sub>2</sub>への選択的触媒還元が、前記材料によって触媒され得るという条件で、特に制限は適用されない。したがって、任意の適切なSCR-活性材料が、前記SCR触媒中に含まれ得る。しかしながら、本発明によれば、前記SCR触媒は、1種以上のゼオライト、さらに好ましくは、BEA、CHA、FAU、FER、HEU、LEV、MEI、MEL、MFI、MOR(それらの2種以上の混合構造、及び組合せを含む)からなる群から、さらに好ましくはBEA、CHA、LEV、MFI(それらの2種以上の混合構造、及び組合せを含む)からなる群から選択される構造型を有する1種以上のゼオライトを含むことが好ましく、さらに好ましくは、前記1種以上のゼオライトは、BEA及び/又はCHA構造型の、好ましくはCHA構造型のものであり、さらに好ましくは、前記1種以上のゼオライトは、チャバサイトを含み、好ましくは、前記1種以上のゼオライトはチャバサイトである。

20

#### 【0022】

さらに、本発明によれば、本発明の任意の特定の好ましい実施形態に従って、前記SCR触媒中に含まれる前記1種以上のゼオライトは、1種以上の遷移金属を含有することがさらに好ましい。前記SCR触媒中に好ましく含まれる前記1種以上のゼオライトに好ましく含有される前記1種以上の遷移金属に関しては、特に制限は適用されないので、原則として、任意の考えられる遷移金属が、それらに含有され得る。しかしながら、本発明によれば、前記1種以上のゼオライトは、Pt、Pd、Rh、Cu、Co、Cr、Ni、Fe、V、Nb、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1種以上の遷移金属、さらに好ましくはCu、Co、Cr、Ni、Fe、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1種以上の遷移金属を含有することが好ましく、さらに好ましくは、前記1種以上のゼオライトは、Cu及び/又はFe、好ましくはCuを含有する。

30

40

#### 【0023】

前記触媒化煤フィルターの前記SCR触媒中に好ましく含まれる前記1種以上のゼオライトが1種以上の遷移金属を含有する本発明の特定の好ましい実施形態に関しては、それぞれの遷移金属が、前記1種以上のゼオライトに含有される状態、それによって特に前記1種以上の遷移金属がゼオライト中に導入される方法に関して、特に制限はない。しかしながら、本発明によれば、前記SCR触媒中に好ましく含まれる前記1種以上のゼオライトに含有される前記1種以上の遷移金属は、前記ゼオライト中にイオン交換によって、及び/又は含浸によって導入されていることが好ましく、前記1種以上の遷移金属は、イオン交換によってそれらの中に導入されていることが、特に好ましい。

#### 【0024】

50



任意に 1 種以上の遷移金属を含有する前記 1 種以上の好ましいゼオライトが、本発明の触媒化煤フィルターに含有される量に関しては、特に制限は適用されないもので、これらは、任意の適切な量で、その中に含有され得る。したがって、例として、任意に 1 種以上の遷移金属を含有する前記 1 種以上のゼオライトは、SCR 触媒として前記触媒化煤フィルターに、前記出口端から前記基板軸方向の長さの  $100 - x\%$  まで測定された前記触媒化煤フィルターの体積に基づいて、か焼状態で、任意に 1 種以上の遷移金属を含有する、前記 1 種以上のゼオライトの総質量として算出される  $0.05 \sim 6 \text{ g/in}^3$  の範囲、さらに好ましくは  $0.1 \sim 5 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.5 \sim 4 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.8 \sim 3 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $1 \sim 2.5 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $1.3 \sim 2 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $1.5 \sim 1.9 \text{ g/in}^3$  の範囲に及ぶ量で含有され得る。 10

#### 【0025】

本発明の意味の範囲内で、用語「か焼状態」は、好ましくは、任意に 1 種以上の遷移金属を含有する前記 1 種以上のゼオライトの、空气中 450 で 1 時間か焼した後の状態のことを称する。

#### 【0026】

前記触媒化煤フィルターにおける前記壁流基板上に供給される前記 SCR 触媒の粒子の大きさに関しては、前記粒子が、前記入口チャネル壁の表面上だけでなく、前記チャネル壁の表面下の前記チャネル壁内の細孔の表面の少なくとも一部にも供給され得るという条件で、特に制限は適用されない。これを達成するため、前記 SCR 触媒の平均粒径  $D_{90}$  は、前記基板の壁の平均細孔径の  $25\%$  以下であることが好ましい。したがって、例として、前記 SCR 触媒の平均粒径  $D_{90}$  は  $0.5 \sim 20 \mu\text{m}$  の範囲に及び得、さらに好ましくは、前記平均粒径  $D_{90}$  は  $1 \sim 15 \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは  $3 \sim 10 \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは  $4 \sim 8 \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは  $5 \sim 7 \mu\text{m}$  の範囲に及ぶ。 20

#### 【0027】

本発明によれば、前記平均粒径  $D_{90}$  は、好ましくはレーザー回折から得られる、さらに好ましくは ISO 13320:2009 に従って得られる粒度分布から算出される平均粒径のことを称する。

#### 【0028】

本発明によれば、前記触媒化煤フィルターに供給され得る前記リーン  $\text{NO}_x$  トラップ触媒の量に関しては、特に制限はない。したがって、前記リーン  $\text{NO}_x$  トラップ触媒は、前記触媒化煤フィルターに、特に前記入口端から前記基板軸方向の長さの  $x\%$  まで延在する前記リーン  $\text{NO}_x$  トラップ触媒でコーティングされた前記触媒化煤フィルターの一部に、前記入口端から前記基板軸方向の長さの  $x\%$  まで測定された前記触媒化煤フィルターの体積に基づいて、 $0.05 \sim 6 \text{ g/in}^3$  の範囲に及ぶ量で含有され得る。しかしながら、本発明によれば、前記リーン  $\text{NO}_x$  トラップ触媒は、前記入口端から前記基板軸方向の長さの  $x\%$  まで延在する前記リーン  $\text{NO}_x$  トラップ触媒でコーティングされた前記触媒化煤フィルターの一部に、 $0.1 \sim 5 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.5 \sim 4 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.8 \sim 3 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $1 \sim 2.5 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $1.3 \sim 2 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $1.5 \sim 1.9 \text{ g/in}^3$  の範囲の量で含有されることが好ましい。 30 40

#### 【0029】

本発明によれば、前記リーン  $\text{NO}_x$  トラップ触媒中に含有され得る成分に関連して、これらが、排出ガスに  $\text{NO}$  及び / 又は  $\text{NO}_2$  として、好ましくは  $\text{NO}$  として含有される  $\text{NO}_x$  を捕捉するために適切である、又は前記リーン  $\text{NO}_x$  トラップ触媒中に含有される他の成分による  $\text{NO}_x$  の貯蔵を妨げないという条件で、特に制限はない。本発明によれば、前記リーン  $\text{NO}_x$  トラップ触媒は、1 種以上のアルカリ土類金属、好ましくは、 $\text{Mg}$ 、 $\text{Ca}$ 、 $\text{Ba}$ 、 $\text{Sr}$ 、及びそれらの 2 種以上の組合せからなる群から選択される 1 種以上のアルカリ土類金属を含むことが好ましい。さらに本発明によれば、前記リーン  $\text{NO}_x$  トラップ触媒は、 $\text{Mg}$ 、 $\text{Ca}$ 、 $\text{Ba}$ 、及びそれらの 2 種以上の組合せからなる群から選択される 1 種 50

以上のアルカリ土類金属を含むことがさらに好ましく、さらにいっそう好ましくはMg、及び/又はBa、好ましくはBaが、本発明の特定の好ましい実施形態に従って、前記リーノ<sub>x</sub>トラップ触媒中に前記アルカリ土類金属として含有される。前記アルカリ土類金属が、前記リーノ<sub>x</sub>トラップ触媒中に含有され得る形態に関しては、特に制限は適用されないが、好ましくは、本発明の特定の好ましい実施形態に従う前記1種以上のアルカリ土類金属は、前記リーノ<sub>x</sub>トラップ触媒において、酸化物形態で含有される。

#### 【0030】

本発明によれば、好ましくは前記リーノ<sub>x</sub>トラップ触媒中に含有され、それにより、前記入口端から前記基板軸方向の長さのx%まで延在する前記リーノ<sub>x</sub>トラップ触媒でコーティングされた前記触媒化煤フィルターの一部に含有される前記1種以上のアルカリ土類金属の量に関しては、特に制限はない。したがって、本発明の任意の特定の好ましい実施形態に従う前記1種以上のアルカリ土類金属は、前記入口端から前記基板軸方向の長さのx%まで延在する前記リーノ<sub>x</sub>トラップ触媒でコーティングされた前記触媒化煤フィルターの一部に、前記入口端から前記基板軸方向の長さのx%まで測定された前記触媒化煤フィルターの体積に基づいて、酸化物として算出される1種以上のアルカリ土類金属の0.01~2g/in<sup>3</sup>の範囲に及ぶ量で含有され得る。しかしながら、本発明によれば、前記1種以上のアルカリ土類金属は、前記入口端から前記基板軸方向の長さのx%まで延在する前記リーノ<sub>x</sub>トラップ触媒でコーティングされた前記触媒化煤フィルターの一部に、0.05~1g/in<sup>3</sup>、さらに好ましくは0.1~0.8g/in<sup>3</sup>、さらに好ましくは0.15~0.6g/in<sup>3</sup>、さらに好ましくは0.2~0.45g/in<sup>3</sup>、さらに好ましくは0.25~0.38g/in<sup>3</sup>、さらに好ましくは0.28~0.35g/in<sup>3</sup>、さらに好ましくは0.30~0.33g/in<sup>3</sup>、さらに好ましくは0.31~0.32g/in<sup>3</sup>の範囲の量で含有されることが好ましい。本発明の意味の範囲内で、前記特定の好ましい実施形態に従う前記アルカリ土類金属の酸化物は、MgO、CaO、BaO及びSrOである。

#### 【0031】

本発明によれば、前記リーノ<sub>x</sub>トラップ触媒は、1種以上の酸素貯蔵成分、好ましくはジルコニア、セリア、ランタナ、プラセオジミア、ネオジミア、及びそれらの混合物からなる群から選択される1種以上の酸素貯蔵成分を含むことが好ましい。さらに、本発明によれば、前記リーノ<sub>x</sub>トラップ触媒は、セリア、ランタナ、プラセオジミア、ネオジミア、及びそれらの混合物からなる群から選択される1種以上の酸素貯蔵成分を含むことがさらに好ましく、さらに好ましくは、前記酸素貯蔵成分は、セリア、及び/又はプラセオジミアを含む。本発明によれば、前記リーノ<sub>x</sub>トラップ触媒中に含まれる前記酸素貯蔵成分は、セリアを含むことが特に好ましく、さらに好ましくは、前記リーノ<sub>x</sub>トラップ触媒中に含まれる前記酸素貯蔵成分は、セリア、及び/又はプラセオジミアである。本発明によれば、前記リーノ<sub>x</sub>トラップ触媒中に含まれる前記酸素貯蔵成分は、セリアであることが特に好ましい。本発明に定義した通り、ジルコニア、セリア、ランタナ、プラセオジミア、ネオジミアは、好ましくは、それぞれ、化合物ZrO<sub>2</sub>、CeO<sub>2</sub>、La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Pr<sub>6</sub>O<sub>11</sub>、及びNd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>のことを称する。

#### 【0032】

本発明によれば、好ましくは前記リーノ<sub>x</sub>トラップ触媒中に含有され、それにより、前記入口端から前記基板軸方向の長さのx%まで延在する前記リーノ<sub>x</sub>トラップ触媒でコーティングされた前記触媒化煤フィルターの一部に含有される前記1種以上の酸素貯蔵成分の量に関しては、前記1種以上の成分が、所定の条件下で、酸素ガスから酸素を可逆的に貯蔵するために適しているという条件で、特に制限はない。したがって、本発明の任意の特定の好ましい実施形態に従う前記1種以上の酸素貯蔵成分は、前記入口端から前記基板軸方向の長さのx%まで延在する前記リーノ<sub>x</sub>トラップ触媒でコーティングされた前記触媒化煤フィルターの一部に、前記入口端から前記基板軸方向の長さのx%まで測定された前記触媒化煤フィルターの体積に基づいて、0.01~3g/in<sup>3</sup>の範囲に及ぶ量で含有され得る。しかしながら、本発明によれば、前記1種以上の酸素貯蔵成分

は、前記入口端から前記基板軸方向の長さの $x\%$ まで延在する前記リーク $\text{NO}_x$ トラップ触媒でコーティングされた前記触媒化煤フィルターの一部に、 $0.05 \sim 2 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは $0.1 \sim 1.5 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは $0.2 \sim 1.2 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは $0.3 \sim 1 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは $0.4 \sim 0.8 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは $0.45 \sim 0.7 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは $0.5 \sim 0.6 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは $0.53 \sim 0.55 \text{ g/in}^3$ の範囲の量で含有されることが好ましい。

#### 【0033】

したがって、前記SCR触媒の量に関しても同様なことが適用されるので、それは、例として、前記触媒化煤フィルターに、特に前記出口端から前記基板軸方向の長さの $100 - x\%$ まで延在する前記SCR触媒でコーティングされた前記触媒化煤フィルターの一部に、前記出口端から前記基板軸方向の長さの $100 - x\%$ まで測定された前記触媒化煤フィルターの体積に基づいて、 $0.05 \sim 6 \text{ g/in}^3$ の範囲に及ぶ量で含有され得る。しかしながら、本発明によれば、前記SCR触媒は、前記出口端から前記基板軸方向の長さの $100 - x\%$ まで延在する前記SCR触媒でコーティングされた前記触媒化煤フィルターの一部に、 $0.1 \sim 5 \text{ g/in}^3$ の範囲の量で、さらに好ましくは $0.5 \sim 4 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは $0.8 \sim 3 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは $1 \sim 2.5 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは $1.3 \sim 2 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは $1.5 \sim 1.9 \text{ g/in}^3$ の範囲の量で含有されることが好ましい。完全を期するため、本発明の意味の範囲内で、 $\text{g/in}^3$ 、又は $\text{g/ft}^3$ で表される前記触媒化煤フィルター及び他の触媒化モノリス(monolith)中の材料の量は、前記モノリスの(触媒)成分体積の問題となる材料のグラムでの負荷量を反映することに留意する。この趣旨で、前記モノリス又はハニカムの体積は、その断面積及び長さに基づいて算出される。 $\text{NO}_x$ を捕捉するために適切な前記1種以上の成分に加えて、好ましくは本発明の任意の特定の好ましい実施形態に従う前記1種以上のアルカリ土類金属に加えて、前記リーク $\text{NO}_x$ トラップ触媒中に含有され得るさらなる成分に関しては、特に制限は適用されないで、任意の考えられる1種以上のさらなる成分が、その中に含有され得る。しかしながら、本発明によれば、前記リーク $\text{NO}_x$ トラップ触媒は、1種以上の白金族金属、さらに好ましくは、白金、パラジウム、ロジウム、イリジウム、及びそれらの2種以上の組合せからなる群から選択される1種以上の白金族金属を含むことが好ましい。さらに好ましくは、前記リーク $\text{NO}_x$ トラップ触媒は、白金、パラジウム、ロジウム、及びそれらの2種以上の組合せからなる群から選択される1種以上の白金族金属を含み、さらに好ましくは、前記リーク $\text{NO}_x$ トラップ触媒は、白金、さらに好ましくは白金及びパラジウムを含み、さらにいっそう好ましくは、白金、パラジウム、及びロジウムは、本発明の任意の特定の好ましい実施形態に従って、前記リーク $\text{NO}_x$ トラップ触媒中に前記白金族金属として含有される。

#### 【0034】

1種以上の白金族金属が、前記リーク $\text{NO}_x$ トラップ触媒中に含有され、それにより、前記入口端から前記基板軸方向の長さの $x\%$ まで延在する前記リーク $\text{NO}_x$ トラップ触媒でコーティングされた前記触媒化煤フィルターの一部に含有される本発明の特定の好ましい実施形態に関しては、前記リーク $\text{NO}_x$ トラップ触媒が排出ガス中に含有される $\text{NO}_x$ を効果的に捕捉し得るという条件で、特に制限は適用されない。したがって、例として、前記入口端から前記基板軸方向の長さの $x\%$ まで延在する前記 $\text{NO}_x$ トラップ触媒でコーティングされた前記触媒化煤フィルターの一部に含有される前記1種以上の白金族金属は、その中に、前記入口端から前記基板軸方向の長さの $x\%$ まで測定された前記触媒化煤フィルターの体積に基づいて、前記元素として算出される1種以上の白金族金属の $1 \sim 200 \text{ g/ft}^3$ の範囲に及ぶ量で含有され得る。しかしながら、本発明によれば、前記1種以上の白金族金属は、前記入口端から前記基板軸方向の長さの $x\%$ まで延在する前記リーク $\text{NO}_x$ トラップ触媒でコーティングされた前記触媒化煤フィルターの一部に、前記入口端から前記基板軸方向の長さの $x\%$ まで測定された前記触媒化煤フィルターの体積に基づいて、前記元素として算出される1種以上の白金族金属の $5 \sim 150 \text{ g/ft}^3$ の範囲の量

で含有されることが好ましく、さらに好ましくは、前記１種以上の白金族金属は、前記リー  
ン $\text{NO}_x$ トラップ触媒でコーティングされた前記触媒化煤フィルターの一部に、 $10 \sim 120 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $30 \sim 100 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $40 \sim 80 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $50 \sim 70 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $55 \sim 65 \text{ g / ft}^3$ の範囲の量で含有される。

【００３５】

本発明によれば、前記リーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒は白金を含むことが特に好ましい。本  
発明によれば、前記好ましい実施形態に従って、前記入口端から前記基板軸方向の長さの  
 $x\%$ まで延在する前記リーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒でコーティングされた前記触媒化煤フィ  
ルターの一部に含有され得る白金の量に関しては特に制限はない。したがって、例として  
、白金は、前記入口端から前記基板軸方向の長さの $x\%$ まで延在する前記リーン $\text{NO}_x$ ト  
ラップ触媒でコーティングされた前記触媒化煤フィルターの一部に、前記入口端から前記  
基板軸方向の長さの $x\%$ まで測定された前記触媒化煤フィルターの体積に基づいて、前記  
元素として算出される白金の $0.5 \sim 180 \text{ g / ft}^3$ の範囲に及ぶ量で含有され得、白  
金は、前記リーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒でコーティングされた前記触媒化煤フィルターの一  
部に、 $1 \sim 140 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $5 \sim 110 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは  
 $10 \sim 90 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $30 \sim 70 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $40 \sim 60 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $50 \sim 55 \text{ g / ft}^3$ の範囲の量で含有されることが好  
ましい。

【００３６】

本発明によれば、前記リーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒はパラジウムを含むことが、さらに好  
ましく、パラジウムは、前記入口端から前記基板軸方向の長さの $x\%$ まで延在する前記リ  
ーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒でコーティングされた前記触媒化煤フィルターの一部に含有され  
る。前記リーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒中に白金を含む本発明の特定の好ましい実施形態に関  
しては、パラジウムが、前記リーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒でコーティングされた前記触媒化  
煤フィルターの一部に含有され得る量に関しても、同様に特に制限はない。したがって、  
例として、本発明の特定の好ましい実施形態に従って、前記リーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒で  
コーティングされた前記触媒化煤フィルターの一部に含有されるパラジウムは、前記入  
口端から前記基板軸方向の長さの $x\%$ まで測定された前記触媒化煤フィルターの体積に基づ  
いて、前記元素として算出されるパラジウムの $0.05 \sim 18 \text{ g / ft}^3$ の範囲に及ぶ量  
で存在し得、好ましくは、パラジウムは、前記入口端から前記基板軸方向の長さの $x\%$ ま  
で延在する前記リーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒でコーティングされた前記触媒化煤フィルター  
の一部に、 $0.1 \sim 15 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $0.5 \sim 12 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好  
ましくは $1 \sim 10 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $3 \sim 8 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $4 \sim 6 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $4.5 \sim 5.5 \text{ g / ft}^3$ の範囲の量で含有される。

【００３７】

最後に、本発明によれば、前記リーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒はロジウムを含むことがさら  
に好ましい。前記リーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒中に、パラジウム、及び／又は白金を含む本  
発明の特定の好ましい実施形態に関しては、ロジウムが、前記リーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒  
でコーティングされた前記触媒化煤フィルターの一部に含有され得る量に関しても、同様  
に特に制限はない。したがって、例として、ロジウムは、前記入口端から前記基板軸方  
向の長さの $x\%$ まで延在する前記リーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒でコーティングされた前記触媒  
化煤フィルターの一部に、前記入口端から前記基板軸方向の長さの $x\%$ まで測定された前  
記触媒化煤フィルターの体積に基づいて、前記元素として算出されるロジウムの $0.05$   
 $\sim 18 \text{ g / ft}^3$ の範囲に及ぶ量で含有され得、好ましくは、ロジウムは、前記入口端か  
ら前記基板軸方向の長さの $x\%$ まで延在する前記リーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒でコーティ  
ングされた前記触媒化煤フィルターの一部に、 $0.1 \sim 15 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは  
 $0.5 \sim 12 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $1 \sim 10 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $3 \sim 8$   
 $\text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $4 \sim 6 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $4.5 \sim 5.5 \text{ g / ft}^3$ の範囲の量で含有される。

## 【 0 0 3 8 】

前記リーノ $\text{NO}_x$ トラップ触媒が、1種以上のアルカリ土類金属、及び/又は1種以上の白金族金属を含む、本発明の特定の好ましい実施形態によれば、前記1種以上のアルカリ土類金属、及び前記1種以上の白金族金属は、前記壁流基板上に、任意の適切な方法でそれぞれ供給され得るので、前記1種以上のアルカリ土類金属、及び前記1種以上の白金族金属は、互いに独立して、前記壁流基板上に直接含有され得るか、及び/又は次に前記壁流基板上に供給される別の担体材料上で、前記触媒化煤フィルターに含有され得る。しかしながら、本発明によれば、前記1種以上のアルカリ土類金属、及び/又は前記1種以上の白金族金属、好ましくは前記1種以上のアルカリ土類金属、及び前記1種以上の白金族金属は、担体材料上に、特に次に前記触媒化煤フィルターの前記壁流基板上に担持される粒子担体材料上に、担持されていることが好ましい。したがって、本発明の特定の好ましい実施形態によれば、前記リーノ $\text{NO}_x$ トラップ触媒は、本発明の任意の好ましい実施形態に従って、前記1種以上のアルカリ土類金属、及び/又は、好ましくは及び前記白金族金属を、それぞれ粒子担体材料上に含むことが好ましい。

10

## 【 0 0 3 9 】

前記特定の好ましい実施形態に従って使用され得る前記担体に関しては、特に制限は適用されないので、任意の適切な粒子担体材料が、これらの目的で使用され得る。したがって、例として、前記1種以上のアルカリ土類金属、及び前記1種以上の白金族金属が、それぞれ担持されている前記粒子担体は、互いに独立して、アルミナ、シリカ、アルミナ - シリカ、チタニア、チタニア - アルミナ、ジルコニア、ジルコニア - アルミナ、バリア - アルミナ、セリア、セリア - アルミナ、バリア - セリア - アルミナ、マグネシア、マグネシア - アルミナ、マグネシア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、チタニア - 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、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ - シリカ、チタニア - アルミナ、ジルコニア - アルミナ、バリア - アルミナ、セリア、セリア - アルミナ、バリア - セリア - アルミナ、マグネシア - アルミナ、マグネシア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、及びそれらの2種以上の混合物からなる群から、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ - シリカ、ジルコニア - アルミナ、セリア - アルミナ、マグネシア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、及びそれらの2種以上の混合物からなる群から、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ - シリカ、チタニア - アルミナ、ジルコニア - アルミナ、バリア - アルミナ、セリア、セリア - アルミナ、バリア - セリア - アルミナ、マグネシア、マグネシア - アルミナ、マグネシア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、チタニア - 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、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ - シリカ、チタニア - アルミナ、ジルコニア - アルミナ、バリア - アルミナ、セリア、セリア - アルミナ、バリア - セリア - アルミナ、マグネシア - アルミナ、マグネシア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、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得、さらに好ましくは、前記粒子担体材料は、ジルコニア - アルミナ、及び/又はマグネシア - セリア - アルミナである。

20

30

## 【 0 0 4 0 】

本発明によれば、前記リーノ $\text{NO}_x$ トラップ触媒は、パラジウム及び白金の両方を含み、前記白金族金属は、粒子担体材料上に担持されていることが特に好ましい。前記好ましい実施形態によれば、白金及びパラジウムが、同じ粒子上に少なくとも一部、若しくは完全に担持されているかどうか、又は白金及びパラジウムが、前記粒子担体材料の別の粒子上に担持されているかどうかに関しては、制限はない。しかしながら、本発明によれば、白金及びパラジウムは、前記粒子担体材料の同じ粒子上に担持されていることが特に好ましく、さらに好ましくは、前記粒子担体材料は、アルミナ、シリカ、アルミナ - シリカ、チタニア、チタニア - アルミナ、ジルコニア、ジルコニア - アルミナ、バリア - アルミナ、セリア、セリア - アルミナ、バリア - セリア - アルミナ、マグネシア、マグネシア - アルミナ、マグネシア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、チタニア - 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、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ - シリカ、チタニア - アルミナ、ジルコニア - アルミナ、バリア - アルミナ、セリア、セリア - アルミナ、バリア - セリア - アルミナ、マグネシア - アルミナ、マグネシア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、及びそれらの2種以上の混合物からなる群から、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ - シリカ、ジルコニア - アルミナ、セリア - アルミナ、マグネシア - セリ

40

50

ア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、及びそれらの 2 種以上の混合物からなる群から、さらに好ましくはアルミナ、ジルコニア - アルミナ、セリア - アルミナ、マグネシア - セリア - アルミナ、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、さらに好ましくは、前記粒子担体材料は、マグネシア - セリア - アルミナであり、好ましくは、前記マグネシア - セリア - アルミナは、マグネシア及びセリアでドーブされているアルミナからなり、さらに好ましくは、アルミナは、100 質量%のマグネシア - セリア - アルミナに基づいて、1 ~ 30 質量%のマグネシア、さらに好ましくは 5 ~ 25 質量%のマグネシア、さらに好ましくは 10 ~ 20 質量%のマグネシア、さらに好ましくは 12 ~ 18 質量%のマグネシア、さらに好ましくは 14 ~ 16 質量%のマグネシアで、且つそれと独立して、100 質量%のマグネシア - セリア - アルミナに基づいて、0.5 ~ 25 質量%のセリア、さらに好ましくは 1 ~ 20 質量%のセリア、さらに好ましくは 5 ~ 15 質量%のセリア、さらに好ましくは 7 ~ 12 質量%のセリア、さらに好ましくは 9 ~ 11 質量%のセリアでドーブされている。

10

20

30

40

50

#### 【0041】

上述の特に好ましい実施形態の代わりに、又はそれに加えて、前記リーク  $\text{NO}_x$  トラップ触媒は、ロジウムを含み、ロジウムは、好ましくは、粒子担体材料上に担持されている。白金及びパラジウムに関して、ロジウムが担持され得る粒子担体材料の種類又は数に関しては特に制限はないが、本発明の前記特定の好ましい実施形態に従って、ロジウムは、アルミナ、シリカ、アルミナ - シリカ、チタニア、チタニア - アルミナ、ジルコニア、ジルコニア - アルミナ、バリア - アルミナ、セリア、セリア - アルミナ、バリア - セリア - アルミナ、マグネシア、マグネシア - アルミナ、マグネシア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、チタニア - 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、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ - シリカ、チタニア - アルミナ、ジルコニア - アルミナ、バリア - アルミナ、セリア、セリア - アルミナ、バリア - セリア - アルミナ、マグネシア - アルミナ、マグネシア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、及びそれらの 2 種以上の混合物からなる群から、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ - シリカ、ジルコニア - アルミナ、セリア - アルミナ、マグネシア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、及びそれらの 2 種以上の混合物からなる群から、さらに好ましくはアルミナ、ジルコニア - アルミナ、セリア - アルミナ、マグネシア - セリア - アルミナ、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粒子担体材料上に担持されていることが好ましく、さらに好ましくは、前記粒子担体材料はジルコニア - アルミナであり、好ましくは前記ジルコニア - アルミナは、ジルコニアでドーブされているアルミナからなり、さらに好ましくは、アルミナは、100 質量%のジルコニア - アルミナに基づいて、1 ~ 50 質量%のジルコニア、さらに好ましくは 5 ~ 40 質量%のジルコニア、さらに好ましくは 10 ~ 30 質量%のジルコニア、さらに好ましくは 15 ~ 25 質量%のジルコニア、さらに好ましくは 18 ~ 22 質量%のジルコニアでドーブされている。

#### 【0042】

前記リーク  $\text{NO}_x$  トラップ触媒が、白金、パラジウム、及びロジウムを含み、前記成分の全てが、1 種以上の粒子担体材料上に供給される、本発明の特に好ましい実施形態に関して、1 種以上の前記元素が、1 種以上の粒子担体材料の同じ粒子上に少なくとも一部、若しくは完全に担持されているかどうか、又は前記 3 種の白金族金属の 2 種が、1 種以上の粒子担体材料の粒子上に少なくとも一部、若しくは完全に担持されており、且つ第 3 の白金族金属が、前記粒子担体材料の別の粒子上に担持されているかどうかに関しても、同様に特に制限はない。しかしながら、本発明によれば、前記リーク  $\text{NO}_x$  トラップ触媒が、白金、パラジウム、及びロジウムを含み、ロジウムは、パラジウム及び白金よりも、前記粒子担体材料の別の粒子上に担持されていることが特に好ましい。

#### 【0043】

前記 SCR 触媒に関して、本発明の任意の好ましい、及び特に好ましい実施形態に従って、前記 1 種以上のアルカリ土類金属、及び / 又は前記 1 種以上の白金族金属がその上に

担持されている前記粒子担体材料の大きさに関しては、前記粒子が、前記それぞれの入口及び出口チャンネル壁の表面だけでなく、前記チャンネル壁の表面下の前記チャンネル壁内の細孔の表面の少なくとも一部にも供給され得るという条件で、特に制限は適用されない。これを達成するため、前記１種以上のアルカリ土類金属、及び／又は前記１種以上の白金族金属がその上に担持されている前記粒子担体材料の平均粒径 $D_{90}$ は、前記基板の壁の平均細孔径の２５％以下であることが好ましい。したがって、例として、前記粒子担体材料の平均粒径 $D_{90}$ は $0.5 \sim 25 \mu m$ の範囲に及び得、好ましくは、前記平均粒径 $D_{90}$ は $1 \sim 20 \mu m$ 、さらに好ましくは $3 \sim 15 \mu m$ 、さらに好ましくは $6 \sim 12 \mu m$ 、さらに好ましくは $8 \sim 10 \mu m$ の範囲に及び。

#### 【００４４】

本発明によれば、本発明の任意の特定の好ましい実施形態に従って、前記粒子担体材料が、前記リーン $NO_x$ トラップ触媒中に含有され得る量に関しては、特に制限はない。したがって、例として、前記リーン $NO_x$ トラップ触媒は、前記粒子担体材料を、前記入口端から前記基板軸方向の長さの $x\%$ まで測定された前記触媒化煤フィルターの体積に基づいて、 $0.05 \sim 5 g/in^3$ の範囲に及び量で含み得、好ましくは、前記粒子担体材料は、前記リーン $NO_x$ トラップ触媒中に、 $0.1 \sim 3 g/in^3$ 、さらに好ましくは $0.5 \sim 2.5 g/in^3$ 、さらに好ましくは $1.0 \sim 2 g/in^3$ 、さらに好ましくは $1.3 \sim 1.8 g/in^3$ 、さらに好ましくは $1.4 \sim 1.6 g/in^3$ の範囲の量で含まれる。本発明によれば、前記リーン $NO_x$ トラップ触媒は、前記粒子担体材料を、 $1.45 \sim 1.55 g/in^3$ の範囲の量で含むことが特に好ましい。

#### 【００４５】

触媒化煤フィルターを提供することに加えて、本発明は、さらに触媒化煤フィルターを製造する方法、特に本出願に定義した、その任意の特定の好ましい実施形態に従う本発明の触媒化煤フィルターを製造する方法に関連する。したがって、本発明は、触媒化煤フィルターを製造する方法、好ましくは、本出願の任意の特定の好ましい実施形態に従う触媒化煤フィルターを製造する方法であって、前記方法が、

(i) 多孔質壁流基板であり、入口端、出口端、前記入口端と前記出口端の間に延在する基板軸方向の長さ、及び前記壁流基板の内壁によって規定される複数のチャンネルを含み、前記複数のチャンネルは、開放入口端及び閉鎖出口端を有する入口チャンネル、並びに閉鎖入口端及び開放出口端を有する出口チャンネルを含む多孔質壁流基板を供給する工程と、

(ii) 粒子担体材料にロジウム化合物の水溶液を含浸させる工程と、

(iii) (ii) で得られた前記含浸された粒子担体材料をか焼し、担持Rh粉末を供給する工程と、

(iv) 粒子担体材料を蒸留水と混合し、続いて、そこにパラジウム化合物の水溶液、及び白金化合物の水溶液を添加し、第一のスラリーを供給する工程と、

(v) 前記担持Rh粉末、１種以上の酸素貯蔵材料、及び１種以上のアルカリ土類金属化合物を(v)で得られた前記第一のスラリーに添加し、第二のスラリーを供給する工程と、

(vi) 任意に前記第二のスラリーを粉砕する(mill)工程(前記第二のスラリーは、前記多孔質壁流基板の壁の平均細孔径の２５％以下である平均粒径 $D_{90}$ を示す)と、

(vii) 固体SCR触媒を蒸留水中に懸濁し、任意に結果として生じる混合物を粉砕し、第三のスラリーを供給する工程(前記第三のスラリーは、前記多孔質壁流基板の壁の平均細孔径の２５％以下である平均粒径 $D_{90}$ を示す)と、

(viii) 前記壁流基板の前記入口端を前記第二のスラリー中に、前記入口端から延在する前記基板軸方向の長さの $x\%$ まで浸すことによって、前記壁流基板の前記入口チャンネル壁の一部をコーティングする工程( $0 < x < 100$ )と、

(ix) 前記第二のスラリーから前記壁流基板を除去し、好ましくは、前記壁流基板の前記コーティングされた入口チャンネル中に、前記出口チャンネルの壁を通して、空気を吹き込むことによって、前記入口チャンネルから過剰なスラリーを除去する工程と、

(x) 前記壁流基板の前記出口端を前記第三のスラリー中に、前記出口端から延在する

前記基板軸方向の長さの100-x%まで浸すことによって、前記壁流基板の前記出口チャンネル壁の一部をコーティングする工程と、

(xi) 前記第三のスラリーから前記壁流基板を除去し、好ましくは、前記壁流基板の前記コーティングされた出口チャンネル中に、前記入口チャンネルの壁を通して、空気を吹き込むことによって、前記出口チャンネルから過剰なスラリーを除去する工程と、

(xii) 任意に前記コーティングされた壁流基板を乾燥、及び/又はか焼する工程と、を含む製造方法に関連する。

#### 【0046】

工程(ii)における前記粒子担体材料の含浸に関しては、前記含浸がどのように達成され得るかにして特に制限はない。しかしながら、本発明の方法によれば、前記粒子担体材料の、ロジウム化合物の水溶液による含浸は、初期湿潤(incipient wetness)によって達成されることが好ましい。

#### 【0047】

触媒化煤フィルターを製造する本発明の方法は、(viii)で、及び(x)に定義した前記多孔質壁流基板のそれぞれの部分をコーティングする2工程を含む。個々のコーティング工程の間、及び前記多孔質壁流基板のコーティングを完了した後、個々のコーティング工程からの過剰なスラリーが、工程(ix)及び(xi)において、それぞれ除去される。最後に、前記コーティングされた多孔質壁流基板は、好ましくは、任意の工程(xii)において、乾燥、及び/又はか焼する工程を受ける。しかしながら、さらなるコーティングの塗布の前に、個々のコーティングが、確実に前記壁流基板に十分に固定されるように、本発明の方法によれば、工程(ix)及び(x)の間に、前記コーティングされた壁流フィルター基板が、乾燥、及び/又はか焼の工程を受けることが好ましい。

#### 【0048】

触媒化煤フィルターを製造する本発明の方法において使用される1工程以上の好ましい乾燥、及びか焼する工程で使用され得る温度に関しては、特に制限は適用されないので、原則として、任意の温度が、前記コーティングされた多孔質壁流基板の乾燥、及び/又はか焼のために、それぞれ使用される。したがって、前記乾燥工程に関しては、個々の工程は、互いに独立して、50~200の範囲のいずれかに含まれる乾燥温度で実施され得、前記1工程以上の乾燥工程における乾燥温度は、互いに独立して、70~180、さらに好ましくは80~150、さらに好ましくは90~130、さらに好ましくは100~120の範囲であることが好ましい。

#### 【0049】

したがって、250~800の範囲に及び得る、前記1工程以上のか焼工程におけるか焼温度に関しても同様なことが適用され、本発明の方法によれば、前記1工程以上のか焼工程におけるか焼温度は、互いに独立して、300~600、さらに好ましくは350~550、さらに好ましくは400~500、さらに好ましくは430~480、さらに好ましくは440~460の範囲であることが好ましい。

#### 【0050】

本発明の方法に含まれ得る1工程以上のか焼工程の時間に関しても、か焼されたコーティングされた多孔質壁流基板が得られ得るという条件で、同様に特に制限は適用されない。したがって、例として、前記1工程以上のか焼工程におけるか焼時間は、互いに独立して、0.1~5時間の範囲であり、本発明の方法によれば、前記1工程以上のか焼工程におけるか焼時間は、互いに独立して、0.3~3時間、さらに好ましくは0.5~2時間、さらに好ましくは0.7~1.5時間、さらに好ましくは0.8~1.3時間、さらに好ましくは0.9~1.1時間の範囲であることが好ましい。

#### 【0051】

前記それぞれの第一、及び第二のスラリーが、本発明に従って、触媒化煤フィルターの前記それぞれの入口、出口チャンネル壁に供給される範囲に関しては、特に制限は適用されないので、原則として、前記入口端から供給される前記第一のスラリーの長さ、及び前記

10

20

30

40

50



出口端から供給される前記第二のスラリーの長さが、合計で前記基板軸方向の長さ、すなわちその100%になるという条件で、前記入口チャネル壁の任意の一部が、前記入口端から前記基板軸方向の長さの全体未満まで延在する前記第一のスラリーでコーティングされ得、それにより、前記出口チャネル壁の任意の一部が、前記出口端から前記基板軸方向の長さの全体未満まで延在する前記第二のスラリーでコーティングされ得る。したがって、例として、xは、5～95の範囲に及び、xは15～85、さらに好ましくは25～75、さらに好ましくは35～65、さらに好ましくは45～55の範囲に及ぶことが好ましい。しかしながら、本発明の方法によれば、その代わりに、xは5～65の範囲に及ぶことが好ましく、xは15～55、さらに好ましくは20～45、さらに好ましくは25～35の範囲に及ぶことが好ましい。

10

#### 【0052】

担持ロジウム粉末を供給するための前記粒子担体材料を含浸させるために、本発明の方法の工程(i i)において使用され得るロジウム化合物に関しては、任意の考えられるロジウム化合物が、この趣旨で使用され得、工程(i i)において水溶液として添加される前記ロジウム化合物は、ロジウム塩、さらに好ましくは、硝酸ロジウム、硫酸ロジウム、塩化ロジウム、酢酸ロジウム、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ロジウム塩であることが好ましく、さらに好ましくは、前記ロジウム塩は、硝酸ロジウムである。

#### 【0053】

第一のスラリーを調製するために、本発明の方法の工程(i v)において使用され得るパラジウム化合物に関しては、任意の考えられるパラジウム化合物が、この趣旨で使用され得、工程(i v)において水溶液として添加される前記パラジウム化合物は、パラジウム塩、さらに好ましくは硝酸パラジウム、硫酸パラジウム、塩化パラジウム、塩化テトラアミンパラジウム、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パラジウム塩であることが好ましく、さらに好ましくは、前記パラジウム塩は、硝酸パラジウムである。

20

#### 【0054】

第一のスラリーを調製するために、本発明の方法の工程(i v)において使用され得る白金化合物に関しては、任意の考えられる白金化合物が、この趣旨で使用され得、工程(i v)において水溶液として添加される前記白金化合物は、白金塩、さらに好ましくは、硝酸白金、硫酸白金、塩化白金、白金テトラモノエタノールアミン水酸化物(platinum tetra monoethanolamine hydroxide)、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白金塩であることが好ましく、さらに好ましくは、前記白金塩は、パラジウム白金テトラモノエタノールアミン水酸化物(palladium platinum tetra monoethanolamine hydroxide)である。

30

#### 【0055】

本発明の方法の工程(i)において使用され得る前記多孔質壁流基板に関しては、その形状、及び寸法にも、それが作られる材料に関しても、特に制限は適用されない。しかしながら、本発明によれば、前記多孔質壁流基板は、前記壁流基板の各壁がそれぞれ入口チャネルの表面である第一の表面、及び出口チャネルの表面である第二の表面を有するように、交互に塞がれた入口端及び出口端を有するハニカム基板であることが好ましい。

40

#### 【0056】

したがって、工程(i)において本発明の方法で使用され得る前記壁流基板の壁の多孔度に関しても同様なことが適用されるので、前記多孔度は、40～85%の範囲に及び得るように、好ましくは45～80%、さらに好ましくは50～75%、さらに好ましくは55～70%、さらに好ましくは60～65%の範囲に及び得る。本出願に定義した前記多孔度に関しては、前記多孔度は、水銀圧入法によって、さらに好ましくはISO 15901-1:2005に従って得られることが好ましい。

#### 【0057】

工程(i)において本発明の方法で使用され得る前記壁流基板の壁の平均細孔径に関し

50

ても、同様に特に制限は適用されないので、任意の適切な平均細孔径を示す前記壁流基板が使用され得る。したがって、例として、前記基板の壁の平均細孔径は、 $5 \sim 50 \mu\text{m}$ の範囲、好ましくは、 $10 \sim 40 \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは $13 \sim 35 \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは $15 \sim 30 \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは $17 \sim 25 \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは $18 \sim 22 \mu\text{m}$ の範囲であり得る。前記多孔度に関しては、前記基板の壁の平均細孔径が、コーティングされていない壁流基板、すなわち、前記SCR触媒、並びに前記パラジウム及び白金成分がその上に供給される前のものであることに留意する。さらに、前記基板の多孔度に関して、本出願に定義した前記壁の細孔径も同様に、好ましくは水銀圧入法によって測定される平均細孔径、さらに好ましくはISO 15901-1:2005に従って得られる平均細孔径のことを称する。

10

#### 【0058】

上述の通り、工程(i)において供給される前記壁流基板が構成される材料に関して特に制限はないので、例として、それは、金属、金属酸化物、及びセラミック材料からなる群から選択される1種以上を含み、好ましくは、前記壁流フィルターが構成される前記材料は、コーディエライト、チタン酸アルミニウム、炭化ケイ素、ムライト、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1種以上を含み、さらに好ましくは、前記壁流基板は、コーディエライト、チタン酸アルミニウム、又は炭化ケイ素から、好ましくは炭化ケイ素から作られる。

#### 【0059】

本発明に従う方法において使用される前記固体SCR触媒に関しては、それに含有される材料に関連して、アンモニアによる還元を介する $\text{NO}_x$ の $\text{N}_2$ への選択的触媒還元が、前記材料によって触媒され得るという条件で、特に制限は適用されない。したがって、任意の適切なSCR-活性材料が、前記固体SCR触媒中に含まれ得る。しかしながら、本発明によれば、前記固体SCR触媒は、1種以上のゼオライト、さらに好ましくは、BEA、CHA、FAU、FER、HEU、LEV、MEI、MEL、MFI、MOR(それらの2種以上の混合構造、及び組合せを含む)からなる群から、さらに好ましくはBEA、CHA、LEV、MFI(それらの2種以上の混合構造、及び組合せを含む)からなる群から選択される構造型を有する1種以上のゼオライトを含むことが好ましく、さらに好ましくは、前記1種以上のゼオライトは、BEA及び/又はCHA構造型の、好ましくはCHA構造型のものであり、さらに好ましくは、前記1種以上のゼオライトは、チャバサイト

20

30

#### 【0060】

さらに、本発明によれば、本発明の任意の特定の好ましい実施形態に従って、(vii)において使用される前記固体SCR触媒中に含まれる前記1種以上のゼオライトは、1種以上の遷移金属を含有することがさらに好ましい。前記固体SCR触媒中に好ましく含まれる前記1種以上のゼオライトに好ましく含有される前記1種以上の遷移金属に関しては、特に制限は適用されないので、原則として、任意の考えられる遷移金属が、それらに含有され得る。しかしながら、本発明によれば、前記1種以上のゼオライトは、Pt、Pd、Rh、Cu、Co、Cr、Ni、Fe、V、Nb、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1種以上の遷移金属、さらに好ましくはCu、Co、Cr、Ni、Fe、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1種以上の遷移金属を含有することが好ましく、さらに好ましくは、前記1種以上のゼオライトは、Cu及び/又はFe、好ましくはCuを含有する。

40

#### 【0061】

前記触媒化煤フィルターの前記固体SCR触媒中に好ましく含まれる前記1種以上のゼオライトが、1種以上の遷移金属を含有する本発明の特定の好ましい実施形態に関しては、それぞれの遷移金属が、前記1種以上のゼオライトに含有される状態、それによって特に前記1種以上の遷移金属がゼオライト中に導入される方法に関して、特に制限はない。しかしながら、本発明によれば、前記固体SCR触媒中に好ましく含まれる前記1種以上のゼオライトに含有される前記1種以上の遷移金属は、前記ゼオライト中にイオン交換に

50

よって、及び／又は含浸によって導入されていることが好ましく、前記１種以上の遷移金属は、イオン交換によってそれらの中に導入されていることが、特に好ましい。

#### 【００６２】

任意に１種以上の遷移金属を含有する前記１種以上の好ましいゼオライトが、前記壁流基板上にコーティングされる量に関しては、特に制限は適用されないで、これらは、任意の適切な量で、その上にコーティングされ得る。したがって、例として、工程（ $x$ ）及び（ $xi$ ）において、任意に１種以上の遷移金属を含有する前記１種以上のゼオライトは、前記壁流基板上に、前記出口端から前記基板軸方向の長さの $100 - x\%$ まで測定された前記触媒化煤フィルターの体積に基づいて、か焼状態で、任意に１種以上の遷移金属を含有する、前記１種以上のゼオライトの総質量として算出される $0.05 \sim 6 \text{ g/in}^3$ 、好ましくは $0.1 \sim 5 \text{ g/in}^3$ の範囲に及ぶ量でコーティングされ得る。しかしながら、本発明によれば、任意に１種以上の遷移金属を含有する前記１種以上のゼオライトは、前記壁流基板上に、 $0.5 \sim 4 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは $0.8 \sim 3 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは $1 \sim 2.5 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは $1.3 \sim 2 \text{ g/in}^3$ の範囲の量でコーティングされることが好ましい。本発明によれば、工程（ $x$ ）、及び（ $xi$ ）において、任意に１種以上の遷移金属を含有する前記１種以上の好ましいゼオライトは、前記壁流基板上に、 $1.5 \sim 1.9 \text{ g/in}^3$ の範囲の量でコーティングされることが特に好ましい。

10

#### 【００６３】

工程（ $vii$ ）において得られる、前記第三のスラリーに含有される前記固体SCR触媒の粒子の大きさに関しては、前記粒子が、（ $x$ ）及び（ $xi$ ）において、前記入口チャネル壁の表面上だけでなく、前記チャネル壁の表面下の前記チャネル壁内の細孔の表面の少なくとも一部にもコーティングされ得るという条件で、特に制限は適用されない。これを達成するため、前記固体SCR触媒の平均粒径 $D_{90}$ は、前記基板の壁の平均細孔径の $25\%$ 以下であることが好ましい。したがって、例として、前記固体SCR触媒の平均粒径 $D_{90}$ は $0.5 \sim 20 \mu\text{m}$ の範囲に及び得、さらに好ましくは、前記平均粒径 $D_{90}$ は $1 \sim 15 \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは $3 \sim 10 \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは $4 \sim 8 \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは $5 \sim 7 \mu\text{m}$ の範囲に及び。

20

#### 【００６４】

本発明によれば、（ $viii$ ）及び（ $ix$ ）において、前記壁流基板上にコーティングされ得るロジウム、パラジウム、又は白金の量に関しては、特に制限はない。したがって、ロジウムに関しては、（ $viii$ ）及び（ $ix$ ）において、前記壁流基板上に、前記入口から前記基板軸方向の長さの $x\%$ まで、前記入口端から前記基板軸方向の長さの $x\%$ まで測定された前記触媒化煤フィルターの体積に基づいて、前記元素として算出されるロジウムの $0.5 \sim 20 \text{ g/ft}^3$ の範囲に及ぶ量で、コーティングされ得る。しかしながら、本発明によれば、ロジウムは、前記入口端から前記基板軸方向の長さの $x\%$ まで延在する前記壁流基板上に、 $1 \sim 15 \text{ g/ft}^3$ 、さらに好ましくは $2 \sim 10 \text{ g/ft}^3$ 、さらに好ましくは $2.5 \sim 8 \text{ g/ft}^3$ 、さらに好ましくは $3 \sim 7 \text{ g/ft}^3$ 、さらに好ましくは $3.5 \sim 6.5 \text{ g/ft}^3$ 、さらに好ましくは $4 \sim 6 \text{ g/ft}^3$ 、さらに好ましくは $4.5 \sim 5.5 \text{ g/ft}^3$ の範囲の量でコーティングされることが好ましい。パラジウムに関しては、（ $viii$ ）及び（ $ix$ ）において、前記壁流基板上に、前記入口端から前記基板軸方向の長さの $x\%$ まで、前記入口端から前記基板軸方向の長さの $x\%$ まで測定された前記触媒化煤フィルターの体積に基づいて、前記元素として算出されるパラジウムの $0.5 \sim 20 \text{ g/ft}^3$ の範囲に及ぶ量で、コーティングされ得る。しかしながら、本発明によれば、パラジウムは、前記入口端から前記基板軸方向の長さの $x\%$ まで延在する前記壁流基板上に、 $1 \sim 15 \text{ g/ft}^3$ 、さらに好ましくは $2 \sim 10 \text{ g/ft}^3$ 、さらに好ましくは $2.5 \sim 8 \text{ g/ft}^3$ 、さらに好ましくは $3 \sim 7 \text{ g/ft}^3$ 、さらに好ましくは $3.5 \sim 6.5 \text{ g/ft}^3$ 、さらに好ましくは $4 \sim 6 \text{ g/ft}^3$ 、さらに好ましくは $4.5 \sim 5.5 \text{ g/ft}^3$ の範囲の量でコーティングされることが好ましい。

30

40

#### 【００６５】

50

0

## 20

30

## 40

50

ましくは、前記粒子担体材料は、マグネシア - セリア - アルミナであり、好ましくは、前記マグネシア - セリア - アルミナは、マグネシア及びセリアでドーブされているアルミナからなり、さらに好ましくは、アルミナは、100質量%のマグネシア - セリア - アルミナに基づいて、1 ~ 30質量%のマグネシア、さらに好ましくは5 ~ 25質量%のマグネシア、さらに好ましくは10 ~ 20質量%のマグネシア、さらに好ましくは12 ~ 18質量%のマグネシア、さらに好ましくは14 ~ 16質量%のマグネシアで、且つそれと独立して、100質量%のマグネシア - セリア - アルミナに基づいて、0.5 ~ 25質量%のセリア、さらに好ましくは1 ~ 20質量%のセリア、さらに好ましくは5 ~ 15質量%のセリア、さらに好ましくは7 ~ 12質量%のセリア、さらに好ましくは9 ~ 11質量%のセリアでドーブされている。

10

#### 【0068】

SCR触媒に関して、工程(i i)においてロジウムがその上に担持される、並びに工程(i v)においてパラジウム及び白金がその上に担持される前記粒子担体材料の大きさに関しては、前記粒子が、工程(v i i i)及び(i x)において、前記入口チャネル壁の表面だけでなく、前記チャネル壁の表面下の前記チャネル壁内の細孔の表面の少なくとも一部にもコーティングされ得るという条件で、特に制限は適用されない。これを達成するため、ロジウム並びに白金及びパラジウムが、それぞれその上に担持される工程(i i)及び(i v)の前記粒子担体材料の平均粒径D<sub>90</sub>は、前記基板の壁の平均細孔径の25%以下であることが好ましい。したがって、例として、前記それぞれの粒子担体材料の平均粒径D<sub>90</sub>は0.5 ~ 25 μmの範囲に及び得、好ましくは、前記平均粒径D<sub>90</sub>は1 ~ 20 μm、さらに好ましくは3 ~ 15 μm、さらに好ましくは6 ~ 12 μm、さらに好ましくは8 ~ 10 μmの範囲に及ぶ。

20

#### 【0069】

本発明によれば、工程(v i i i)及び(i x)において、本発明の方法の任意の特定の好ましい実施形態に従って、前記粒子担体材料が、前記壁流基板上にコーティングされ得る量に関しては、特に制限はない。したがって、例として、前記粒子担体材料は、工程(v i i i)及び(i x)において、前記壁流基板上に、前記入口端から前記基板軸方向の長さのx%まで測定された前記触媒化煤フィルターの体積に基づいて、0.05 ~ 5 g / i n<sup>3</sup>の範囲に及ぶ量でコーティングされ得、好ましくは、前記粒子担体材料は、工程(v i i i)及び(i x)において、0.1 ~ 3 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは0.5 ~ 2.5 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは1.0 ~ 2 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは1.3 ~ 1.8 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは1.4 ~ 1.6 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは1.45 ~ 1.55 g / i n<sup>3</sup>の範囲の量でコーティングされる。

30

#### 【0070】

工程(x)及び(x i)において、前記壁流基板上に、コーティングされ得る前記固体SCR触媒の量に関しても同様なことが適用され、同様に特に制限は適用されないので、任意の適切な量がその上に供給され得る。したがって、例として、前記固体SCR触媒は、工程(x)及び(x i)において、前記壁流基板上に、前記出口端から前記基板軸方向の長さの100 - x%まで測定された前記触媒化煤フィルターの体積に基づいて、0.05 ~ 6 g / i n<sup>3</sup>の範囲に及ぶ量でコーティングされ得る。しかしながら、本発明によれば、工程(x)及び(x i)において、前記固体SCR触媒は、前記壁流基板上に、0.1 ~ 5 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは0.5 ~ 4 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは0.8 ~ 3 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは1 ~ 2.5 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは1.3 ~ 2 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは1.5 ~ 1.9 g / i n<sup>3</sup>の範囲の量でコーティングされることが好ましい。

40

#### 【0071】

本出願に記載された任意の上述の特定の好ましい実施形態に従って、触媒化煤フィルターを提供することに加えて、本出願は、さらに、本出願に定義した、本発明の任意の特定の好ましい実施形態に従う触媒化煤フィルターを製造するための本発明の方法によって得られる(obtained)、及び/又は得られ得る(obtainable)触媒化煤フィルターに関連す

50

る。特に、本発明は、本発明の任意の特定の好ましい実施形態に従う方法によって直接得られ得る触媒化煤フィルター、すなわち、本発明の直接生成物だけでなく、それによって前記触媒化煤フィルターが得られる実際の方法に関わりなく、それが本発明の任意の特定の好ましい実施形態に従う本発明の方法によって得られ得るという条件で、本発明の任意の特定の好ましい実施形態に定義した本発明の方法に従って得られ得る (may be obtained)、すなわち得られ得る (obtainable) 触媒化煤フィルターにも関連する。

【 0 0 7 2 】

さらに、本発明によれば、上記で定義した本発明の任意の特定の好ましい実施形態に従う触媒化煤フィルターは、特に排出ガスライン等において、それ自体、又は1種以上の異なる触媒、及び/又は非触媒成分と組合せて使用され得る。したがって、本発明は、さらに、排出ガス処理システムであって、本発明の任意の特定の好ましい実施形態に従う本発明の触媒化煤フィルターが前記排出ガス処理システムに含有されるシステムに関連する。

【 0 0 7 3 】

したがって、本発明はまた、本出願に記載された任意の特定の好ましい実施形態に従う、並びに本発明の方法の任意の特定の好ましい実施形態に従って得られ得る、及び/又は得られる触媒化煤フィルター (CSF)、及び前記CSFの上流に位置するリーノ<sub>x</sub>トラップ (LNT) を含む排出ガス処理システムであって、内燃機関からの排出ガスが前記LNTを通り、続いて前記CSFを通して流れ得るように、前記LNT及び前記CSFが、互いに流体連通し (in fluid communication)、前記LNTが、入口端、出口端、前記入口端と前記出口端の間に延在する基板軸方向の長さ、及び壁流基板の内壁によって規定される複数のチャンネルを含むフロースルー基板を含み、前記フロースルー基板が、第二のLNT触媒でコーティングされている排出ガス処理システムにも関連する。完全を期するため、本明細書で、前記排出ガス処理システムの前記LNTに含有されるリーノ<sub>x</sub>トラップ (LNT) 触媒のための用語「第二の」は、それを、前記触媒化煤フィルターに含有されるリーノ<sub>x</sub>トラップ (LNT) 触媒と区別するのに役立つことが示される。したがって、本発明の任意の特定の好ましい実施形態に従う前記触媒化煤フィルターに含有される前記リーノ<sub>x</sub>トラップ触媒も、本発明の任意の特定の好ましい実施形態に従う前記排出ガス処理システムにおいて、前記LNTと組合せて考慮される場合、「第一の」リーノ<sub>x</sub>トラップ触媒を構成するものと考えられ得る。その結果、前記第二のリーノ<sub>x</sub>トラップ触媒が、そうでないと明示される場合を除き、本出願の意味の範囲内で、用語「リーノ<sub>x</sub>トラップ触媒」又は「LNT触媒」は、特に本発明の任意の特定の好ましい実施形態に従う前記排出ガス処理システムとの関連で使用される場合、「第一のリーノ<sub>x</sub>トラップ触媒」又は「第一のLNT触媒」と同義である。

【 0 0 7 4 】

本発明によれば、前記第二のリーノ<sub>x</sub>トラップ触媒中に含有され得る成分に関しては、これらが、排出ガスにNO及び/又はNO<sub>2</sub>として、好ましくはNOとして含有されるNO<sub>x</sub>を捕捉するために適切であるか、又は前記第二のリーノ<sub>x</sub>トラップ触媒中に含有される他の成分によるNO<sub>x</sub>の貯蔵を妨げないという条件で、特に制限はない。本発明によれば、前記第二のリーノ<sub>x</sub>トラップ触媒は、1種以上のアルカリ土類金属、好ましくは、Mg、Ca、Ba、Sr、及びそれらの2種以上の組合せからなる群から選択される1種以上のアルカリ土類金属を含むことが好ましい。さらに本発明によれば、前記第二のリーノ<sub>x</sub>トラップ触媒は、Mg、Ca、Ba、及びそれらの2種以上の組合せからなる群から選択される1種以上のアルカリ土類金属を含むことがさらに好ましく、さらにいっそう好ましくはMg、及び/又はBa、好ましくはMg及びBaが、本発明の特定の好ましい実施形態に従って、前記第二のリーノ<sub>x</sub>トラップ触媒中に前記アルカリ土類金属として含有される。前記アルカリ土類金属が、前記第二のリーノ<sub>x</sub>トラップ触媒中に含有され得る形態に関しては、特に制限は適用されないが、好ましくは、本発明の特定の好ましい実施形態に従う前記1種以上のアルカリ土類金属は、前記第二のリーノ<sub>x</sub>トラップ触媒において、酸化物形態で含有される。

【 0 0 7 5 】

本発明によれば、好ましくは前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒中に含有される前記 1 種以上のアルカリ土類金属の量に関しては、特に制限はない。したがって、本発明の任意の特定の好ましい実施形態に従う前記 1 種以上のアルカリ土類金属は、前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒中に、前記 LNT の総体積に基づいて、元素として算出される 1 種以上のアルカリ土類金属の  $0.05 \sim 2 \text{ g/in}^3$  の範囲に及ぶ量で含有され得る。しかしながら、本発明によれば、前記 1 種以上のアルカリ土類金属は、前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒中に、 $0.1 \sim 1.5 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.2 \sim 1 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.25 \sim 0.7 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.3 \sim 0.5 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.35 \sim 0.45 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.37 \sim 0.42 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.39 \sim 0.4 \text{ g/in}^3$  の範囲の量で含有されることが好ましい。本発明の意味の範囲内で、 $\text{g/in}^3$ 、又は  $\text{g/ft}^3$  で表される前記触媒化煤フィルター、及びその他の触媒化モノリス中の材料の量は、前記モノリスの（触媒）成分体積の問題となる材料のグラムでの負荷量を反映することに留意する。この趣旨で、前記モノリス又はハニカムの体積は、その断面積及び長さに基づいて算出される。

10

20

30

40

50

#### 【0076】

$\text{NO}_x$  を捕捉するために適切な前記 1 種以上の成分に加えて、好ましくは本発明の任意の特定の好ましい実施形態に従う前記 1 種以上のアルカリ土類金属に加えて、前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒中に含有され得るさらなる成分に関しては、特に制限は適用されない。任意の考えられる 1 種以上のさらなる成分が、その中に含有され得る。しかしながら、本発明によれば、前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒は、1 種以上の白金族金属、さらに好ましくは、白金、パラジウム、ロジウム、イリジウム、及びそれらの 2 種以上の組合せからなる群から選択される 1 種以上の白金族金属を含むことが好ましい。さらに好ましくは、前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒は、白金、パラジウム、ロジウム、及びそれらの 2 種以上の組合せからなる群から選択される 1 種以上の白金族金属を含み、さらに好ましくは、前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒は、白金、さらに好ましくは白金及びパラジウムを含み、さらにいっそう好ましくは、白金、パラジウム、及びロジウムは、本発明の任意の特定の好ましい実施形態に従って、前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒中に前記白金族金属として含有される。

#### 【0077】

1 種以上の白金族金属が、前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒中に含有される本発明の特定の好ましい実施形態に関しては、前記リーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒が排出ガス中に含有される  $\text{NO}_x$  を効果的に捕捉し得るという条件で、特に制限は適用されない。したがって、例として、前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒中に含有される前記 1 種以上の白金族金属は、その中に、前記 LNT の総体積に基づいて、前記元素として算出される 1 種以上の白金族金属の  $1 \sim 200 \text{ g/ft}^3$  の範囲に及ぶ量で含有され得る。しかしながら、本発明によれば、前記 1 種以上の白金族金属は、前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒中に、前記 LNT の総体積に基づいて、前記元素として算出される 1 種以上の白金族金属の  $10 \sim 400 \text{ g/ft}^3$  の範囲の量で含有されることが好ましく、さらに好ましくは、前記 1 種以上の白金族金属は、前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒中に、 $30 \sim 300 \text{ g/ft}^3$ 、さらに好ましくは  $50 \sim 250 \text{ g/ft}^3$ 、さらに好ましくは  $80 \sim 220 \text{ g/ft}^3$ 、さらに好ましくは  $100 \sim 200 \text{ g/ft}^3$ 、さらに好ましくは  $130 \sim 180 \text{ g/ft}^3$ 、さらに好ましくは  $140 \sim 160 \text{ g/ft}^3$ 、さらに好ましくは  $145 \sim 155 \text{ g/ft}^3$  の範囲の量で含有される。

#### 【0078】

本発明によれば、前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒は、白金を含むことが特に好ましい。本発明によれば、前記好ましい実施形態に従って、前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒中に含有され得る白金の量に関しては特に制限はない。したがって、例として、白金は、前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒中に、前記 LNT の総体積に基づいて、前記元素として算出される白金の  $5 \sim 400 \text{ g/ft}^3$  の範囲に及ぶ量で含有され得、白金は、前記リーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒でコーティングされた前記触媒化煤フィルターの一部に

、 $10 \sim 300 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $30 \sim 250 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $50 \sim 200 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $80 \sim 180 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $100 \sim 150 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $120 \sim 130 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $125 \sim 135 \text{ g / ft}^3$ の範囲の量で含有されることが好ましい。

【0079】

本発明によれば、前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒はパラジウムを含むことが、さらに好ましい。前記リーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒中に白金を含む本発明の特定の好ましい実施形態に関しては、パラジウムが、前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒中に含有され得る量に関しても、同様に特に制限はない。したがって、例として、本発明の特定の好ましい実施形態に従って、前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒中に含有されるパラジウムは、前記LNTの総体積に基づいて、前記元素として算出されるパラジウムの $1 \sim 50 \text{ g / ft}^3$ の範囲に及ぶ量で存在し得、好ましくは、パラジウムは、前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒中に、 $3 \sim 40 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $5 \sim 30 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $8 \sim 25 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $10 \sim 20 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $12 \sim 18 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $14 \sim 16 \text{ g / ft}^3$ の範囲の量で含有される。

【0080】

最後に、本発明によれば、前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒はロジウムを含むことがさらに好ましい。前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒中に、パラジウム、及び/又は白金を含む本発明の特定の好ましい実施形態に関しては、ロジウムが、前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒中に含有され得る量に関しても、同様に特に制限はない。したがって、例として、ロジウムは、前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒中に、前記LNTの総体積に基づいて、前記元素として算出されるロジウムの $0.1 \sim 20 \text{ g / ft}^3$ の範囲に及ぶ量で含有され得、好ましくは、ロジウムは、前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒中に、 $0.5 \sim 15 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $1 \sim 10 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $3 \sim 8 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $4 \sim 6 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは $4.5 \sim 5.5 \text{ g / ft}^3$ の範囲の量で含有される。

【0081】

前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒が、1種以上のアルカリ土類金属、及び/又は1種以上の白金族金属を含む、本発明の特定の好ましい実施形態によれば、前記1種以上のアルカリ土類金属、及び前記1種以上の白金族金属は、前記フロースルー基板上に、任意の適切な方法でそれぞれ供給され得るので、前記1種以上のアルカリ土類金属、及び前記1種以上の白金族金属は、互いに独立して、前記フロースルー基板上に直接含有され得るか、及び/又は次に前記フロースルー基板上に供給される別の担体材料上で、前記LNTに含有され得る。しかしながら、本発明によれば、前記1種以上のアルカリ土類金属、及び/又は前記1種以上の白金族金属、好ましくは前記1種以上のアルカリ土類金属、及び前記1種以上の白金族金属は、担体材料上に、特に次に前記LNTの前記フロースルー基板上に担持される粒子担体材料上に担持されていることが好ましい。したがって、本発明の特定の好ましい実施形態によれば、前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒は、本発明の任意の好ましい実施形態に従って、前記1種以上のアルカリ土類金属、及び/又は、好ましくは及び前記白金族金属を、それぞれ粒子担体材料上に含むことが好ましい。前記特定の好ましい実施形態に従って使用され得る前記担体に関しては、特に制限は適用されないもので、任意の適切な粒子担体材料が、これらの目的で使用され得る。したがって、例として、前記1種以上のアルカリ土類金属、及び前記1種以上の白金族金属が、それぞれ担持されている前記粒子担体は、互いに独立して、アルミナ、シリカ、アルミナ-シリカ、チタニア、チタニア-アルミナ、ジルコニア、ジルコニア-アルミナ、バリア-アルミナ、セリア、セリア-アルミナ、バリア-セリア-アルミナ、マグネシア、マグネシア-アルミナ、マグネシア-セリア-アルミナ、ランタナ-アルミナ、ランタナ-ジルコニア-アルミナ、チタニア-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、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ-シリカ、チタニア-アルミナ、ジルコニア-アルミナ、バリア-アルミナ、セリア、セリア-アルミナ、バリア-セリア-アルミナ、ランタナ-



アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、及びそれらの２種以上の混合物からなる群から、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ - シリカ、ジルコニア - アルミナ、セリア、セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、及びそれらの２種以上の混合物からなる群から、さらに好ましくはアルミナ、セリア、セリア - アルミナ、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得、さらに好ましくは、前記粒子担体材料は、アルミナ、及び／又はセリア、好ましくは - アルミナである。

#### 【００８２】

本発明によれば、前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒は、パラジウム及び白金の両方を含み、前記白金族金属は、粒子担体材料上に担持されていることが特に好ましい。前記好ましい実施形態によれば、白金及びパラジウムが、同じ粒子上に少なくとも一部、若しくは完全に担持されているかどうか、又は白金及びパラジウムが、前記粒子担体材料の別の粒子上に担持されているかどうかに関しては、制限はない。しかしながら、本発明によれば、白金及びパラジウムは、前記粒子担体材料の同じ粒子上に担持されていることが特に好ましく、さらに好ましくは、前記粒子担体材料は、アルミナ、シリカ、アルミナ - シリカ、チタニア、チタニア - アルミナ、ジルコニア、ジルコニア - アルミナ、バリア - アルミナ、セリア、セリア - アルミナ、バリア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、チタニア - 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、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ - シリカ、チタニア - アルミナ、ジルコニア - アルミナ、バリア - アルミナ、セリア - アルミナ、バリア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、及びそれらの２種以上の混合物からなる群から、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ - シリカ、ジルコニア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、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、さらに好ましくは、前記粒子担体材料は、アルミナ、好ましくは - アルミナである。

#### 【００８３】

上述の特に好ましい実施形態の代わりに、又はそれに加えて、前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒は、ロジウムを含み、ロジウムは、好ましくは、粒子担体材料上に担持されている。白金及びパラジウムに関して、ロジウムが担持され得る粒子担体材料の種類又は数に関しては特に制限はないが、本発明の前記特定の好ましい実施形態に従って、ロジウムは、アルミナ、シリカ、アルミナ - シリカ、チタニア、チタニア - アルミナ、ジルコニア、ジルコニア - アルミナ、バリア - アルミナ、セリア、セリア - アルミナ、バリア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、チタニア - 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、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ - シリカ、ジルコニア - アルミナ、セリア、セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、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粒子担体材料上に担持されていることが好ましく、さらに好ましくは、前記粒子担体材料はセリア、及び／又はセリア - アルミナ、好ましくはセリアである。

#### 【００８４】

前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒が、白金、パラジウム、及びロジウムを含み、前記成分の全てが、１種以上の粒子担体材料上に供給される、本発明の特に好ましい実施形態に関して、１種以上の前記元素が、１種以上の粒子担体材料の同じ粒子上に少なくとも一部、若しくは完全に担持されているかどうか、又は前記３種の白金族金属の２種が、１種以上の粒子担体材料の粒子上に少なくとも一部、若しくは完全に担持されており、且つ第３の白金族金属が、前記粒子担体材料の別の粒子上に担持されているかどうかに関しても、同様に特に制限はない。しかしながら、本発明によれば、前記第二のリーン $\text{NO}_x$ トラップ触媒が、白金、パラジウム、及びロジウムを含み、ロジウムは、パラジウム及び白金に比べて、前記粒子担体材料の別の粒子上に担持されていることが特に好ましい。

#### 【００８５】

本発明によれば、本発明に従う前記排出ガス処理システムの前記 $\text{LNT}$ の任意の好ましい、及び特に好ましい実施形態に従って、前記１種以上のアルカリ土類金属、及び／又は

前記１種以上の白金族金属がその上に担持されている前記粒子担体材料の大きさに関しては、特に制限は適用されない。従って、例として、前記粒子担体材料の平均粒径 $D_{90}$ は $0.5 \sim 25 \mu m$ の範囲に及び得、好ましくは、前記平均粒径 $D_{90}$ は $1 \sim 20 \mu m$ 、さらに好ましくは $3 \sim 15 \mu m$ 、さらに好ましくは $6 \sim 12 \mu m$ 、さらに好ましくは $8 \sim 10 \mu m$ の範囲に及び。

#### 【００８６】

本発明によれば、本発明の任意の特定の好ましい実施形態に従って、前記粒子担体材料が、前記第二のリーン $NO_x$ トラップ触媒中に含有され得る量に関しては、特に制限はない。したがって、例として、前記第二のリーン $NO_x$ トラップ触媒は、前記粒子担体材料を、前記 $LNT$ の総体積に基づいて、 $0.5 \sim 20 g/in^3$ の範囲に及び量で含み得、好ましくは、前記粒子担体材料は、前記第二のリーン $NO_x$ トラップ触媒中に、 $1 \sim 15 g/in^3$ 、さらに好ましくは $2 \sim 10 g/in^3$ 、さらに好ましくは $3 \sim 8 g/in^3$ 、さらに好ましくは $3.5 \sim 6 g/in^3$ 、さらに好ましくは $4 \sim 5.5 g/in^3$ 、さらに好ましくは $4.3 \sim 5.2 g/in^3$ 、さらに好ましくは $4.5 \sim 5 g/in^3$ 、さらに好ましくは $4.7 \sim 4.9 g/in^3$ 、さらに好ましくは $4.75 \sim 4.85 g/in^3$ の範囲の量で含まれる。

10

#### 【００８７】

本発明によれば、前記排出ガス処理システムが、前記 $LNT$ の上流に位置するディーゼル酸化触媒をさらに含み、燃焼機関からの排出ガスが前記ディーゼル酸化触媒を通り、続いて前記 $LNT$ を通して流れ得るように、前記 $LNT$ は、前記ディーゼル酸化触媒と流体連通していることが好ましい。

20

#### 【００８８】

本発明の触媒化煤フィルターは、パッシブ $SCR$ を利用する排出ガス処理システムにおいて、非常に効果的であるが、本発明の任意の特定の好ましい実施形態に従って、前記排出ガス処理システムは、内燃機関からの前記排出ガス中へ、あるいは特定の時点で、 $NO_x$ 変換を達成するための特定の要求に応じて、アンモニアが原位置で、及び／又は前記パッシブ $SCR$ システムを支援して発生される、前記排出ガス処理システムへ、アンモニア源、及び／又は１種以上の炭化水素を注入する手段をさらに含み得ることも排除されない。したがって、本発明によれば、前記排出ガス処理システムは、前記内燃機関からの前記排出ガス流中へ、アンモニア源、及び／又は１種以上の炭化水素を注入する手段をさらに含み、前記注入手段が、前記 $LNT$ の下流、及び前記 $CSF$ の上流に位置することが好ましい。

30

#### 【００８９】

最後に、本発明によれば、上記に定義したその任意の特定の好ましい実施形態に従う前記排出ガス処理システムは、内燃機関、好ましくは希薄燃焼内燃機関をさらに含むことが好ましく、さらに好ましくは、前記内燃機関は、ディーゼルエンジンである。

#### 【００９０】

さらに、本発明はまた、内燃機関からの排出ガス処理の方法であって、内燃機関からの排出ガスを、本出願に定義したその任意の特定の好ましい実施形態に従う前記触媒化煤フィルターの前記入口チャンネルに通過させる工程を含むか、又は本出願に定義したその任意の特定の好ましい実施形態に従う排出ガス処理システムに通過させる工程による方法に関連する。

40

#### 【００９１】

最後に、本発明は、本出願に記載された本発明の方法の任意の特定の好ましい実施形態に従って得られる、及び／又は得られ得る触媒化煤フィルターを含む、本出願に記載された本発明の任意の特定の好ましい実施形態に従う触媒化煤フィルターの使用方法に関連する。さらに、本発明は、本出願に記載された本発明の任意の特定の好ましい実施形態に従う排出ガス処理システムの使用方法に関連する。本発明の使用方法に関して、上記の触媒化煤フィルター、又は排出ガス処理システムが使用され得る用途に関しては、一切制限はなく、互いに独立して、前記触媒化煤フィルター又は前記排出ガス処理システムは、排出

50

ガスの処理のため、好ましくは内燃機関からの排出ガス中の $\text{NO}_x$ 、炭化水素、及び一酸化炭素の同時処理のため、さらに好ましくは、内燃機関からの排出ガス中の $\text{NO}_x$ の貯蔵及び変換のため、及び/又は $\text{NO}_x$ の選択的触媒還元のため、及び/又は炭化水素及び一酸化炭素の酸化のための、さらに好ましくは、同時の内燃機関からの排出ガス中の $\text{NO}_x$ の貯蔵及び変換、 $\text{NO}_x$ の選択的触媒還元、及び炭化水素及び一酸化炭素の酸化のために使用され得る。本発明によれば、本出願に記載された任意の特定の好ましい実施形態に従う前記触媒化煤フィルター、又は本出願に記載された任意の特定の好ましい実施形態に従う前記排出ガス処理システムは、ディーゼルエンジンからの排出ガス中の $\text{NO}_x$ の選択的触媒還元を使用されることが特に好ましい。

【0092】

10

本発明は、それぞれ従属関係で示される組合せ及び実施形態を含む、以下の特定の好ましい実施形態によってさらに特徴付けられる。

【0093】

1. 触媒化煤フィルター(CSF)であって、

前記CSFは、多孔質壁流基板、リーン $\text{NO}_x$ トラップ(LNT)触媒、及び選択的触媒還元(SCR)のための触媒を含み、

前記壁流基板が、入口端、出口端、前記入口端と前記出口端の間に延在する基板軸方向の長さ、及び前記壁流基板の内壁によって規定される複数のチャンネルを含み、前記複数のチャンネルは、開放入口端及び閉鎖出口端を有する入口チャンネル、並びに閉鎖入口端及び開放出口端を有する出口チャンネルを含み、

20

前記LNT触媒は、前記入口チャンネル壁の表面の一部、及び前記LNT触媒でコーティングされた前記チャンネル壁の表面下の前記チャンネル壁内の細孔の表面の少なくとも一部に供給され、前記LNT触媒でコーティングされた入口チャンネル壁の一部は、前記入口端から前記基板軸方向の長さの $x\%$ まで延在し( $0 < x < 100$ )、

前記SCR触媒は、前記出口チャンネル壁の表面の一部、及び前記SCR触媒でコーティングされた前記チャンネル壁の表面下の前記チャンネル壁内の細孔の表面の少なくとも一部に供給され、前記SCR触媒でコーティングされた出口チャンネル壁の一部は、前記出口端から前記基板軸方向の長さの $100 - x\%$ まで延在する触媒化煤フィルター。

【0094】

2.  $x$ が5~95、好ましくは15~85、さらに好ましくは25~75、さらに好ましくは35~65、さらに好ましくは45~55の範囲である実施形態1に記載の触媒化煤フィルター。

30

【0095】

3. 前記多孔質壁流基板が、前記壁流基板の各壁がそれぞれ入口チャンネルの表面である第一の表面、及び出口チャンネルの表面である第二の表面を有するように、交互に塞がれた入口端及び出口端を有するハニカム基板である実施形態1又は2に記載の触媒化煤フィルター。

【0096】

4. 前記基板の壁が、40~85%、好ましくは45~80%、さらに好ましくは50~75%、さらに好ましくは55~70%、さらに好ましくは60~65%の範囲の多孔度を示す実施形態1~3のいずれか1項に記載の触媒化煤フィルター。

40

【0097】

5. 前記基板の壁の平均細孔径が、5~50 $\mu\text{m}$ の範囲、好ましくは、10~40 $\mu\text{m}$ 、さらに好ましくは13~35 $\mu\text{m}$ 、さらに好ましくは15~30 $\mu\text{m}$ 、さらに好ましくは17~25 $\mu\text{m}$ 、さらに好ましくは18~22 $\mu\text{m}$ の範囲である実施形態1~4のいずれか1項に記載の触媒化煤フィルター。

【0098】

6. 前記壁流基板が構成される材料が、金属、金属酸化物、及びセラミック材料からなる群から選択される1種以上、好ましくは、コーディエライト、チタン酸アルミニウム、炭化ケイ素、ムライト、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1種以

50

上を含み、さらに好ましくは、前記壁流基板は、コーディエライト、チタン酸アルミニウム又は炭化ケイ素から、好ましくは炭化ケイ素から作られる実施形態 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載の触媒化煤フィルター。

【0099】

7. 前記 LNT 触媒が、前記 LNT 触媒でコーティングされた前記入口チャンネル壁の表面から、前記コーティングされていない基板の壁の厚さの 10 % 以上の深さまで、好ましくは前記コーティングされていない基板の壁の厚さの 15 % 以上の深さまで、さらに好ましくは 20 % 以上、さらに好ましくは 35 % 以上、さらに好ましくは 40 % 以上、さらに好ましくは 50 % 以上の深さまで、さらに好ましくは 70 % 以上の深さまで延在する前記 LNT 触媒でコーティングされた前記チャンネル壁の表面下の前記チャンネル壁内の前記細孔の表面の少なくとも一部に供給される実施形態 1 ~ 6 のいずれか 1 項に記載の触媒化煤フィルター。

10

【0100】

8. 前記 SCR 触媒が、前記 SCR 触媒でコーティングされた前記出口チャンネル壁の表面から、前記コーティングされていない基板の壁の厚さの 10 % 以上の深さまで、好ましくは前記コーティングされていない基板の壁の厚さの 15 % 以上の深さまで、さらに好ましくは 20 % 以上、さらに好ましくは 35 % 以上、さらに好ましくは 40 % 以上、さらに好ましくは 50 % 以上の深さまで、さらに好ましくは 70 % 以上の深さまで延在する前記 SCR 触媒でコーティングされた前記チャンネル壁の一部の表面下の前記チャンネル壁内の前記細孔の表面の少なくとも一部に供給される実施形態 1 ~ 7 のいずれか 1 項に記載の触媒化煤フィルター。

20

【0101】

9. 前記 SCR 触媒が、1 種以上のゼオライト、好ましくは、BEA、CHA、FAU、FER、HEU、LEV、MEI、MEL、MFI、MOR (それらの 2 種以上の混合構造、及び組合せを含む) からなる群から、さらに好ましくは BEA、CHA、LEV、MFI (それらの 2 種以上の混合構造、及び組合せを含む) からなる群から選択される構造型を有する 1 種以上のゼオライトを含み、さらに好ましくは、前記 1 種以上のゼオライトは、BEA 及び / 又は CHA 構造型の、好ましくは CHA 構造型のものであり、さらに好ましくは、前記 1 種以上のゼオライトは、チャバサイトを含み、好ましくは、前記 1 種以上のゼオライトはチャバサイトである実施形態 1 ~ 8 のいずれか 1 項に記載の触媒化煤フィルター。

30

【0102】

10. 前記 1 種以上のゼオライトが、1 種以上の遷移金属、好ましくは Pt、Pd、Rh、Cu、Co、Cr、Ni、Fe、V、Nb、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 1 種以上の遷移金属、さらに好ましくは Cu、Co、Cr、Ni、Fe、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 1 種以上の遷移金属を含有し、さらに好ましくは、前記 1 種以上のゼオライトが、Cu 及び / 又は Fe、好ましくは Cu を含有する実施形態 9 に記載の触媒化煤フィルター。

【0103】

11. 前記 1 種以上の遷移金属が、前記ゼオライト中にイオン交換によって、及び / 又は含浸によって、好ましくはイオン交換によって導入されている実施形態 10 に記載の触媒化煤フィルター。

40

【0104】

12. 任意に 1 種以上の遷移金属を含有する前記 1 種以上のゼオライトが、前記出口端から前記基板軸方向の長さの 100 - x % まで延在する前記 SCR でコーティングされた前記触媒化煤フィルターの一部に、前記出口端から前記基板軸方向の長さの 100 - x % まで測定された前記触媒化煤フィルターの体積に基づいて、か焼状態で、任意に 1 種以上の遷移金属を含有する、前記 1 種以上のゼオライトの総質量として算出される 0.05 ~ 6 g / in<sup>3</sup> の範囲、好ましくは 0.1 ~ 5 g / in<sup>3</sup>、さらに好ましくは 0.5 ~ 4 g / in<sup>3</sup>、さらに好ましくは 0.8 ~ 3 g / in<sup>3</sup>、さらに好ましくは 1 ~ 2.5 g / in<sup>3</sup>

50

、さらに好ましくは  $1.3 \sim 2 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $1.5 \sim 1.9 \text{ g/in}^3$  の範囲の量で含有される実施形態 10 又は 11 に記載の触媒化煤フィルター。

【0105】

13. 前記 SCR 触媒の平均粒径  $D_{90}$  が、前記基板の壁の平均細孔径の 25% 以下であり、好ましくは  $0.5 \sim 20 \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは  $1 \sim 15 \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは  $3 \sim 10 \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは  $4 \sim 8 \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは  $5 \sim 7 \mu\text{m}$  の範囲である実施形態 1 ~ 12 のいずれか 1 項に記載の触媒化煤フィルター。

【0106】

14. 前記 LNT 触媒が、前記入口端から前記基板軸方向の長さの  $x\%$  まで延在する前記 LNT 触媒でコーティングされた前記触媒化煤フィルターの一部に、前記入口端から前記基板軸方向の長さの  $x\%$  まで測定された前記触媒化煤フィルターの体積に基づいて、 $0.05 \sim 6 \text{ g/in}^3$  の範囲の量で、好ましくは  $0.1 \sim 5 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.5 \sim 4 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.8 \sim 3 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $1 \sim 2.5 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $1.3 \sim 2 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $1.5 \sim 1.9 \text{ g/in}^3$  の範囲の量で含有される実施形態 1 ~ 13 のいずれか 1 項に記載の触媒化煤フィルター。

10

【0107】

15. 前記 LNT 触媒が、1 種以上のアルカリ土類金属、好ましくは、Mg、Ca、Ba、Sr、及びそれらの 2 種以上の組合せからなる群から、さらに好ましくは Mg、Ca、Ba、及びそれらの 2 種以上の組合せからなる群から選択される 1 種以上のアルカリ土類金属を含み、さらに好ましくは、前記 LNT 触媒が、Mg、及び / 又は Ba、好ましくは Ba を含む実施形態 1 ~ 14 のいずれか 1 項に記載の触媒化煤フィルター。

20

【0108】

16. 前記 1 種以上のアルカリ土類金属が、前記入口端から前記基板軸方向の長さの  $x\%$  まで延在する前記 LNT 触媒でコーティングされた前記 CSF の一部に、前記入口端から前記基板軸方向の長さの  $x\%$  まで測定された前記 CSF の体積に基づいて、酸化物として算出される 1 種以上のアルカリ土類金属の  $0.01 \sim 2 \text{ g/in}^3$  の範囲の量で、好ましくは  $0.05 \sim 1 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.1 \sim 0.8 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.15 \sim 0.6 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.2 \sim 0.45 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.25 \sim 0.38 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.28 \sim 0.35 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.30 \sim 0.33 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.31 \sim 0.32 \text{ g/in}^3$  の範囲の量で含有される実施形態 15 に記載の触媒化煤フィルター。

30

【0109】

17. 前記 LNT 触媒が、1 種以上の酸素貯蔵成分を含み、好ましくは前記 1 種以上の酸素貯蔵成分が、ジルコニア、セリア、ランタナ、プラセオジミア、ネオジミア、及びそれらの混合物からなる群から選択され、好ましくは、前記 1 種以上の酸素貯蔵成分が、セリア、及び / 又はプラセオジミア、さらに好ましくはセリアを含み、さらに好ましくはセリア、及び / 又はプラセオジミア、さらに好ましくはセリアが、前記 LNT 触媒中に、前記 1 種以上の酸素貯蔵成分として含有される実施形態 1 ~ 16 のいずれか 1 項に記載の触媒化煤フィルター。

40

【0110】

18. 前記 1 種以上の酸素貯蔵成分が、前記入口端から前記基板軸方向の長さの  $x\%$  まで延在する前記 LNT 触媒でコーティングされた前記 CSF の一部に、前記入口端から前記基板軸方向の長さの  $x\%$  まで測定された前記 CSF の体積に基づいて、 $0.01 \sim 3 \text{ g/in}^3$  の範囲の量で、好ましくは  $0.05 \sim 2 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.1 \sim 1.5 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.2 \sim 1.2 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.3 \sim 1 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.4 \sim 0.8 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.45 \sim 0.7 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.5 \sim 0.6 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.53 \sim 0.55 \text{ g/in}^3$  の範囲の量で含有される実施形態 16 に記載の触媒化煤フィルター。

50

## 【 0 1 1 1 】

19. 前記 S C R 触媒が、前記出口端から前記基板軸方向の長さの 1 0 0 - x % まで延在する前記 S C R 触媒でコーティングされた前記触媒化煤フィルターの一部に、前記出口端から前記基板軸方向の長さの 1 0 0 - x % まで測定された前記 C S F の体積に基づいて、 $0.05 \sim 6 \text{ g / i n}^3$  の範囲の量で、好ましくは  $0.1 \sim 5 \text{ g / i n}^3$  の範囲の量で、さらに好ましくは  $0.5 \sim 4 \text{ g / i n}^3$ 、さらに好ましくは  $0.8 \sim 3 \text{ g / i n}^3$ 、さらに好ましくは  $1 \sim 2.5 \text{ g / i n}^3$ 、さらに好ましくは  $1.3 \sim 2 \text{ g / i n}^3$ 、さらに好ましくは  $1.5 \sim 1.9 \text{ g / i n}^3$  の範囲の量で含有される実施形態 1 ~ 1 8 のいずれか 1 項に記載の触媒化煤フィルター。

## 【 0 1 1 2 】

20. 前記 L N T 触媒が、1 種以上の白金族金属、好ましくは P t、P d、R h、I r、及びそれらの 2 種以上の組合せからなる群から、さらに好ましくは P t、P d、R h、及びそれらの 2 種以上の組合せからなる群から選択される 1 種以上の白金族金属を含み、さらに好ましくは、前記 L N T 触媒は、P t、さらに好ましくは P t 及び P d、さらに好ましくは P t、P d、及び R h を含む実施形態 1 ~ 1 9 のいずれか 1 項に記載の触媒化煤フィルター。

## 【 0 1 1 3 】

21. 前記 1 種以上の白金族金属が、前記入口端から前記基板軸方向の長さの x % まで延在する前記 L N T 触媒でコーティングされた前記 C S F の一部に、前記入口端から前記基板軸方向の長さの x % まで測定された前記 C S F の体積に基づいて、前記元素として算出される 1 種以上の白金族金属の  $1 \sim 200 \text{ g / f t}^3$  の範囲の量で、好ましくは  $5 \sim 150 \text{ g / f t}^3$ 、さらに好ましくは  $10 \sim 120 \text{ g / f t}^3$ 、さらに好ましくは  $30 \sim 100 \text{ g / f t}^3$ 、さらに好ましくは  $40 \sim 80 \text{ g / f t}^3$ 、さらに好ましくは  $50 \sim 70 \text{ g / f t}^3$ 、さらに好ましくは  $55 \sim 65 \text{ g / f t}^3$  の範囲の量で含有される実施形態 2 0 に記載の触媒化煤フィルター。

## 【 0 1 1 4 】

22. 前記 L N T 触媒が、白金を含み、白金が、前記入口端から前記基板軸方向の長さの x % まで延在する前記 L N T 触媒でコーティングされた前記 C S F の一部に、前記入口端から前記基板軸方向の長さの x % まで測定された前記 C S F の体積に基づいて、前記元素として算出される白金の  $0.5 \sim 180 \text{ g / f t}^3$  の範囲の量で、好ましくは  $1 \sim 140 \text{ g / f t}^3$ 、さらに好ましくは  $5 \sim 110 \text{ g / f t}^3$ 、さらに好ましくは  $10 \sim 90 \text{ g / f t}^3$ 、さらに好ましくは  $30 \sim 70 \text{ g / f t}^3$ 、さらに好ましくは  $40 \sim 60 \text{ g / f t}^3$ 、さらに好ましくは  $50 \sim 55 \text{ g / f t}^3$  の範囲の量で含有される実施形態 1 ~ 2 1 のいずれか 1 項に記載の触媒化煤フィルター。

## 【 0 1 1 5 】

23. 前記 L N T 触媒が、パラジウムを含み、パラジウムが、前記入口端から前記基板軸方向の長さの x % まで延在する前記 L N T 触媒でコーティングされた前記 C S F の一部に、前記入口端から前記基板軸方向の長さの x % まで測定された前記 C S F の体積に基づいて、前記元素として算出されるパラジウムの  $0.05 \sim 18 \text{ g / f t}^3$  の範囲の量で、好ましくは  $0.1 \sim 15 \text{ g / f t}^3$ 、さらに好ましくは  $0.5 \sim 12 \text{ g / f t}^3$ 、さらに好ましくは  $1 \sim 10 \text{ g / f t}^3$ 、さらに好ましくは  $3 \sim 8 \text{ g / f t}^3$ 、さらに好ましくは  $4 \sim 6 \text{ g / f t}^3$ 、さらに好ましくは  $4.5 \sim 5.5 \text{ g / f t}^3$  の範囲の量で含有される実施形態 1 ~ 2 2 のいずれか 1 項に記載の触媒化煤フィルター。

## 【 0 1 1 6 】

24. 前記 L N T 触媒が、ロジウムを含み、ロジウムが、前記入口端から前記基板軸方向の長さの x % まで延在する前記 L N T 触媒でコーティングされた前記 C S F の一部に、前記入口端から前記基板軸方向の長さの x % まで測定された前記 C S F の体積に基づいて、前記元素として算出されるロジウムの  $0.05 \sim 18 \text{ g / f t}^3$  の範囲の量で、好ましくは  $0.1 \sim 15 \text{ g / f t}^3$ 、さらに好ましくは  $0.5 \sim 12 \text{ g / f t}^3$ 、さらに好ましくは  $1 \sim 10 \text{ g / f t}^3$ 、さらに好ましくは  $3 \sim 8 \text{ g / f t}^3$ 、さらに好ましくは  $4 \sim 6 \text{ g / f t}^3$  の範囲の量で含有される実施形態 1 ~ 2 2 のいずれか 1 項に記載の触媒化煤フィルター。

10

20

30

40

50

$\text{f t}^3$ 、さらに好ましくは  $4.5 \sim 5.5 \text{ g / f t}^3$  の範囲の量で含有される実施形態 1 ~ 23 のいずれか 1 項に記載の触媒化煤フィルター。

【0117】

25. 前記 LNT 触媒中に含有される前記 1 種以上のアルカリ土類金属、及び / 又は、好ましくは及び前記白金族金属が、粒子担体材料上に担持されており、前記粒子担体材料が、好ましくはアルミナ、シリカ、アルミナ - シリカ、チタニア、チタニア - アルミナ、ジルコニア、ジルコニア - アルミナ、バリア - アルミナ、セリア、セリア - アルミナ、バリア - セリア - アルミナ、マグネシア、マグネシア - アルミナ、マグネシア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、チタニア - 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、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ - シリカ、チタニア - アルミナ、ジルコニア - アルミナ、バリア - アルミナ、セリア、セリア - アルミナ、バリア - セリア - アルミナ、マグネシア - アルミナ、マグネシア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、及びそれらの 2 種以上の混合物からなる群から、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ - シリカ、ジルコニア - アルミナ、セリア - アルミナ、マグネシア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、及びそれらの 2 種以上の混合物からなる群から、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ - シリカ、チタニア - アルミナ、及び / 又はマグネシア - セリア - アルミナである実施形態 15 ~ 24 のいずれか 1 項に記載の触媒化煤フィルター。

10

20

【0118】

26. 前記 LNT 触媒が、白金及びパラジウムを含み、白金及びパラジウムが、前記粒子担体材料の同じ粒子上に担持されており、前記粒子担体材料が、アルミナ、シリカ、アルミナ - シリカ、チタニア、チタニア - アルミナ、ジルコニア、ジルコニア - アルミナ、バリア - アルミナ、セリア、セリア - アルミナ、バリア - セリア - アルミナ、マグネシア、マグネシア - アルミナ、マグネシア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、チタニア - 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、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ - シリカ、チタニア - アルミナ、ジルコニア - アルミナ、バリア - アルミナ、セリア、セリア - アルミナ、バリア - セリア - アルミナ、マグネシア - アルミナ、マグネシア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、及びそれらの 2 種以上の混合物からなる群から、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ - シリカ、チタニア - アルミナ、ジルコニア - アルミナ、セリア - アルミナ、バリア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、及びそれらの 2 種以上の混合物からなる群から、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ - シリカ、チタニア - アルミナ、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、さらに好ましくは、前記粒子担体材料は、マグネシア - セリア - アルミナであり、好ましくは、前記マグネシア - セリア - アルミナは、マグネシア及びセリアでドーブされているアルミナからなり、さらに好ましくは、アルミナは、100 質量%のマグネシア - セリア - アルミナに基づいて、1 ~ 30 質量%のマグネシア、さらに好ましくは 5 ~ 25 質量%のマグネシア、さらに好ましくは 10 ~ 20 質量%のマグネシア、さらに好ましくは 12 ~ 18 質量%のマグネシア、さらに好ましくは 14 ~ 16 質量%のマグネシアで、且つそれと独立して、100 質量%のマグネシア - セリア - アルミナに基づいて、0.5 ~ 25 質量%のセリア、さらに好ましくは 1 ~ 20 質量%のセリア、さらに好ましくは 5 ~ 15 質量%のセリア、さらに好ましくは 7 ~ 12 質量%のセリア、さらに好ましくは 9 ~ 11 質量%のセリアでドーブされている実施形態 25 に記載の触媒化煤フィルター。

30

40

【0119】

27. 前記 LNT 触媒が、ロジウムを含み、ロジウムが、アルミナ、シリカ、アルミナ - シリカ、チタニア、チタニア - アルミナ、ジルコニア、ジルコニア - アルミナ、バリア - アルミナ、セリア、セリア - アルミナ、バリア - セリア - アルミナ、マグネシア、マグ

50

ネシア - アルミナ、マグネシア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、チタニア - 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、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ - シリカ、チタニア - アルミナ、ジルコニア - アルミナ、バリア - アルミナ、セリア、セリア - アルミナ、バリア - セリア - アルミナ、マグネシア - アルミナ、マグネシア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、及びそれらの２種以上の混合物からなる群から、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ - シリカ、ジルコニア - アルミナ、セリア - アルミナ、マグネシア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、及びそれらの２種以上の混合物からなる群から、さらに好ましくはアルミナ、ジルコニア - アルミナ、セリア - アルミナ、マグネシア - セリア - アルミナ、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粒子担体材料上に担持されており、前記粒子担体材料はジルコニア - アルミナであり、好ましくは前記ジルコニア - アルミナは、ジルコニアでドーブされているアルミナからなり、さらに好ましくは、アルミナは、１００質量％のジルコニア - アルミナに基づいて、１～５０質量％のジルコニア、さらに好ましくは５～４０質量％のジルコニア、さらに好ましくは１０～３０質量％のジルコニア、さらに好ましくは１５～２５質量％のジルコニア、さらに好ましくは１８～２２質量％のジルコニアでドーブされている実施形態２５又は２６に記載の触媒化煤フィルター。

10

#### 【０１２０】

２８．前記ＬＮＴ触媒が、白金、パラジウム、及びロジウムを含み、ロジウムは、パラジウム及び白金よりも、前記粒子担体材料の別の粒子上に担持されている実施形態２５～

20

#### 【０１２１】

２９．前記粒子担体材料の平均粒径 $D_{90}$ が、互いに独立して、前記基板の壁の平均細孔径の２５％以下であり、好ましくは０．５～２５ $\mu\text{m}$ 、さらに好ましくは１～２０ $\mu\text{m}$ 、さらに好ましくは３～１５ $\mu\text{m}$ 、さらに好ましくは６～１２ $\mu\text{m}$ 、さらに好ましくは８～１０ $\mu\text{m}$ の範囲である実施形態２５～２８のいずれか１項に記載の触媒化煤フィルター。

#### 【０１２２】

３０．前記ＬＮＴ触媒が、前記粒子担体材料を、前記入口端から前記基板軸方向の長さの $x\%$ まで測定された前記触媒化煤フィルターの体積に基づいて、０．０５～５ $\text{g/in}^3$ 、好ましくは０．１～３ $\text{g/in}^3$ 、さらに好ましくは０．５～２．５ $\text{g/in}^3$ 、さらに好ましくは１．０～２ $\text{g/in}^3$ 、さらに好ましくは１．３～１．８ $\text{g/in}^3$ 、さらに好ましくは１．４～１．６ $\text{g/in}^3$ 、さらに好ましくは１．４５～１．５５ $\text{g/in}^3$ の範囲の量で含む実施形態２５～２９のいずれか１項に記載の触媒化煤フィルター。

30

#### 【０１２３】

３１．触媒化煤フィルター、好ましくは、実施形態１～３０のいずれか１項に記載の触媒化煤フィルターを製造する方法であって、

(i) 多孔質壁流基板であり、入口端、出口端、前記入口端と前記出口端の間に延在する基板軸方向の長さ、及び前記壁流基板の内壁によって規定される複数のチャネルを含み、前記複数のチャネルは、開放入口端及び閉鎖出口端を有する入口チャネル、並びに閉鎖入口端及び開放出口端を有する出口チャネルを含む多孔質壁流基板を供給する工程と、

40

(ii) 粒子担体材料にロジウム化合物の水溶液を含浸させる工程と、

(iii) (ii) で得られた前記含浸された粒子担体材料をか焼し、担持Rh粉末を供給する工程と、

(iv) 粒子担体材料を蒸留水と混合し、続いて、そこにパラジウム化合物の水溶液、及び白金化合物の水溶液を添加し、第一のスラリーを供給する工程と、

(v) 前記担持Rh粉末、１種以上の酸素貯蔵材料、及び１種以上のアルカリ土類金属化合物を(iii)で得られた前記第一のスラリーに添加し、第二のスラリーを供給する工程と、

(vi) 任意に前記第二のスラリーを粉砕する工程(前記第二のスラリーは、前記多孔

50



質壁流基板の壁の平均細孔径の25%以下である平均粒径D90を示す)と、

(vii) 固体SCR触媒を蒸留水中に懸濁し、任意に結果として生じる混合物を粉碎し、第三のスラリーを供給する工程(前記第三のスラリーは、前記多孔質壁流基板の壁の平均細孔径の25%以下である平均粒径D90を示す)と、

(viii) 前記壁流基板の前記入口端を前記第二のスラリー中に、前記入口端から延在する前記基板軸方向の長さのx%まで浸すことによって、前記壁流基板の前記入口チャンネル壁の一部をコーティングする工程( $0 < x < 100$ )と、

(ix) 前記第二のスラリーから前記壁流基板を除去し、前記入口チャンネルから過剰なスラリーを除去する工程と、

(x) 前記壁流基板の前記出口端を前記第三のスラリー中に、前記出口端から延在する前記基板軸方向の長さの $100 - x$ %まで浸すことによって、前記壁流基板の前記出口チャンネル壁の一部をコーティングする工程、と

(xi) 前記第三のスラリーから前記壁流基板を除去し、前記出口チャンネルから過剰なスラリーを除去する工程と、

(xii) 任意に前記コーティングされた壁流基板を乾燥、及び/又は焼する工程と、  
を含む製造方法。

#### 【0124】

32. 工程(ii)における前記含浸が、初期湿潤によって達成される実施形態31に記載の方法。

#### 【0125】

33. 工程(ix)及び(x)の間に、前記コーティングされた壁流フィルター基板が乾燥、及び/又は焼の工程を受ける実施形態31又は32に記載の方法。

#### 【0126】

34. 前記1工程以上の乾燥工程における乾燥温度が、互いに独立して、 $50 \sim 200$ 、好ましくは $70 \sim 180$ 、さらに好ましくは $80 \sim 150$ 、さらに好ましくは $90 \sim 130$ 、さらに好ましくは $100 \sim 120$ の範囲である実施形態31~33のいずれか1項に記載の方法。

#### 【0127】

35. 前記1工程以上の焼工程における焼温度が、互いに独立して、 $250 \sim 800$ 、好ましくは $300 \sim 600$ 、さらに好ましくは $350 \sim 550$ 、さらに好ましくは $400 \sim 500$ 、さらに好ましくは $430 \sim 480$ 、さらに好ましくは $440 \sim 460$ の範囲である実施形態31~34のいずれか1項に記載の方法。

#### 【0128】

36. 前記1工程以上の焼工程における焼時間が、互いに独立して、 $0.1 \sim 5$ 時間、好ましくは $0.3 \sim 3$ 時間、さらに好ましくは $0.5 \sim 2$ 時間、さらに好ましくは $0.7 \sim 1.5$ 時間、さらに好ましくは $0.8 \sim 1.3$ 時間、さらに好ましくは $0.9 \sim 1.1$ 時間の範囲である実施形態31~35のいずれか1項に記載の方法。

#### 【0129】

37. xが、 $5 \sim 95$ 、好ましくは $15 \sim 85$ 、さらに好ましくは $25 \sim 75$ 、さらに好ましくは $35 \sim 65$ 、さらに好ましくは $45 \sim 55$ の範囲である実施形態31~36のいずれか1項に記載の方法。

#### 【0130】

38. 工程(ii)において、前記ロジウム化合物が、ロジウム塩、好ましくは硝酸ロジウム、硫酸ロジウム、塩化ロジウム、酢酸ロジウム、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ロジウム塩であり、さらに好ましくは、前記ロジウム塩が、硝酸ロジウムである実施形態31~37のいずれか1項に記載の方法。

#### 【0131】

39. 工程(iv)において、前記パラジウム化合物が、パラジウム塩、好ましくは硝酸パラジウム、硫酸パラジウム、塩化パラジウム、塩化テトラアミンパラジウム、及びそ

10

20

30

40

50

これらの２種以上の混合物からなる群から選択されるパラジウム塩であり、さらに好ましくは、前記パラジウム塩が、硝酸パラジウムである実施形態３１～３８のいずれか１項に記載の方法。

【０１３２】

４０．工程（ｉｖ）において、前記白金化合物が、白金塩、好ましくは硝酸白金、硫酸白金、塩化白金、白金テトラモノエタノールアミン水酸化物、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白金塩であり、さらに好ましくは、前記白金塩が、パラジウム白金テトラモノエタノールアミン水酸化物である実施形態３１～３９のいずれか１項に記載の方法。

【０１３３】

４１．工程（ｖ）において添加される、前記１種以上の酸素貯蔵材料が、ジルコニア、セリア、ランタナ、プラセオジミア、ネオジミア、及びそれらの混合物からなる群から選択され、好ましくは、前記１種以上の酸素貯蔵材料が、セリア、及び／又はプラセオジミア、さらに好ましくはセリアを含み、さらに好ましくはセリア、及び／又はプラセオジミア、さらに好ましくはセリアが、工程（ｖ）において前記１種以上の酸素貯蔵材料として添加される実施形態３１～４０のいずれか１項に記載の方法。

【０１３４】

４２．工程（ｖ）において添加される、前記１種以上のアルカリ土類金属が、Mg、Ca、Ba、Sr、及びそれらの２種以上の組合せからなる群から、さらに好ましくはMg、Ca、Ba、及びそれらの２種以上の組合せからなる群から選択され、さらに好ましくは、Mg、及び／又はBa、好ましくはBaが、工程（ｖ）において、前記１種以上のアルカリ土類金属として添加される実施形態３１～４１のいずれか１項に記載の方法。

【０１３５】

４３．工程（ｉ）において供給される前記多孔質壁流基板が、前記壁流基板の各壁がそれぞれ入口チャネルの表面である第一の表面、及び出口チャネルの表面である第二の表面を有するように、交互に塞がれた入口端及び出口端を有するハニカム基板である実施形態３１～４２のいずれか１項に記載の方法。

【０１３６】

４４．工程（ｉ）において供給される前記多孔質壁流基板が、４０～８５％、好ましくは４５～８０％、さらに好ましくは５０～７５％、さらに好ましくは５５～７０％、さらに好ましくは６０～６５％の範囲の多孔度を示す実施形態３１～４３のいずれか１項に記載の方法。

【０１３７】

４５．工程（ｉ）において供給される前記多孔質壁流基板の壁の平均細孔径が、５～５０μm、好ましくは、１０～４０μm、さらに好ましくは１３～３５μm、さらに好ましくは１５～３０μm、さらに好ましくは１７～２５μm、さらに好ましくは１８～２２μmの範囲である実施形態３１～４４のいずれか１項に記載の方法。

【０１３８】

４６．工程（ｉ）において供給される前記多孔質壁流基板が構成される材料が、金属、金属酸化物、及びセラミック材料からなる群から選択される１種以上、好ましくは、コーディエライト、チタン酸アルミニウム、炭化ケイ素、ムライト、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１種以上を含み、さらに好ましくは、前記壁流基板が、コーディエライト、チタン酸アルミニウム、又は炭化ケイ素から、好ましくは炭化ケイ素から作られる実施形態３１～４５のいずれか１項に記載の方法。

【０１３９】

４７．前記固体SCR触媒が、１種以上のゼオライト、好ましくは、BEA、CHA、FAU、FER、HEU、LEV、MEI、MEL、MFI、MOR（それらの２種以上の混合構造、及び組合せを含む）からなる群から、さらに好ましくはBEA、CHA、LEV、MFI（それらの２種以上の混合構造、及び組合せを含む）からなる群から選択される構造型を有する１種以上のゼオライトを含み、さらに好ましくは、前記１種以上のゼ

10

20

30

40

50

オライトが、B E A 及び / 又は C H A 構造型の、好ましくは C H A 構造型のものであり、さらに好ましくは、前記 1 種以上のゼオライトが、チャバサイトを含み、好ましくは、前記 1 種以上のゼオライトがチャバサイトである実施形態 3 1 ~ 4 6 のいずれか 1 項に記載の方法。

【 0 1 4 0 】

4 8 . 前記 1 種以上のゼオライトが、1 種以上の遷移金属、好ましくは P t 、 P d 、 R h 、 C u 、 C o 、 C r 、 N i 、 F e 、 V 、 N b 、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 1 種以上の遷移金属、さらに好ましくは C u 、 C o 、 C r 、 N i 、 F e 、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 1 種以上の遷移金属を含有し、さらに好ましくは前記 1 種以上のゼオライトが、C u 及び / 又は F e 、好ましくは C u を含有する実施形態 4 7 に記載の方法。

10

【 0 1 4 1 】

4 9 . 前記 1 種以上の遷移金属が、前記ゼオライト中にイオン交換によって、及び / 又は含浸によって、好ましくはイオン交換によって導入されている実施形態 4 8 に記載の方法。

【 0 1 4 2 】

5 0 . 工程 ( x ) 及び ( x i ) において、任意に 1 種以上の遷移金属を含有する前記 1 種以上のゼオライトが、前記壁流基板上に、前記出口端から前記基板軸方向の長さの 1 0 0 - x % まで測定された前記触媒化煤フィルターの体積に基づいて、か焼状態で、任意に 1 種以上の遷移金属を含有する、前記 1 種以上のゼオライトの総質量として算出される 0 . 0 5 ~ 6 g / i n<sup>3</sup>、好ましくは 0 . 1 ~ 5 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは 0 . 5 ~ 4 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは 0 . 8 ~ 3 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは 1 ~ 2 . 5 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは 1 . 3 ~ 2 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは 1 . 5 ~ 1 . 9 g / i n<sup>3</sup> の範囲の量でコーティングされる実施形態 4 7 ~ 4 9 のいずれか 1 項に記載の方法。

20

【 0 1 4 3 】

5 1 . 工程 ( v i i ) において、前記固体 S C R 触媒の平均粒径 D 9 0 が、0 . 5 ~ 2 0 μ m 、好ましくは 1 ~ 1 5 μ m 、さらに好ましくは 3 ~ 1 0 μ m 、さらに好ましくは 4 ~ 8 μ m 、さらに好ましくは 5 ~ 7 μ m の範囲である実施形態 3 1 ~ 5 0 のいずれか 1 項に記載の方法。

【 0 1 4 4 】

30

5 2 . 工程 ( v i i i ) 及び ( i x ) において、ロジウムが、前記壁流基板上に、前記入口端から前記基板軸方向の長さの x % まで測定された前記触媒化煤フィルターの体積に基づいて、前記元素として算出されるロジウムの 0 . 0 5 ~ 1 8 g / f t<sup>3</sup> の範囲の量で、好ましくは 0 . 1 ~ 1 5 g / f t<sup>3</sup>、さらに好ましくは 0 . 5 ~ 1 2 g / f t<sup>3</sup>、さらに好ましくは 1 ~ 1 0 g / f t<sup>3</sup>、さらに好ましくは 3 ~ 8 g / f t<sup>3</sup>、さらに好ましくは 4 ~ 6 g / f t<sup>3</sup>、さらに好ましくは 4 . 5 ~ 5 . 5 g / f t<sup>3</sup> の範囲の量でコーティングされる実施形態 3 1 ~ 5 1 のいずれか 1 項に記載の方法。

【 0 1 4 5 】

5 3 . 工程 ( v i i i ) 及び ( i x ) において、パラジウムが、前記壁流基板上に、前記入口端から前記基板軸方向の長さの x % まで測定された前記触媒化煤フィルターの体積に基づいて、前記元素として算出されるパラジウムの 0 . 0 5 ~ 1 8 g / f t<sup>3</sup> の範囲の量で、好ましくは 0 . 1 ~ 1 5 g / f t<sup>3</sup>、さらに好ましくは 0 . 5 ~ 1 2 g / f t<sup>3</sup>、さらに好ましくは 1 ~ 1 0 g / f t<sup>3</sup>、さらに好ましくは 3 ~ 8 g / f t<sup>3</sup>、さらに好ましくは 4 ~ 6 g / f t<sup>3</sup>、さらに好ましくは 4 . 5 ~ 5 . 5 g / f t<sup>3</sup> の範囲の量でコーティングされる実施形態 3 1 ~ 5 2 のいずれか 1 項に記載の方法。

40

【 0 1 4 6 】

5 4 . 工程 ( v i i i ) 及び ( i x ) において、白金が、前記壁流基板上に、前記入口端から前記基板軸方向の長さの x % まで測定された前記触媒化煤フィルターの体積に基づいて、前記元素として算出される白金の 0 . 5 ~ 1 8 0 g / f t<sup>3</sup> の範囲の量、好ましくは 1 ~ 1 4 0 g / f t<sup>3</sup>、さらに好ましくは 5 ~ 1 1 0 g / f t<sup>3</sup>、さらに好ましくは 1 0

50

～90 g / f t<sup>3</sup>、さらに好ましくは30～70 g / f t<sup>3</sup>、さらに好ましくは40～60 g / f t<sup>3</sup>、さらに好ましくは50～55 g / f t<sup>3</sup>の範囲の量でコーティングされる実施形態31～53のいずれか1項に記載の方法。

【0147】

55. 工程(viii)及び(ix)において、前記1種以上の酸素貯蔵成分が、前記壁流基板上に、前記入口端から前記基板軸方向の長さのx%まで測定された前記触媒化煤フィルターの体積に基づいて、0.01～3 g / i n<sup>3</sup>の範囲の量で、好ましくは0.05～2 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは0.1～1.5 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは0.2～1.2 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは0.3～1 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは0.4～0.8 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは0.45～0.7 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは0.5～0.6 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは0.53～0.55 g / i n<sup>3</sup>の範囲の量でコーティングされる実施形態31～54のいずれか1項に記載の方法。

10

【0148】

56. 工程(viii)及び(ix)において、前記1種以上のアルカリ土類金属が、前記壁流基板上に、前記入口端から前記基板軸方向の長さのx%まで測定された前記触媒化煤フィルターの体積に基づいて、0.01～2 g / i n<sup>3</sup>の範囲の量で、好ましくは0.05～1 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは0.1～0.8 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは0.15～0.6 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは0.2～0.45 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは0.25～0.38 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは0.28～0.35 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは0.30～0.33 g / i n<sup>3</sup>、さらに好ましくは0.31～0.32 g / i n<sup>3</sup>の範囲の量でコーティングされる実施形態31～55のいずれか1項に記載の方法。

20

【0149】

57. 工程(ii)の前記粒子担体材料が、アルミナ、シリカ、アルミナ-シリカ、チタニア、チタニア-アルミナ、ジルコニア、ジルコニア-アルミナ、バリア-アルミナ、セリア、セリア-アルミナ、バリア-セリア-アルミナ、マグネシア、マグネシア-アルミナ、マグネシア-セリア-アルミナ、ランタナ-アルミナ、ランタナ-ジルコニア-アルミナ、チタニア-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、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ-シリカ、チタニア-アルミナ、ジルコニア-アルミナ、バリア-アルミナ、セリア、セリア-アルミナ、バリア-セリア-アルミナ、マグネシア-アルミナ、マグネシア-セリア-アルミナ、ランタナ-アルミナ、ランタナ-ジルコニア-アルミナ、及びそれらの2種以上の混合物からなる群から、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ-シリカ、ジルコニア-アルミナ、セリア-アルミナ、マグネシア-セリア-アルミナ、ランタナ-アルミナ、ランタナ-ジルコニア-アルミナ、及びそれらの2種以上の混合物からなる群から、さらに好ましくはアルミナ、ジルコニア-アルミナ、セリア-アルミナ、マグネシア-セリア-アルミナ、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、前記粒子担体材料が、ジルコニア-アルミナであり、好ましくは、前記ジルコニア-アルミナが、ジルコニアでドーブされているアルミナからなり、さらに好ましくは、アルミナが、100質量%のジルコニア-アルミナに基づいて、1～50質量%のジルコニア、さらに好ましくは5～40質量%のジルコニア、さらに好ましくは10～30質量%のジルコニア、さらに好ましくは15～25質量%のジルコニア、さらに好ましくは18～22質量%のジルコニアでドーブされている実施形態31～56のいずれか1項に記載の方法。

30

40

【0150】

58. 工程(iv)の前記粒子担体材料が、アルミナ、シリカ、アルミナ-シリカ、チタニア、チタニア-アルミナ、ジルコニア、ジルコニア-アルミナ、バリア-アルミナ、セリア、セリア-アルミナ、バリア-セリア-アルミナ、マグネシア、マグネシア-アルミナ、マグネシア-セリア-アルミナ、ランタナ-アルミナ、ランタナ-ジルコニア-アルミナ、チタニア-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、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ-シリカ、チタニア-アルミナ、ジルコニア-アルミナ、

50

バリア - アルミナ、セリア、セリア - アルミナ、バリア - セリア - アルミナ、マグネシア - アルミナ、マグネシア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、及びそれらの 2 種以上の混合物からなる群から、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ - シリカ、ジルコニア - アルミナ、セリア - アルミナ、マグネシア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、及びそれらの 2 種以上の混合物からなる群から、さらに好ましくはアルミナ、ジルコニア - アルミナ、セリア - アルミナ、マグネシア - セリア - アルミナ、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、さらに好ましくは、前記粒子担体材料が、マグネシア - セリア - アルミナであり、好ましくは、前記マグネシア - セリア - アルミナが、マグネシア及びセリアでドーブされているアルミナからなり、さらに好ましくは、アルミナが、100 質量%のマグネシア - セリア - アルミナに基づいて、1 ~ 30 質量%のマグネシア、さらに好ましくは 5 ~ 25 質量%のマグネシア、さらに好ましくは 10 ~ 20 質量%のマグネシア、さらに好ましくは 12 ~ 18 質量%のマグネシア、さらに好ましくは 14 ~ 16 質量%のマグネシアで、且つそれと独立して、100 質量%のマグネシア - セリア - アルミナに基づいて、0.5 ~ 25 質量%のセリア、さらに好ましくは 1 ~ 20 質量%のセリア、さらに好ましくは 5 ~ 15 質量%のセリア、さらに好ましくは 7 ~ 12 質量%のセリア、さらに好ましくは 9 ~ 11 質量%のセリアでドーブされている実施形態 31 ~ 57 のいずれか 1 項に記載の方法。

10

#### 【0151】

59. 工程 (ii) 及び (iv) の前記粒子担体材料の平均粒径  $D_{90}$  が、互いに独立して、0.5 ~ 25  $\mu\text{m}$ 、さらに好ましくは 1 ~ 20  $\mu\text{m}$ 、さらに好ましくは 3 ~ 15  $\mu\text{m}$ 、さらに好ましくは 6 ~ 12  $\mu\text{m}$ 、さらに好ましくは 8 ~ 10  $\mu\text{m}$  の範囲である実施形態 31 ~ 58 のいずれか 1 項に記載の方法。

20

#### 【0152】

60. 工程 (vii) 及び (ix) において、前記粒子担体材料が、前記壁流基板上に、前記入口端から前記基板軸方向の長さの  $x\%$  まで測定された前記触媒化煤フィルターの体積に基づいて、0.05 ~ 5  $\text{g/in}^3$ 、好ましくは 0.1 ~ 3  $\text{g/in}^3$ 、さらに好ましくは 0.5 ~ 2.5  $\text{g/in}^3$ 、さらに好ましくは 1.0 ~ 2  $\text{g/in}^3$ 、さらに好ましくは 1.3 ~ 1.8  $\text{g/in}^3$ 、さらに好ましくは 1.4 ~ 1.6  $\text{g/in}^3$ 、さらに好ましくは 1.45 ~ 1.55  $\text{g/in}^3$  の範囲の量でコーティングされる実施形態 31 ~ 59 のいずれか 1 項に記載の方法。

30

#### 【0153】

61. 工程 (x) 及び (xi) において、前記 SCR 触媒が、前記壁流基板上に、前記出口端から前記基板軸方向の長さの 100 -  $x\%$  まで測定された前記触媒化煤フィルターの体積に基づいて、0.05 ~ 6  $\text{g/in}^3$ 、好ましくは 0.1 ~ 5  $\text{g/in}^3$ 、さらに好ましくは 0.5 ~ 4  $\text{g/in}^3$ 、さらに好ましくは 0.8 ~ 3  $\text{g/in}^3$ 、さらに好ましくは 1 ~ 2.5  $\text{g/in}^3$ 、さらに好ましくは 1.3 ~ 2  $\text{g/in}^3$ 、さらに好ましくは 1.5 ~ 1.9  $\text{g/in}^3$  の範囲の量でコーティングされる実施形態 31 ~ 60 のいずれか 1 項に記載の方法。

40

#### 【0154】

62. 実施形態 31 ~ 61 のいずれか 1 項に記載の方法に従って得られ得る、及び / 又は得られる、好ましくは実施形態 1 ~ 30 のいずれか 1 項に記載の触媒化煤フィルター。

#### 【0155】

63. 実施形態 1 ~ 30、又は 62 のいずれか 1 項に記載の触媒化煤フィルター (CSF)、及び前記 CSF の上流に位置するリーク  $\text{NO}_x$  トラップ (LNT) を含む排出ガス処理システムであって、内燃機関からの排出ガスが前記 LNT を通り、続いて前記 CSF を通って流れ得るように、前記 LNT 及び前記 CSF が、互いに流体連通し、前記 LNT が、入口端、出口端、前記入口端と前記出口端の間に延在する基板軸方向の長さ、及び壁流基板の内壁によって規定される複数のチャンネルを含むフロースルー基板を含み、前記フロースルー基板が、LNT 触媒でコーティングされている排出ガス処理システム。

50

## 【 0 1 5 6 】

64. 前記 L N T 触媒が、1 種以上のアルカリ土類金属、好ましくは、M g、C a、B a、S r、及びそれらの 2 種以上の組合せからなる群から、さらに好ましくは M g、C a、B a、及びそれらの 2 種以上の組合せからなる群から選択される 1 種以上のアルカリ土類金属を含み、さらに好ましくは前記 L N T 触媒が、M g、及び / 又は B a、好ましく B a、さらに好ましくは M g 及び B a を含む実施形態 6 3 に記載の排出ガス処理システム。

## 【 0 1 5 7 】

65. 前記 1 種以上のアルカリ土類金属が、前記 L N T 触媒中に、前記 L N T の総体積に基づいて、元素として算出される 1 種以上のアルカリ土類金属の  $0.05 \sim 2 \text{ g / in}^3$  の範囲の量、好ましくは  $0.1 \sim 1.5 \text{ g / in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.2 \sim 1 \text{ g / in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.25 \sim 0.7 \text{ g / in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.3 \sim 0.5 \text{ g / in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.35 \sim 0.45 \text{ g / in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.37 \sim 0.42 \text{ g / in}^3$ 、さらに好ましくは  $0.39 \sim 0.4 \text{ g / in}^3$  の範囲の量で含有される実施形態 6 4 に記載の排出ガス処理システム。

10

## 【 0 1 5 8 】

66. 前記 L N T 触媒が、1 種以上の白金族金属、好ましくは、P t、P d、R h、I r、及びそれらの 2 種以上の組合せからなる群から、さらに好ましくは、P t、P d、R h、及びそれらの 2 種以上の組合せからなる群から選択される 1 種以上の白金族金属を含み、さらに好ましくは、前記 L N T 触媒が、P t、さらに好ましくは P t 及び P d、さらに好ましくは P t、P d、及び R h を含む実施形態 6 3 ~ 6 5 のいずれか 1 項に記載の排出ガス処理システム。

20

## 【 0 1 5 9 】

67. 前記 1 種以上の白金族金属が、前記 L N T 触媒中に、前記 L N T の総体積に基づいて、前記元素として算出される 1 種以上の白金族金属の  $10 \sim 400 \text{ g / ft}^3$  の範囲の量で、好ましくは  $30 \sim 300 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは  $50 \sim 250 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは  $80 \sim 220 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは  $100 \sim 200 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは  $130 \sim 180 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは  $140 \sim 160 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは  $145 \sim 155 \text{ g / ft}^3$  の範囲の量で含有される実施形態 6 6 に記載の排出ガス処理システム。

30

## 【 0 1 6 0 】

68. 前記 L N T 触媒が白金を含み、白金が、前記 L N T 触媒中に、前記 L N T の総体積に基づいて、前記元素として算出される白金の  $5 \sim 400 \text{ g / ft}^3$  の範囲の量で、好ましくは  $10 \sim 300 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは  $30 \sim 250 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは  $50 \sim 200 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは  $80 \sim 180 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは  $100 \sim 150 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは  $120 \sim 130 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは  $125 \sim 135 \text{ g / ft}^3$  の範囲の量で含有される実施形態 6 3 ~ 6 7 のいずれか 1 項に記載の排出ガス処理システム。

40

## 【 0 1 6 1 】

69. 前記 L N T 触媒がパラジウムを含み、パラジウムが、前記 L N T 触媒中に、前記 L N T の総体積に基づいて、前記元素として算出されるパラジウムの  $1 \sim 50 \text{ g / ft}^3$  の範囲の量で、好ましくは  $3 \sim 40 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは  $5 \sim 30 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは  $8 \sim 25 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは  $10 \sim 20 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは  $12 \sim 18 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは  $14 \sim 16 \text{ g / ft}^3$  の範囲の量で含有される実施形態 6 3 ~ 6 8 のいずれか 1 項に記載の排出ガス処理システム。

40

## 【 0 1 6 2 】

70. 前記 L N T 触媒がロジウムを含み、ロジウムが、前記 L N T 触媒中に、前記 L N T 触媒の総体積に基づいて、前記元素として算出されるロジウムの  $0.1 \sim 20 \text{ g / ft}^3$  の範囲の量で、好ましくは  $0.5 \sim 15 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは  $1 \sim 10 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは  $3 \sim 8 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは  $4 \sim 6 \text{ g / ft}^3$ 、さらに好ましくは  $4.5 \sim 5.5 \text{ g / ft}^3$  の範囲の量で含有される実施形態 6 3 ~ 6 9 のいずれか

50

1 項に記載の排出ガス処理システム。

【 0 1 6 3 】

7 1 . 前記 L N T 触媒中に含有される前記 1 種以上のアルカリ土類金属、及び / 又は好ましくは前記 1 種以上の白金族金属が、粒子担体材料上に担持されており、前記粒子担体材料が、好ましくは、アルミナ、シリカ、アルミナ - シリカ、チタニア、チタニア - アルミナ、ジルコニア、ジルコニア - アルミナ、バリア - アルミナ、セリア、セリア - アルミナ、バリア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、チタニア - 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、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ - シリカ、チタニア - アルミナ、ジルコニア - アルミナ、バリア - アルミナ、セリア、セリア - アルミナ、バリア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、及びそれらの 2 種以上の混合物からなる群から、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ - シリカ、ジルコニア - アルミナ、セリア、セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、及びそれらの 2 種以上の混合物からなる群から、さらに好ましくはアルミナ、セリア、セリア - アルミナ、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、さらに好ましくは、前記粒子担体材料が、アルミナ、及び / 又はセリア、好ましくは - アルミナである実施形態 6 4 ~ 7 0 のいずれか 1 項に記載の排出ガス処理システム。

10

【 0 1 6 4 】

7 2 . 前記 L N T 触媒が白金及びパラジウムを含み、白金及びパラジウムが、前記粒子担体材料の同じ粒子上に担持されており、好ましくは、前記粒子担体材料が、アルミナ、シリカ、アルミナ - シリカ、チタニア、チタニア - アルミナ、ジルコニア、ジルコニア - アルミナ、バリア - アルミナ、セリア、セリア - アルミナ、バリア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、チタニア - 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、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ - シリカ、チタニア - アルミナ、ジルコニア - アルミナ、バリア - アルミナ、セリア - アルミナ、バリア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、及びそれらの 2 種以上の混合物からなる群から、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ - シリカ、ジルコニア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、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、さらに好ましくは、前記粒子担体材料が、アルミナ、好ましくは - アルミナである実施形態 7 1 に記載の排出ガス処理システム。

20

30

【 0 1 6 5 】

7 3 . 前記 L N T 触媒がロジウムを含み、ロジウムが、アルミナ、シリカ、アルミナ - シリカ、チタニア、チタニア - アルミナ、ジルコニア、ジルコニア - アルミナ、バリア - アルミナ、セリア、セリア - アルミナ、バリア - セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、チタニア - 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、さらに好ましくはアルミナ、アルミナ - シリカ、ジルコニア - アルミナ、セリア、セリア - アルミナ、ランタナ - アルミナ、ランタナ - ジルコニア - アルミナ、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粒子担体材料上に担持されており、さらに好ましくは、前記粒子担体材料はセリア、及び / 又はセリア - アルミナ、好ましくはセリアである実施形態 7 1 又は 7 2 に記載の排出ガス処理システム。

40

【 0 1 6 6 】

7 4 . 前記 L N T 触媒が白金、パラジウム、及びロジウムを含み、ロジウムが、パラジウム及び白金に比べて、前記粒子担体材料の別の粒子上に担持されている実施形態 7 1 ~ 7 3 のいずれか 1 項に記載の排出ガス処理システム。

【 0 1 6 7 】

7 5 . 前記粒子担体材料の平均粒径 D 9 0 が、0 . 5 ~ 2 5  $\mu$  m、さらに好ましくは 1 ~ 2 0  $\mu$  m、さらに好ましくは 3 ~ 1 5  $\mu$  m、さらに好ましくは 6 ~ 1 2  $\mu$  m、さらに好ましくは 8 ~ 1 0  $\mu$  m の範囲である実施形態 7 1 ~ 7 4 のいずれか 1 項に記載の排出ガス処理システム。

50

## 【 0 1 6 8 】

76. 前記 LNT 触媒が、前記粒子担体材料を、前記 LNT の総体積に基づいて、 $0.5 \sim 20 \text{ g/in}^3$ 、好ましくは  $1 \sim 15 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $2 \sim 10 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $3 \sim 8 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $3.5 \sim 6 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $4 \sim 5.5 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $4.3 \sim 5.2 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $4.5 \sim 5 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $4.7 \sim 4.9 \text{ g/in}^3$ 、さらに好ましくは  $4.75 \sim 4.85 \text{ g/in}^3$  の範囲の量で含む実施形態 71 ~ 75 のいずれか 1 項に記載の排出ガス処理システム。

## 【 0 1 6 9 】

77. 前記排出ガス処理システムが、前記 LNT の上流に位置するディーゼル酸化触媒 (DOC) をさらに含み、前記 LNT 触媒が、燃焼機関からの排出ガスが前記 DOC を通り、続いて前記 LNT を通って流れ得るように、前記 LNT が、前記 DOC と流体連通している実施形態 63 ~ 76 のいずれか 1 項に記載の排出ガス処理システム。

10

## 【 0 1 7 0 】

78. 前記排出ガス処理システムが、前記内燃機関からの前記排出ガス中へ、アンモニア源、及び / 又は 1 種以上の炭化水素を注入する手段をさらに含み、前記注入手段が、前記 LNT の下流、及び前記 CSF の上流に位置する実施形態 63 ~ 77 のいずれか 1 項に記載の排出ガス処理システム。

## 【 0 1 7 1 】

79. 前記排出ガス処理システムが、内燃機関をさらに含み、前記内燃機関が、好ましくはディーゼルエンジンである実施形態 63 ~ 78 のいずれか 1 項に記載の排出ガス処理システム。

20

## 【 0 1 7 2 】

80. 内燃機関からの排出ガス処理の方法であって、内燃機関からの排出ガスを、実施形態 63 ~ 79 のいずれか 1 項に記載の排出ガス処理システムに通過させる工程を含む方法。

## 【 0 1 7 3 】

81. 実施形態 1 ~ 30 のいずれか、若しくは 62 に記載の触媒化煤フィルター、又は実施形態 63 ~ 79 のいずれか 1 項に記載の排出ガス処理システムの、排出ガス処理のための、好ましくは内燃機関からの排出ガス中の  $\text{NO}_x$ 、炭化水素、及び一酸化炭素の同時処理のための、さらに好ましくは、内燃機関からの排出ガスの  $\text{NO}_x$  の貯蔵及び変換のため、及び / 又は選択的触媒還元のため、及び / 又は炭化水素及び一酸化炭素の酸化のための、さらに好ましくは、同時の内燃機関からの排出ガス中の  $\text{NO}_x$  の貯蔵及び変換、 $\text{NO}_x$  の選択的触媒還元、及び炭化水素及び一酸化炭素の酸化のための、さらに好ましくは、ディーゼルエンジンからの排出ガスの選択的触媒還元のための使用方法。

30

## 【 実施例 】

## 【 0 1 7 4 】

## [ 実験セクション ]

以下の実施例及び比較例を通して、反対のことが示されない限り、質量 / 体積、特に  $\text{g/ft}^3$ 、及び  $\text{g/in}^3$  で示される値は、体積単位当たりの、最終的な触媒中の所定の元素、化合物、若しくは材料の、前記元素の質量に基づく、又は前記化合物、若しくは材料の乾燥 (か焼) 質量に基づく負荷量のことを丁寧に称し、前記体積は、その断面積及び長さに基づいて算出される前記モノリス、又はハニカムの体積のことを称する。したがって、前記各触媒を調製するために特に使用される前記モノリス、又はハニカムの形状、及び寸法に応じて、前記元素、化合物、若しくは材料、及び / 又はそれらの各前駆体の量は、実施例に定義した所定の負荷量を達成するように選択される。

40

## 【 0 1 7 5 】

元素、化合物、又は材料が、前記モノリス、又はハニカムの軸方向の長さの一部にのみ供給される場合、特に他に規定がなければ、前記負荷量は、前記モノリス、又はハニカムの軸方向の部分上に、前記元素、化合物、又は材料が、供給されている質量のことを称す

50



る。

#### 【0176】

[ 参考例 1 : フロースルー基板上の上流 LNT ]

前記 LNT を調製するため、 $1.41 \text{ g/in}^3$  の 50 % / 50 % セリア / アルミナを酢酸バリウムの水溶液 ( $0.29 \text{ g/in}^3 \text{ BaO}$ ) で含浸した。結果として得られた粉末を、590 で 2 時間か焼し、結果として 17 質量 % BaO 含有量を有する Ba / セリア材料を得た。

#### 【0177】

第一に、 $1 \text{ g/in}^3$  の高多孔質 - アルミナを、アンミン安定化ヒドロキソ Pt IV 錯体 (amine stabilized hydroxo Pt IV complex) として白金を有する白金溶液で含浸し、 $\text{Pt } 130 \text{ g/ft}^3$  の乾燥含有量を得て、第二に硝酸パラジウムの水溶液で含浸し、 $15 \text{ g/ft}^3$  の最終乾燥 Pd 含有量を得た。結果として得られた 55 ~ 65 % の固形分を有する粉末を、水中に分散させた。

10

#### 【0178】

Rh 含浸のため、セリア ( $0.4 \text{ g/in}^3 \text{ CeO}_2$ ) を水中へ、43 % の固形分で分散させた。硝酸 Rh の溶液を前記セリアスラリーに添加し、 $5 \text{ g/ft}^3$  の最終乾燥 Rh 含有量を得た。

#### 【0179】

セリア ( $1.995 \text{ g/in}^3 \text{ CeO}_2$ ) 上の Ba 含浸のため、セリアを、酢酸バリウムの水溶液 ( $0.105 \text{ g/in}^3$ ) で含浸した。結果として得られた粉末を、590 で 2 時間か焼し、結果として 5 質量 % BaO 含有量を有する Ba / セリア材料を得た。

20

#### 【0180】

結果として得られた Rh / セリアスラリー、Ba / セリア材料 ( $2.1 \text{ g/in}^3$ )、Ba / Ce / Al 材料 ( $1.7 \text{ g/in}^3$ )、酢酸マグネシウム四水和物 ( $0.3 \text{ g/in}^3 \text{ MgO}$ )、及び酢酸ジルコニウム ( $0.05 \text{ g/in}^3 \text{ ZrO}_2$ ) を、Pt / Pd / アルミナスラリーに添加した。次くスラリーを、 $9 \mu\text{m}$  の粒径 D90 に粉砕した。最終的なスラリーを、金属フロースルー基板上にコーティングした。コーティングした基板を、110 空気乾燥し、空気中 590 でか焼した。

#### 【0181】

[ 比較例 1 : SCR コーティング入口 (100 %) + Pd コーティング出口 (50 %) を有する壁流フィルター ]

30

銅チャバサイト (CuCHA) を水中に懸濁し、30 ~ 40 % の固形分を有するスラリーを作製し、その後このスラリーを  $D_{90} = 6 \mu\text{m}$  に粉砕した。これとは別に、5 %  $\text{SiO}_2$  でドープし、予備粉砕した  $\text{Al}_2\text{O}_3$  粉末 (90 % の前記粒子は 5 マイクロメートル未満 :  $D_{90} = 5 \mu\text{m}$ ) を水中に懸濁し、25 % の固形分にした。硝酸パラジウム溶液 (水中 20 質量 %) を、前記懸濁液中に攪拌しながら滴加し、5 質量 % シリカでドープしたアルミナ粉末上に 0.95 質量 % の Pd の負荷を供給した。

#### 【0182】

$20 \mu\text{m}$  の平均細孔径で、63 % の多孔度を有し、2.47 リットルの体積を有する炭化ケイ素製の壁流フィルターハニカム基板を準備した。第一に、Pd スラリーを前記フィルターの出口側からコーティングした。この趣旨で、前記基板を、前記スラリー中へ前記出口側を下にして浸漬し、前記フィルター基板の 50 % 被覆率に達するスラリーレベルの上に前記入口側を保持した。前記基板をスラリーから引き出し、空気流を前記チャネル単位の入口側から、ウォッシュコートスラリーが前記出口側から出なくなるまで吹く付けた。その後、前記コーティングした試料を 110 で 2 時間乾燥し、450 で 1 時間か焼し、結果として、前記フィルターの出口側の 50 % を、5 %  $\text{SiO}_2$  でドープした  $0.15 \text{ g/in}^3$  ( $\text{g/(2.54 cm)}^3$ ) の  $\text{Al}_2\text{O}_3$  粉末上の  $5 \text{ g/ft}^3$  ( $\text{g/(30.48 cm)}^3$ ) Pd でコーティングした。

40

#### 【0183】

次いで、最後に、前記基板の入口側の全長を浸漬し、前記出口側を前記スラリーレベル

50

の上 1 / 4 インチ ( 2 . 5 4 c m ) に保持することによって、前記 C u - C H A スラリーを前記入口側から前記フィルターの全長に沿ってコーティングした。過剰のスラリーを前記出口側から吹き付けて除去した後、前記コーティングした試料を 1 1 0 で 2 時間乾燥し、4 5 0 で 1 時間か焼し、結果として、前記フィルターの入口側の以下に示したパーセントを、 $1 . 1 \text{ g / i n }^3 ( \text{ g / ( 2 . 5 4 c m ) }^3 )$  の C u C H A でコーティングした。

#### 【 0 1 8 4 】

[ 比較例 3 : L N T コーティングした入口 ( 1 0 0 % ) を有する壁流フィルター ]

第一に、1 5 質量 % M g O、及び 1 0 質量 % セリア ( 基板上乾燥含有量  $0 . 8 5 \text{ g / f t }^3$  ) でドーブした高多孔質アルミナを、アンミン安定化ヒドロキソ P t I V 錯体として白金を有する白金溶液で含浸し、 $5 0 \text{ g / f t }^3$  の乾燥 P t 含有量を得て、第二に硝酸パラジウムの水溶液で含浸し、 $5 \text{ g / f t }^3$  の最終乾燥 P d 含有量を得た。結果として得られた 6 0 ~ 6 5 % の固形分を有する粉末を、水中に分散させた。

10

#### 【 0 1 8 5 】

R h 含浸のため、2 0 質量 % のジルコニア (  $0 . 2 \text{ g / i n }^3$  ) でドーブした高多孔質アルミナを、硝酸 R h の溶液 ( 元素として算出された  $5 \text{ g / f t }^3$  R h ) で含浸した。結果として得られた粉末を、5 9 0 で 2 時間か焼し、結果として  $5 \text{ g / f t }^3$  R h 含有量を有する R h / Z r / アルミナ材料を得た。

#### 【 0 1 8 6 】

結果として得られた R h / Z r / アルミナ材料、セリア (  $0 . 4 5 \text{ g / i n }^3$  )、酢酸バリウム (  $0 . 1 8 5 \text{ g / i n }^3$  B a O )、及び酢酸ジルコニア (  $0 . 0 3 \text{ g / i n }^3$  Z r O <sub>2</sub> ) を、前記 P t / P d / M g / C e / A l アルミナスラリーに添加した。次くスラリーを、9  $\mu$  m の粒径 d 9 0 に粉碎した。

20

#### 【 0 1 8 7 】

2 0  $\mu$  m の平均細孔径で、6 3 % の多孔度を有し、2 . 4 7 リットルの体積を有する炭化ケイ素製の壁流フィルターハニカム基板を準備した。

#### 【 0 1 8 8 】

その後、前記基板の全長を、入口側から前記スラリー中に浸漬することによって、前記最終スラリーを入口側から前記フィルターの全長に沿ってコーティングした。前記出口側は、前記スラリーレベルの上 1 / 4 インチ ( 2 . 5 4 c m ) に保持した。過剰のスラリーを出口側から吹き付けて除去した後、前記コーティングした試料を 1 1 0 で 2 時間乾燥し、4 5 0 で 1 時間か焼し、結果として、前記フィルターの入口側の以下に示したパーセントを、 $1 . 7 \text{ g / i n }^3 ( \text{ g / ( 2 . 5 4 c m ) }^3 )$  の L N T コーティングでコーティングした。

30

#### 【 0 1 8 9 】

[ 比較例 4 : L N T コーティングした入口 ( 5 0 % ) を有する壁流フィルター ]

比較例 3 に記載した通り、L N T スラリーを調製した。

#### 【 0 1 9 0 】

2 0  $\mu$  m の平均細孔径で、6 3 % の多孔度を有し、2 . 4 7 リットルの体積を有する炭化ケイ素製の壁流フィルターハニカム基板を準備した。

40

#### 【 0 1 9 1 】

前記基板の入口側を下にして前記スラリー中に浸漬することによって、前記最終スラリーを、前記入口側から前記フィルターの長さの 5 0 % に沿ってコーティングした。前記出口側は、前記フィルター基板の 5 0 % 被覆率に達するスラリーレベルの上に保持した。過剰のスラリーを出口側から吹き付けて除去した後、前記コーティングした試料を 1 1 0 で 2 時間乾燥し、4 5 0 で 1 時間か焼し、結果として、前記フィルターの入口側の以下に示したパーセントを、 $1 . 7 \text{ g / i n }^3 ( \text{ g / ( 2 . 5 4 c m ) }^3 )$  の L N T コーティングでコーティングした。

#### 【 0 1 9 2 】

[ 実施例 1 : L N T コーティングした入口 ( 5 0 % ) + S C R コーティングした出口 ( 5

50

0 %) を有する壁流フィルター]

比較例 3 に記載した通り、LNT スラリーを調製した。

【0193】

前記出口のコーティング用の SCR スラリーを調製するため、銅チャバサイト (CuCHA) を水中に懸濁し、30 ~ 40 % の固形分を有するスラリーを作製した。このスラリーを  $D_{90} = 6 \mu\text{m}$  に粉碎した。

【0194】

20  $\mu\text{m}$  の平均細孔径で、63 % の多孔度を有し、2.47 リットルの体積を有する炭化ケイ素製の壁流フィルターハニカム基板を準備した。

【0195】

第一に、前記基板の入口側を下にして前記スラリー中に浸漬することによって、前記最終 LNT スラリーを、前記入口側から前記フィルターの長さの 50 % に沿ってコーティングした。前記出口側は、前記フィルター基板の 50 % 被覆率に達するスラリーレベルの上に保持した。過剰のスラリーを出口側から吹き付けて除去した後、前記コーティングした試料を 110 で 2 時間乾燥し、450 で 1 時間か焼し、結果として、前記フィルターの入口側の以下に示したパーセントを、 $1.7 \text{ g/in}^3$  ( $\text{g}/(2.54 \text{ cm})^3$ ) の LNT コーティングでコーティングした。

【0196】

次いで、最後に、前記基板の出口側を下にして前記スラリー中に浸漬することによって、前記 Cu-CHA スラリーを、前記出口側から前記フィルターの長さの 50 % に沿ってコーティングした。前記入口側は、前記フィルター基板の 50 % 被覆率に達するスラリーレベルの上に保持した。過剰のスラリーを入口側から吹き付けて除去した後、前記コーティングした試料を 110 で 2 時間乾燥し、450 で 1 時間か焼し、結果として、前記フィルターの入口側の以下に示したパーセントを、 $1.7 \text{ g/in}^3$  ( $\text{g}/(2.54 \text{ cm})^3$ ) の CuCHA でコーティングした。

【0197】

【表 1】

表 1：比較例 1 ~ 4、及び実施例 1 からの触媒化煤フィルター試料の概要

試料	(コーティング長) 入口コーティング 材料	(コーティング長) 出口コーティング 材料	総 PGM 負荷量 [ $\text{g}/\text{ft}^3$ ] (Pt/Pd/Rh)
比較例 1	(100%) CuCHA	(100%) Pd-のみ	2.5 (0/2.5/0)
比較例 3	(100%) LNT	-	60 (50/5/5)
比較例 4	(50%) LNT	-	30 (25/2.5/2.5)
実施例 1	(50%) LNT	(50%) CuCHA	30 (25/2.5/2.5)

【0198】

[ 実施例 2：軽量自動車等の国際調和 (WLTC) 試験サイクル (World Light-Duty Harmonized (WLTC) Test Cycle) - DeNO<sub>x</sub>、CO、及び HC 性能評価 ]

前記コーティングしたフィルター基板を、標準 WLT C 手順により、エンジン試験セル上で、参考例 1 に従って調製した、原位置でアンモニアを発生させるための上流 LNT を有するパッシブ SCR システムとして、評価した。前記試験セルは、Euro 6 2 L エンジンを備えていた。WLTC サイクルの最初の 1000 s における平均温度は 240

であった。試験の前に、前記試料を、オープン中で、10%水蒸気を有する空気流下、800 で16時間時効した（age）。貯蔵された $\text{NO}_x$ から前記LNTを再生するため、ラムダ0.95でのサイクル中、7箇所の異なる位置で、前記WLTCの期間、リッチエンジンモード（rich engine mode）を適用した。前記LNTを通り、前記下流のコーティングしたフィルター基板を通る前記 $\text{NO}_x$ 、CO、及びHCの変換、並びに前記触媒化煤フィルターを通過した後の、前記排出ガス中の最大アンモニア排出を測定した。結果を表2に示す。

【0199】

【表2】

表2： $\text{NO}_x$ 、CO、及び炭化水素（HC）の変換、並びに $\text{NH}_3$ に関するWLTC試験の結果

試料	$\text{NO}_x$ 変換率 [%]	CO 変換率 [%]	HC 変換率 [%]	最大 $\text{NH}_3$ 排出 [ppm]
参考例 1	55	94	79	—
比較例 1	64	94	79	12
比較例 3	65	98	82	1180
比較例 4	62	97	80	1180
実施例 1	68	98	82	50

【0200】

表2から理解されるように、実施例1に従う本発明の触媒化煤フィルターによって得られた結果は、 $\text{NO}_x$ 変換における最良の結果であり、CO及びHC変換に関して、比較例3と互角であるのみである。CO及びHC変換の突出した結果は、実施例1に従う本発明の触媒化煤フィルターが比較例3と比較して白金族金属において、半分（！）の負荷量しか含有していないという事実を考慮すると、全く予想していないことである。したがって、これらの結果によって実証したように、全く驚くべきことに、本発明によって、特に、前記触媒化煤フィルターの上流に位置するLNTを使用するパッシブSCR試験条件下で、 $\text{NO}_x$ の高い変換率を可能にするだけでなく、全く予想していないことに、低減された白金族金属の負荷量のみが、その上に存在している事実にもかかわらず、CO及び炭化水素の両方の高い変換も可能にする、触媒化煤フィルターが提供され得ることが見出されている。さらに驚くべきことに、実施例1の本発明の触媒試料における前記アンモニアスリップ（ammonia slip）は、比較例1と比較して場合でさえ、SCR触媒の半分の量のみが、その中に含有されている事実にもかかわらず、極めて低い。最後に、選択した試料における $\text{H}_2\text{S}$ 排出の分析は、排出ガス中に高い $\text{H}_2\text{S}$ レベルを示す比較例3と比較して、本発明の実施例1の試料は、効果的に $\text{H}_2\text{S}$ 排出を減少することができることが明らかにされている。

【0201】

その結果、上記の結果を考慮し、本出願に定義した特定の設計の触媒化煤フィルターは、 $\text{NO}_x$ 、CO、及び炭化水素である主排出ガス汚染物質の変換に関してだけでなく、さらに、その処理後の排出ガス中に含有される過剰のアンモニアに関しても、及びその中の $\text{H}_2\text{S}$ の処理に関しても、非常に効果的な触媒化煤フィルターを提供する。したがって、驚くべきことに、本出願に定義した本発明の触媒は、排出ガスの処理において、その中に

含有されている前記成分に関してだけでなく、処理プロセス中の原位置で発生するアンモニアに関しても、予想外に高い能力を示し、環境へのスリッピング (slipping) を効果的に防止し得る。

## 【国際調査報告】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No

PCT/EP2016/063750

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

INV. B01D53/94 B01J37/02 B01J37/12 B01J23/58 B01J29/76  
 F01N3/28 F01N3/035 F01N3/20 F01N3/08

ADD.

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

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

B01D B01J F01N

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

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

EPO-Internal, WPI Data

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 2 650 496 A2 (JOHNSON MATTHEY PLC [GB]) 16 October 2013 (2013-10-16) paragraphs [0014], [0018] - [0030], [0038], [0041] figure 2 claims 1,7,11,12,14 -----	1-9, 12-16
X Y	DE 10 2005 005663 A1 (DAIMLER CHRYSLER AG [DE]) 17 August 2006 (2006-08-17) paragraphs [0010] - [0016], [0028] - [0030], [0034], [0035] figures 2,4 claims 1,2,4,5 -----	1-5,7-9, 16 10,11
Y	W0 2014/080202 A1 (JOHNSON MATTHEY PLC [GB]) 30 May 2014 (2014-05-30) page 30, line 31 - page 32, line 9 ----- -/-	10,11

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☒ See patent family annex.

## \* Special categories of cited documents :

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

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

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

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

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

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

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

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

\*&amp;\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

31 August 2016

Date of mailing of the international search report

07/09/2016

Name and mailing address of the ISA/

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

Authorized officer

Hackenberg, Stefan

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No

PCT/EP2016/063750

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X,P	W0 2016/079507 A1 (JOHNSON MATTHEY PLC [GB]) 26 May 2016 (2016-05-26) claims 1,4,5,8,53,54,99,101,10256 -----	1-9,16
A	EP 1 660 217 A1 (UMICORE AG & CO KG [DE]) 31 May 2006 (2006-05-31) paragraphs [0 25], [0026] -----	1-16
A	US 7 062 904 B1 (HU HAORAN [US] ET AL) 20 June 2006 (2006-06-20) the whole document -----	1-16

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2016/063750

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 2650496	A2	16-10-2013	BR P10915553 A2 26-01-2016
			CN 102159807 A 17-08-2011
			EP 2315924 A2 04-05-2011
			EP 2650496 A2 16-10-2013
			GB 2473999 A 30-03-2011
			JP 5607042 B2 15-10-2014
			JP 2011527403 A 27-10-2011
			JP 2015044191 A 12-03-2015
			KR 20110041502 A 21-04-2011
			RU 2011104476 A 20-08-2012
			US 2011179777 A1 28-07-2011
			US 2014241950 A1 28-08-2014
			WO 2010004320 A2 14-01-2010
-----			
DE 102005005663	A1	17-08-2006	NONE
-----			
WO 2014080202	A1	30-05-2014	CN 104797335 A 22-07-2015
			CN 104797336 A 22-07-2015
			DE 102013223839 A1 22-05-2014
			DE 102013223845 A1 22-05-2014
			EP 2922630 A1 30-09-2015
			EP 2922631 A1 30-09-2015
			GB 2508301 A 28-05-2014
			GB 2510040 A 23-07-2014
			GB 2519689 A 29-04-2015
			JP 2015536236 A 21-12-2015
			JP 2016503344 A 04-02-2016
			KR 20150086321 A 27-07-2015
			KR 20150088822 A 03-08-2015
			US 2014140911 A1 22-05-2014
			US 2014147359 A1 29-05-2014
			US 2015224478 A1 13-08-2015
			US 2015298059 A1 22-10-2015
			WO 2014080200 A1 30-05-2014
			WO 2014080202 A1 30-05-2014
-----			
WO 2016079507	A1	26-05-2016	DE 102015119913 A1 19-05-2016
			GB 2535274 A 17-08-2016
			US 2016136626 A1 19-05-2016
			WO 2016079507 A1 26-05-2016
-----			
EP 1660217	A1	31-05-2006	AT 449639 T 15-12-2009
			BR P10413367 A 17-10-2006
			CA 2534806 A1 17-02-2005
			CN 1863586 A 15-11-2006
			DE 10335785 A1 10-03-2005
			EP 1660217 A1 31-05-2006
			JP 4651039 B2 16-03-2011
			JP 2007501107 A 25-01-2007
			KR 20060069445 A 21-06-2006
			US 2007110650 A1 17-05-2007
			WO 2005014146 A1 17-02-2005
-----			
US 7062904	B1	20-06-2006	NONE
-----			



## フロントページの続き

(51)Int.Cl.	F I		テーマコード (参考)	
<b>F 0 1 N 3/08 (2006.01)</b>	B 0 1 D	53/86	2 4 5	
<b>F 0 1 N 3/035 (2006.01)</b>	B 0 1 D	53/94	2 4 5	
<b>F 0 1 N 3/022 (2006.01)</b>	B 0 1 D	53/94	2 2 3	
<b>F 0 1 N 3/28 (2006.01)</b>	B 0 1 D	53/86	2 8 0	
<b>F 0 1 N 3/10 (2006.01)</b>	B 0 1 D	53/94	2 8 0	
	F 0 1 N	3/08		B
	F 0 1 N	3/08		A
	F 0 1 N	3/035		A
	F 0 1 N	3/022		C
	F 0 1 N	3/28	3 0 1 C	
	F 0 1 N	3/28	3 0 1 P	
	F 0 1 N	3/10		A

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

(72)発明者 グルーベルト, ゲルト

ドイツ、3 0 1 6 1 ハノーファー、アウフ デム レルヒエンベルグ 1 4 ベー

(72)発明者 ノイバオアー, トルシュテン

ドイツ、3 0 8 5 3 ランゲンハーゲン、ロベルト - コッホ - シュトラッセ 2 2 アー

(72)発明者 ブンケ, アルフレート

ドイツ、3 8 1 7 9 ヴァレ、イム ドルフェ 3 6 ツェー

F ターム(参考) 3G091 AA02 AB05 AB06 AB13 BA01 BA14 BA19 CA17 GA06 GA18

GB03W GB06W GB07W GB09W GB17X

3G190 AA02 BA17 CA03 CA13 CA14 CB15 CB16 CB25 CB26

4D148 AA06 AA13 AA18 AB01 AB02 AB08 BA01X BA03X BA06Y BA07Y

BA08X BA10Y BA11Y BA15X BA18X BA19X BA23Y BA24Y BA25Y BA30X

BA31X BA33X BA35X BA36Y BA37Y BA38Y BA41X BB02 BB14 BB17

CC32 CC47

4G169 AA03 AA08 BA01B BA07A BA07B BA13B BB06B BC08A BC13B BC31B

BC43B BC71A BC71B BC72A BC72B BC75A BC75B CA03 CA07 CA08

CA13 CA14 CA15 CA18 EA27 EB18X EB18Y EC17Y EC28 EC29

FA02 FA03 FB14 FB15 FB30 ZA14B ZF05B