【公報種別】特許法第１７条の２の規定による補正の掲載
【部門区分】第５部門第１区分
【発行日】平成17年12月22日(2005.12.22)

【公表番号】特表2004-523686(P2004-523686A)
【公表日】平成16年8月5日(2004.8.5)
【年通号数】公開・登録公報2004-030
【出願番号】特願2002-559154(P2002-559154)
【国際特許分類第７版】
ＦＯ１Ｎ　3/18
ＢＯ１Ｄ　53/86
ＢＯ１Ｄ　53/94
ＢＯ１Ｊ　37/02
ＦＯ１Ｎ　3/10
ＦＯ１Ｎ　3/22
【ＦＩ】
ＦＯ１Ｎ　3/18　Ｅ
ＢＯ１Ｊ　37/02　３０１Ｄ
ＢＯ１Ｊ　37/02　３０１Ｌ
ＦＯ１Ｎ　3/10　Ａ
ＦＯ１Ｎ　3/22　３２１Ｂ
ＢＯ１Ｄ　53/36　１０４Ａ
ＢＯ１Ｄ　53/36　ＺＡＢＫ

【手続補正書】
【提出日】平成17年1月18日(2005.1.18)
【手続補正１】
【補正対象書類名】特許請求の範囲
【補正対象項目名】全文
【補正方法】変更
【補正の内容】
【特許請求の範囲】
【請求項１】
気体流れからNO_xおよびSO_x汚染物を除去する方法であって、
（１）下流セクションおよび上流セクション：即ち
（Ａ）（ａ）１番目の支持体
（ｂ）１番目の白金成分、および
（ｃ）NO_x吸着成分、
を含んで成る下流セクション、および
（Ｂ）（ａ）２番目の支持体
（ｂ）２番目の白金成分、および
（ｃ）Ｍｇ、Ｓｒおよび<u>Ｂａ</u>の酸化物から成る群から選択されるSO_x吸着成分、
を含んで成る上流セクション、
を含んで成る触媒複合体を準備し、そして
（２）吸着期間中には、NO_xおよびSO_xを含んで成る希薄気体流れを前記上流セクションの中に吸着温度範囲内で通し、それによって、前記SO_x汚染物の少なくともいくらかを吸着させることでSO_xが減少した気体流れを前記上流セクションから出させて前記下流セクションに入らせ、この下流セクションが前記気体流れに入っている前記NO_xを吸着して減少させることで、NO_xが減少した気体流れを前記下流セクションから出させ、
（３）SO_x脱離期間中には、前記希薄気体流れを濃厚気体流れに変化させかつ前記気体

流れの温度を上昇させて脱離温度範囲内にし、それによって、前記上流セクション内で前記SO_x汚染物を脱離させかつそれの少なくともいくらかを減少させることで、SO_xが豊富な気体流れを前記上流セクションから出させて前記下流セクションに入らせるが、前記脱離温度範囲を前記SO_x汚染物が前記下流セクション内に実質的に吸着されることがないように充分高くし、そして

（４）NO_x脱離期間中に前記希薄気体流れを濃厚気体流れに変化させて、それにより前記NO_x汚染物の少なくともいくらかを脱離し、還元を受けさせる段階を含んで成る方法。

【請求項２】

（３）における脱離温度範囲を約５００℃より高くする請求項１記載の方法。

【請求項３】

下流セクションおよび上流セクションを含んで成る触媒複合体を生じさせる方法であって、

（ａ）水溶性もしくは分散性の１番目の白金成分と高い表面積を有する微細な耐火性酸化物であるNO_x吸着成分と水性液を一緒にすることで１番目の溶液もしくは分散液を生じさせるが、それらをそれらが前記液の実質的に全部を吸収するに充分なほど乾燥させておき、

（ｂ）前記１番目の溶液もしくは分散液の１番目の層を１番目の支持体の上に生じさせ、

（ｃ）前記１番目の支持体の上に位置する前記１番目の層に入っている前記１番目の白金成分を水に不溶な形態に変化させることで前記触媒複合体の下流セクションを生じさせ、

（ｄ）水溶性もしくは分散性の２番目の白金成分とＭｇ、Ｓｒおよびバリウムの酸化物から成る群から選択されるSO_x吸着成分と水性液を一緒にすることで２番目の溶液もしくは分散液を生じさせるが、それらをそれらが前記液の実質的に全部を吸収するに充分なほど乾燥させておき、

（ｅ）前記２番目の溶液もしくは分散液の２番目の層を２番目の支持体の上に生じさせ、そして

（ｆ）前記２番目の支持体の上に位置する前記２番目の層に入っている前記２番目の白金成分を水に不溶な形態に変化させることで前記触媒複合体の上流セクションを生じさせる、

段階を含んで成る方法。

【請求項４】

前記１番目および２番目の支持体がシリカ、アルミナおよびチタニア化合物から成る群から独立して選択される化合物である請求項１又は３記載の方法。

【請求項５】

前記下流セクション内の前記NO_x吸着成分をアルカリ土類金属成分、アルカリ金属成分および希土類金属成分から成る群から選択する請求項１又は３記載の方法。

【請求項６】

前記NO_x吸着成分をカルシウム、ストロンチウムおよびバリウムの酸化物、カリウム、ナトリウム、リチウムおよびセシウムの酸化物そしてセリウム、ランタン、プラセオジムおよびネオジムの酸化物から成る群から選択する請求項５記載の方法。

【請求項７】

前記下流セクションが更に白金以外の１番目の白金族金属成分も含んで成る請求項１又は３記載の方法。

【請求項８】

前記上流セクションが更に白金以外の２番目の白金族金属成分も含んで成る請求項１又は３記載の方法。

【請求項９】

前記SO_x吸着成分がＭｇＯであり、２番目の白金族金属成分がＰｔ／Ｒｈ又はＰｔ／Ｐｄ／Ｒｈである請求項１又は３記載の方法。

【請求項１０】

前記１番目の白金成分を変化させる段階が前記１番目の層に焼成を受けさせることを含んで成りそして前記２番目の白金成分を変化させる段階が前記２番目の層に焼成を受けさせることを含んで成る請求項３記載の方法。
【請求項１１】
（ｉ）前記水に不溶な１番目の白金成分を１番目のコートスラリーの中で細かく砕くことで前記１番目のスラリーの１番目の層を生じさせそして前記１番目のスラリーを乾燥させ、そして
（ｉｉ）前記水に不溶な２番目の白金成分を２番目のコートスラリーの中で細かく砕くことで前記２番目のスラリーの２番目の層を前記１番目の層の上に生じさせそして前記２番目のスラリーを乾燥させる、
段階も更に含んで成る請求項３記載の方法。
【請求項１２】
前記１番目および２番目のスラリーの中の少なくとも一方が酢酸または硝酸を含み、前記１番目の白金成分および２番目の白金成分が硝酸白金である請求項３記載の方法。
【請求項１３】
下流セクションと上流セクションを含んで成る触媒複合体であって、
（Ａ）前記下流セクションが
（ａ）１番目の支持体
（ｂ）１番目の白金成分、および
（ｃ）NO_x吸着成分、
を含んで成り、そして
（Ｂ）前記上流セクションが
（ａ）２番目の支持体
（ｂ）２番目の白金成分、および
（ｃ）Ｍｇ、ＳｒおよびＢａの酸化物から成る群から選択されるSO_x吸着成分、
を含んで成る、
触媒複合体。
【手続補正２】
【補正対象書類名】明細書
【補正対象項目名】００９４
【補正方法】変更
【補正の内容】
【００９４】
本発明を本発明の具体的な態様に関して詳細に記述してきたが、そのような態様は説明的であり、本発明の範囲を添付請求の範囲で限定する。
本発明の好適な実施の態様は下記のとおりである。
１．　気体流れからNO_xおよびSO_x汚染物を除去する方法であって、
（１）下流セクションおよび上流セクション：即ち
（Ａ）（ａ）１番目の支持体
（ｂ）１番目の白金成分、および
（ｃ）NO_x吸着成分、
を含んで成る下流セクション、および
（Ｂ）（ａ）２番目の支持体
（ｂ）２番目の白金成分、および
（ｃ）Ｍｇ、Ｚｎ、Ｍｎ、ＦｅおよびＮｉの酸化物から成る群から選択されるSO_x吸着成分、
を含んで成る上流セクション、
を含んで成る触媒複合体を準備し、そして
（２）吸着期間中には、NO_xおよびSO_xを含んで成る希薄気体流れを前記上流セクションの中に吸着温度範囲内で通し、それによって、前記SO_x汚染物の少なくともいくらか

を吸着させることでSO_xが減少した気体流れを前記上流セクションから出させて前記下流セクションに入らせ、この下流セクションが前記気体流れに入っている前記NO_xを吸着して減少させることで、NO_xが減少した気体流れを前記下流セクションから出させ、そして

（３）SO_x脱離期間中には、前記希薄気体流れを濃厚気体流れに変化させかつ前記気体流れの温度を上昇させて脱離温度範囲内にし、それによって、前記上流セクション内で前記SO_x汚染物を脱離させかつそれの少なくともいくらかを減少させることで、SO_xが豊富な気体流れを前記上流セクションから出させて前記下流セクションに入らせるが、前記脱離温度範囲を前記SO_x汚染物が前記下流セクション内に実質的に吸着されることがないに充分なほど高くする、

段階を含んで成る方法。

２．　前記１番目および２番目の支持体がシリカ、アルミナおよびチタニア化合物から成る群から独立して選択される化合物である上記１記載の方法。

３．　前記１番目および２番目の支持体がアルミナ、シリカ、シリカ－アルミナ、アルミノシリケート、アルミナ－ジルコニア、アルミナ－クロミアおよびアルミナ－セリアから成る群から独立して選択される化合物である上記１記載の方法。

４．　前記１番目および２番目の支持体が独立してチタニアまたはアルミナである上記１記載の方法。

５．　前記下流セクション内の前記NO_x吸着成分をアルカリ土類金属成分、アルカリ金属成分および希土類金属成分から成る群から選択する上記１記載の方法。

６．　前記NO_x吸着成分をカルシウム、ストロンチウムおよびバリウムの酸化物、カリウム、ナトリウム、リチウムおよびセシウムの酸化物そしてセリウム、ランタン、プラセオジムおよびネオジムの酸化物から成る群から選択する上記５記載の方法。

７．　前記NO_x吸着成分をカルシウム、ストロンチウムおよびバリウムの酸化物から成る群から選択する上記５記載の方法。

８．　前記NO_x吸着成分をカリウム、ナトリウム、リチウムおよびセシウムの酸化物から成る群から選択する上記５記載の方法。

９．　前記NO_x吸着成分をセリウム、ランタン、プラセオジムおよびネオジムの酸化物から成る群から選択する上記５記載の方法。

１０．　前記NO_x吸着成分がランタンおよびネオジムから成る群から選択される少なくとも１種の希土類金属成分と少なくとも１種のアルカリ土類金属成分である上記５記載の方法。

１１．　前記下流セクションが更に白金以外の１番目の白金族金属成分も含んで成る上記１記載の方法。

１２．　前記１番目の白金族金属成分をパラジウム、ロジウム、ルテニウム、イリジウムおよびこれらの混合物から成る群から選択する上記１１記載の方法。

１３．　前記１番目の白金族金属成分がパラジウムである上記１２記載の方法。

１４．　前記上流セクションが更に白金以外の２番目の白金族金属成分も含んで成る上記１記載の方法。

１５．　前記２番目の白金族金属成分をパラジウム、ロジウム、ルテニウム、イリジウムおよびこれらの混合物から成る群から選択する上記１４記載の方法。

１６．　前記２番目の白金族金属成分がパラジウムである上記１５記載の方法。

１７．　前記下流セクションが前記１番目の白金成分を少なくとも約１ｇ／立方フィート含んで成る上記１記載の方法。

１８．　前記上流セクションが前記２番目の白金成分を少なくとも約１ｇ／立方フィート含んで成る上記１記載の方法。

１９．　前記SO_x吸着成分がＭｇＯである上記１記載の方法。

２０．　（３）における脱離温度範囲を約５００℃より高くする上記１記載の方法。

２１．　（３）における脱離温度範囲を約６００℃より高くする上記２０記載の方法。

２２．　（３）における脱離温度範囲を約６００℃から約８００℃にする上記２１記載の

方法。
２３．　（３）における脱離温度範囲を約６２５℃から約７５０℃にする上記２２記載の方法。
２４．　NO_x脱離期間中に前記希薄気体流れを濃厚気体流れに変化させかつ前記気体流れの温度をこれが脱離温度範囲内になるように上昇させて前記NO_x汚染物の少なくともいくらかに還元を受けさせかつ前記下流セクションから脱離させることでNO_xが豊富な気体流れを前記下流セクションから出させる段階も更に含んで成る上記１記載の方法。
２５．　前記下流セクションが更に下流の基質も含んで成る上記１記載の方法。
２６．　前記上流セクションが更に上流の基質も含んで成る上記１記載の方法。
２７．　下流セクションおよび上流セクションを含んで成る触媒複合体を生じさせる方法であって、
（ａ）水溶性もしくは分散性の１番目の白金成分と高い表面積を有する微細な耐火性酸化物であるNO_x吸着成分と水性液を一緒にすることで１番目の溶液もしくは分散液を生じさせるが、それらをそれらが前記液の実質的に全部を吸収するに充分なほど乾燥させておき、
（ｂ）前記１番目の溶液もしくは分散液の１番目の層を１番目の支持体の上に生じさせ、
（ｃ）前記１番目の支持体の上に位置する前記１番目の層に入っている前記１番目の白金成分を水に不溶な形態に変化させることで前記触媒複合体の下流セクションを生じさせ、
（ｄ）水溶性もしくは分散性の２番目の白金成分とＭｇ、Ｚｎ、Ｍｎ、ＦｅおよびＮｉの酸化物から成る群から選択されるSO_x吸着成分と水性液を一緒にすることで２番目の溶液もしくは分散液を生じさせるが、それらをそれらが前記液の実質的に全部を吸収するに充分なほど乾燥させておき、
（ｅ）前記２番目の溶液もしくは分散液の２番目の層を２番目の支持体の上に生じさせ、そして
（ｆ）前記２番目の支持体の上に位置する前記２番目の層に入っている前記２番目の白金成分を水に不溶な形態に変化させることで前記触媒複合体の上流セクションを生じさせる、
段階を含んで成る方法。
２８．　前記１番目および２番目の支持体がシリカ、アルミナおよびチタニア化合物から成る群から独立して選択される化合物である上記２７記載の方法。
２９．　前記１番目および２番目の支持体が独立してチタニアまたはアルミナである上記２８記載の方法。
３０．　前記下流セクション内の前記NO_x吸着成分をアルカリ土類金属成分、アルカリ金属成分および希土類金属成分から成る群から選択する上記２７記載の方法。
３１．　前記NO_x吸着成分をカルシウム、ストロンチウムおよびバリウムの酸化物、カリウム、ナトリウム、リチウムおよびセシウムの酸化物そしてセリウム、ランタン、プラセオジムおよびネオジムの酸化物から成る群から選択する上記３０記載の方法。
３２．　前記下流セクションが更に白金以外の１番目の白金族金属成分も含んで成る上記２７記載の方法。
３３．　前記１番目の白金族金属成分がパラジウムである上記３２記載の方法。
３４．　前記上流セクションが更に白金以外の２番目の白金族金属成分も含んで成る上記２７記載の方法。
３５．　前記２番目の白金族金属成分がパラジウムである上記３４記載の方法。
３６．　前記下流セクションが前記１番目の白金成分を少なくとも約１ｇ／立方フィート含んで成る上記２７記載の方法。
３７．　前記上流セクションが前記２番目の白金成分を少なくとも約１ｇ／立方フィート含んで成る上記２７記載の方法。
３８．　前記SO_x吸着成分がＭｇＯである上記２７記載の方法。
３９．　前記１番目の白金成分を変化させる段階が前記１番目の層に焼成を受けさせることを含んで成りそして前記２番目の白金成分を変化させる段階が前記２番目の層に焼成を

受けさせることを含んで成る上記２７記載の方法。
４０．　（ｉ）前記水に不溶な１番目の白金成分を１番目のコートスラリーの中で細かく砕くことで前記１番目のスラリーの１番目の層を生じさせそして前記１番目のスラリーを乾燥させ、そして
（ｉｉ）前記水に不溶な２番目の白金成分を２番目のコートスラリーの中で細かく砕くことで前記２番目のスラリーの２番目の層を前記１番目の層の上に生じさせそして前記２番目のスラリーを乾燥させる、
段階も更に含んで成る上記２７記載の方法。
４１．　前記細かく砕くことで固体の大部分が約１０ミクロン未満の粒子サイズを示すスラリーを生じさせる上記２７記載の方法。
４２．　前記１番目および２番目のスラリーの中の少なくとも一方に酢酸または硝酸を入れる上記２７記載の方法。
４３．　前記１番目の白金成分および２番目の白金成分が硝酸白金である上記２７記載の方法。
４４．　前記１番目の層および２番目の層をハニカム型基質の上に生じさせる段階も更に含んで成る上記２７記載の方法。
４５．　下流セクションと上流セクションを含んで成る触媒複合体であって、
（Ａ）前記下流セクションが
（ａ）１番目の支持体
（ｂ）１番目の白金成分、および
（ｃ）NO_x吸着成分、
を含んで成り、そして
（Ｂ）前記上流セクションが
（ａ）２番目の支持体
（ｂ）２番目の白金成分、および
（ｃ）Ｍｇ、Ｚｎ、Ｍｎ、ＦｅおよびＮｉの酸化物から成る群から選択されるSO_x吸着成分、
を含んで成る、
触媒複合体。