

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第6010053号
(P6010053)

(45) 発行日 平成28年10月19日(2016.10.19)

(24) 登録日 平成28年9月23日(2016.9.23)

(51) Int.Cl.

F 1

B01J 23/89	(2006.01)	B01J	23/89	A
B01J 35/02	(2006.01)	B01J	35/02	H
B01J 37/34	(2006.01)	B01J	37/34	
B01J 37/02	(2006.01)	B01J	37/02	301M
FO1N 3/10	(2006.01)	FO1N	3/10	A

請求項の数 20 (全 44 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2013-555504 (P2013-555504)
 (86) (22) 出願日 平成24年2月21日 (2012.2.21)
 (65) 公表番号 特表2014-509933 (P2014-509933A)
 (43) 公表日 平成26年4月24日 (2014.4.24)
 (86) 國際出願番号 PCT/US2012/025966
 (87) 國際公開番号 WO2012/115977
 (87) 國際公開日 平成24年8月30日 (2012.8.30)
 審査請求日 平成27年2月20日 (2015.2.20)
 (31) 優先権主張番号 13/033,514
 (32) 優先日 平成23年2月23日 (2011.2.23)
 (33) 優先権主張国 米国(US)

(73) 特許権者 506352359
 エスディーシーマテリアルズ、 インコーポレイテッド
 アメリカ合衆国 アリゾナ州 85281
 テンペ サウス パーク レーン 94
 O スイート ナンバー2
 (74) 代理人 100078282
 弁理士 山本 秀策
 (74) 代理人 100113413
 弁理士 森下 夏樹
 (74) 代理人 100181674
 弁理士 飯田 貴敏
 (74) 代理人 100181641
 弁理士 石川 大輔

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 安定な Pt Pd ディーゼル酸化物を形成する湿式化学法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

ナノ粒子を形成する方法であって、
 プラズマ銃を使用して複数の酸化アルミニウム - パラジウム担体ナノ粒子を形成するステップであって、前記酸化アルミニウム - パラジウム担体ナノ粒子が、内部領域および外面を含み、前記内部領域は、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含む混合金属酸化物を含み、前記外面は金属パラジウムを含む、ステップと、

湿式化学プロセスを使用して、前記酸化アルミニウム - パラジウム担体ナノ粒子に複数の触媒白金ナノ粒子を付けるステップと
 を含む、方法。

【請求項 2】

前記プラズマ銃を使用して前記複数の酸化アルミニウム - パラジウム担体ナノ粒子を形成するステップが、

ある量の酸化アルミニウム材料およびある量のパラジウム材料を所望の比で前記プラズマ銃内に装填することであって、前記酸化アルミニウム材料および前記パラジウム材料が、粉末形態であること、

前記プラズマ銃を使用して前記ある量の酸化アルミニウム材料および前記ある量のパラジウム材料を蒸発させ、それによって蒸発酸化アルミニウムおよび蒸発パラジウムを含む蒸気雲を形成すること、

前記蒸気雲を急冷し、それによって前記蒸発酸化アルミニウムおよび前記蒸発パラジウムを含む蒸気雲を形成すること、

前記蒸気雲を急冷し、それによって前記蒸発酸化アルミニウムおよび前記蒸発パラジウムを含む蒸気雲を形成すること、

ムを凝縮して担体ナノ粒子にすることと
を含む、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 3】

前記ある量の酸化アルミニウム材料および前記ある量のパラジウム材料を蒸発させるス
テップは、

前記プラズマ銃の反応器内に作動ガスを流すことと、

前記作動ガスにエネルギーを送達し、それによってプラズマストリームを形成すること
と、

前記ある量の酸化アルミニウム材料および前記ある量のパラジウム材料を前記プラズマ
ストリーム中に流すことと

を含む、請求項 2 に記載の方法。

【請求項 4】

前記作動ガスがアルゴンおよび H_2 を含む、請求項 3 に記載の方法。

【請求項 5】

前記湿式化学プロセスは、

白金溶液を前記酸化アルミニウム - パラジウム担体ナノ粒子と混合することと、

前記白金溶液から形成される複数の触媒白金ナノ粒子を、前記酸化アルミニウム - パラ
ジウム担体ナノ粒子に結合することと

を含む、請求項 1 ~ 4 のいずれか一項に記載の方法。

【請求項 6】

前記白金溶液は、硝酸白金溶液または塩化白金溶液である、請求項 5 に記載の方法。

【請求項 7】

前記酸化アルミニウム - パラジウム担体ナノ粒子は、10 ナノメートル以下の平均粒度
を有する、請求項 1 ~ 6 のいずれか一項に記載の方法。

【請求項 8】

前記触媒白金ナノ粒子は、1 ナノメートル以下の直径を有する、請求項 1 ~ 7 のいずれ
か一項に記載の方法。

【請求項 9】

前記触媒白金ナノ粒子は、0.5 ナノメートルの直径を有する、請求項 1 ~ 8 のいずれ
か一項に記載の方法。

【請求項 10】

触媒を形成する方法であって、

支持構造体を用意するステップと、

複数のナノ粒子を用意するステップであって、

プラズマ銃を使用して複数の酸化アルミニウム - パラジウム担体ナノ粒子を形成する
ステップであって、前記酸化アルミニウム - パラジウム担体ナノ粒子が、内部領域および
外面を含み、前記内部領域は、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含む混合金属酸化物
を含み、前記外面は金属パラジウムを含む、ステップと、

湿式化学プロセスを使用して、前記酸化アルミニウム - パラジウム担体ナノ粒子に複
数の触媒白金ナノ粒子を付けるステップと

を含む、ステップと、

前記複数のナノ粒子を前記支持構造体に結合するステップと
を含む、方法。

【請求項 11】

前記プラズマ銃を使用して前記複数の酸化アルミニウム - パラジウム担体ナノ粒子を形
成するステップが、

ある量の酸化アルミニウム材料およびある量のパラジウム材料を所望の比で前記プラズ
マ銃内に装填することであって、前記酸化アルミニウム材料および前記パラジウム材料が
、粉末形態であることと、

前記プラズマ銃を使用して前記ある量の酸化アルミニウム材料および前記ある量のパラ

10

20

30

40

50

ジウム材料を蒸発させ、それによって蒸発酸化アルミニウムおよび蒸発パラジウムを含む蒸気雲を形成することと、

前記蒸気雲を急冷し、それによって前記蒸発酸化アルミニウムおよび前記蒸発パラジウムを凝縮して担体ナノ粒子にすることと
を含む、請求項1 0に記載の方法。

【請求項 1 2】

前記ある量の酸化アルミニウム材料および前記ある量のパラジウム材料を蒸発させるス 10
テップは、

前記プラズマ銃の反応器内に作動ガスを流すことと、

前記作動ガスにエネルギーを送達し、それによってプラズマストリームを形成すること
と、

前記ある量の酸化アルミニウム材料および前記ある量のパラジウム材料を前記プラズマ
ストリーム中に流すことと
を含む、請求項1 1に記載の方法。

【請求項 1 3】

前記作動ガスがアルゴンおよびH₂を含む、請求項1 2に記載の方法。

【請求項 1 4】

前記湿式化学プロセスは、

白金溶液を前記酸化アルミニウム - パラジウム担体ナノ粒子と混合することと、

前記白金溶液から形成される複数の触媒白金ナノ粒子を、前記酸化アルミニウム - パラ
ジウム担体ナノ粒子に結合することと
を含む、請求項1 0 ~ 1 3のいずれか一項に記載の方法。

【請求項 1 5】

前記白金溶液は、硝酸白金溶液または塩化白金溶液である、請求項1 4に記載の方法。

【請求項 1 6】

前記複数の担体ナノ粒子を前記支持構造体に結合するステップは、焼成プロセスを実施
することを含む、請求項1 0 ~ 1 5のいずれか一項に記載の方法。

【請求項 1 7】

前記支持構造体は、多孔質セラミック材料であり、

前記複数のナノ粒子は、前記セラミック材料の孔内に配置されている、
請求項1 0 ~ 1 6のいずれか一項に記載の方法。

【請求項 1 8】

前記酸化アルミニウム - パラジウム担体ナノ粒子は、1 0ナノメートル以下の平均粒度
を有する、請求項1 0 ~ 1 7のいずれか一項に記載の方法。

【請求項 1 9】

前記触媒白金ナノ粒子は、1ナノメートル以下の直径を有する、請求項1 0 ~ 1 8のい
ずれか一項に記載の方法。

【請求項 2 0】

前記触媒白金ナノ粒子は、0 . 5ナノメートルの直径を有する、請求項1 0 ~ 1 9のい
ずれか一項に記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0 0 0 1】

本発明は、触媒の分野に関する。より具体的には、本発明は、触媒を生成する方法に關
する。

【背景技術】

【0 0 0 2】

触媒を創製するためにセラミック表面上に小白金粒子を置くのに、湿式化学を使用する
ことができる。しかし、触媒が加熱されて使用される場合、白金粒子は、セラミック表面
上に十分に結合されない。結果として、これらは可動性であり、これらが動き回り、他の
50

白金粒子を見出すことを可能にする。白金粒子が互いに見つけ合うと、これらは凝集してより大きい白金粒子になる。

【0003】

例えば、先行技術プロセスにより、1/2ナノメートルの白金粒子から開始されても、エージング試験が実施された時までに（車上で10年に等しい）、白金粒子は凝集して16ナノメートルの粒子になっている。

【0004】

白金粒子がこのように凝集すると、触媒表面積が大幅に低減する。結果として、触媒の性能が著しく減少する。

【発明の概要】

10

【課題を解決するための手段】

【0005】

本発明は、触媒材料をコアナノ粒子に確実に結合するためにピン止め剤（pinning agent）を使用する。ピン止め剤は、触媒材料をコアナノ粒子に確実に繋ぎ止め、それによって触媒材料の可動性および凝集を最小限にし、または排除する。結果として、本発明は、極めて小さいサイズの触媒粒子を各コアナノ粒子上に実質的に維持し、それによって、触媒表面積を最大化する、エージングが最小限の触媒、またはさらにはエージングしない触媒をもたらすことができる。

【0006】

本発明の一態様では、ナノ粒子は、内部領域および外面を含む。内部領域は、混合金属酸化物を含み、混合金属酸化物は、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含む。外面は純金属パラジウムを含む。

20

【0007】

いくつかの実施形態では、内部領域内のパラジウムは、外面の純金属パラジウムまで延在し、これに結合している。いくつかの実施形態では、ナノ粒子は、約10ナノメートル以下の直径を有する。

【0008】

いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、ナノ粒子の中心コアを形成する。いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、酸化アルミニウムおよびパラジウムのみからなる。

30

【0009】

いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、ナノ粒子の中心コアを取り囲む単層を形成する。いくつかの実施形態では、中心コアはシリカを含む。

【0010】

本発明の別の態様では、ナノ粒子を形成する方法は、ある量の酸化アルミニウム材料およびある量のパラジウム材料を所望の比でプラズマ銃内に装填するステップと、プラズマ銃を使用してこのある量の酸化アルミニウム材料およびこのある量のパラジウム材料を蒸発させ、それによって蒸発酸化アルミニウムおよび蒸発パラジウムを含む蒸気雲を形成するステップと、蒸気雲を急冷し、それによって蒸発酸化アルミニウムおよび蒸発パラジウムを凝縮してナノ粒子にするステップとを含む。各ナノ粒子は、内部領域および外面を含む。内部領域は、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含む混合金属酸化物を含み、外面は純金属パラジウムを含む。

40

【0011】

いくつかの実施形態では、このある量の酸化アルミニウム材料およびこのある量のパラジウム材料を蒸発させるステップは、プラズマ銃の反応器内に作動ガスを流すことと、作動ガスにエネルギーを送達し、それによってプラズマストリームを形成することと、このある量の酸化アルミニウム材料およびこのある量のパラジウム材料をプラズマストリーム中に流すこととを含む。

【0012】

いくつかの実施形態では、内部領域内のパラジウムは、外面の純金属パラジウムまで延

50

在し、これに結合している。いくつかの実施形態では、ナノ粒子は、約10ナノメートル以下の平均粒度を有する。

【0013】

いくつかの実施形態では、混合金属酸化物はナノ粒子の中心コアを形成する。いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、酸化アルミニウムおよびパラジウムのみからなる。

【0014】

本発明のさらに別の態様では、ナノ粒子を形成する方法は、ある量のアルミニウム材料およびある量のパラジウム材料を所望の比で用意するステップと、湿式化学プロセスを使用して、このある量のアルミニウム材料およびこのある量のパラジウム材料から複数のナノ粒子を形成するステップとを含む。各形成されたナノ粒子は、内部領域および外面を含む。内部領域は、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含む混合金属酸化物を含み、外面は純金属パラジウムを含む。

10

【0015】

いくつかの実施形態では、アルミニウム材料は、塩または有機化合物であり、パラジウム材料は、塩であり、湿式化学プロセスは、化学反応を介してアルミニウム材料およびパラジウム材料から混合金属酸化物を形成することを含む。いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、各ナノ粒子の中心コアを形成し、酸化アルミニウムおよびパラジウムのみからなる。

【0016】

いくつかの実施形態では、湿式化学プロセスを使用して複数のナノ粒子を形成するステップは、各ナノ粒子の中心コアの周りに混合金属酸化物を含む単層を形成することを含む。いくつかの実施形態では、各ナノ粒子の中心コアは、シリカを含む。

20

【0017】

いくつかの実施形態では、内部領域内のパラジウムは、外面の純金属パラジウムまで延在し、これに結合している。いくつかの実施形態では、ナノ粒子は、約10ナノメートル以下の平均粒度を有する。

【0018】

本発明のさらに別の態様では、触媒担体ナノ粒子は、内部領域および外面を含む担体ナノ粒子を含む。内部領域は、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含む混合金属酸化物を含み、外面は純金属パラジウムを含む。触媒ナノ粒子は、外面の純金属パラジウムに結合している。触媒ナノ粒子は白金である。

30

【0019】

いくつかの実施形態では、内部領域内のパラジウムは、外面の純金属パラジウムまで延在し、これに結合している。いくつかの実施形態では、担体ナノ粒子は、約10ナノメートル以下の直径を有する。

【0020】

いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、担体ナノ粒子の中心コアを形成する。いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、酸化アルミニウムおよびパラジウムのみからなる。

【0021】

40

いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、担体ナノ粒子の中心コアを取り囲む単層を形成する。中心コアがシリカを含む、請求項26に記載のナノ粒子。

【0022】

本発明のさらに別の態様では、ナノ粒子を形成する方法は、ある量の酸化アルミニウム材料、ある量のパラジウム材料、およびある量の白金材料を所望の比でプラズマ銃内に装填するステップと、プラズマ銃を使用してこのある量の酸化アルミニウム材料、このある量のパラジウム材料、およびこのある量の白金材料を蒸発させ、それによって蒸発酸化アルミニウム、蒸発パラジウム、および蒸発白金を含む蒸気雲を形成するステップと、蒸気雲を急冷し、それによって蒸発酸化アルミニウム、蒸発パラジウム、および蒸発白金を凝縮して担体ナノ粒子にするステップとを含む。各担体ナノ粒子は、内部領域および外面を

50

含む。内部領域は、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含む混合金属酸化物を含み、外面は純金属パラジウムを含み、白金ナノ粒子は、外面の純金属パラジウムに結合している。

【 0 0 2 3 】

いくつかの実施形態では、このある量の酸化アルミニウム材料、このある量のパラジウム材料、およびこのある量の白金材料を蒸発させるステップは、プラズマ銃の反応器内に作動ガスを流すことと、作動ガスにエネルギーを送達し、それによってプラズマストリームを形成することと、このある量の酸化アルミニウム材料、このある量のパラジウム材料、およびこのある量の白金材料をプラズマストリーム中に流すこととを含む。

【 0 0 2 4 】

いくつかの実施形態では、内部領域内のパラジウムは、外面の純金属パラジウムまで延在し、これに結合している。いくつかの実施形態では、担体ナノ粒子は、約10ナノメートル以下の平均粒度を有する。

【 0 0 2 5 】

いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、担体ナノ粒子の中心コアを形成する。いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、酸化アルミニウムおよびパラジウムのみからなる。

【 0 0 2 6 】

本発明のさらに別の態様では、ナノ粒子を形成する方法は、ある量のアルミニウム材料、ある量のパラジウム材料、およびある量の白金材料を所望の比で用意するステップと、湿式化学プロセスを使用して、このある量のアルミニウム材料、このある量のパラジウム材料、およびこのある量の白金材料から複数の担体ナノ粒子を形成するステップとを含む。各担体ナノ粒子は、内部領域および外面を含む。内部領域は、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含む混合金属酸化物を含み、外面は純金属パラジウムを含み、白金ナノ粒子は、外面の純金属パラジウムに結合している。

【 0 0 2 7 】

いくつかの実施形態では、アルミニウム材料は、塩または有機化合物であり、パラジウム材料は塩であり、湿式化学プロセスは、化学反応を介してアルミニウム材料およびパラジウム材料から混合金属酸化物を形成することと、複数のアルミニウム - パラジウム担体粒子を含む担体粒子懸濁物を形成することとを含む。各アルミニウム - パラジウム担体粒子は、内部領域および外面を含む。内部領域は、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含む混合金属酸化物を含み、外面は純金属パラジウムを含む。いくつかの実施形態では、湿式化学プロセスは、白金溶液を担体粒子懸濁物と混合することと、白金溶液から形成される白金ナノ粒子を、アルミニウム - パラジウム担体粒子上の純金属パラジウムに結合することとをさらに含む。いくつかの実施形態では、白金溶液は、硝酸白金溶液または塩化白金溶液である。

【 0 0 2 8 】

いくつかの実施形態では、アルミニウム材料は、塩または有機化合物であり、パラジウム材料は塩であり、湿式化学プロセスは、化学反応を介してアルミニウム材料およびパラジウム材料から混合金属酸化物を形成することと、各担体ナノ粒子の中心コアの周りに混合金属酸化物の単層を形成することと、担体ナノ粒子の懸濁物を形成することとを含む。中心コアは、単層と異なる化学組成物を含み、各単層は、内部領域および外面を含む。内部領域は、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含む混合金属酸化物を含み、外面は純金属パラジウムを含む。いくつかの実施形態では、湿式化学プロセスは、白金溶液をナノ粒子の懸濁物と混合することと、白金溶液から形成される白金ナノ粒子を、担体ナノ粒子上の純金属パラジウムに結合することとをさらに含む。いくつかの実施形態では、白金溶液は、硝酸白金溶液または塩化白金溶液である。いくつかの実施形態では、各担体ナノ粒子の中心コアはシリカを含む。

【 0 0 2 9 】

いくつかの実施形態では、内部領域内のパラジウムは、外面の純金属パラジウム - 白金

10

20

30

40

50

合金まで延在し、これに結合している。いくつかの実施形態では、担体ナノ粒子は、約10ナノメートル以下の平均粒度を有する。

【0030】

本発明のさらに別の態様では、ナノ粒子を形成する方法は、プラズマ銃を使用して複数のアルミニウム-パラジウム担体粒子を形成するステップであって、各アルミニウム-パラジウム担体粒子は、内部領域および外面を含み、内部領域は、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含む混合金属酸化物を含み、外面は純金属パラジウムを含む、ステップと、湿式化学プロセスを使用してアルミニウム-パラジウム担体粒子のそれぞれの上の純金属パラジウムに白金ナノ粒子を付けるステップとを含む。

【0031】

いくつかの実施形態では、プラズマ銃を使用して複数のアルミニウム-パラジウム担体粒子を形成するステップは、ある量の酸化アルミニウム材料およびある量のパラジウム材料を所望の比でプラズマ銃内に装填することと、プラズマ銃を使用してこのある量の酸化アルミニウム材料およびこのある量のパラジウム材料を蒸発させ、それによって蒸発酸化アルミニウムおよび蒸発パラジウムを含む蒸気雲を形成することと、蒸気雲を急冷し、それによって蒸発酸化アルミニウムおよび蒸発パラジウムを凝縮して担体ナノ粒子にすることとを含む。各担体ナノ粒子は、内部領域および外面を含む。内部領域は、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含む混合金属酸化物を含み、外面は純金属パラジウムを含む。

【0032】

いくつかの実施形態では、このある量の酸化アルミニウム材料およびこのある量のパラジウム材料を蒸発させるステップは、プラズマ銃の反応器内に作動ガスを流すことと、作動ガスにエネルギーを送達し、それによってプラズマストリームを形成することと、このある量の酸化アルミニウム材料およびこのある量のパラジウム材料をプラズマストリーム中に流すこととを含む。いくつかの実施形態では、内部領域内のパラジウムは、外面の純金属パラジウムまで延在し、これに結合している。いくつかの実施形態では、アルミニウム-パラジウム担体粒子は、約10ナノメートル以下の平均粒度を有する。

【0033】

いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、各アルミニウム-パラジウム担体粒子の中心コアを形成する。いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、酸化アルミニウムおよびパラジウムのみからなる。

【0034】

いくつかの実施形態では、湿式化学プロセスは、白金溶液をアルミニウム-パラジウム担体粒子と混合することと、白金溶液から形成される白金ナノ粒子を、アルミニウム-パラジウム担体粒子上の純金属パラジウムに結合することとを含む。いくつかの実施形態では、白金溶液は、硝酸白金溶液または塩化白金溶液である。

【0035】

いくつかの実施形態では、内部領域内のパラジウムは、外面の純金属パラジウムまで延在し、これに結合している。いくつかの実施形態では、アルミニウム-パラジウム担体粒子は、約10ナノメートル以下の平均粒度を有する。

【0036】

本発明のさらに別の態様では、触媒は、支持構造体、および支持構造体に結合した複数の担体ナノ粒子を含む。各担体ナノ粒子は、内部領域および外面を含む。内部領域は混合金属酸化物を含み、外面は純金属を含む。触媒粒子は、外面の純金属に結合している。

【0037】

いくつかの実施形態では、支持構造体は、多孔質セラミック材料であり、複数の担体ナノ粒子は、セラミック材料の孔内に配置されている。いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含む。いくつかの実施形態では、純金属はパラジウムである。いくつかの実施形態では、内部領域内の混合金属酸化物は、外面の純金属まで延在し、これに結合している。いくつかの実施形態では、担体ナノ粒子は、約10ナノメートル以下の平均粒度を有する。

10

20

30

40

50

【0038】

いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、各担体ナノ粒子の中心コアを形成する。いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、酸化アルミニウムおよびパラジウムのみからなる。

【0039】

いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、各担体ナノ粒子の中心コアを取り囲む単層を形成する。いくつかの実施形態では、中心コアはシリカを含む。

【0040】

いくつかの実施形態では、外面は純金属の合金を含む。いくつかの実施形態では、触媒粒子は白金である。いくつかの実施形態では、触媒は、エージングしない触媒である。

10

【0041】

本発明のさらに別の態様では、触媒を形成する方法は、支持構造体を用意するステップと、複数の担体ナノ粒子を用意するステップであって、各担体ナノ粒子は、内部領域および外面を含み、内部領域は混合金属酸化物を含み、外面は純金属を含み、触媒粒子は外面の純金属に結合している、ステップと、複数の担体ナノ粒子を支持構造体に結合するステップとを含む。

【0042】

いくつかの実施形態では、支持構造体は、多孔質セラミック材料であり、複数の担体ナノ粒子は、セラミック材料の孔内に配置されている。いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含み、純金属は、純金属パラジウムを含む。いくつかの実施形態では、触媒粒子は白金である。いくつかの実施形態では、内部領域内のパラジウムは、外面の純金属パラジウムまで延在し、これに結合している。いくつかの実施形態では、担体ナノ粒子は、約10ナノメートル以下の平均粒度を有する。

20

【0043】

いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、担体ナノ粒子の中心コアを形成する。いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、酸化アルミニウムおよびパラジウムのみからなる。

【0044】

いくつかの実施形態では、複数の担体ナノ粒子を用意するステップは、ある量の第1材料、ある量の第2材料、およびある量の第3材料を所望の比でプラズマ銃内に装填することと、プラズマ銃を使用してこのある量の第1材料、このある量の第2材料、およびこのある量の第3材料を蒸発させ、それによって蒸発第1材料、蒸発第2材料、および蒸発第3材料を含む蒸気雲を形成することと、蒸気雲を急冷し、それによって蒸発第1材料、蒸発第2材料、および蒸発第3材料を凝縮して担体ナノ粒子にすることとを含む。各担体ナノ粒子は、内部領域および外面を含む。いくつかの実施形態では、このある量の第1材料、このある量の第2材料、およびこのある量の第3材料を蒸発させるステップは、プラズマ銃の反応器内に作動ガスを流すことと、作動ガスにエネルギーを送達し、それによってプラズマストリームを形成することと、このある量の第1材料、このある量の第2材料、およびこのある量の第3材料をプラズマストリーム中に流すこととを含む。

30

【0045】

いくつかの実施形態では、複数の担体ナノ粒子を用意するステップは、ある量の第1材料、ある量の第2材料、およびある量の第3材料を所望の比で用意することと、湿式化学プロセスを使用して、このある量の第1材料、このある量の第2材料、およびこのある量の第3材料から複数の担体ナノ粒子を形成することとを含む。いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、第1材料および第2材料を含み、外面は第2材料を含み、触媒粒子は第3材料を含む。いくつかの実施形態では、湿式化学プロセスは、化学反応を介して第1材料および第2材料から混合金属酸化物を形成することと、複数の担体粒子を含む担体粒子懸濁物を形成することとを含む。各担体粒子は、内部領域および外面を含み、内部領域の混合金属酸化物は、第1材料および第2材料を含み、外面の純金属は、第2材料を含む。

40

50

【0046】

いくつかの実施形態では、第1材料はアルミニウム材料であり、第2材料はパラジウム材料である。いくつかの実施形態では、アルミニウム材料は塩または有機化合物であり、パラジウム材料は塩である。

【0047】

いくつかの実施形態では、湿式化学プロセスは、触媒溶液を担体粒子懸濁物と混合することと、触媒溶液から形成される触媒ナノ粒子を、担体粒子上の純金属に結合することをさらに含む。いくつかの実施形態では、触媒溶液は白金溶液であり、触媒ナノ粒子は白金ナノ粒子である。いくつかの実施形態では、白金溶液は、硝酸白金溶液または塩化白金溶液である。

10

【0048】

いくつかの実施形態では、混合金属酸化物を形成するステップは、各担体粒子の中心コアの周りに単層を形成することを含む。中心コアは、単層と異なる化学組成物を含み、各単層は、内部領域および外面を含む。いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含み、外面の純金属はパラジウムを含む。いくつかの実施形態では、湿式化学プロセスは、触媒溶液を担体粒子懸濁物と混合することと、触媒溶液から形成される触媒ナノ粒子を、担体粒子上の純金属に結合することをさらに含む。いくつかの実施形態では、触媒溶液は白金溶液であり、触媒ナノ粒子は白金ナノ粒子である。いくつかの実施形態では、白金溶液は、硝酸白金溶液または塩化白金溶液である。いくつかの実施形態では、各担体ナノ粒子の中心コアはシリカを含む。

20

【0049】

いくつかの実施形態では、複数の担体ナノ粒子を用意するステップは、プラズマ銃を使用して複数の担体粒子を形成することであって、各担体粒子は、内部領域および外面を含む、ことと、湿式化学プロセスを使用して担体粒子のそれぞれの上の純金属に触媒ナノ粒子を付けることを含む。いくつかの実施形態では、プラズマ銃を使用して複数の担体粒子を形成するステップは、ある量の第1材料およびある量の第2材料を所望の比でプラズマ銃内に装填することと、プラズマ銃を使用してこのある量の第1材料およびこのある量の第2材料を蒸発させ、それによって蒸発第1材料および蒸発第2材料を含む蒸気雲を形成することと、蒸気雲を急冷し、それによって蒸発第1材料および蒸発第2材料を凝縮して担体粒子にすることとを含む。いくつかの実施形態では、このある量の第1材料およびこのある量の第2材料を蒸発させるステップは、プラズマ銃の反応器内に作動ガスを流すことと、作動ガスにエネルギーを送達し、それによってプラズマストリームを形成することと、このある量の第1材料およびこのある量の第2材料をプラズマストリーム中に流すこととを含む。いくつかの実施形態では、湿式化学プロセスを使用して純金属に触媒ナノ粒子を付けるステップは、触媒溶液をコア粒子と混合することと、触媒溶液から形成される触媒ナノ粒子を、担体粒子上の純金属に結合することとを含む。いくつかの実施形態では、触媒溶液は白金溶液であり、触媒ナノ粒子は白金ナノ粒子である。いくつかの実施形態では、白金溶液は、硝酸白金溶液または塩化白金溶液である。いくつかの実施形態では、複数の担体ナノ粒子を支持構造体に結合するステップは、焼成プロセスを実施することを含む。

30

【0050】

本発明のさらに別の態様では、ナノ粒子は、混合金属酸化物を含む内部領域、および純金属を含む外面を含む。

【0051】

いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含む。いくつかの実施形態では、純金属はパラジウムである。いくつかの実施形態では、内部領域内の混合金属酸化物は、外面の純金属まで延在し、これに結合している。いくつかの実施形態では、ナノ粒子は、約10ナノメートル以下の直径を有する。

40

【0052】

いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、ナノ粒子の中心コアを形成する。いくつ

50

かの実施形態では、混合金属酸化物は、酸化アルミニウムおよびパラジウムのみからなる。

【 0 0 5 3 】

いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、ナノ粒子の中心コアを取り囲む単層を形成する。いくつかの実施形態では、中心コアはシリカを含む。いくつかの実施形態では、外面は純金属の合金を含む。いくつかの実施形態では、純金属の合金は、パラジウム・白金合金である。

【 0 0 5 4 】

本発明のさらに別の態様では、ナノ粒子を形成する方法は、ある量の第1材料およびある量の第2材料を用意するステップと、このある量の第1材料およびこのある量の第2材料から複数のナノ粒子を形成するステップとを含む。各ナノ粒子は、内部領域および外面を含む。内部領域は混合金属酸化物を含み、外面は純金属を含む。

10

【 0 0 5 5 】

いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、第1材料および第2材料を含み、純金属は第2材料を含む。いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含み、純金属はパラジウムを含む。いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含み、純金属はパラジウム・白金合金を含む。

【 0 0 5 6 】

いくつかの実施形態では、複数のナノ粒子を形成するステップは、このある量の第1材料およびこのある量の第2材料を所望の比でプラズマ銃内に装填することと、プラズマ銃を使用してこのある量の第1材料およびこのある量の第2材料を蒸発させ、それによって蒸発第1材料および蒸発第2材料を含む蒸気雲を形成することと、蒸気雲を急冷し、それによって蒸発第1材料および蒸発第2材料を凝縮してナノ粒子にすることであって、各ナノ粒子は、内部領域および外面を含む、ことを含む。いくつかの実施形態では、このある量の第1材料およびこのある量の第2材料を蒸発させるステップは、プラズマ銃の反応器内に作動ガスを流すことと、作動ガスにエネルギーを送達し、それによってプラズマストリームを形成することと、このある量の第1材料およびこのある量の第2材料をプラズマストリーム中に流すこととを含む。いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、第1材料および第2材料を含み、純金属は第2材料を含む。いくつかの実施形態では、第1材料はアルミニウム材料であり、第2材料はパラジウム材料である。

20

【 0 0 5 7 】

いくつかの実施形態では、複数のナノ粒子を形成するステップは、このある量の第1材料およびこのある量の第2材料を用いて湿式化学プロセスを実施することを含む。いくつかの実施形態では、湿式化学プロセスは、化学反応を介して第1材料および第2材料から混合金属酸化物を形成することを含む。いくつかの実施形態では、第1材料はアルミニウム材料を含み、第2材料はパラジウム材料を含む。いくつかの実施形態では、アルミニウム材料は塩または有機化合物であり、パラジウム材料は塩である。いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、各ナノ粒子の中心コアを形成し、酸化アルミニウムおよびパラジウムのみからなる。いくつかの実施形態では、湿式化学プロセスは、各ナノ粒子の中心コアの周りに単層を形成することを含む。単層は混合金属酸化物を含む。いくつかの実施形態では、各ナノ粒子の中心コアはシリカを含む。

30

【 0 0 5 8 】

いくつかの実施形態では、内部領域内の混合金属酸化物は、外面の純金属まで延在し、これに結合している。いくつかの実施形態では、ナノ粒子は、約10ナノメートル以下の平均粒度を有する。

40

【 0 0 5 9 】

本発明のさらに別の態様では、ナノ粒子は、混合金属酸化物を含む内部領域、純金属を含む外面、および純金属に付けられた触媒粒子を含む。触媒粒子は、純金属および混合金属酸化物と異なる化学組成を有する。

50

【 0 0 6 0 】

いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、第1材料および第2材料を含み、純金属は第2材料を含み、触媒粒子は第3材料を含む。いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、ナノ粒子の中心コアを取り囲む単層を形成する。いくつかの実施形態では、中心コアはシリカを含む。

【 0 0 6 1 】

いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、酸化アルミニウム、および白金を含まない金属ピン止め剤を含み、純金属は金属ピン止め剤を含み、触媒粒子は白金を含む。いくつかの実施形態では、金属ピン止め剤は、銅、モリブデン、またはコバルトを含む。いくつかの実施形態では、触媒粒子は金属合金を含む。いくつかの実施形態では、金属合金はパラジウム-白金合金である。いくつかの実施形態では、金属ピン止め剤は、銅、モリブデン、またはコバルトを含み、触媒粒子はパラジウム-白金合金を含む。

10

【 0 0 6 2 】

いくつかの実施形態では、内部領域内の混合金属酸化物は、外面の純金属まで延在し、これに結合している。いくつかの実施形態では、ナノ粒子は、約10ナノメートル以下の直径を有する。

【 0 0 6 3 】

いくつかの実施形態では、触媒粒子はナノ粒子である。いくつかの実施形態では、触媒粒子は、約1ナノメートル以下の直径を有する。いくつかの実施形態では、触媒粒子は、約1/2ナノメートルの直径を有する。

20

【 0 0 6 4 】

本発明のさらに別の態様では、ナノ粒子を形成する方法は、担体ナノ粒子を用意するステップであって、担体ナノ粒子は、内部領域および外面を含み、内部領域は混合金属酸化物を含み、外面は純金属を含む、ステップと、触媒粒子を純金属に付けるステップであって、触媒粒子は、純金属および混合金属酸化物と異なる化学組成物を有する、ステップとを含む。

【 0 0 6 5 】

いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は第1材料および第2材料から形成され、純金属は第2材料から形成され、触媒粒子は第3材料から形成される。いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、担体ナノ粒子の中心コアを取り囲む単層を形成する。いくつかの実施形態では、中心コアはシリカを含む。

30

【 0 0 6 6 】

いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、酸化アルミニウム、および白金を含まない金属ピン止め剤を含み、純金属は金属ピン止め剤を含み、触媒粒子は白金を含む。いくつかの実施形態では、金属ピン止め剤は、銅、モリブデン、またはコバルトを含む。いくつかの実施形態では、触媒粒子は金属合金を含む。いくつかの実施形態では、金属合金はパラジウム-白金合金である。いくつかの実施形態では、金属ピン止め剤は、銅、モリブデン、またはコバルトを含み、触媒粒子はパラジウム-白金合金を含む。

【 0 0 6 7 】

いくつかの実施形態では、内部領域内の混合金属酸化物は、外面の純金属まで延在し、これに結合している。いくつかの実施形態では、担体ナノ粒子は、約10ナノメートル以下の直径を有する。

40

【 0 0 6 8 】

いくつかの実施形態では、触媒粒子はナノ粒子である。いくつかの実施形態では、触媒粒子は、約1ナノメートル以下の直径を有する。いくつかの実施形態では、触媒粒子は、約1/2ナノメートルの直径を有する。

【 0 0 6 9 】

いくつかの実施形態では、担体ナノ粒子を用意するステップ、および触媒粒子を純金属に付けるステップは、プラズマ銃を使用して実施される。いくつかの実施形態では、担体ナノ粒子を用意するステップ、および触媒粒子を純金属に付けるステップは、湿式化学ブ

50

ロセスを使用して実施される。

【0070】

いくつかの実施形態では、担体ナノ粒子を用意するステップは、ある量の第1材料およびある量の第2材料を所望の比でプラズマ銃内に装填することと、このある量の第1材料およびこのある量の第2材料を蒸発させ、それによって蒸発第1材料および蒸発第2材料を含む蒸気雲を形成することと、蒸気雲を急冷し、それによって蒸発第1材料および蒸発第2材料を凝縮して担体ナノ粒子にすることとを含む。担体ナノ粒子は、内部領域および外面を含む。いくつかの実施形態では、このある量の第1材料材料およびこのある量の第2材料を蒸発させるステップは、プラズマ銃の反応器内に作動ガスを流すことと、作動ガスにエネルギーを送達し、それによってプラズマストリームを形成することと、このある量の第1材料およびこのある量の第2材料をプラズマストリーム中に流すことを含む。いくつかの実施形態では、触媒粒子を純金属に付けるステップは、湿式化学プロセスを使用して実施される。いくつかの実施形態では、湿式化学プロセスは、触媒溶液を担体ナノ粒子と混合することと、触媒溶液から形成される触媒粒子を、担体ナノ粒子上の純金属に結合することとを含む。いくつかの実施形態では、触媒溶液は白金溶液であり、触媒粒子は白金ナノ粒子である。いくつかの実施形態では、白金溶液は硝酸白金溶液または塩化白金溶液である。

【0071】

本発明のさらに別の態様では、触媒ナノ粒子を形成する方法は、複数の担体ナノ粒子を用意するステップであって、各担体ナノ粒子は、内部領域および外面を含み、内部領域は混合金属酸化物を含み、外面は純金属を含む、ステップと、触媒ナノ粒子を各担体ナノ粒子上の純金属に付けるステップとを含む。

【0072】

いくつかの実施形態では、触媒ナノ粒子を純金属に付けるステップは、プラズマ銃を使用して実施される。いくつかの実施形態では、触媒ナノ粒子を純金属に付けるステップは、複数のナノ粒子およびある量の触媒材料を所望の比でプラズマ銃内に装填することと、このある量の触媒材料を蒸発させ、それによって蒸発触媒材料を含む蒸気雲を形成することと、蒸気雲を急冷し、それによって、蒸発触媒材料を凝縮して、担体ナノ粒子上の純金属に結合している触媒ナノ粒子にすることとを含む。

【0073】

いくつかの実施形態では、複数の担体ナノ粒子は、約10ナノメートル以下の平均粒度を有する。いくつかの実施形態では、各触媒ナノ粒子は、約1ナノメートル以下の直径を有する。いくつかの実施形態では、各触媒ナノ粒子は、約1/2ナノメートルの直径を有する。

【0074】

いくつかの実施形態では、触媒ナノ粒子を純金属に付けるステップは、湿式化学プロセスを使用して実施される。いくつかの実施形態では、湿式化学プロセスを使用して触媒ナノ粒子を純金属に付けるステップは、触媒溶液を複数の担体ナノ粒子と混合することと、触媒溶液から形成される触媒ナノ粒子を、複数の担体ナノ粒子上の純金属に結合することとを含む。いくつかの実施形態では、触媒溶液は白金溶液であり、触媒ナノ粒子は白金ナノ粒子である。いくつかの実施形態では、白金溶液は、硝酸白金溶液または塩化白金溶液である。

一実施形態において、例えば、以下の項目が提供される。

(項目1)

酸化アルミニウムおよびパラジウムを含む混合金属酸化物を含む内部領域と、純金属パラジウムを含む外面とを含むナノ粒子。

(項目2)

前記内部領域内の前記パラジウムが、前記外面の前記純金属パラジウムまで延在し、これに結合している、項目1に記載のナノ粒子。

10

20

30

40

50

(項目3)

約10ナノメートル以下の直径を有する、項目1に記載のナノ粒子。

(項目4)

前記混合金属酸化物が、前記ナノ粒子の中心コアを形成する、項目1に記載のナノ粒子。

(項目5)

前記混合金属酸化物が、酸化アルミニウムおよびパラジウムのみからなる、項目4に記載のナノ粒子。

(項目6)

前記混合金属酸化物が、前記ナノ粒子の中心コアを取り囲む単層を形成する、項目1に記載のナノ粒子。

10

(項目7)

前記中心コアがシリカを含む、項目6に記載のナノ粒子。

(項目8)

ナノ粒子を形成する方法であって、

ある量の酸化アルミニウム材料およびある量のパラジウム材料を所望の比でプラズマ銃に装填するステップと、

前記プラズマ銃を使用して前記ある量の酸化アルミニウム材料および前記ある量のパラジウム材料を蒸発させ、それによって蒸発酸化アルミニウムおよび蒸発パラジウムを含む蒸気雲を形成するステップと、

20

前記蒸気雲を急冷し、それによって前記蒸発酸化アルミニウムおよび前記蒸発パラジウムを凝縮してナノ粒子にするステップと
を含み、

各ナノ粒子は、内部領域および外面を含み、前記内部領域は、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含む混合金属酸化物を含み、前記外面は純金属パラジウムを含む、方法。

(項目9)

前記ある量の酸化アルミニウム材料および前記ある量のパラジウム材料を蒸発させる前記ステップが、

前記プラズマ銃の反応器内に作動ガスを流すことと、

前記作動ガスにエネルギーを送達し、それによってプラズマストリームを形成することと、

30

前記ある量の酸化アルミニウム材料および前記ある量のパラジウム材料を前記プラズマストリーム中に流すことと
を含む、項目8に記載の方法。

(項目10)

前記内部領域内の前記パラジウムが、前記外面の前記純金属パラジウムまで延在し、これに結合している、項目8に記載の方法。

(項目11)

前記ナノ粒子が、約10ナノメートル以下の平均粒度を有する、項目8に記載の方法。

(項目12)

40

前記混合金属酸化物が、前記ナノ粒子の中心コアを形成する、項目8に記載の方法。

(項目13)

前記混合金属酸化物が、酸化アルミニウムおよびパラジウムのみからなる、項目12に記載の方法。

(項目14)

ナノ粒子を形成する方法であって、

ある量のアルミニウム材料およびある量のパラジウム材料を所望の比で用意するステップと、

湿式化学プロセスを使用して、前記ある量のアルミニウム材料および前記ある量のパラジウム材料から複数のナノ粒子を形成するステップと

50

を含み、

各形成されたナノ粒子は、内部領域および外面を含み、前記内部領域は、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含む混合金属酸化物を含み、前記外面は純金属パラジウムを含む、方法。

(項目15)

前記アルミニウム材料が塩または有機化合物であり、

前記パラジウム材料が塩であり、

前記湿式化学プロセスが、化学反応を介して前記アルミニウム材料および前記パラジウム材料から前記混合金属酸化物を形成することを含む、項目14に記載の方法。

(項目16)

前記混合金属酸化物が各ナノ粒子の中心コアを形成し、

前記混合金属酸化物が、酸化アルミニウムおよびパラジウムのみからなる、項目15に記載の方法。

(項目17)

湿式化学プロセスを使用して前記複数のナノ粒子を形成する前記ステップが、各ナノ粒子の中心コアの周りに前記混合金属酸化物を含む単層を形成することを含む、項目14に記載の方法。

(項目18)

各ナノ粒子の前記中心コアがシリカを含む、項目17に記載の方法。

(項目19)

前記内部領域内の前記パラジウムが、前記外面の前記純金属パラジウムまで延在し、これに結合している、項目14に記載の方法。

(項目20)

前記ナノ粒子が、約10ナノメートル以下の平均粒度を有する、項目14に記載の方法

。

(項目21)

内部領域および外面を含む担体ナノ粒子であって、前記内部領域は、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含む混合金属酸化物を含み、前記外面は純金属パラジウムを含む、担体ナノ粒子と、

前記外面の前記純金属パラジウムに結合した、白金である触媒ナノ粒子とを含む触媒担体ナノ粒子。

(項目22)

前記内部領域内の前記パラジウムが、前記外面の前記純金属パラジウムまで延在し、これに結合している、項目21に記載の触媒担体ナノ粒子。

(項目23)

前記担体ナノ粒子が、約10ナノメートル以下の直径を有する、項目21に記載の触媒担体ナノ粒子。

(項目24)

前記混合金属酸化物が、前記担体ナノ粒子の中心コアを形成する、項目21に記載の触媒担体ナノ粒子。

(項目25)

前記混合金属酸化物が、酸化アルミニウムおよびパラジウムのみからなる、項目24に記載の触媒担体ナノ粒子。

(項目26)

前記混合金属酸化物が、前記担体ナノ粒子の中心コアを取り囲む単層を形成する、項目21に記載の触媒担体ナノ粒子。

(項目27)

前記中心コアがシリカを含む、項目26に記載の触媒担体ナノ粒子。

(項目28)

ナノ粒子を形成する方法であって、

10

20

30

40

50

ある量の酸化アルミニウム材料、ある量のパラジウム材料、およびある量の白金材料を所望の比でプラズマ銃内に装填するステップと、

前記プラズマ銃を使用して前記ある量の酸化アルミニウム材料、前記ある量のパラジウム材料、および前記ある量の白金材料を蒸発させ、それによって蒸発酸化アルミニウム、蒸発パラジウム、および蒸発白金を含む蒸気雲を形成するステップと、

前記蒸気雲を急冷し、それによって前記蒸発酸化アルミニウム、前記蒸発パラジウム、および前記蒸発白金を凝縮して担体ナノ粒子にするステップと
を含み、

各担体ナノ粒子は、内部領域および外面を含み、前記内部領域は、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含む混合金属酸化物を含み、前記外面は純金属パラジウムを含み、白金ナノ粒子は、前記外面の前記純金属パラジウムに結合している、方法。

(項目 29)

前記ある量の酸化アルミニウム材料、前記ある量のパラジウム材料、および前記ある量の白金材料を蒸発させる前記ステップが、

前記プラズマ銃の反応器内に作動ガスを流すことと、

前記作動ガスにエネルギーを送達し、それによってプラズマストリームを形成することと、

前記ある量の酸化アルミニウム材料、前記ある量のパラジウム材料、および前記ある量の白金材料を前記プラズマストリーム中に流すことと
を含む、項目 28 に記載の方法。

(項目 30)

前記内部領域内の前記パラジウムが、前記外面の前記純金属パラジウムまで延在し、これに結合している、項目 28 に記載の方法。

(項目 31)

前記担体ナノ粒子が、約 10 ナノメートル以下の平均粒度を有する、項目 28 に記載の方法。

(項目 32)

前記混合金属酸化物が、前記担体ナノ粒子の中心コアを形成する、項目 28 に記載の方法。

(項目 33)

前記混合金属酸化物が、酸化アルミニウムおよびパラジウムのみからなる、項目 32 に記載の方法。

(項目 34)

ナノ粒子を形成する方法であって、

ある量のアルミニウム材料、ある量のパラジウム材料、およびある量の白金材料を所望の比で用意するステップと、

湿式化学プロセスを使用して、前記ある量のアルミニウム材料、前記ある量のパラジウム材料、および前記ある量の白金材料から複数の担体ナノ粒子を形成するステップと
を含み、

各担体ナノ粒子は、内部領域および外面を含み、前記内部領域は、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含む混合金属酸化物を含み、前記外面は純金属パラジウムを含み、白金ナノ粒子は、前記外面の前記純金属パラジウムに結合している、方法。

(項目 35)

前記アルミニウム材料が塩または有機化合物であり、

前記パラジウム材料が塩であり、

前記湿式化学プロセスが、化学反応を介して前記アルミニウム材料および前記パラジウム材料から前記混合金属酸化物を形成することと、複数のアルミニウム - パラジウム担体粒子を含む担体粒子懸濁物を形成することとを含み、各アルミニウム - パラジウム担体粒子は、内部領域および外面を含み、前記内部領域は、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含む前記混合金属酸化物を含み、前記外面は純金属パラジウムを含む、項目 34 に記載

10

20

30

40

50

の方法。

(項目 3 6)

前記湿式化学プロセスが、

白金溶液を前記担体粒子懸濁物と混合することと、

前記白金溶液から形成される白金ナノ粒子を、前記アルミニウム・パラジウム担体粒子上の前記純金属パラジウムに結合することと

をさらに含む、項目 3 5 に記載の方法。

(項目 3 7)

前記白金溶液が、硝酸白金溶液または塩化白金溶液である、項目 3 6 に記載の方法。

(項目 3 8)

前記アルミニウム材料が塩または有機化合物であり、

前記パラジウム材料が塩であり、

前記湿式化学プロセスが、化学反応を介して前記アルミニウム材料および前記パラジウム材料から前記混合金属酸化物を形成することと、各担体ナノ粒子の中心コアの周りに前記混合金属酸化物の単層を形成することと、前記担体ナノ粒子の懸濁物を形成することとを含み、前記中心コアは、前記単層と異なる化学組成物を含み、各単層は、内部領域および外面を含み、前記内部領域は、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含む前記混合金属酸化物を含み、前記外面は純金属パラジウムを含む、項目 3 4 に記載の方法。

(項目 3 9)

前記湿式化学プロセスが、

白金溶液をナノ粒子の前記懸濁物と混合することと、

前記白金溶液から形成される白金ナノ粒子を、前記担体ナノ粒子上の前記純金属パラジウムに結合することと

をさらに含む、項目 3 8 に記載の方法。

(項目 4 0)

前記白金溶液が、硝酸白金溶液または塩化白金溶液である、項目 3 9 に記載の方法。

(項目 4 1)

各担体ナノ粒子の前記中心コアがシリカを含む、項目 3 8 に記載の方法。

(項目 4 2)

前記内部領域内の前記パラジウムが、前記外面の純金属パラジウム・白金合金まで延在し、これに結合している、項目 3 4 に記載の方法。

(項目 4 3)

前記担体ナノ粒子が、約 10 ナノメートル以下の平均粒度を有する、項目 3 4 に記載の方法。

(項目 4 4)

ナノ粒子を形成する方法であって、

プラズマ銃を使用して複数のアルミニウム・パラジウム担体粒子を形成するステップであって、各アルミニウム・パラジウム担体粒子は、内部領域および外面を含み、前記内部領域は、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含む混合金属酸化物を含み、前記外面は純金属パラジウムを含む、ステップと、

湿式化学プロセスを使用して前記アルミニウム・パラジウム担体粒子のそれぞれの上の前記純金属パラジウムに白金ナノ粒子を付けるステップと
を含む、方法。

(項目 4 5)

前記プラズマ銃を使用して前記複数のアルミニウム・パラジウム担体粒子を形成するステップが、

ある量の酸化アルミニウム材料およびある量のパラジウム材料を所望の比で前記プラズマ銃に装填することと、

前記プラズマ銃を使用して前記ある量の酸化アルミニウム材料および前記ある量のパラジウム材料を蒸発させ、それによって蒸発酸化アルミニウムおよび蒸発パラジウムを含む

10

20

30

40

50

蒸気雲を形成することと、

前記蒸気雲を急冷し、それによって前記蒸発酸化アルミニウムおよび前記蒸発パラジウムを凝縮して担体ナノ粒子にすることと
を含み、

各担体ナノ粒子は、内部領域および外面を含み、前記内部領域は、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含む混合金属酸化物を含み、前記外面は純金属パラジウムを含む、項目44に記載の方法。

(項目46)

前記ある量の酸化アルミニウム材料および前記ある量のパラジウム材料を蒸発させる前記ステップが、

10

前記プラズマ銃の反応器内に作動ガスを流すことと、

前記作動ガスにエネルギーを送達し、それによってプラズマストリームを形成することと、

前記ある量の酸化アルミニウム材料および前記ある量のパラジウム材料を前記プラズマストリーム中に流すことと
を含む、項目45に記載の方法。

(項目47)

前記内部領域内の前記パラジウムが、前記外面の前記純金属パラジウムまで延在し、これに結合している、項目45に記載の方法。

(項目48)

20

前記アルミニウム-パラジウム担体粒子が、約10ナノメートル以下の平均粒度を有する、項目44に記載の方法。

(項目49)

前記混合金属酸化物が、各アルミニウム-パラジウム担体粒子の中心コアを形成する、項目44に記載の方法。

(項目50)

前記混合金属酸化物が、酸化アルミニウムおよびパラジウムのみからなる、項目49に記載の方法。

(項目51)

前記湿式化学プロセスが、

30

白金溶液を前記アルミニウム-パラジウム担体粒子と混合することと、

前記白金溶液から形成される白金ナノ粒子を、前記アルミニウム-パラジウム担体粒子上の前記純金属パラジウムに結合することと
を含む、項目44に記載の方法。

(項目52)

前記白金溶液が、硝酸白金溶液または塩化白金溶液である、項目51に記載の方法。

(項目53)

前記内部領域内の前記パラジウムが、前記外面の前記純金属パラジウムまで延在し、これに結合している、項目44に記載の方法。

(項目54)

40

前記アルミニウム-パラジウム担体粒子が、約10ナノメートル以下の平均粒度を有する、項目44に記載の方法。

(項目55)

支持構造体と、

前記支持構造体に結合した複数の担体ナノ粒子と

を含む触媒であって、各担体ナノ粒子は、内部領域および外面を含み、前記内部領域は混合金属酸化物を含み、前記外面は純金属を含み、触媒粒子は、前記外面の前記純金属に結合している、触媒。

(項目56)

前記支持構造体が多孔質セラミック材料であり、

50

前記複数の担体ナノ粒子が、前記セラミック材料の孔内に配置されている、項目 5 5 に記載の触媒。

(項目 5 7)

前記混合金属酸化物が酸化アルミニウムおよびパラジウムを含む、項目 5 5 に記載の触媒。

(項目 5 8)

前記純金属がパラジウムである、項目 5 5 に記載の触媒。

(項目 5 9)

前記内部領域内の前記混合金属酸化物が、前記外面の前記純金属まで延在し、これに結合している、項目 5 5 に記載の触媒。

10

(項目 6 0)

前記担体ナノ粒子が、約 10 ナノメートル以下の平均粒度を有する、項目 5 5 に記載の触媒。

(項目 6 1)

前記混合金属酸化物が、各担体ナノ粒子の中心コアを形成する、項目 5 5 に記載の触媒。

(項目 6 2)

前記混合金属酸化物が、酸化アルミニウムおよびパラジウムのみからなる、項目 6 1 に記載の触媒。

(項目 6 3)

前記混合金属酸化物が、各担体ナノ粒子の中心コアを取り囲む単層を形成する、項目 5 5 に記載の触媒。

20

(項目 6 4)

前記中心コアがシリカを含む、項目 6 3 に記載の触媒。

(項目 6 5)

前記外面が純金属の合金を含む、項目 5 5 に記載の触媒。

(項目 6 6)

前記触媒粒子が白金である、項目 5 5 に記載の触媒。

(項目 6 7)

エージングしない触媒である、項目 5 5 に記載の触媒。

30

(項目 6 8)

触媒を形成する方法であって、

支持構造体を用意するステップと、

複数の担体ナノ粒子を用意するステップであって、各担体ナノ粒子は、内部領域および外面を含み、前記内部領域は混合金属酸化物を含み、前記外面は純金属を含み、触媒粒子は前記外面の前記純金属に結合している、ステップと、

前記複数の担体ナノ粒子を前記支持構造体に結合するステップとを含む、方法。

(項目 6 9)

前記支持構造体が多孔質セラミック材料であり、

40

前記複数の担体ナノ粒子が、前記セラミック材料の孔内に配置されている、項目 6 8 に記載の方法。

(項目 7 0)

前記混合金属酸化物が、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含み、前記純金属が純金属パラジウムを含む、項目 6 8 に記載の方法。

(項目 7 1)

前記触媒粒子が白金である、項目 6 8 に記載の方法。

(項目 7 2)

前記内部領域内の前記パラジウムが、前記外面の前記純金属パラジウムまで延在し、これに結合している、項目 6 8 に記載の方法。

50

(項目 7 3)

前記担体ナノ粒子が、約 10 ナノメートル以下の平均粒度を有する、項目 6 8 に記載の方法。

(項目 7 4)

前記混合金属酸化物が、前記担体ナノ粒子の中心コアを形成する、項目 6 8 に記載の方法。

(項目 7 5)

前記混合金属酸化物が、酸化アルミニウムおよびパラジウムのみからなる、項目 7 4 に記載の方法。

(項目 7 6)

複数の担体ナノ粒子を用意する前記ステップが、
ある量の第 1 材料、ある量の第 2 材料、およびある量の第 3 材料を所望の比でプラズマ銃内に装填することと、

前記プラズマ銃を使用して前記ある量の前記第 1 材料、前記ある量の前記第 2 材料、および前記ある量の前記第 3 材料を蒸発させ、それによって蒸発第 1 材料、蒸発第 2 材料、および蒸発第 3 材料を含む蒸気雲を形成することと、

前記蒸気雲を急冷し、それによって前記蒸発第 1 材料、前記蒸発第 2 材料、および前記蒸発第 3 材料を凝縮して担体ナノ粒子にすることであって、各担体ナノ粒子は、前記内部領域および前記外面を含む、ことと
を含む、項目 6 8 に記載の方法。

(項目 7 7)

前記ある量の前記第 1 材料材料、前記ある量の前記第 2 材料、および前記ある量の前記第 3 材料を蒸発させる前記ステップが、

前記プラズマ銃の反応器内に作動ガスを流すことと、
前記作動ガスにエネルギーを送達し、それによってプラズマストリームを形成することと、

前記ある量の前記第 1 材料、前記ある量の前記第 2 材料、および前記ある量の前記第 3 材料を前記プラズマストリーム中に流すことと
を含む、項目 7 6 に記載の方法。

(項目 7 8)

複数の担体ナノ粒子を用意する前記ステップが、
ある量の第 1 材料、ある量の第 2 材料、およびある量の第 3 材料を所望の比で用意することと、

湿式化学プロセスを使用して、前記ある量の前記第 1 材料、前記ある量の前記第 2 材料、および前記ある量の前記第 3 材料から前記複数の担体ナノ粒子を形成することと
を含む、項目 6 8 に記載の方法。

(項目 7 9)

前記混合金属酸化物が、前記第 1 材料および前記第 2 材料を含み、前記外面が前記第 2 材料を含み、前記触媒粒子が前記第 3 材料を含む、項目 7 8 に記載の方法。

(項目 8 0)

前記湿式化学プロセスが、
化学反応を介して前記第 1 材料および前記第 2 材料から前記混合金属酸化物を形成することと、

複数の担体粒子を含む担体粒子懸濁物を形成することであって、各担体粒子は、前記内部領域および前記外面を含み、前記内部領域の前記混合金属酸化物は、前記第 1 材料および前記第 2 材料を含み、前記外面の前記純金属は、前記第 2 材料を含む、ことと
を含む、項目 7 8 に記載の方法。

(項目 8 1)

前記第 1 材料がアルミニウム材料であり、
前記第 2 材料がパラジウム材料である、項目 8 0 に記載の方法。

10

20

30

40

50

(項目 8 2)

前記アルミニウム材料が塩または有機化合物であり、

前記パラジウム材料が塩である、項目 8 1 に記載の方法。

(項目 8 3)

前記湿式化学プロセスが、

触媒溶液を前記担体粒子懸濁物と混合することと、

前記触媒溶液から形成される触媒ナノ粒子を、前記担体粒子上の前記純金属に結合することと

をさらに含む、項目 8 0 に記載の方法。

(項目 8 4)

前記触媒溶液が白金溶液であり、前記触媒ナノ粒子が白金ナノ粒子である、項目 8 3 に記載の方法。

(項目 8 5)

前記白金溶液が、硝酸白金溶液または塩化白金溶液である、項目 8 4 に記載の方法。

(項目 8 6)

前記混合金属酸化物を形成することが、各担体粒子の中心コアの周りに単層を形成することを含み、前記中心コアは、前記単層と異なる化学組成物を含み、各単層は、前記内部領域および前記外面を含む、項目 8 0 に記載の方法。

(項目 8 7)

前記混合金属酸化物が、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含み、前記外面の前記純金属がパラジウムを含む、項目 8 6 に記載の方法。

(項目 8 8)

前記湿式化学プロセスが、

触媒溶液を前記担体粒子懸濁物と混合することと、

前記触媒溶液から形成される触媒ナノ粒子を、前記担体粒子上の前記純金属に結合することと

をさらに含む、項目 8 6 に記載の方法。

(項目 8 9)

前記触媒溶液が白金溶液であり、前記触媒ナノ粒子が白金ナノ粒子である、項目 8 8 に記載の方法。

(項目 9 0)

前記白金溶液が、硝酸白金溶液または塩化白金溶液である、項目 8 9 に記載の方法。

(項目 9 1)

各担体ナノ粒子の前記中心コアがシリカを含む、項目 8 6 に記載の方法。

(項目 9 2)

前記複数の担体ナノ粒子を用意する前記ステップが、

プラズマ銃を使用して複数の担体粒子を形成することであって、各担体粒子が前記内部領域および前記外面を含む、ことと、

湿式化学プロセスを使用して前記担体粒子のそれぞれの上の前記純金属に触媒ナノ粒子を付けることと

を含む、項目 6 8 に記載の方法。

(項目 9 3)

前記プラズマ銃を使用して前記複数の担体粒子を形成するステップが、

ある量の第 1 材料およびある量の第 2 材料を所望の比で前記プラズマ銃内に装填することと、

前記プラズマ銃を使用して前記ある量の前記第 1 材料および前記ある量の前記第 2 材料を蒸発させ、それによって蒸発第 1 材料および蒸発第 2 材料を含む蒸気雲を形成することと、

前記蒸気雲を急冷し、それによって前記蒸発第 1 材料および前記蒸発第 2 材料を凝縮して前記担体粒子にすることと

10

20

30

40

50

を含む、項目 9 2 に記載の方法。

(項目 9 4)

前記ある量の第 1 材料および前記ある量の第 2 材料を蒸発させるステップが、

前記プラズマ銃の反応器内に作動ガスを流すことと、

前記作動ガスにエネルギーを送達し、それによってプラズマストリームを形成することと、

前記ある量の第 1 材料および前記ある量の第 2 材料を前記プラズマストリーム中に流すことと

を含む、項目 9 3 に記載の方法。

(項目 9 5)

10

湿式化学プロセスを使用して前記純金属に触媒ナノ粒子を付けるステップが、

触媒溶液を前記コア粒子と混合することと、

前記触媒溶液から形成される触媒ナノ粒子を、前記担体粒子上の前記純金属に結合することと

を含む、項目 9 2 に記載の方法。

(項目 9 6)

前記触媒溶液が白金溶液であり、前記触媒ナノ粒子が白金ナノ粒子である、項目 9 5 に記載の方法。

(項目 9 7)

20

前記白金溶液が、硝酸白金溶液または塩化白金溶液である、項目 9 6 に記載の方法。

(項目 9 8)

前記複数の担体ナノ粒子を前記支持構造体に結合するステップが、焼成プロセスを実施することを含む、項目 6 8 に記載の方法。

(項目 9 9)

混合金属酸化物を含む内部領域と、

純金属を含む外面と

を含むナノ粒子。

(項目 1 0 0)

前記混合金属酸化物が酸化アルミニウムおよびパラジウムを含む、項目 9 9 に記載のナノ粒子。

30

(項目 1 0 1)

前記純金属がパラジウムである、項目 9 9 に記載のナノ粒子。

(項目 1 0 2)

前記内部領域内の前記混合金属酸化物が、前記外面の前記純金属まで延在し、これに結合している、項目 9 9 に記載のナノ粒子。

(項目 1 0 3)

約 10 ナノメートル以下の直径を有する、項目 9 9 に記載のナノ粒子。

(項目 1 0 4)

前記混合金属酸化物が、前記ナノ粒子の中心コアを形成する、項目 9 9 に記載のナノ粒子。

40

(項目 1 0 5)

前記混合金属酸化物が、酸化アルミニウムおよびパラジウムのみからなる、項目 1 0 4 に記載のナノ粒子。

(項目 1 0 6)

前記混合金属酸化物が、前記ナノ粒子の中心コアを取り囲む单層を形成する、項目 9 9 に記載のナノ粒子。

(項目 1 0 7)

前記中心コアがシリカを含む、項目 1 0 6 に記載のナノ粒子。

(項目 1 0 8)

前記外面が純金属の合金を含む、項目 1 0 6 に記載のナノ粒子。

50

(項目 109)

前記純金属の合金がパラジウム・白金合金である、項目108に記載のナノ粒子。

(項目 110)

ナノ粒子を形成する方法であって、

ある量の第1材料およびある量の第2材料を用意するステップと、

前記ある量の前記第1材料および前記ある量の前記第2材料から複数のナノ粒子を形成するステップであって、各ナノ粒子は、内部領域および外面を含み、前記内部領域は混合金属酸化物を含み、前記外面は純金属を含む、ステップとを含む、方法。

(項目 111)

10

前記混合金属酸化物が前記第1材料および前記第2材料を含み、前記純金属が前記第2材料を含む、項目110に記載の方法。

(項目 112)

前記混合金属酸化物が、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含み、前記純金属がパラジウムを含む、項目110に記載の方法。

(項目 113)

前記混合金属酸化物が、酸化アルミニウムおよびパラジウムを含み、前記純金属がパラジウム・白金合金を含む、項目110に記載の方法。

(項目 114)

前記複数のナノ粒子を形成する前記ステップが、

20

前記ある量の前記第1材料および前記ある量の前記第2材料を所望の比でプラズマ銃内に装填することと、

前記プラズマ銃を使用して前記ある量の前記第1材料および前記ある量の前記第2材料を蒸発させ、それによって蒸発第1材料および蒸発第2材料を含む蒸気雲を形成することと、

前記蒸気雲を急冷し、それによって前記蒸発第1材料および前記蒸発第2材料を凝縮してナノ粒子にすることであって、各ナノ粒子は、前記内部領域および前記外面を含む、こと

とを含む、項目110に記載の方法。

(項目 115)

30

前記ある量の前記第1材料材料および前記ある量の前記第2材料を蒸発させるステップが、

前記プラズマ銃の反応器内に作動ガスを流すことと、

前記作動ガスにエネルギーを送達し、それによってプラズマストリームを形成することと、

前記ある量の前記第1材料および前記ある量の前記第2材料を前記プラズマストリーム中に流すことと

を含む、項目114に記載の方法。

(項目 116)

40

前記混合金属酸化物が、前記第1材料および前記第2材料を含み、前記純金属が前記第2材料を含む、項目114に記載の方法。

(項目 117)

前記第1材料がアルミニウム材料であり、前記第2材料がパラジウム材料である、項目116に記載の方法。

(項目 118)

前記複数のナノ粒子を形成する前記ステップが、前記ある量の第1材料および前記ある量の第2材料を用いて湿式化学プロセスを実施することを含む、項目110に記載の方法。

(項目 119)

50

前記湿式化学プロセスが、化学反応を介して前記第1材料および前記第2材料から前記

混合金属酸化物を形成することを含む、項目 118 に記載の方法。

(項目 120)

前記第1材料がアルミニウム材料を含み、

前記第2材料がパラジウム材料を含む、項目 119 に記載の方法。

(項目 121)

前記アルミニウム材料が塩または有機化合物であり、

前記パラジウム材料が塩である、項目 120 に記載の方法。

(項目 122)

前記混合金属酸化物が、各ナノ粒子の中心コアを形成し、

前記混合金属酸化物が、酸化アルミニウムおよびパラジウムのみからなる、項目 119 10 に記載の方法。

(項目 123)

前記湿式化学プロセスが、各ナノ粒子の中心コアの周りに単層を形成することを含み、前記単層が前記混合金属酸化物を含む、項目 119 に記載の方法。

(項目 124)

各ナノ粒子の前記中心コアがシリカを含む、項目 123 に記載の方法。

(項目 125)

前記内部領域内の前記混合金属酸化物が、前記外面の前記純金属まで延在し、これに結合している、項目 110 に記載の方法。

(項目 126)

前記ナノ粒子が、約 10 ナノメートル以下の平均粒度を有する、項目 110 に記載の方法。

(項目 127)

混合金属酸化物を含む内部領域と、

純金属を含む外面と、

前記純金属および前記混合金属酸化物と異なる化学組成を有する、前記純金属に付けられた触媒粒子と

を含むナノ粒子。

(項目 128)

前記混合金属酸化物が、第1材料および第2材料を含み、

前記純金属が前記第2材料を含み、

前記触媒粒子が第3材料を含む、項目 127 に記載のナノ粒子。

(項目 129)

前記混合金属酸化物が、前記ナノ粒子の中心コアを取り囲む単層を形成する、項目 128 に記載のナノ粒子。

(項目 130)

前記中心コアがシリカを含む、項目 129 に記載のナノ粒子。

(項目 131)

前記混合金属酸化物が、酸化アルミニウムおよび金属ピン止め剤を含み、

前記純金属が、白金を含まない前記金属ピン止め剤を含み、

前記触媒粒子が白金を含む、項目 127 に記載のナノ粒子。

(項目 132)

前記金属ピン止め剤が、銅、モリブデン、またはコバルトを含む、項目 131 に記載のナノ粒子。

(項目 133)

前記触媒粒子が金属合金を含む、項目 131 に記載のナノ粒子。

(項目 134)

前記金属合金がパラジウム - 白金合金である、項目 133 に記載のナノ粒子。

(項目 135)

前記金属ピン止め剤が、銅、モリブデン、またはコバルトを含み、

10

20

30

40

50

前記触媒粒子がパラジウム - 白金合金を含む、項目 131 に記載のナノ粒子。

(項目 136)

前記内部領域内の前記混合金属酸化物が、前記外面の前記純金属まで延在し、これに結合している、項目 127 に記載のナノ粒子。

(項目 137)

約 10 ナノメートル以下の直径を有する、項目 127 に記載のナノ粒子。

(項目 138)

前記触媒粒子がナノ粒子である、項目 127 に記載のナノ粒子。

(項目 139)

前記触媒粒子が、約 1 ナノメートル以下の直径を有する、項目 138 に記載のナノ粒子

10

。

(項目 140)

前記触媒粒子が、約 1/2 ナノメートルの直径を有する、項目 139 に記載のナノ粒子

。

(項目 141)

ナノ粒子を形成する方法であって、

担体ナノ粒子を用意するステップであって、前記担体ナノ粒子は、内部領域および外面を含み、前記内部領域は混合金属酸化物を含み、前記外面は純金属を含む、ステップと、

触媒粒子を前記純金属に付けるステップであって、前記触媒粒子は、前記純金属および前記混合金属酸化物と異なる化学組成を有する、ステップと

20

を含む、方法。

(項目 142)

前記混合金属酸化物が、第 1 材料および第 2 材料から形成され、

前記純金属が前記第 2 材料から形成され、

前記触媒粒子が第 3 材料から形成される、項目 141 に記載の方法。

(項目 143)

前記混合金属酸化物が、前記担体ナノ粒子の中心コアを取り囲む単層を形成する、項目 142 に記載の方法。

(項目 144)

前記中心コアがシリカを含む、項目 143 に記載の方法。

30

(項目 145)

前記混合金属酸化物が、酸化アルミニウムおよび金属ピン止め剤を含み、

前記純金属が、白金を含まない前記金属ピン止め剤を含み、

前記触媒粒子が白金を含む、項目 141 に記載の方法。

(項目 146)

前記金属ピン止め剤が、銅、モリブデン、またはコバルトを含む、項目 145 に記載の方法。

(項目 147)

前記触媒粒子が金属合金を含む、項目 145 に記載の方法。

(項目 148)

40

前記金属合金がパラジウム - 白金合金である、項目 147 に記載の方法。

(項目 149)

前記金属ピン止め剤が、銅、モリブデン、またはコバルトを含み、

前記触媒粒子がパラジウム - 白金合金を含む、項目 145 に記載の方法。

(項目 150)

前記内部領域内の前記混合金属酸化物が、前記外面の前記純金属まで延在し、これに結合している、項目 141 に記載の方法。

(項目 151)

前記担体ナノ粒子が、約 10 ナノメートル以下の直径を有する、項目 141 に記載の方法。

50

(項目 152)

前記触媒粒子がナノ粒子である、項目141に記載の方法。

(項目 153)

前記触媒粒子が、約1ナノメートル以下の直径を有する、項目152に記載の方法。

(項目 154)

前記触媒粒子が、約1/2ナノメートルの直径を有する、項目153に記載の方法。

(項目 155)

前記担体ナノ粒子を用意する前記ステップ、および前記触媒粒子を前記純金属に付ける前記ステップが、プラズマ銃を使用して実施される、項目141に記載の方法。

(項目 156)

前記担体ナノ粒子を用意する前記ステップ、および前記触媒粒子を前記純金属に付ける前記ステップが、湿式化学プロセスを使用して実施される、項目141に記載の方法。

(項目 157)

前記担体ナノ粒子を用意するステップが、

ある量の第1材料およびある量の第2材料を所望の比でプラズマ銃内に装填することと、

前記ある量の前記第1材料および前記ある量の前記第2材料を蒸発させ、それによって蒸発第1材料および蒸発第2材料を含む蒸気雲を形成することと、

前記蒸気雲を急冷し、それによって前記蒸発第1材料および前記蒸発第2材料を凝縮して前記担体ナノ粒子にすることであって、前記担体ナノ粒子は、前記内部領域および前記外面を含む、ことと

を含む、項目141に記載の方法。

(項目 158)

前記ある量の前記第1材料材料および前記ある量の前記第2材料を蒸発させるステップが、

前記プラズマ銃の反応器内に作動ガスを流すことと、

前記作動ガスにエネルギーを送達し、それによってプラズマストリームを形成することと、

前記ある量の前記第1材料および前記ある量の前記第2材料を前記プラズマストリーム中に流すことと

を含む、項目157に記載の方法。

(項目 159)

前記触媒粒子を前記純金属に付ける前記ステップが、湿式化学プロセスを使用して実施される、項目157に記載の方法。

(項目 160)

前記湿式化学プロセスが、

触媒溶液を前記担体ナノ粒子と混合することと、

前記触媒溶液から形成される触媒粒子を、前記担体ナノ粒子上の前記純金属に結合することと

を含む、項目159に記載の方法。

(項目 161)

前記触媒溶液が白金溶液であり、前記触媒粒子が白金ナノ粒子である、項目160に記載の方法。

(項目 162)

前記白金溶液が、硝酸白金溶液または塩化白金溶液である、項目161に記載の方法。

(項目 163)

触媒ナノ粒子を形成する方法であって、

複数の担体ナノ粒子を用意するステップであって、各担体ナノ粒子は、内部領域および外面を含み、前記内部領域は混合金属酸化物を含み、前記外面は純金属を含む、ステップと、

10

20

30

40

50

触媒ナノ粒子を各担体ナノ粒子上の前記純金属に付けるステップと
を含む、方法。

(項目 164)

前記触媒ナノ粒子を前記純金属に付ける前記ステップが、プラズマ銃を使用して実施さ
れる、項目 163 に記載の方法。

(項目 165)

前記触媒ナノ粒子を前記純金属に付ける前記ステップが、

前記複数のナノ粒子およびある量の触媒材料を所望の比でプラズマ銃に装填することと
、

前記ある量の触媒材料を蒸発させ、それによって蒸発触媒材料を含む蒸気雲を形成する
ことと、

前記蒸気雲を急冷し、それによって、前記蒸発触媒材料を凝縮して、前記担体ナノ粒子
上の前記純金属に結合している触媒ナノ粒子にすることと
を含む、項目 164 に記載の方法。

(項目 166)

前記複数の担体ナノ粒子が、約 10 ナノメートル以下の平均粒度を有する、項目 164
に記載の方法。

(項目 167)

各触媒ナノ粒子が、約 1 ナノメートル以下の直径を有する、項目 166 に記載の方法。

(項目 168)

各触媒ナノ粒子が、約 1/2 ナノメートルの直径を有する、項目 167 に記載の方法。

(項目 169)

前記触媒ナノ粒子を前記純金属に付ける前記ステップが、湿式化学プロセスを使用して
実施される、項目 163 に記載の方法。

(項目 170)

湿式化学プロセスを使用して触媒ナノ粒子を前記純金属に付ける前記ステップが、
触媒溶液を前記複数の担体ナノ粒子と混合することと、

前記触媒溶液から形成される触媒ナノ粒子を、前記複数の担体ナノ粒子上の前記純金属
に結合することと

を含む、項目 169 に記載の方法。

(項目 171)

前記触媒溶液が白金溶液であり、前記触媒ナノ粒子が白金ナノ粒子である、項目 170
に記載の方法。

(項目 172)

前記白金溶液が、硝酸白金溶液または塩化白金溶液である、項目 171 に記載の方法。

【図面の簡単な説明】

【0075】

【図 1】図 1 は、本発明の原理による、担体ナノ粒子と結合した触媒ナノ粒子の一実施形
態の断面図を例示する。

【図 2】図 2 は、本発明の原理による、担体ナノ粒子と結合した触媒ナノ粒子の別の実施
形態の断面図を例示する。

【図 3A】図 3A は、本発明の原理による触媒の一実施形態の断面図を例示する。

【図 3B】図 3B は、本発明の原理による触媒の別の実施形態の断面図を例示する。

【図 4】図 4 は、本発明の原理による、触媒担体ナノ粒子およびこれに由来する触媒を生
成する方法の一実施形態を例示する。

【図 5】図 5 は、本発明の原理による、プラズマ銃を使用して触媒担体ナノ粒子を生成す
る方法の一実施形態を例示する。

【図 6】図 6 は、本発明の原理による、プラズマ銃を使用して触媒担体ナノ粒子を生成す
る方法の別の実施形態を例示する。

【図 7】図 7 は、本発明の原理によるプラズマベース粒子生成システムの一実施形態を例

10

20

30

40

50

示する。

【図8】図8は、本発明の原理によるプラズマベース粒子生成システムの別の実施形態を例示する。

【図9】図9は、本発明の原理による、湿式化学プロセスを使用しての触媒担体ナノ粒子の方法の一実施形態を例示する。

【図10】図10は、本発明の原理による、プラズマ銃および湿式化学プロセスの両方を使用して触媒担体ナノ粒子を生成する方法の一実施形態を例示する。

【発明を実施するための形態】

【0076】

以下の記述は、当業者が本発明を作製および使用するのを可能にするために提示され、特許出願およびその要求事項との関連で示されている。記載される実施形態の様々な改変は、当業者に容易に明らかとなり、本明細書の一般的な原理を他の実施形態に適用することができる。したがって、本発明は、示される実施形態に限定されることは意図されていないが、本明細書に記載の原理および特徴と一致する最も広い範囲に照応されるべきである。

10

【0077】

本開示は、本発明のいくつかの実施形態を用意する。任意の実施形態からの任意の特徴は、任意の他の実施形態からの任意の特徴と組み合わせることができることが企図されている。この様式で、例示および記載される実施形態のハイブリッド構成は、十分本発明の範囲内である。

20

【0078】

本開示は、粒子および粉末の両方に関する。これらの2つの用語は、単数形の「粉末」が粒子の集まりを指すという注意を除いて、等しい。本発明は、多種多様な粉末および粒子に適用され得る。本発明の範囲内に包含される粉末として、それだけに限らないが、以下のうちのいずれを挙げることができる：(a) 250ナノメートル未満の平均粒度および1～100万の間のアスペクト比を有するナノ構造粉末(ナノ粉末)、(b) 1ミクロン未満の平均粒度および1～100万の間のアスペクト比を有するサブミクロン粉末、(c) 100ミクロン未満の平均粒度および1～100万の間のアスペクト比を有する超微粉、ならびに(d) 500ミクロン未満の平均粒度および1～100万の間のアスペクト比を有する微粉。

30

【0079】

本開示の様々な態様は、流れ図を使用して記述することができる。多くの場合、本開示の一態様の1つの例を示すことができる。しかし、当業者によって理解されるように、本明細書に記載のプロトコール、プロセス、および手順は、本明細書に記載の要求を満たすために、連続的に、または必要な限り何度も繰り返すことができる。さらに、本発明のある特定の方法ステップは、流れ図に開示したものの代替の順序で実施され得ることが企図されている。したがって、特許請求の範囲は、順序が請求項の言い回しによって明示的に要求されない限り、方法ステップの任意の特定の順序に限定されるべきでない。

【0080】

図1は、本発明の原理による、担体ナノ粒子100に結合した触媒ナノ粒子130の一実施形態の断面図を例示する。担体ナノ粒子100は、内部領域および外面115を含む。外面115は、担体ナノ粒子100の周囲を画定する。いくつかの実施形態では、担体ナノ粒子100は、約10ナノメートル以下の直径を有し、これは、理想的なサイズであることが判明している。しかし、他の直径も本発明の範囲内であることが企図されている。

40

【0081】

内部領域は、担体粒子の中心と外面115との間の領域である。この内部領域は、混合金属酸化物110を含む。いくつかの実施形態では、混合金属酸化物110は、付随金属とともに酸化アルミニウムを含む。いくつかの実施形態では、この付随金属はパラジウムである。適当であることが判明している他の付随金属は、銅、モリブデン、およびコバルト。

50

トである。他の酸化物および他の金属も同様に使用され得ることが企図されている。

【0082】

外面は、純金属からなる1つまたは複数の純金属領域120を含む。これらの純金属領域に適当であることが判明している金属には、パラジウム、銅、モリブデン、およびコバルトが含まれる。しかし、他の金属も同様に使用され得ることが企図されている。本開示の目的に關して、用語「純金属」および「純金属の」は、領域が金属のみからなり、任意の他の種類の材料が存在しないことによって特徴付けられることを意味すると解釈されるべきである。例えば、純金属領域120は、金属または金属-金属合金を含むことができるが、これらは、いずれのセラミック材料も含む場合はない。これらの純粹に金属の領域120の目的は、触媒ナノ粒子130が強く引かれる、担体ナノ粒子100の外面115における曝露領域(exposed region)となることである。 10

【0083】

触媒ナノ粒子130は、これらの純金属領域120に結合しており、または他の方法で付いている。いくつかの実施形態では、これらの触媒ナノ粒子130は、白金を含み、またはそれからなる。いくつかの実施形態では、これらの触媒ナノ粒子130は、白金-パラジウム合金などの白金合金を含み、またはそれからなる。しかし、他の触媒材料も同様に使用され得ることが企図されている。いくつかの実施形態では、触媒ナノ粒子130は、約1ナノメートル以下の平均粒度を有する。いくつかの実施形態では、触媒ナノ粒子130は、約1/2ナノメートルの平均粒度を有する。しかし、他のサイズも本発明の範囲内であることが企図されている。図1は、担体ナノ粒子110上の1つを超える純金属領域120、および担体ナノ粒子110に結合した1つを超える触媒ナノ粒子130を示すが、これらの構成要素の他の量も本発明の範囲内であることが企図されている。例えば、いくつかの実施形態では、担体ナノ粒子110は、1つの別個の純金属領域120、および担体ナノ粒子110に結合した1つの別個の触媒ナノ粒子130のみを含む。いくつかの実施形態では、担体ナノ粒子110は、1つを超える別個の純金属領域120、および担体ナノ粒子110に結合した1つを超える別個の触媒ナノ粒子130を含む。 20

【0084】

純金属領域120は、混合金属酸化物110に結合しており、触媒ナノ粒子130を担体ナノ粒子100に確実に付けるためのピン止め剤として作用し、それによって触媒ナノ粒子130の可動性を低減または排除し、これらの凝集を防止する。 30

【0085】

図2は、本発明の原理による、担体ナノ粒子200に結合した触媒ナノ粒子230の一実施形態の断面図を例示する。担体ナノ粒子200は、内部領域および外面215を含む。外面215は、担体ナノ粒子200の周囲を画定する。いくつかの実施形態では、担体ナノ粒子200は、約10ナノメートル以下の直径を有し、これは、理想的なサイズであることが判明している。しかし、他の直径も本発明の範囲内であることが企図されている。 。

【0086】

内部領域は、担体粒子の中心と外面215との間の領域である。この内部領域は混合金属酸化物210を含む。いくつかの実施形態では、混合金属酸化物210は、付随金属とともに酸化アルミニウムを含む。いくつかの実施形態では、この付随金属はパラジウムである。適当であることが判明している他の付随金属は、銅、モリブデン、およびコバルトである。他の酸化物および他の金属も同様に使用され得ることが企図されている。 40

【0087】

図2の実施形態は、図1の実施形態と非常に類似している。しかし、担体ナノ粒子の中心から担体ナノ粒子の外面115および純金属領域120まで混合金属酸化物110のみを含むとして図1に示されている担体ナノ粒子100の内部領域と対照的に、担体ナノ粒子200の内部領域は、周りに混合金属酸化物210の単層が形成されている中心コア205を有するものとして図2に示されている。いくつかの実施形態では、この中心コア205は、セラミック材料から形成される。いくつかの実施形態では、この中心コア205 50

は、シリカから形成される。しかし、他の材料も中心コア 205 を形成するのに適当であり得ることが企図されている。

【0088】

担体ナノ粒子 100 の外面と同様に、担体ナノ粒子 200 の外面は、純金属からなる 1 つまたは複数の純金属領域 220 を含む。これらの純金属領域に適当であることが判明している金属には、パラジウム、銅、モリブデン、およびコバルトが含まれる。しかし、他の金属も同様に使用され得ることが企図されている。本開示の目的に関して、用語「純金属」および「純金属の」は、領域が金属のみからなり、任意の他の種類の材料が存在しないことによって特徴付けられることを意味すると解釈されるべきである。例えば、純金属領域 220 は、金属または金属 - 金属合金を含むことができるが、これらは、いずれのセラミック材料も含む場合はない。これらの純粹に金属の領域 220 の目的は、触媒ナノ粒子 230 が強く引かれる、担体ナノ粒子 200 の外面 215 における曝露領域となることである。

【0089】

図 1 の実施形態に関して上記に論じたように、触媒ナノ粒子 230 は、これらの純金属領域 220 に結合しており、または他の方法で付いている。いくつかの実施形態では、これらの触媒ナノ粒子 230 は、白金を含み、またはそれからなる。いくつかの実施形態では、これらの触媒ナノ粒子 230 は、白金 - パラジウム合金などの白金合金を含み、またはそれからなる。しかし、他の触媒材料も同様に使用され得ることが企図されている。いくつかの実施形態では、触媒ナノ粒子 230 は、約 1 ナノメートル以下の平均粒度を有する。いくつかの実施形態では、触媒ナノ粒子 230 は、約 1/2 ナノメートルの平均粒度を有する。しかし、他のサイズも本発明の範囲内であることが企図されている。図 2 は、担体ナノ粒子 210 上の 1 つを超える純金属領域 220 、および担体ナノ粒子 210 に結合した 1 つを超える触媒ナノ粒子 230 を示すが、これらの構成要素の他の量も本発明の範囲内であることが企図されている。例えば、いくつかの実施形態では、担体ナノ粒子 210 は、1 つの別個の純金属領域 220 、および担体ナノ粒子 210 に結合した 1 つの別個の触媒ナノ粒子 230 のみを含む。いくつかの実施形態では、担体ナノ粒子 210 は、1 つを超える別個の純金属領域 220 、および担体ナノ粒子 210 に結合した 1 つを超える別個の触媒ナノ粒子 230 を含む。

【0090】

図 1 の実施形態に関して先に論じたように、純金属領域 220 は、混合金属酸化物 210 に結合しており、触媒ナノ粒子 230 を担体ナノ粒子 200 に確実に付けるためのピン止め剤として作用し、それによって触媒ナノ粒子 230 の可動性を低減または排除し、これらの凝集を防止する。

【0091】

図 1 ~ 2 の実施形態または本発明の範囲内のいくつかの他の実施形態に関するか否かにかかわらず、構成要素の化学的および構造的組成は、変更することができる。例えば、いくつかの実施形態では、混合金属酸化物は、酸化アルミニウムを含み、またはそれからなり、純金属領域は、パラジウムを含み、またはそれからなり、触媒粒子は、白金を含み、またはそれからなる。いくつかの実施形態では、内部領域は、混合金属酸化物のみからなる。いくつかの実施形態では、内部領域は、混合金属酸化物の単層によって取り囲まれたセラミック中心コアを含む。いくつかの実施形態では、純金属は、パラジウム以外の金属、例えば、銅、モリブデン、もしくはコバルトなどを含み、またはそれからなる。いくつかの実施形態では、触媒粒子は、パラジウム - 白金合金を含み、またはそれからなる。いくつかの実施形態では、純金属は、パラジウム以外の金属、例えば、銅、モリブデン、もしくはコバルトなどを含み、またはそれからなり、触媒粒子は、パラジウム - 白金合金を含み、またはそれからなる。

【0092】

図 1 ~ 2 の実施形態または本発明の範囲内のいくつかの他の実施形態に関するか否かにかかわらず、触媒ナノ粒子の 1 つまたは複数と担体ナノ粒子との結合により、触媒担体ナ

10

20

30

40

50

ノ粒子の形成が定義される。これらの触媒担体ナノ粒子は、使用可能な触媒を形成するために、触媒担持体上に植え付け (imregnate)、または他の方法で付けることができる。いくつかの実施形態では、触媒担持体はセラミック材料である。いくつかの実施形態では、触媒担持体は酸化物材料である。いくつかの実施形態では、触媒担持体はモノリスである。いくつかの実施形態では、触媒担持体は押し出し物である。このような担持体は、 $250\text{ m}^2/\text{g}$ もの高い、その非常にアクセス可能で大きい表面積のために有用性がある。いくつかの実施形態では、触媒担持体は巨視的担持粒子である。このような実施形態では、巨視的担持粒子のサイズは、触媒担体ナノ粒子が結合または固定される最大表面積をもたらすように選択される。いくつかの実施形態では、触媒担持体は多孔質構造体である。

10

【0093】

いくつかの実施形態では、混合金属酸化物 210 は、部分的な単層と複数の単層の間のものであり得る。いくつかの実施形態では、純金属領域 220 は、金属粒子を繋ぎ止めるための少なくとも 1 つの結合部位を有する、マトリックス中の酸素原子に部分的に結合した金属原子と、混合金属酸化物中に組み込まれた 1 つまたは複数の原子、および金属触媒作用粒子 (例えば、白金ナノ粒子) との合金形成に利用可能な 1 つまたは複数の純金属原子を含む金属原子クラスターとの間のものであり得る。

【0094】

図 3A は、本発明の原理による触媒 300A の一実施形態の断面図を例示する。触媒 300A は、上記に論じた触媒担体ナノ粒子などの触媒担体ナノ粒子 330A を植え付けられた、多孔質構造体である触媒担持体 310A を含む。多孔質構造体として、触媒担持体 310A は、複数の孔 320 を含む。植え付けられた多孔質担持体 310A のクローズアップ図が図 3A に例示されており、孔 320 内に固定された触媒担体ナノ粒子 330A を示している。

20

【0095】

図 3B は、本発明の原理による触媒 300B の別の実施形態の断面図を例示する。触媒 300B は、上記に論じた触媒担体ナノ粒子などの触媒担体ナノ粒子 330B を植え付けられた、マクロな担持体である触媒担持体 310B を含む。

【0096】

触媒担持体 310A、310B に触媒担体ナノ粒子 330A、330B を植え付けるのに、様々な異なる方法が使用され得ることが企図されている。いくつかの実施形態では、触媒担体ナノ粒子の液体分散系が触媒担持体に適用される。触媒担持体は乾燥させられ、かつ / または乾燥プロセスが触媒担持体に実施される。分散系中の液体が蒸発する際に、触媒担体ナノ粒子は、担持体の表面上および / または担持体内の孔中に定着する。植え付けられた触媒担持体が乾燥すると、触媒担体ナノ粒子と触媒担持体との間の静電相互作用および他の力が何らかの接着をもたらす。有利には、このような力は、ナノ粒子を担持体の表面および孔上に固着させる。

30

【0097】

いくつかの実施形態では、熱、圧力、またはこれらの組合せに曝露して、ナノ粒子と触媒担持体との間の酸化物 - 酸化物結合を形成するために、焼成 (calcining) ステップが実施される。焼成温度は一般に、 $350 \sim 1000$ セ氏温度であり、圧力は、周囲の気圧 ~ 数気圧の程度である。酸化物 - 酸化物結合を最適にするために、触媒担体ナノ粒子の一部は、触媒担持体が構成される材料に対応するように選ばれる。例として、触媒担体ナノ粒子の一部がアルミナを含む場合、触媒担持体は、アルミナを含むことが好ましいが、非類似の酸化物も企図されている。触媒担持体とナノ粒子との間の物理的および化学的結合のために、触媒担持体の表面に結合、固定、または他の方法でピン止めされたナノ粒子のアイランドは、触媒転換の間に移動および合体しない。触媒作用のための表面積は大きいままであり、したがって触媒活性は高いままである。事実上、精製化学工場および石油精製所などの運転は、既存のプロセスと同じ頻度で運転を停止し、無効な触媒担持体を新鮮な触媒担持体と取り換えることを要求されないことになり、それによって工場お

40

50

および精製所における処理量を増大させ、これらの運転の全体的なコストを低減する。

【0098】

図4は、本発明の原理による、触媒担体ナノ粒子およびこれに由来する触媒を生成する方法の一実施形態を例示する。

【0099】

ステップ410で、複数の担体ナノ粒子が形成される。各担体ナノ粒子は、内部領域および外面を含む。内部領域は混合金属酸化物を含み、一方、外面は純金属を含む。担体ナノ粒子は、図1～2に関して上記に論じた構成要素のいずれも含むことができる。

【0100】

ステップ420で、少なくとも1つの触媒粒子が担体ナノ粒子のそれぞれに結合され、それによって触媒担体ナノ粒子を形成する。触媒粒子は、担体粒子の外面の純金属に結合される。触媒粒子は、図1～2に関して上記に論じた構成要素のいずれも含むことができる。

【0101】

ステップ430で、複数の担体ナノ粒子が支持構造体に結合される。このような支持構造体の一例は、多孔質セラミック材料である。しかし、他の種類の支持構造体も使用され得ることが企図されている。支持構造体は、図3A～Bに関して上記に論じた構成要素のいずれも含むことができる。

【0102】

図5は、本発明の原理による、プラズマ銃を使用して触媒担体ナノ粒子を生成する方法の一実施形態を例示する。

【0103】

ステップ510で、第1材料、第2材料、および第3材料が、所望の比でプラズマ銃に装填される。いくつかの実施形態では、第1材料は酸化アルミニウム材料であり、第2材料はパラジウム材料であり、第3材料は白金材料である。しかし、これらの材料に加えて、またはその代替として他の材料も使用され得ることが企図されている。

【0104】

ステップ520で、第1材料、第2材料、および第3材料がプラズマ銃を使用して蒸発され、それによって蒸発第1材料、蒸発第2材料、および蒸発第3材料を含む蒸気雲を形成する。

【0105】

ステップ530で、蒸気雲が急冷され、それによって蒸発材料が凝縮して、担体ナノ粒子に結合した触媒ナノ材料を有する担体ナノ粒子になる。各ナノ粒子は、内部領域および外面を含む。内部領域は混合金属酸化物を含む。外面は純金属を含む。触媒ナノ材料は、外面の純金属に結合している。

【0106】

本発明は、装填材料を蒸発および急冷させてナノ粒子にするために、様々な異なる種類のプラズマ銃システムを使用できることが企図されている。好適な実施形態では、ナノ粒子はサイズが実質的に均一である。ナノ粒子は、2005年4月19日に出願され、「High Throughput Discovery of Materials Through Vapor Phase Synthesis」という表題の共同所有の同時係属出願第11/110,341号、および2008年5月8日に出願され、「Highly Turbulent Quench Chamber」という表題の共同所有の同時係属出願第12/151,935号に記載および特許請求されているものなど、プラズマプロセス中にミクロンサイズの材料を導入することによって形成することができる。両出願は、本明細書に示されているように、参照により本明細書に組み込まれている。

【0107】

図7は、本発明の原理によって使用することができるプラズマベース粒子生成システム700の一実施形態を例示する。システム700は、ナノ粒子を生成するのに、プラズマプロセスおよび高乱流急冷チャンバー(highly turbulent quenc

10

20

30

40

50

h chamber) 745を使用する。システム700は、プラズマ生成および反応チャンバー730と流体的に連結した前駆体供給デバイス710および作動ガス供給デバイス720を備える。エネルギー送達システム725も、プラズマ生成および反応器チャンバー730と連結している。プラズマ生成および反応器チャンバー730は、圧縮急冷チャンバー(*constricting quench chamber*)745と流体的に連通する注入ポート740を含む。1つまたは複数のポート790はまた、急冷チャンバー745と制御気圧システム770との間を流体連通させることができる。急冷チャンバー745は、出口765にも流体的に連結している。

【0108】

一般に、チャンバー730は、反応器として動作し、ガストリーム内で粒子を含むアウトプットを生成する。生成は、本明細書で後に記載される組合せ、反応、およびコンディショニングの基本ステップを含む。システムは、チャンバー730のエネルギー送達ゾーン内で、前駆体供給デバイス710から供給される前駆体材料と、作動ガス供給デバイス720から供給される作動ガスとを組み合わせる。

【0109】

いくつかの実施形態では、前駆体材料は、粉末状物質を含む。いくつかの実施形態では、前駆体材料は、ミクロンサイズになっている。いくつかの実施形態では、前駆体材料は、500～600ナノメートルの平均粒径を構成する。いくつかの実施形態では、前駆体材料は、1マイクロメートルの平均粒径を構成する。いくつかの実施形態では、前駆体材料は、5ミクロン以上の平均粒径を構成する。

【0110】

システムは、エネルギー供給システム725からのエネルギーを使用してチャンバー730内の作動ガスにエネルギーを与え、それによって、プラズマを形成する。プラズマがチャンバー730内の前駆体材料に印加され、エネルギー付与された反応混合物を形成する。この混合物は、蒸気、ガス、およびプラズマを含み得る、複数の相のうちの少なくとも1つでの1つまたは複数の材料を含む。反応混合物は、プラズマ生成および反応器チャンバー730から注入ポート740を通じて急冷チャンバー745内に流れる。

【0111】

急冷チャンバー745は好ましくは、実質的に円筒形の表面750、円錐台形(*frustum-conical*)表面755、および注入ポート740を円筒形表面750と接続する環状表面760を備える。円錐台形表面760は、出口765に合うように狭くなる。プラズマ生成および反応器チャンバー730は、その末端に注入ポート740が配置された延長部分を含む。この延長部分は、注入ポート740と出口765との間の距離を短くし、急冷領域と呼ばれる、反応混合物とコンディショニング流体が混合することになる領域の体積を低減する。好適な実施形態では、注入ポート740は、出口765と同軸上に配置されている。注入ポートの中心は、出口765から第1の距離 d_1 に位置されている。注入ポートの周囲は、円錐台形表面755の部分から第2の距離 d_2 に位置されている。注入ポート740および円錐台形表面755は、これらの間で上述の急冷領域を形成する。注入ポート740の周囲と円錐台形表面755との間の空間は、急冷領域内にコンディショニング流体を供給するためのチャネルとして作用するギャップをこれらの間に形成する。円錐台形表面755は、ギャップを通じ、急冷領域内に流体を向かわせる漏斗面(*funneling surface*)として作用する。

【0112】

反応混合物が急冷チャンバー745内に流れる間、ポート790は、急冷チャンバー745内にコンディショニング流体を供給する。次いでコンディショニング流体は、円錐台形表面755に沿って、注入ポート740と円錐台形表面755との間のギャップを通り、急冷領域内へと移動する。いくつかの実施形態では、制御気圧システム770が、急冷領域に供給されるコンディショニング流体の体積流量または質量流量を制御するために構成される。

【0113】

10

20

30

40

50

反応混合物が注入ポート 740 から外に移動する際、これは広がり、コンディショニング流体と混合する。好ましくは、コンディショニング流体が供給される角度により高い程度の乱流が生じ、反応混合物との混合が促進される。この乱流は、多くのパラメータに依存し得る。好適な実施形態では、これらのパラメータの 1 つまたは複数は、乱流のレベルを制御するために調節可能である。これらの要因には、コンディショニング流体の流量、円錐台形表面 755 の温度、円錐台形表面 755 の角度（これは、コンディショニング流体が急冷領域内に供給される角度に影響する）、および急冷領域のサイズが含まれる。例えば、円錐台形表面 755 および注入ポート 740 の相対的な位置決めは調節可能であり、これは、急冷領域の体積を調節するのに使用することができる。これらの調節は、それだけに限らないが、自動手段および手動手段を含めた様々な異なる機構を使用して、様々な異なる方法で行うことができる。

【 0114 】

急冷チャンバー 745 に入った直後の短期間の間に粒子形成が起こる。粒子が凝集する程度は、冷却の速度に依存する。冷却速度は、急冷領域内の流れの乱流に依存する。好ましくは、システムは、高乱流を形成し、非常に分散した粒子を形成するように調節される。例えば、好適な実施形態では、急冷領域内の流れの乱流度（turbidity）は、流れが少なくとも 1000 のレイノルズ数を有するようなものである。

【 0115 】

依然として図 7 を参照すると、急冷チャンバー 745 の構造は、相当な量の熱を消散させることができる相対的に薄い壁で仕切られたコンポーネントで形成されることが好ましい。例えば、薄い壁で仕切られたコンポーネントは、チャンバー内側からの熱を伝導し、周囲にその熱を輻射することができる。

【 0116 】

相当な熱は、急冷チャンバー 745 内に流入した後の反応混合物からほとんど放射線の形態で放出される。急冷チャンバー 745 は、この熱を効率的に消散させるように設計される。急冷チャンバー 745 の表面は、冷却システム（図示せず）に曝露されていることが好ましい。好適な実施形態では、冷却システムは、円錐台形表面 755 の温度を制御するように構成される。

【 0117 】

急冷領域内への注入、冷却、および粒子形成の後、混合物は、出口ポート 765 を通じて急冷チャンバー 745 から流れる。発生器 795 によって生じる吸引により、混合物およびコンディショニング流体が急冷領域から流路 792 内に移動する。出口ポート 765 から、混合物は、吸引発生器 795 に向かって流路 792 に沿って流れる。好ましくは、粒子は、吸引発生器 795 に遭遇する前に、収集またはサンプリングシステム（図示せず）によって混合物から取り出される。

【 0118 】

依然として図 7 を参照すると、制御気圧システム 770 は、チャンバー 785 に流体的に連結しており、このチャンバーは、ポート（複数可）790 を通じて急冷領域に流体的に連結しており、この中にコンディショニング流体が、制御気圧システム 770 のリザーバから流路 780 を通じて導入される。上述したように、コンディショニング流体は、アルゴンを含むことが好ましい。しかし、他の不活性な相対的に重いガスも同様に好適である。やはり上記に論じたように、急冷チャンバー 745 内にコンディショニング流体を提供する好ましい機構は、急冷チャンバー 745 と出口 765 の間の圧力差の形成である。このような圧力差により、コンディショニング流体がポート 790 を通じて急冷チャンバー 745 内に引き込まれる。コンディショニング流体を提供する他の方法には、それだけに限らないが、チャンバー 785 内の陽圧形成が含まれる。

【 0119 】

円錐台形表面の角度は、コンディショニング流体が急冷領域内に供給される角度に影響し、これは、急冷領域内の乱流のレベルに影響し得る。コンディショニング流体は、複数の運動量ベクトルに沿って急冷領域内に流れることが好ましい。運動量ベクトル同士間の

10

20

30

40

50

角度の程度が大きいほど、生じる乱流のレベルが高い。好適な実施形態では、高乱流急冷チャンバーは、2つの運動量ベクトル間で少なくとも90度の角度があるように、少なくとも2つのコンディショニング流体の運動量ベクトルを急冷領域内に集めるように構成された円錐台形表面を備える。他の角度の度の閾値も同様に適用され得ることが企図されている。例えば、コンディショニング流体の運動量ベクトルの少なくとも1つと、反応混合物の運動量ベクトルとの間に形成される角度にも関心を払うことができる。高乱流急冷チャンバーの一実施形態では、反応混合物の入口は、反応混合物を第1の運動量ベクトルに沿って急冷領域内に供給するように構成され、円錐台形表面は、コンディショニング流体を第2の運動量ベクトルに沿って急冷領域に供給するように構成され、第2の運動量ベクトルは、第1の運動量ベクトルに対して20度超の斜角を有する。

10

【0120】

急冷領域のサイズも、急冷領域内の乱流のレベルに影響する。急冷領域が小さいほど、生じる乱流のレベルが高い。急冷領域のサイズは、注入ポート740の中心と出口765との間の距離を低減することによって低減することができる。

【0121】

本発明の実施形態によって生じる高乱流により、形成される粒子が互いに凝集し得る時間が減少し、それによってより均一なサイズの粒子が生成され、場合によっては、より小さいサイズの粒子が生成される。これらの特徴の両方により、分散性が増大し、表面積と体積の比が増大した粒子がもたらされる。上述したプラズマプロセスは、ナノ粒子の生成において極めて有利であるが、ナノ粒子は、他の方法で同様に生成され得ることが企図されている。

20

【0122】

図6は、本発明の原理による、プラズマ銃を使用して触媒担体ナノ粒子を生成する方法の別の実施形態を例示する。

【0123】

ステップ610で、第1材料および第2材料が所望の比でプラズマ銃内に装填される。いくつかの実施形態では、第1材料は酸化アルミニウム材料であり、第2材料はパラジウム材料である。しかし、これらの材料に加えて、またはその代替として他の材料も使用され得ることが企図されている。

【0124】

30

ステップ620で、第1材料および第2材料がプラズマ銃を使用して蒸発され、それによって蒸発第1材料および蒸発第2材料を含む蒸気雲が形成される。

【0125】

ステップ630で、蒸気雲が急冷され、それによって蒸発第1材料および蒸発第2材料が凝縮して担体ナノ粒子になる。各担体ナノ粒子は、内部領域および外面を含む。内部領域は混合金属酸化物を含む。外面は純金属を含む。

【0126】

ステップ640で、担体ナノ粒子および第3材料が、所望の比でプラズマ銃内に装填される。いくつかの実施形態では、第3材料は白金材料である。しかし、白金材料に加えて、またはその代替として他の材料も使用され得ることが企図されている。

40

【0127】

ステップ650で、第3材料がプラズマ銃を使用して蒸発され、それによって蒸発第3材料を含む蒸気雲が形成される。

【0128】

ステップ660で、担体ナノ粒子が蒸気雲中の蒸発第3材料と混合される。

【0129】

ステップ670で、蒸気雲が急冷され、それによって蒸発第3材料が凝縮して触媒ナノ粒子になり、これらが担体ナノ粒子の外面の純金属に結合される。

【0130】

上記に論じたように、本発明は、装填材料を蒸発および急冷させてナノ粒子にするため

50

に、様々な異なる種類のプラズマ銃システムを使用できることが企図されている。ナノ粒子は、2008年5月9日に出願され、「*P o w d e r C o a t i n g S y s t e m a n d M e t h o d I n c l u d i n g G u n E x t e n s i o n*」という表題の共同所有の同時係属出願第12/152,111号に記載および特許請求されているものなど、プラズマプロセス中にミクロンサイズの材料を導入することによって形成することができる。この出願は、本明細書に示されているように、参照により本明細書に組み込まれている。

【 0 1 3 1 】

図8は、本発明の原理によるプラズマベース粒子生成システム800の別の実施形態を例示する。システム800は、プラズマ生成チャンバー820、コーティングチャンバー830、冷却流路870、サンプリングシステム880、および原動ポンプ(*m o t i v e p u m p*)890を備える。プラズマ生成チャンバー820およびコーティングチャンバー830は、原動ガス(*m o t i v e g a s*)供給チャンバー810内に囲まれていることが好ましい。

【 0 1 3 2 】

原動ガス供給チャンバー810は、原動ガスを供給するように構成された原動ガス供給システム815に流体的に連結されている。好ましくは、原動ガスは、アルゴンなどの不活性ガスである。さらに、チャンバー810は、流路がプラズマ生成チャンバー820およびコーティングチャンバー830まで供給するために通るのを可能にするように構成された気密の入口および出口を含むことが好ましい。原動ガス供給チャンバー810は、これらの流路がチャンバー内またはその外への漏れを防止しながら通ることを可能にする気密継手を含むことができる。さらに、コーティングチャンバー830からのアウトプットは、冷却流路870内に流れることができ、この冷却流路も原動ガス供給チャンバー810の壁を通ることができる。好ましくは、冷却流路870はまた、気密継手を通じて原動ガス供給チャンバーを出る。

【 0 1 3 3 】

プラズマ生成チャンバー820は、電力、ガス、およびターゲット材料を受け入れるためのいくつかの種類の入力部を含むことが好ましい。入力部は、以下に記載する手段を通じて様々な供給システムによってチャンバー820に備わっている。これらの供給システムの機能的な態様も以下に記載する。

【 0 1 3 4 】

様々な入力流路が、プラズマガス供給ミキサー840を、第1のガス供給容器842および第2のガス供給容器844と流体的に連結している。プラズマガス供給システム840は、プラズマ生成チャンバー820の入口と流体的に連結した出口を含む。ガス供給システム840および生成チャンバー820は、原動ガス供給チャンバー810を通る流路によって連結されている。好ましくは、図には示していないが、総合システム制御装置がプラズマガス供給システム840に制御シグナルを提供する。

【 0 1 3 5 】

電力供給システム825も、原動ガス供給チャンバー810を通る流路を通じてプラズマ生成チャンバー820に連結している。好ましくは、図には示していないが、総合システム制御装置が電力供給システム825に制御シグナルを提供する。

【 0 1 3 6 】

コーティング(*c o a t e r*)供給システム852は、前駆体材料を収容し、プラズマ生成チャンバー820の材料入口に流体的に連結された外部制御可能送達システムを含む。供給システム852は、原動ガス供給チャンバー810を通る流路によって生成チャンバー820と連結されている。好ましくは、図には示していないが、総合システム制御装置が供給システム852に制御シグナルを提供する。

【 0 1 3 7 】

好ましくは、プラズマガス供給システム840と生成チャンバー820、コーティング供給システム852とプラズマ生成チャンバー820、および電力供給システム825とプラ

10

20

30

40

50

ズマ生成チャンバー 820 の間を走る流路はすべて、気密シールを通じて原動ガス供給チャンバー 810 に入る。いくつかの実施形態では、様々な供給システムの流路はすべて、原動ガス供給チャンバー 810 への専用気密エントラנסを有する。いくつかの実施形態では、1つの気密エントラヌスが複数の流路に適応する。

【0138】

コーティングチャンバー 830 は、原動ガス、コーティング材料 - プラズマ混合物、およびコーティング (coating) 材料用の入口、ならびに冷却流路 870 にアウトプットを提供するための出口を含むことが好ましい。原動ガス用入口は、原動ガス供給チャンバー 810 をコーティングチャンバー 830 の内側に連結する。好ましくは、これらの入口は、2つのチャンバーを直接連結する調節可能なサイズのチャネルであり、それでも供給チャンバー 810 からコーティングチャンバー 830 への制御された流れを可能にする。

【0139】

コーティング材料は、コーティング材料供給システム 854 内に貯蔵され、これは、原動ガス供給チャンバー 810 の外側に置かれていることが好ましい。流路は、供給システム 854 から原動ガス供給チャンバー 810 を通り、コーティングチャンバー 830 の壁も通る。コーティング材料供給システム 854 は、流路にコーティング材料を提供する制御可能送達システムを含む。好ましくは、流路は、気密シールを通じて両チャンバーに入る。流路は、コーティングチャンバー内で、選択された位置で終わる。好ましくは、末端の位置は、運転のパラメータに基づいて選択される。やはり好ましくは、示していないが、総合システム制御装置が供給システム 854 に制御シグナルを供給するように構成されている。

【0140】

冷却流路 870 は、コーティングチャンバー 830 をサンプリングシステム 880 と接続する。流路 870 は、気密手段を通じて原動ガス供給チャンバー 810 を出る。冷却流路 870 は、第1のセクション 872、第2のセクション 874、第3のセクション 876、および第4のセクション 878 を含む。セクションは、ガス入力フィーチャを含むガス入力継手によってつながっている。第1のセクション 872 は、ガス入力継手 862 によって第2のセクション 874 につながっている。そして次に、第2のセクション 874 は、ガス入力継手 864 によって第3のセクション 876 につながっている。ガス入力継手 866 は、第3のセクション 876 を第4のセクション 878 につなぐ。

【0141】

例示した実施形態では、冷却流路 870 への入力のために、ガス入力継手 862、864、866 にガスがまったく供給されていない状態で示されている。しかし、ガス入力継手の1つまたは複数を通じてガスを供給することができる。

【0142】

サンプリングシステム 880 は、冷却流路 870 と原動ポンプ 890 との間で流体的に連結されている。サンプリングシステム 880 は、冷却流路 870 からアウトプットを受け入れるように構成され、アウトプットの残りが、流路を通じてサンプリングシステム 880 に流体的に連結されている原動ポンプ 890 に流れることを可能にし、試料材料はアウトプットからの適切な特性を有する。

【0143】

運転中、供給システム 840、852、および 825 は、プラズマ生成チャンバー 820 に、それぞれプラズマガス、コーティング材料、および電力を提供する。送達システム 825 からの電力は、生成チャンバー 820 内でプラズマを生成するために、供給システム 840 からのガスにエネルギーを与えるのに使用される。コーティング材料供給システム 852 は、計量された量のコーティング材料をプラズマ生成チャンバー 820 内に提供し、その中で形成されるプラズマにコーティング材料を曝露する。

【0144】

総合制御システム（図示せず）は、プラズマガス供給システム 840、コーティング材料供給システム 852、および電力供給システム 825 にシグナルを送って運転パラメータを設定する。プラズマガス供給システム 840 は、プラズマガスを生成するための第1のガ

10

20

30

40

50

スと第2のガスの混合比、およびプラズマガスがプラズマ生成チャンバー820内に流れ込む速度を決定する。好適な実施形態では、第1のガスは水素であり、第2のガスは、アルゴンなどの不活性ガスである。コーティング材料供給システム852は、コーティング材料がプラズマ生成チャンバー820内に供給される速度を決定する。電力供給システム825は、電力がプラズマ生成チャンバーに供給される電圧およびアンペア数を決定する。組合せで、これらのパラメータは、プラズマ生成チャンバー820内で生成されるプラズマの特性、およびやはりチャンバー820内で生成されるプラズマ-コーティング材料混合物の特性を決定する。さらに、コーティング供給システムは、1つの位置でプラズマ生成チャンバー820内に1つのコーティング材料のみを提供するものとして記載されているが、本発明のいくつかの実施形態では、コーティング供給システム852は、1つまたは複数の位置で、プラズマ生成チャンバー820内に複数の材料を供給する。

【0145】

原動ガス供給チャンバー810は、好ましくは専用の原動ガス供給システム815から、一般にアルゴンなどの不活性ガスである原動ガスを受け入れる。原動ガス供給チャンバー810は、プラズマ生成チャンバー820およびコーティングチャンバー830の周囲に気密エンクロージャーを提供する。原動ガス供給システム815は、原動ポンプ890によって生じる吸引力のいかなる変動にかかわらず、システム800が収容されている環境の周囲圧力をわずかに超える、原動ガス供給チャンバー810内の圧力を維持することが好ましい。

【0146】

コーティングチャンバー830は、プラズマ生成チャンバー820からコーティング材料およびプラズマ混合物を受け入れる。コーティングチャンバー830は、入力フィーチャを通じて原動ガスも受け入れる。好ましくは、これらの入力フィーチャは、調節可能な流量の原動ガスをコーティングチャンバー830内に提供する。原動ガスの流れは、好ましくは、流路870上を陰圧にすることにより原動ポンプ890によって原動力が与えられ、コーティングチャンバー870の出口を通じた質量流の原動力を与える。しかし、コーティングチャンバー830内への原動ガスの流量は、総合制御システムによって制御されることが好ましい。

【0147】

さらに、コーティング材料供給システム854は、コーティングチャンバー830内の流路の末端位置に、コーティング材料流路を通るコーティング材料の計量されたストリームを提供する。コーティング材料がチャンバー830内に提供される速度は、総合制御システムによって決定されることが好ましい。さらに、コーティング材料供給流路の末端は、コーティングチャンバー830内の1つの位置でのみ材料を堆積するように示されているが、本発明のいくつかの実施形態では、末端は、流路内の複数の位置で（例えば、プラズマ生成チャンバー820のアウトプットを取り囲む環状構成で）、コーティング材料を堆積する。

【0148】

好ましくは、コーティング材料およびプラズマ混合物がコーティングチャンバーに入り、その後まもなく最大エンタルピーに到達するように、コーティングチャンバー830が適合され、装置800の運転パラメータが制御される。最も好ましくは、エンタルピーのこの最大は、コーティングチャンバー830の規定領域内で起こり、混合物の平均エンタルピーは、これがその領域から離れるにつれて下がり、冷却流路870への出口でエンタルピーが最低（コーティングチャンバー830内で）になる。例えば、図8に例示したように、最大エンタルピーは領域1で起こる。これらの実施形態では、コーティング材料を送達するための末端の位置は、最大領域の外側で、最大領域と出口の間であるように選ばれる。

【0149】

さらに、本発明のある特定の実施形態では、コーティング材料が、コーティングチャンバー830の規定領域内でコーティング材料およびガス混合物から凝縮し始めるように、コーティングチャンバー830が適合され、装置800の運転パラメータが選ばれる。例えば、図8において、領域2がこのような初期凝縮領域である。一般に、初期凝縮領域は、コーティ

10

20

30

40

50

イングチャンバー 830 の最大エンタルピー領域と出口の間にある。いくつかの実施形態では、コーティー材料は、初期凝縮領域に送達される。好ましくは、これらの実施形態では、コーティー材料を蒸発させるのに十分なエンタルピーが凝縮化混合物中に残っている。したがって、コーテー材料が凝縮して粒子を形成しているとき、コーティー材料は、蒸発し、凝縮化粒子と混合される。コーテー材料ガス粒子混合物が蒸発したコーティー材料と混合し、出口に向かって移動する際、コーテーは、コーティー粒子上で凝縮し、複数のコート粒子を形成する。

【0150】

冷却流路 870 は、コーティングチャンバー 830 からコート粒子およびガス混合物を受け入れる。好ましくは、混合物は、原動ポンプ 890 によって冷却流路内に引き込まれる。しかし、いくつかの実施形態では、サンプリングシステム 880 内の原動ポンプまたは他のシステムが、混合物を引き込むための何らかの原動力をもたらす。もちろん、ある程度、プラズマ生成チャンバー 820 および原動ガス供給源 815 によってもたらされる圧力は、混合物が冷却流路 870 内に移動する原動力を与える。

10

【0151】

いくつかの実施形態では、冷却流路 870 は、能動冷却システムが装備されている。いくつかの実施形態では、ガスは、ガス入力継手 862、864、または 866 内に供給される。これらの実施形態のいくつかでは、ガスは、冷却および同伴ガスである。これらの実施形態のいくつかでは、ガスは、混合物内の凝縮粒子の反応性を低減するように構成されたパッシベーティングガス (passivating gas) である。

20

【0152】

上述したように、サンプリングシステム 880 は、原動ポンプ 890 にそれを通して原動力をもたらすことを可能にすることが好ましい。しかし、いくつかの実施形態では、サンプリングシステム 880 は、追加の原動力をもたらす。いくつかの実施形態では、サンプリングシステム 880 は、原動ポンプ 890 によってもたらされる原動力に取って代わり、冷却流路 870 に代わりの原動力をもたらす。

【0153】

サンプリングシステム 880 は、様々な方法で構成され得ることが企図されている。一実施形態では、サンプリングシステム 880 は、サンプリング構造、サンプリング構造内に形成された少なくとも 1 つの充填開口部 (filled aperture)、およびサンプリング構造内に形成された少なくとも 1 つの未充填開口部 (unfilled aperture) を備える。各充填開口部は、フィルターを使用するなどによって、混合物ストリームから粒子を収集するように構成されている。サンプリング構造は、パススルー構成と収集構成との間で調節されるように構成されている。パススルー構成は、流路 870 などの流路と流体的に整列された未充填開口部を備え、それによって、未充填開口部が流路から混合ストリームを受け入れ、混合物ストリームが、混合物ストリームの粒子含量を実質的に変化させないでサンプリング構造を通って流れることを可能にしている。収集構成は、流路と流体的に整列された充填開口部を備え、それによって、充填開口部が混合物ストリームを受け入れ、粒子を収集すると同時に混合物ストリームが充填開口部を通って流されることを可能にしている。

30

【0154】

サンプリング構造は、様々な方法でパススルー構成と収集構成との間で調節され得ることが企図されている。一実施形態では、サンプリング構造は、開口部の環状アレイを含むディスク形状構造であり、環状アレイは、複数の充填開口部および複数の未充填開口部を備える。サンプリング構造は、ベースに回転可能に取り付けられており、サンプリング構造の回転運動により、パススルート構成と収集構成との間でサンプリング構造が調節される。別の実施形態では、サンプリング構造は、開口部の直線アレイを含む矩形形状構造であり、直線アレイは、複数の充填開口部および複数の未充填開口部を備える。サンプリング構造は、ベースにスライド可能に取り付けられており、サンプリング構造のスライドにより、パススルート構成と収集構成との間でサンプリング構造が調節される。

40

50

【0155】

本発明の粒子は、プラズマベースシステムの使用に加えて、またはその代替として湿式化学法を使用して形成および結合され得ることが企図されている。このような方法には、それだけに限らないが、本明細書に示されているように参照により本明細書に組み込まれている、以下の参考文献に記載された方法が含まれる：Adschiriら、「Hydrothermal synthesis of metal oxide nanoparticles at supercritical conditions」(Journal of Nanoparticle Research、3巻：227～235頁、2001年)；Kratochvilら、「Preparation and properties of coated, uniform, inorganic colloidal particles: I. Aluminum (hydrinous) oxide on hematite, chromia, and titania」(Advanced Ceramics Materials、2巻：4頁、1987年)；Matijevic、「Monodispersed Metal (Hydroxides) Oxides - A Fascinating Field of Colloid Science」(Acc. Chem. Res.、14巻、22～29頁、1981年)；Lakshmiら、「Sol-Gel Template Synthesis of Semiconductor Oxide Micro- and Nanostructures」(Chem. Mater.、9巻、2544～2550頁、1997年)；Carnesら、「Synthesis, Characterization, and Adsorption Studies of Nanocrystalline Aluminum Oxide and a Biometalllic Nanocrystalline Aluminum Oxide/Magnesium Oxide」(Chem. Mater.、14巻、2922～2929頁、2002年)；Zhuら、「Alumina Nanofibers Prepared from Aluminum Hydrate with Poly(ethylene oxide) Surfactant」(Chem. Mater.、14巻、2086～2093頁、2002年)；Alexanderら、「PROCESS FOR MODIFYING THE PROPERTIES OF A SILICA SOL AND PRODUCT THEREOF」(1959年6月30日に発行された米国特許第2,892,797号)；Alexanderら、「AQUASOLS OF POSITIVELY-CHARGED COATED SILICA PARTICLES AND THEIR PRODUCTION」(1961年11月7日に発行された米国特許第3,007,878号)；Moore, Jr.、「STABLE POSITIVELY CHARGED ALUMINA COATED SILICA SOLS AND THEIR PREPARATION BY POST-NEUTRALIZATION」(1973年3月6日に発行された米国特許第3,719,607号)；Moore, Jr.、「STABLE POSITIVELY CHARGED ALUMINA COATED SILICA SOLS」(1973年7月10日に発行された米国特許第3,745,126号)；およびKovarik、「METAL OXIDE SOLS」(1975年2月4日に発行された米国特許第3,864,142号)。

【0156】

図9は、本発明の原理による、湿式化学プロセスを使用しての触媒担体ナノ粒子の方法900の一実施形態を例示する。

【0157】

ステップ910で、第1材料および第2材料が所望の比で用意される。いくつかの実施形態では、第1材料はアルミニウム材料であり、第2材料はパラジウム材料である。いくつかの実施形態では、アルミニウム材料は塩または有機化合物であり、パラジウム材料は塩である。しかし、これらの材料に加えて、またはその代替として他の材料も使用され得ることが企図されている。

10

20

30

40

50

【0158】

ステップ920で、複数の担体ナノ粒子が、湿式化学プロセスを使用する化学反応を介して第1材料および第2材料から形成される。各担体ナノ粒子は、内部領域および外面を含み、内部領域は混合金属酸化物を含む。外面は純金属を含む。いくつかの実施形態では、各担体ナノ粒子の中心コアはシリカを含む。

【0159】

ステップ930で、担体ナノ粒子の懸濁物が形成され、触媒溶液（触媒特性を有する粒子を含む溶液）と混合される。いくつかの実施形態では、触媒溶液は白金溶液である。いくつかの実施形態では、白金溶液は、硝酸白金溶液または塩化白金溶液である。しかし、他の種類の触媒溶液も使用され得ることが企図されている。

10

【0160】

ステップ940で、触媒溶液が担体ナノ粒子と反応し、それによって担体ナノ粒子の外面の純金属に触媒ナノ粒子をピン止めする。例えば、一実施形態では、触媒溶液に由来する白金イオンが担体ナノ粒子の酸化物表面と反応し、それにより別個の（discree）白金原子が担体ナノ粒子の表面上にたどり着くことになる。これらの原子は、酸化物表面にわたって拡散し、他の白金原子と凝集して白金ナノ粒子を形成することができる。白金ナノ粒子が酸化物表面に結合したパラジウム原子クラスターに到達すると、白金クラスターは、パラジウムクラスターと合金を形成し、それによって白金クラスターをピン止めする。いくつかの実施形態では、担体ナノ粒子は、約10ナノメートル以下の平均粒度を有する。いくつかの実施形態では、触媒ナノ粒子は、約1ナノメートル以下の平均粒度を有する。いくつかの実施形態では、触媒ナノ粒子は、約1/2ナノメートルの平均粒度を有する。しかし、他のサイズも本発明の範囲内であることが企図されている。

20

【0161】

図10は、本発明の原理による、プラズマ銃および湿式化学プロセスの両方を使用して触媒担体ナノ粒子を生成する方法1000の一実施形態を例示する。

【0162】

ステップ1010で、第1材料および第2材料が所望の比でプラズマ銃内に装填される。いくつかの実施形態では、第1材料は酸化アルミニウム材料であり、第2材料はパラジウム材料である。しかし、これらの材料に加えて、またはその代替として他の材料も使用され得ることが企図されている。

30

【0163】

ステップ1020で、第1材料および第2材料が、プラズマ銃を使用して蒸発され、それによって蒸発第1材料および蒸発第2材料を含む蒸気雲が形成される。

【0164】

ステップ1030で、蒸気雲が急冷され、それによって蒸発第1材料および蒸発第2材料が凝縮して担体ナノ粒子になる。各担体ナノ粒子は、内部領域および外面を含む。内部領域は混合金属酸化物を含む。外面は純金属を含む。本発明の一目的は、担体酸化物（例えば、酸化アルミニウム、セリア、ジルコニア、シリカなど）中に容易に酸化可能および還元可能な金属を混合することである。発想は、金属（例えば、Pd、Cu、Zn、Cr、Niなど）が酸化物マトリックス中に組み込まれることである。しかし、担体ガス中にH₂を添加するなどによりそれを酸素欠乏環境にすることによって、金属の一部が粒子の表面上で非酸化状態になる。使用することができる一方法は、混合金属酸化物ナノ粒子を形成し、次いで温度のH₂またはH₂プラズマなどの還元環境にこれらを曝露し、表面上の金属酸化物を部分的に還元することである。担体酸化物は、この環境で容易に還元されない。しかし、混合金属酸化物の表面下に埋もれた金属の酸化状態は、決定的でない。結果は、完全に酸化されていない、表面上の金属原子を含む混合金属酸化物粒子である。これらの金属原子は、図9のステップ930および940ならびに図10のステップ1040および1050で記載されたものなど、後に付加される金属触媒作用粒子のアンカーを形成する。

40

【0165】

50

ステップ1040で、担体ナノ粒子は、触媒溶液と混合される。いくつかの実施形態では、触媒溶液は白金溶液である。いくつかの実施形態では、白金溶液は、硝酸白金溶液または塩化白金溶液である。しかし、他の種類の触媒溶液も使用され得ることが企図されている。

【0166】

ステップ1050で、触媒溶液が担体ナノ粒子と反応し、それによって担体ナノ粒子の外面の純金属に触媒ナノ粒子をピン止めする。例えば、一実施形態では、触媒溶液に由来する白金イオンが担体ナノ粒子の酸化物表面と反応し、それにより別個の (discrete) 白金原子が担体ナノ粒子の表面上にたどり着くことになる。これらの原子は、酸化物表面にわたって拡散し、他の白金原子と凝集して白金ナノ粒子を形成することができる。白金ナノ粒子が酸化物表面に結合したパラジウム原子クラスターに到達すると、白金クラスターは、パラジウムクラスターと合金を形成し、それによって白金クラスターをピン止めする。いくつかの実施形態では、担体ナノ粒子は、約10ナノメートル以下の平均粒度を有する。いくつかの実施形態では、触媒ナノ粒子は、約1ナノメートル以下の平均粒度を有する。いくつかの実施形態では、触媒ナノ粒子は、約1/2ナノメートルの平均粒度を有する。しかし、他のサイズも本発明の範囲内であることが企図されている。

【0167】

本発明の構築および施行の原理の理解を促すために、細部を組み込んだ特定の実施形態の観点から本発明を説明してきた。特定の実施形態およびその詳細を参照することにより、本明細書に添付した特許請求の範囲を限定することは意図されていない。特許請求の範囲によって定義される本発明の精神および範囲から逸脱することなく、例示のために選ばれた実施形態において他の様々な改変を行うことができるが当業者に容易に明らかとなるであろう。

【図1】

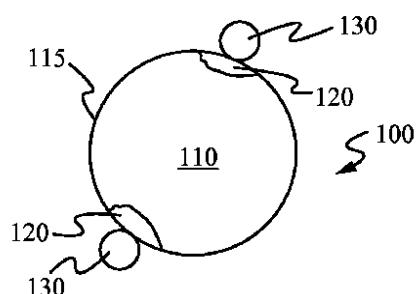


Fig. 1

【図2】

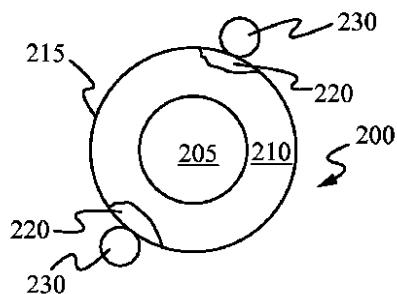


Fig. 2

【図3A】

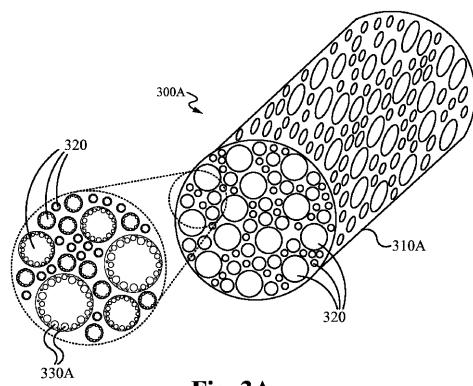


Fig. 3A

10

20

【図3B】

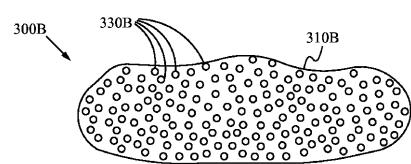


Fig. 3B

【図4】

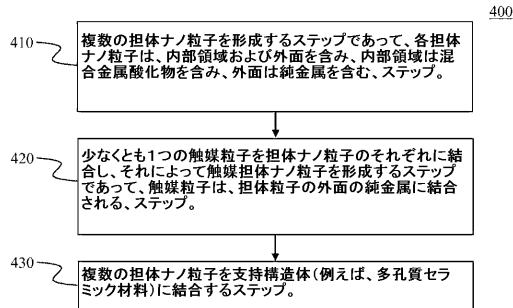


Fig. 4

【図5】

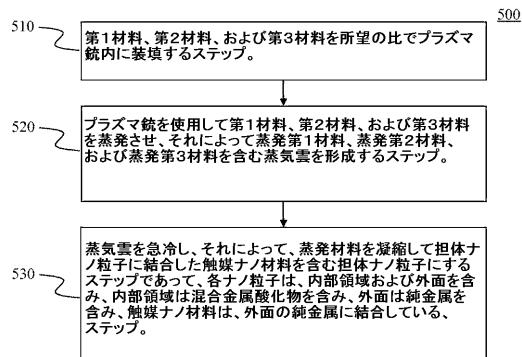


Fig. 5

【図6】

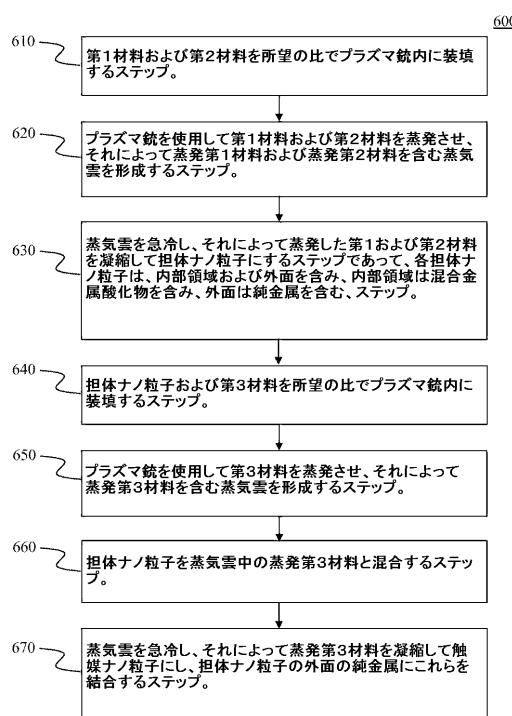


Fig. 6

【図7】

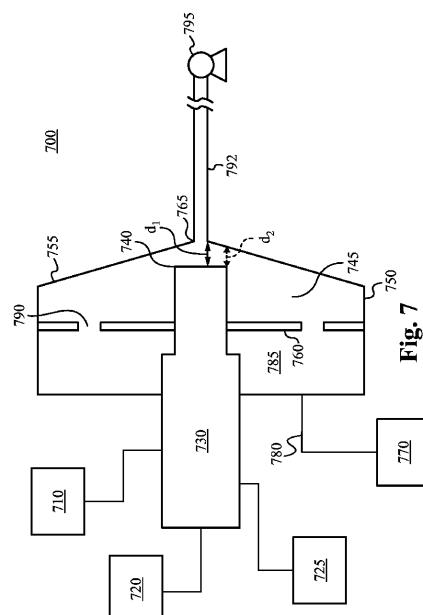


Fig. 7

【図 8】

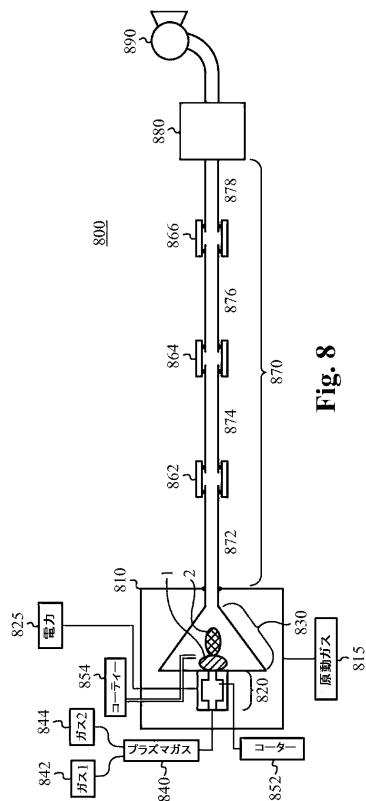


Fig. 8

【図 9】

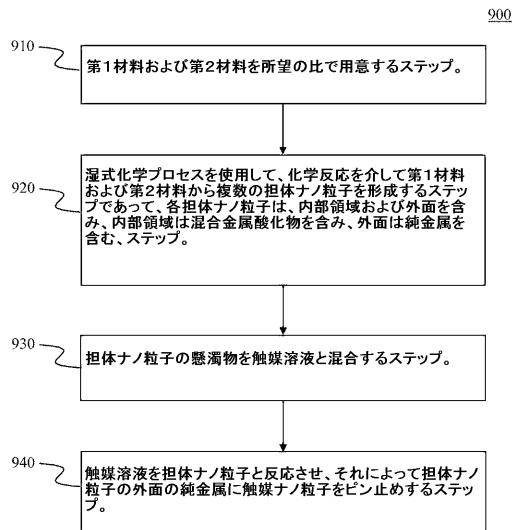


Fig. 9

【図 10】

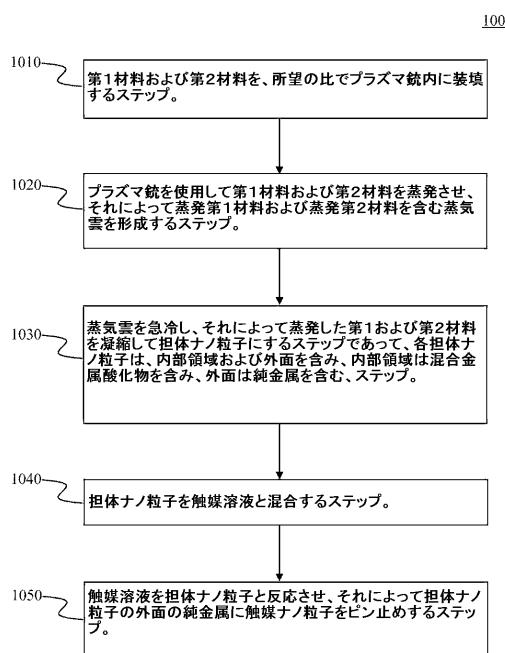


Fig. 10

フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I
F 01N 3/28 (2006.01) F 01N 3/28 301P

(74)代理人 230113332

弁護士 山本 健策

(72)発明者 バン デン ホーク, ウィルパート
アメリカ合衆国 カリフォルニア 95070, サラトーガ, ポールマン ロード 1547
0

(72)発明者 ビベルガー, マキシミリアン エー.
アメリカ合衆国 アリゾナ 85258, スコットデール, イー. デル アセロ ドライブ
7346

審査官 森坂 英昭

(56)参考文献 特表2008-525638 (JP, A)

特開2005-132716 (JP, A)

特開2006-181484 (JP, A)

特開2009-022895 (JP, A)

特開2009-279544 (JP, A)

特開2007-253037 (JP, A)

特表2010-526661 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

B 01 J 21/00 - 38/74

F 01 N 3/10

F 01 N 3/28