

(19) 日本国特許庁(JP)

再公表特許(A1)

(11) 国際公開番号

W02011/125771

発行日 平成25年7月8日 (2013.7.8)

(43) 国際公開日 平成23年10月13日 (2011.10.13)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
B01J 35/04 (2006.01)	B01J 35/04 301L	3G090
B01J 23/656 (2006.01)	B01J 35/04 301E	3G091
B01D 53/94 (2006.01)	B01J 23/64 104A	4D019
B01D 46/00 (2006.01)	B01D 53/36 104B	4D048
B01D 39/20 (2006.01)	B01D 46/00 302	4D058

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 34 頁) 最終頁に続く

出願番号 特願2012-509533 (P2012-509533)
 (21) 国際出願番号 PCT/JP2011/058081
 (22) 国際出願日 平成23年3月30日 (2011.3.30)
 (31) 優先権主張番号 特願2010-81903 (P2010-81903)
 (32) 優先日 平成22年3月31日 (2010.3.31)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)

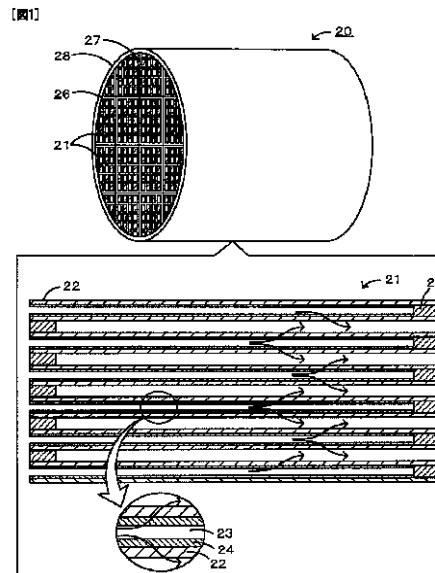
(71) 出願人 000004064
 日本碍子株式会社
 愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号
 (74) 代理人 110000017
 特許業務法人アイテック国際特許事務所
 (72) 発明者 高木 智由
 愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号
 日本碍子株式会社内
 (72) 発明者 水谷 貴志
 愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号
 日本碍子株式会社内
 Fターム(参考) 3G090 AA03 BA01

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ハニカムフィルタ及びハニカムフィルタの製造方法

(57) 【要約】

ハニカムフィルタ20は、一方の端部が開口され且つ他方の端部が目封止され排ガスの流路となる複数のセル23を形成する複数の多孔質の隔壁部22と、隔壁部22上に形成され排ガスに含まれる固体成分を捕集・除去する層である捕集層24と、を備えている。隔壁部22は、少なくとも一部に触媒が担持されており、上流側隔壁部の触媒量を $a(g/L)$ 、下流側隔壁部の触媒量を $b(g/L)$ とすると、 $1.05 \leq a/b \leq 3.00$ を満たす。 a/b を所定値とする方法としては、隔壁部22によって構成されるハニカム構造体全体を触媒成分に接触させて触媒を形成し、その後、上流側だけ触媒成分に接触させてさらに触媒を形成する方法などが挙げられる。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

少なくとも一部に触媒が担持されており一方の端部が開口され且つ他方の端部が目封止され流体の流路となる複数のセルを形成する複数の多孔質の隔壁部と、

前記隔壁部上に形成され前記流体に含まれる固体成分を捕集・除去する層である捕集層と、を備え、

前記セルの上流側の隔壁部である上流側隔壁部の触媒量を a 、前記セルの下流側の隔壁部である下流側隔壁部の触媒量を b とすると、 $1.05 \leq a/b \leq 3.00$ を満たす、八ニカムフィルタ。

【請求項 2】

10

前記捕集層は少なくとも一部に触媒が担持されており、前記上流側隔壁部に形成された捕集層である上流側捕集層の触媒量を A 、前記下流側隔壁部に形成された捕集層である下流側捕集層の触媒量を B とすると、 $1.08 \leq A/B \leq 5.00$ を満たす、請求項 1 に記載の八ニカムフィルタ。

【請求項 3】

前記捕集層は少なくとも前記流路側の捕集層表面に触媒が担持されており、前記上流側捕集層のセル表面である上流側捕集層表面の触媒量を A_s 、前記下流側捕集層のセル表面である下流側捕集層表面の触媒量を B_s とすると、 $1.10 \leq A_s/B_s \leq 8.00$ を満たす、請求項 1 又は 2 に記載の八ニカムフィルタ。

【請求項 4】

20

流体に含まれる固体成分を捕集・除去する八ニカムフィルタの製造方法であって、一方の端部が開口され且つ他方の端部が目封止され流体の流路となる複数のセルを形成する複数の多孔質の隔壁部を備えた八ニカム構造体に、流体に含まれる固体成分を捕集・除去する層である捕集層を形成する捕集層形成工程と、

前記八ニカム構造体全体を触媒成分に接触させて触媒を形成する全体触媒形成工程と、前記八ニカム構造体の上流側だけ触媒成分に接触させて触媒を形成する部分触媒形成工程と、

を含む八ニカムフィルタの製造方法。

【請求項 5】

30

流体に含まれる固体成分を捕集・除去する八ニカムフィルタの製造方法であって、一方の端部が開口され且つ他方の端部が目封止された流体の流路となる複数のセルを形成する複数の多孔質の隔壁部を備えた八ニカム構造体に、流体に含まれる固体成分を捕集・除去する層である捕集層を形成する捕集層形成工程と、

前記八ニカム構造体の上流側だけ触媒成分に接触させて触媒を形成する上流側触媒形成工程と、

前記八ニカム構造体の下流側だけ前記触媒成分よりも低濃度の触媒成分に接触させて触媒を形成する下流側触媒形成工程と、

を含む八ニカムフィルタの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

40

【0001】

本発明は、八ニカムフィルタ及び八ニカムフィルタの製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

従来、八ニカムフィルタとしては、一方の端部が開口され且つ他方の端部が目封止されたセルと、一方の端部が目封止され且つ他方の端部が開口するセルとが交互に配設されるよう形成された多孔質の隔壁部と、この隔壁部上に形成された排ガスに含まれる粒子状物質 (PM) を捕集・除去する層が形成されているものが提案されている (例えば、特許文献 1 ~ 3 参照)。この八ニカムフィルタでは、捕集層により PM を捕集することにより、圧力損失を低減させつつ PM の捕集を行うことができる。

50

【 0 0 0 3 】

【 特許文献 1 】 特開 2 0 0 4 - 2 1 6 2 2 6 号公報

【 特許文献 2 】 特開平 6 - 3 3 7 3 4 号公報

【 特許文献 3 】 特開平 1 - 3 0 4 0 2 2 号公報

【 発明の開示 】

【 0 0 0 4 】

ところで、このようなハニカムフィルタでは、例えば、捕集した P M を燃焼させることによりフィルタの機能を回復させる「再生処理」を行うことがあり、予めハニカムフィルタに触媒を担持して P M の燃焼を促進することがある。また、例えば、排ガス中に存在する H C や C O などの酸化を促進する酸化触媒を担持して、これらを酸化除去することがある。このとき、触媒量を多くすると、排ガスを浄化する効率を高めることができる。また、酸化反応に伴う発熱量の増加によってハニカムフィルタの温度を高め、P M の燃焼を促進したり、触媒の活性を高めて排ガスを浄化する効率をより高めることができる。一方で、触媒量が多くなると、隔壁部の孔を触媒が塞いで排ガスの流通が阻害されるなどして圧力損失が増加することがある。そこで、圧力損失を上昇させることなく、浄化効率や、昇温性能を高めることが望まれていた。

10

【 0 0 0 5 】

本発明は、このような課題に鑑みなされたものであり、圧力損失の上昇を抑制し、浄化効率や昇温性能をより高めることができるハニカムフィルタ及びハニカムフィルタの製造方法を提供することを主目的とする。

20

【 0 0 0 6 】

本発明は、上述の主目的を達成するために以下の手段を採った。

【 0 0 0 7 】

即ち、本発明のハニカムフィルタは、

少なくとも一部に触媒が担持されており一方の端部が開口され且つ他方の端部が目封止され流体の流路となる複数のセルを形成する複数の多孔質の隔壁部と、

前記隔壁部上に形成され前記流体に含まれる固体成分を捕集・除去する層である捕集層と、を備え、

前記セルの上流側の隔壁部である上流側隔壁部の触媒量を a 、前記セルの下流側の隔壁部である下流側隔壁部の触媒量を b とすると、 $1.05 \leq a/b \leq 3.00$ を満たすものである。

30

【 0 0 0 8 】

このハニカムフィルタは、隔壁部と、捕集層とを備え、上流側隔壁部の触媒量 a と、下流側隔壁部の触媒量 b とが、 $1.05 \leq a/b \leq 3.00$ を満たす。このような本願発明のハニカムフィルタでは、圧力損失の上昇を抑制し、浄化効率や昇温性能をより高めることができる。この理由は、以下のように考えられる。一般に、自動車の排ガスなどの流体は上流側ほど高温であるが、通常の使用範囲（ $0 \sim 200$ 程度）では流体が高温であるほど触媒による浄化効率が高いため、上流側での流体と触媒との接触が多いほど浄化効率が向上する。また、流体と触媒との接触によって未燃焼成分などの酸化が促進されて酸化熱の発生が促進されるが、上流側でより多くの酸化熱が発生し、下流側への熱の伝播によりハニカムフィルタ全体の温度が上昇するため、酸化熱を無駄なく利用可能である。すなわち、昇温性能が向上する。そして、圧力損失をより低減する効果を有する捕集層が隔壁への流体の流通を促進するため、上流側での流体と触媒との接触が促進され、浄化効率や昇温性能をより向上することができる。このようなハニカムフィルタでは、捕集した固体成分を燃焼させることによりフィルタの機能を回復させる「再生処理」を行うことがある。昇温性能をより高めることができる本発明のハニカムフィルタでは、所定時間燃焼したときに高温を維持可能な時間が長く、1回の再生処理での固体成分の燃焼量が増加するため、再生処理における再生効率をより高めることができる。 a/b が 1.05 以上であれば、浄化効率を向上する効果や、昇温性能を向上する効果が得られる。また、 a/b が 3.00 以下であれば、上流側の隔壁部に形成される触媒が多すぎず、上流側の隔壁部への

40

50

流体の流通を阻害しないため、浄化効率や昇温性能を向上する効果を阻害しない。ここで、「上流側」とは流体の流入する側をいい、「下流側」とは、流体の流出する側をいうものとする。また、「隔壁部の触媒量」とは、電子顕微鏡観察での元素分析により求めた触媒量（質量％）をいうものとする。なお、触媒量（質量％）に対して、計測対象である八ニカムフィルタの総重量を掛けて、八ニカムフィルタの体積で割ることによって、その計測部における見かけ上の単位体積あたりの触媒量（g/L）として扱ってもよい。

【0009】

この八ニカムフィルタにおいて、前記セルには、入口が開放され出口が封止材により封止された入口開放セルと、入口が封止材により封止され出口が開放された出口開放セルとがあり、該入口開放セルと該出口開放セルとが隣接するように設けられているものとして

10

【0010】

本発明の八ニカムフィルタにおいて、前記捕集層は少なくとも一部に触媒が担持されており、前記上流側隔壁部に形成された捕集層である上流側捕集層の触媒量をA、前記下流側隔壁部に形成された捕集層である下流側捕集層の触媒量をBとすると、 $1.08 \leq A/B \leq 5.00$ を満たすものとしてもよい。こうすれば、浄化効率をより高めることができる。ここで、「捕集層の触媒量」とは、電子顕微鏡観察での元素分析により求めた触媒量（質量％）をいうものとする。なお、触媒量（質量％）に対して、計測対象である八ニカムフィルタの総重量を掛けて、八ニカムフィルタの体積で割ることによって、その計測部における見かけ上の単位体積あたりの触媒量（g/L）として扱ってもよい。

20

【0011】

本発明の八ニカムフィルタにおいて、前記捕集層は少なくとも前記流路側の捕集層表面に触媒が担持されており、前記上流側捕集層のセル表面である上流側捕集層表面の触媒量を A_s 、前記下流側捕集層のセル表面である下流側捕集層表面の触媒量を B_s とすると、 $1.10 \leq A_s/B_s \leq 8.00$ を満たすものとしてもよい。こうすれば、昇温性能をより高めることができ、再生処理における再生効率をより高めることができる。ここで、「捕集層表面の触媒量」とは、電子顕微鏡観察での元素分析により求めた触媒量（質量％）をいうものとする。なお、触媒量（質量％）に対して、計測対象である八ニカムフィルタの総重量を掛けて、八ニカムフィルタの体積で割ることによって、その計測部における見かけ上の単位体積あたりの触媒量（g/L）として扱ってもよい。

30

【0012】

本発明の八ニカムフィルタにおいて、前記捕集層は触媒が厚さ方向に均一に担持されたものとしてもよい。こうしても、圧力損失の上昇を抑制し、浄化効率や昇温性能をより高めることができるからである。ここで、「触媒が厚さ方向に均一」とは、隔壁表面に垂直な方向での触媒量が均一であることをいい、完全に均一であってもよいし、ある程度のばらつきがあってもよい。例えば、隔壁表面に垂直な方向で触媒量が最大となる部分と最小となる部分の触媒量の差が 0.2 g/L 以下や、 0.1 g/L 以下などとなることができる。

【0013】

また、本発明の八ニカムフィルタにおいて、下流側の捕集層の厚さを上流側の捕集層の厚さよりも厚いものとしてもよい。下流側の捕集層を厚くすれば、透過抵抗の小さい上流側隔壁部により多くの流体を流通させることができるからである。

40

【0014】

本発明の八ニカムフィルタにおいて、前記隔壁部は、コーゼライト、SiC、ムライト、チタン酸アルミニウム、アルミナ、窒化珪素、サイアロン、リン酸ジルコニウム、ジルコニア、チタニア及びシリカから選択される1以上の無機材料を含んで形成されているものとしてもよい。また、前記捕集層は、コーゼライト、SiC、ムライト、チタン酸アルミニウム、アルミナ、窒化珪素、サイアロン、リン酸ジルコニウム、ジルコニア、チタニア及びシリカから選択される1以上の無機材料を含んで形成されているものとしてもよい。このとき、前記捕集層は、前記隔壁部と同種の材料により形成されているものとす

50

ることが好ましい。

【0015】

本発明の八ニカムフィルタの製造方法は、
流体に含まれる固体成分を捕集・除去する八ニカムフィルタの製造方法であって、
一方の端部が開口され且つ他方の端部が目封止され流体の流路となる複数のセルを形成する複数の多孔質の隔壁部を備えた八ニカム構造体に、流体に含まれる固体成分を捕集・除去する層である捕集層を形成する捕集層形成工程と、
前記八ニカム構造体全体を触媒成分に接触させて触媒を形成する全体触媒形成工程と、
前記八ニカム構造体の上流側だけ触媒成分に接触させて触媒を形成する部分触媒形成工程と、
を含むものである。

10

【0016】

この八ニカムフィルタの製造方法では、八ニカム構造体全体に触媒成分を接触させ、さらに、上流側だけに触媒成分を接触させて触媒を形成する。このようにして、上流側の触媒量を下流側より多くするのである。このような本願発明の八ニカムフィルタの製造方法では、圧力損失の上昇を抑制し、浄化効率や昇温性能をより高めることが可能な八ニカムフィルタを製造することができる。この八ニカムフィルタの製造方法では、セルの上流側の隔壁部である上流側隔壁部の触媒量を a 、セルの下流側の隔壁部である下流側隔壁部の触媒量を b とすると、 $1.05 \leq a/b \leq 3.00$ を満たすように触媒を形成することが好ましい。

20

【0017】

ここで、全体を触媒成分に接触させて触媒を形成する全体触媒形成工程と、上流側だけ触媒成分に接触させて触媒を形成する部分触媒形成工程は、どちらを先としてもよいが、全体触媒形成工程を先とするほうが好ましい。また、全体触媒形成工程は、捕集層形成工程前に行うものとしてもよいし、捕集層形成工程後に行うものとしてもよい。また、部分触媒形成工程は、捕集層形成工程前に行うものとしてもよいし、捕集層形成工程後に行うものとしてもよい。部分触媒形成工程を捕集層形成工程後に行う場合には、触媒成分の粒径は、捕集層の粒径より小さく、捕集層を流通して隔壁部上に形成されるものであることが好ましい。

【0018】

あるいは、本発明の八ニカムフィルタの製造方法は、
流体に含まれる固体成分を捕集・除去する八ニカムフィルタの製造方法であって、
一方の端部が開口され且つ他方の端部が目封止された流体の流路となる複数のセルを形成する複数の多孔質の隔壁部を備えた八ニカム構造体に、流体に含まれる固体成分を捕集・除去する層である捕集層を形成する捕集層形成工程と、
前記八ニカム構造体の上流側だけ触媒成分に接触させて触媒を形成する上流側触媒形成工程と、
前記八ニカム構造体の下流側だけ前記触媒成分よりも低濃度の触媒成分に接触させて触媒を形成する下流側触媒形成工程と、
を含むものとしてもよい。

30

40

【0019】

この八ニカムフィルタの製造方法では、八ニカム構造体の上流側には高濃度の触媒を接触させ、下流側には低濃度の触媒を接触させて、触媒成分を形成する。このようにしても、上流側の触媒担持量を下流側より多くすることができる。ここで、上流側だけ触媒成分に接触させて触媒を形成する上流側触媒形成工程と、下流側だけ触媒成分に接触させて触媒を形成する下流側触媒形成工程とは、どちらが先であってもよい。また、上流側触媒形成工程は、捕集層形成工程前に行うものとしてもよいし、捕集層形成工程後に行うものとしてもよい。また、下流側触媒形成工程は、捕集層形成工程前に行うものとしてもよいし、捕集層形成工程後に行うものとしてもよい。上流側触媒形成工程を捕集層形成工程後に行う場合には、触媒成分の粒径は、捕集層の粒径より小さく、捕集層を流通して隔壁部上

50

に形成されるものであることが好ましい。

【図面の簡単な説明】

【0020】

【図1】ハニカムフィルタ20の構成の概略の一例を示す説明図である。

【図2】ハニカムセグメント21の縦断面の概略の一例を示す説明図である。

【図3】SEM観察による捕集層厚さの算出方法の説明図である。

【図4】ハニカムフィルタ20の触媒の分布の一例を示す模式図である。

【図5】ハニカムフィルタ20の触媒の分布の一例を示す模式図である。

【図6】ハニカムフィルタ20の触媒の分布の一例を示す模式図である。

【図7】触媒量の測定位置の説明図である。

10

【図8】ハニカムフィルタ20の製造方法の概略の一例を示す説明図である。

【図9】ハニカムフィルタ20の上流側を触媒成分に接触させた様子を示す説明図である。

【図10】ハニカムフィルタ40の構成の概略の一例を示す説明図である。

【図11】捕集層形成装置50の構成の概略を示す説明図である。

【発明を実施するための最良の形態】

【0021】

次に、本発明を実施するための形態を図面を用いて説明する。本発明のハニカムフィルタは、例えば、自動車のエンジンの排気浄化用にエンジンの排気管に配設されるものであり、排気中に含まれる固体成分（粒子状物質、以下PMとも称する）を捕集・除去するものである。このハニカムフィルタでは、PMの捕集量が所定値に達すると、燃料濃度を高めて捕集したPMを燃焼する処理（再生処理）を実行する。

20

【0022】

本発明のハニカムフィルタの一実施形態を図面を用いて説明する。図1は、本発明の一実施形態であるハニカムフィルタ20の構成の概略の一例を示す説明図である。図2は、ハニカムセグメント21の縦断面の概略の一例を示す説明図である。図3は、SEM観察による捕集層厚さの算出方法の説明図である。また、図4～6は、本発明のハニカムフィルタ20の触媒の分布の一例を示す模式図である。本発明の一実施形態であるハニカムフィルタ40の構成の概略の一例を示す説明図である。図7は触媒量の測定位置の説明図である。図8は、ハニカムフィルタ20の製造方法の概略の一例を示す説明図であり、図9は、ハニカムフィルタ20の上流側を触媒成分に接触させた様子を示す説明図である。

30

【0023】

本実施形態のハニカムフィルタ20は、図1に示すように、隔壁部22を有する2以上のハニカムセグメント21の外周面同士が接合層27によって接合された形状を有し、その外周に外周保護部28が形成されている。このハニカムフィルタ20は、一方の端部が開口され且つ他方の端部が目封止部26により目封止され、流体としての排ガスの流路となる複数のセル23を形成する多孔質の隔壁部22と、隔壁部22上に形成され流体（排ガス）に含まれる固体成分（PM）を捕集・除去する層である捕集層24と、を備えている。このハニカムフィルタ20では、隔壁部22は、一方の端部が開口され且つ他方の端部が目封止されたセル23と一方の端部が目封止され且つ他方の端部が開口したセル23とが交互に配置されるよう形成されている。また、ハニカムフィルタ20では、入口側が開口しているセル23（入口側セルとも称する）へ入った排ガスが捕集層24及び隔壁部22を介して出口側が開口しているセル23（出口側セルとも称する）を通過して排出され、このとき、排ガスに含まれるPMが捕集層24上に捕集される。

40

【0024】

このハニカムフィルタ20の外形は、特に限定されないが、円柱状、四角柱状、楕円柱状、六角柱状などの形状とすることができる。ハニカムセグメント21の外形は、特に限定されないが、接合しやすい平面を有していることが好ましく、断面が多角形の角柱状（四角柱状、六角柱状など）の形状とすることができる。セルは、その断面の形状として3角形、4角形、6角形、8角形などの多角形の形状や円形、楕円形などの流線形状、及び

50

それらの組み合わせとすることができる。例えば、セル 2 3 は排ガスの流通方向に垂直な断面が 4 角形に形成されているものとしてもよい。ここでは、ハニカムフィルタ 2 0 の外形が円柱状に形成され、ハニカムセグメント 2 1 の外形が矩形柱状に形成され、セル 2 3 が矩形状に形成されている場合について主として説明する。

【 0 0 2 5 】

ハニカムフィルタ 2 0 において、セルピッチは、1 . 0 mm 以上 2 . 5 mm 以下とするのが好ましい。PM 堆積時の圧力損失は、濾過面積が大きいほど小さい値を示す。一方、初期の圧力損失は、セル直径が小さいほど大きい値を示す。したがって、初期圧力損失、PM 堆積時の圧力損失、PM の捕集効率のトレードオフを考慮して、セルピッチ、セル密度や隔壁部 2 2 の厚さを設定するものとするればよい。

10

【 0 0 2 6 】

隔壁部 2 2 は、多孔質であり、例えば、コーゼライト、Si 結合 SiC、再結晶 SiC、チタン酸アルミニウム、ムライト、窒化珪素、サイアロン、リン酸ジルコニウム、ジルコニア、チタニア、アルミナ及びシリカから選択される 1 以上の無機材料を含んで形成されているものとしてもよい。このうち、コーゼライトや Si 結合 SiC、再結晶 SiC などが好ましい。隔壁部 2 2 は、その気孔率が 3 0 体積 % 以上 8 5 体積 % 以下であることが好ましく、3 5 体積 % 以上 6 5 体積 % 以下であることがより好ましい。この隔壁部 2 2 は、その平均細孔径が 1 0 μm 以上 6 0 μm 以下の範囲であることが好ましい。この気孔率や平均細孔径は、水銀圧入法により測定した結果をいうものとする。また、隔壁部 2 2 は、その厚さが 1 5 0 μm 以上 6 0 0 μm 以下であることが好ましく、2 0 0 μm 以上 4 0 0 μm 以下であることがより好ましい。厚さが 1 5 0 μm 以上であれば、機械的強度を高めることができ、6 0 0 μm 以下であれば、圧力損失をより低減することができる。このような気孔率、平均細孔径、厚さで隔壁部 2 2 を形成すると、排ガスが通過しやすく、PM を捕集・除去しやすい。

20

【 0 0 2 7 】

捕集層 2 4 は、排ガスに含まれる PM を捕集・除去する層であり、隔壁部 2 2 の平均細孔径よりも小さい平均粒径で構成された粒子群により隔壁部 2 2 上に形成されているものとしてもよい。捕集層 2 4 は、平均細孔径が、0 . 2 μm 以上 1 0 μm 以下であることが好ましく、気孔率が 4 0 体積 % 以上 9 5 体積 % 以下であることが好ましく、捕集層を構成する粒子の平均粒径が 0 . 5 μm 以上 1 5 μm 以下であることが好ましい。平均細孔径が 0 . 2 μm 以上であれば PM が堆積していない初期の圧力損失が過大になるのを抑制することができる。1 0 μm 以下であれば PM 捕集効率が良好なものとなり、捕集層 2 4 を通り抜け細孔内部に PM が到達するのを抑制可能であり、PM 堆積時の圧力損失の悪化を抑制することができる。また、気孔率が 4 0 体積 % 以上であると、PM が堆積していない初期の圧力損失が過大となるのを抑制することができる。9 5 体積 % 以下では耐久性のある捕集層 2 4 としての表層を作製することができる。また、捕集層を構成する粒子の平均粒径が 0 . 5 μm 以上であれば捕集層を構成する粒子の粒子間の空間のサイズを十分に確保可能であるため捕集層の透過性を維持でき急激な圧力損失の上昇を抑制することができる。1 5 μm 以下であれば粒子同士の接触点が十分に存在するから粒子間の結合強度を十分に確保可能であり捕集層の剥離強度を確保することができる。このように、良好な PM 捕集効率の維持、PM 捕集開始直後の急激な圧力損失上昇防止、PM 堆積時の圧力損失低減、捕集層の耐久性を実現することができる。この捕集層 2 4 の平均厚さは、1 0 μm 以上 8 0 μm 以下であることが好ましい。捕集層の厚さが 1 0 μm 以上では PM を捕集しやすく、8 0 μm 以下では流体が隔壁を通過する抵抗をより低減可能であり、圧力損失をより低減することができる。この捕集層の平均厚さは、2 0 μm 以上 6 0 μm 以下であることがより好ましく、3 0 μm 以上 5 0 μm 以下であることが更に好ましい。また、この捕集層が PM を捕集して隔壁部 2 2 の内部へ PM が侵入するのを抑制するため、後述する触媒のうち、隔壁部 2 2 内に担持された触媒について、例えば、硫黄分を含む PM との直接接触による触媒の被毒を抑制することができる。

30

40

【 0 0 2 8 】

50

この捕集層 2 4 は、排ガスの入口側セル及び出口側セルの隔壁部 2 2 に形成されているものとしてもよいが、図 1 に示すように、入口側セルの隔壁部 2 2 上に形成されており、出口側セルには形成されていないものとするのが好ましい。こうすれば、より圧力損失を低減して流体に含まれている P M をより効率よく除去することができる。また、八ニカムフィルタ 2 0 の作製が容易となる。また、本発明の八ニカムフィルタにおいて、下流側捕集層 2 4 b の厚さを上流側捕集層 2 4 a の厚さよりも厚いものとしてもよい。下流側捕集層 2 4 b を厚くすれば、透過抵抗の小さい上流側隔壁部により多くの流体を流通させることができるからである。また、下流側捕集層 2 4 b が厚ければ、触媒を担持する際に触媒成分が下流側隔壁部内に流通しにくいいため、上流側の触媒量を多くすることがより容易となるからである。また、下流側捕集層 2 4 b を厚くすれば、下流側隔壁部 2 2 b の内部に到達する P M 量を低減可能であり、触媒量の少ない下流側隔壁部の触媒の P M との接触による被毒をより抑制することができるからである。この捕集層 2 4 は、コージェライト、S i C、ムライト、チタン酸アルミニウム、アルミナ、窒化珪素、サイアロン、リン酸ジルコニウム、ジルコニア、チタニア及びシリカから選択される 1 以上の無機材料を含んで形成されているものとしてもよい。このとき、捕集層 2 4 は、隔壁部 2 2 と同種の材料により形成されているものとするのが好ましい。また、捕集層 2 4 は、セラミック又は金属の無機繊維を 7 0 重量 % 以上含有しているものとするのがより好ましい。こうすれば、繊維質により P M を捕集しやすい。また、捕集層 2 4 は、無機繊維がアルミノシリケート、アルミナ、シリカ、ジルコニア、セリア及びムライトから選択される 1 以上の材料を含んで形成されているものとするができる。なお、捕集層 2 4 の粒子群の平均粒径は、走査型電子顕微鏡 (S E M) で捕集層 2 4 を観察し、撮影した画像に含まれる捕集層 2 4 の各粒子を計測して求めた平均値をいうものとする。また、原料粒子における平均粒径は、レーザ回折 / 散乱式粒度分布測定装置を用い、水を分散媒として原料粒子を測定したメディアン径 (D 5 0) をいうものとする。

10

20

【 0 0 2 9 】

捕集層 2 4 の形成方法は、例えば、捕集層 2 4 の原料になる無機粒子を含むスラリーなどを用いてセル 2 3 の表面に形成するものとしてもよいし、捕集層 2 4 の原料になる無機粒子の微粉体などを気体によりセル内部に流入させてセル 2 3 の表面に形成するものとしてもよい。この無機粒子は、上述した無機材料としてもよく、隔壁の平均細孔径よりも小さい平均粒径を有することが好ましい。

30

【 0 0 3 0 】

ここで、捕集層 2 4 の厚さの測定方法について図 3 を用いて説明する。捕集層 2 4 の厚さ、換言すると捕集層を構成する粒子群の厚さは、以下のようにして求めるものとする。ここでは、八ニカムフィルタ 2 0 の隔壁基材を樹脂埋めした後に研磨した観察用試料を用意し、走査型電子顕微鏡 (S E M) 観察を行い得られた画像を解析することによって捕集層の厚さを求める。まず、流体の流通方向に垂直な断面を観察面とするように切断・研磨した観察用試料を用意する。次に、S E M の倍率を 1 0 0 倍 ~ 5 0 0 倍に設定し、後述する測定位置において、視野をおよそ 5 0 0 μ m \times 5 0 0 μ m の範囲として用意した観察用試料の観察面を撮影する。次に、撮影した画像において、隔壁の最外輪郭線を仮想的に描画する。この隔壁の最外輪郭線とは、隔壁の輪郭を示す線であって、隔壁表面 (照射面、図 3 上段参照) に対して垂直の方向からこの隔壁表面に仮想平行光を照射したものとしたときに得られる投影線をいうものとする (図 3 中段参照) 。即ち、隔壁の最外輪郭線は、光が当たっているものとする高さの異なる複数の隔壁上面の線分と、隣り合う高さの異なる隔壁上面の線分の各々をつなぐ垂線とにより形成される。この隔壁上面の線分は、例えば、1 0 0 μ m の長さの線分に対して 5 μ m の長さ以下の凹凸については無視する「 5 % 解像度」により描画するものとし、水平方向の線分が細かくなりすぎないようにするものとする。また、隔壁の最外輪郭線を描画する際には、捕集層の存在については無視するものとする。続いて、隔壁の最外輪郭線と同様に、捕集層を形成する粒子群の最外輪郭線を仮想的に描画する。この粒子群の最外輪郭線とは、捕集層の輪郭を示す線であって、捕集層表面 (照射面、図 3 上段参照) に対して垂直の方向からこの捕集層表面に仮想平行光を

40

50

照射したものとしたときに得られる投影線をいうものとする（図3中段参照）。即ち、粒子群の最外輪郭線は、光が当たっているものとする高さの異なる複数の粒子群上面の線分と、隣り合う高さの異なる粒子群上面の線分の各々をつなぐ垂線とにより形成される。この粒子群上面の線分は、例えば、上記隔壁と同じ「解像度」により描画するものとする。多孔性の高い捕集層では、樹脂埋めして研磨して観察用試料を作製すると、空中に浮いているように観察される粒子群もあることから、このように仮想平行光の照射による投影線を用いて最外輪郭線を描画するのである。続いて、描画した隔壁の最外輪郭線の上面線分の各々の高さ及び長さに基づいて隔壁の最外輪郭線の平均線である隔壁の標準基準線を求める（図3下段参照）。また、隔壁の標準基準線と同様に、描画した粒子群の最外輪郭線の上面線分の各々の高さ及び長さに基づいて粒子群の最外輪郭線の平均線である粒子群の平均高さを求める（図3下段参照）。そして、得られた粒子群の平均高さと同様に、隔壁の標準基準線との差をとり、この差（長さ）を、この撮影画像における捕集層の厚さ（粒子群の厚さ）とする。このようにして、捕集層の厚さを求めることができる。

10

20

30

40

50

【0031】

また、捕集層24の平均細孔径及び気孔率は、SEM観察による画像解析によって求めるものとする。上述した捕集層の厚さと同様に、図3に示すように、ハニカムフィルタ20の断面をSEM撮影して画像を得る。次に、隔壁の最外輪郭線と粒子群の最外輪郭線との間に形成される領域を捕集層の占める領域（捕集層領域）とし、この捕集層領域のうち、粒子群の存在する領域を「粒子群領域」とすると共に、粒子群の存在しない領域を「捕集層の気孔領域」とする。そして、この捕集層領域の面積（捕集層面積）と、粒子群領域の面積（粒子群面積）とを求める。そして、粒子群面積を捕集層面積で除算し100を乗算することにより、得られた値を捕集層の気孔率とする。また、「捕集層の気孔領域」において、粒子群及び隔壁の最外輪郭線と粒子群の外周とに内接する内接円を直径が最大になるように描く処理を行う。このとき、例えばアスペクト比の大きい長方形の気孔領域など、1つの「捕集層の気孔領域」に複数の内接円を描くことができる場合には、気孔領域が十分に埋められるように、できるだけ大きい内接円を複数描くものとする。そして、観察した画像範囲において、描いた内接円の直径の平均値を捕集層の平均細孔径とするものとする。このようにして、捕集層24の平均細孔径及び気孔率を求めることができる。

【0032】

ハニカムフィルタ20において、隔壁部22は、触媒を含むものである。また、捕集層24は、触媒を含むものとしてもよい。この触媒は、排ガスに含まれる未燃焼ガス（HCやCOなど）を酸化する触媒、捕集されたPMの燃焼を促進する触媒及びNO_xを吸蔵/吸着/分解する触媒のうち少なくとも1種以上としてもよい。こうすれば、未燃焼ガスを効率よく酸化することやPMを効率よく除去することやNO_xを効率よく分解することなどができる。この触媒としては、例えば、貴金属元素、遷移金属元素を1種以上含むものとするのがより好ましい。また、ハニカムフィルタ20では、他の触媒や浄化材が担持されていてもよい。例えば、アルカリ金属（Li、Na、K、Cs等）やアルカリ土類金属（Ca、Ba、Sr等）などを含むNO_x吸蔵触媒、少なくとも1種の希土類金属、遷移金属、三元触媒、セリウム（Ce）及び/又はジルコニウム（Zr）の酸化物に代表される助触媒、HC（Hydro Carbon）吸着材等が挙げられる。具体的には、貴金属としては、例えば、白金（Pt）、パラジウム（Pd）、ロジウム（Rh）や、金（Au）及び銀（Ag）などが挙げられる。触媒に含まれる遷移金属としては、例えば、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、Sc、Ti、V、Cr等が挙げられる。また、希土類金属としては、例えば、Sm、Gd、Nd、Y、La、Pr等が挙げられる。また、アルカリ土類金属としては、例えば、Mg、Ca、Sr、Ba等が挙げられる。このうち、白金及びパラジウムがより好ましい。また、貴金属及び遷移金属、助触媒などは、比表面積の大きな担体に担持してもよい。担体としては、例えば、アルミナ、シリカ、シリカアルミナ、ゼオライトなどを用いることができる。PMの燃焼を促進する触媒を有するものとするれば、捕集層24上に捕集されたPMをより容易に除去することができるし、未燃焼ガスを酸化する触媒やNO_xを分解する触媒を有するものとするれば、排ガスをより浄化する

ことができる。触媒は、隔壁部 22 において厚さ方向に均一に担持されたものとしてもよい。また、触媒は、捕集層 24 において厚さ方向に均一に担持されたものとしてもよい。ここで、「触媒が厚さ方向に均一」とは、隔壁表面に垂直な方向での触媒量が均一であることをいい、完全に均一であってもよいし、ある程度のばらつきがあってもよい。例えば、隔壁表面に垂直な方向で触媒量が最大となる部分と最小となる部分の触媒量の差が 0.2 g/L 以下や、 0.1 g/L 以下などとすることができる。

【0033】

隔壁部 22 では、セルの上流側の隔壁部である上流側隔壁部 22 a の触媒量を a、セルの下流側の隔壁部である下流側隔壁部 22 b の触媒量を b とすると、 $1.05 \leq a/b \leq 3.00$ を満たす。このため、圧力損失の上昇を抑制し、浄化効率や昇温性能をより高めることができる。ここで、上流側隔壁部 22 a とは、例えば、排ガス流れ方向の上流側 1/3 の範囲をいうものとしてもよい。また、下流側隔壁部 22 b とは、例えば、排ガス流れ方向の下流側 1/3 の範囲をいうものとしてもよい。触媒量 a 及び触媒量 b は $1.5 \leq a/b \leq 3.0$ を満たすことがより好ましい。こうすれば、浄化効率や昇温性能をより高めることができるからである。ここで、「隔壁部の触媒量」とは、電子顕微鏡観察での元素分析により求めた触媒量（質量%）をいうものとする。なお、触媒量（質量%）に対して、計測対象であるハニカムフィルタの総重量を掛けて、ハニカムフィルタの体積で割ることによって、その計測部における見かけ上の単位体積あたりの触媒量（ g/L ）として扱ってもよい。この「触媒量」は、触媒量 a と触媒量 b との相対関係が把握できればよく、具体的な触媒成分、例えば Pt や Pd などの貴金属元素の量を直接電子顕微鏡観察での元素分析により求めた量としてもよいし、例えばアルミナなど貴金属元素が担持される触媒担体を電子顕微鏡観察での元素分析により求めた量を間接的に貴金属元素の量の代わりに用いるものとしてもよい。なお、触媒担体（例えばアルミナ）と同じ元素が隔壁の構成元素である場合は、触媒成分（貴金属など）の測定結果を用いて、触媒量 a と触媒量 b との相対関係を求めるものとするればよい。

【0034】

図 4 ~ 6 は、本発明のハニカムフィルタ 20 の触媒の分布の一例を示す模式図である。この図 4 のハニカムフィルタ 20 では、上流側隔壁部 22 a の触媒量が、下流側隔壁部 22 b の触媒量よりも多く、捕集層 24 および捕集層表面 25 では、上流側と下流側の触媒量が均一になっている。このように、捕集層 24 では、触媒が均一に担持されていてもよい。また、捕集層 24 には、触媒が担持されていなくてもよい。こうしても、圧力損失の上昇を抑制し、浄化効率や昇温性能を高めることができるからである。ここで、「触媒が均一」とは、上流側・下流側で触媒量に差がないことをいい、例えば、上流側と下流側の触媒量の差が 0.02 g/L 以下や、 0.01 g/L 以下などとすることができる。

【0035】

図 5 のハニカムフィルタ 20 では、上流側隔壁部 22 a の触媒量が、下流側隔壁部 22 b の触媒量よりも多く、上流側捕集層 24 a の触媒量が、下流側捕集層 24 b の触媒量よりも多く、捕集層表面 25 では、上流側と下流側の触媒量が均一になっている。このように、捕集層 24 では、例えば、少なくとも一部に触媒が担持されており、上流側捕集層 24 a の触媒量を A、下流側捕集層 24 b の触媒量を B とすると、 $1.08 \leq A/B \leq 5.00$ を満たすことが好ましい。こうすれば、浄化効率をより高めることができるからである。このうち、 $1.50 \leq A/B \leq 5.00$ を満たすことが好ましく、 $2.00 \leq A/B \leq 5.00$ を満たすことがより好ましい。こうすれば、浄化効率をより高めることができるからである。この場合、捕集層の上流側で、捕集層を形成する粒子表面に触媒粒子が担持されているため、排ガスと触媒との接触時間がより長くなることによって浄化効率や昇温性能をより高めることができると考えられる。ここで、「捕集層の触媒量」は、「隔壁部の触媒量」と同様であり、捕集層に担持された触媒量であって、ハニカムフィルタの単位体積（L）あたりの触媒の重量（g）をいうものとしてもよい。

【0036】

図 6 のハニカムフィルタ 20 では、上流側隔壁部 22 a の触媒量が下流側隔壁部 22 b

の触媒量よりも多く、上流側捕集層 2 4 a の触媒量が、下流側捕集層 2 4 b の触媒量よりも多く、上流側捕集層表面 2 5 a の触媒量が下流側捕集層表面 2 5 b の触媒量よりも多くなっている。このように、例えば、ハニカムフィルタ 2 0 では、捕集層表面 2 5 に触媒が担持されており、上流側捕集層表面 2 5 a の触媒量を A_s 、下流側捕集層表面 2 5 b の触媒量を B_s とすると、 $1.10 \leq A_s / B_s \leq 8.00$ を満たすものであることがより好ましい。こうすれば、昇温性能をより高めることができ、再生処理における再生効率をより高めることができるからである。このうち、 $1.50 \leq A_s / B_s \leq 8.00$ であることがより好ましく、 $3.00 \leq A_s / B_s \leq 8.00$ であることがより好ましい。こうすれば、昇温性能をより高めることができ、再生処理における再生効率をより高めることができるからである。この場合、セルに入った排ガスが、より早期に触媒と接触して酸化熱を発生させるため、この熱の伝播によってハニカムフィルタ全体が早期に高温となり、昇温性能をより高めることができ、浄化効率を高めることができると考えられる。ここで、「捕集層表面の触媒量」は、「隔壁部の触媒量」と同様であり、捕集層表面に担持された触媒量であって、ハニカムフィルタの単位体積 (L) あたりの触媒の重量 (g) をいうものとしてもよい。

10

20

30

40

50

【 0 0 3 7 】

ハニカムフィルタ 2 0 には、上述した図 4 ~ 6 に示したように触媒が担持されていてもよいが、上流側隔壁部 2 2 a と下流側隔壁部 2 2 b の触媒量が上述した関係を満たしていれば、捕集層 2 4 の内部や捕集層表面 2 5 の触媒については、特に限定されない。例えば、捕集層 2 4 の内部には触媒が形成されておらず捕集層表面 2 5 にのみ触媒が形成されていてもよいし、捕集層表面 2 5 には触媒が形成されておらず捕集層 2 4 内部にのみ触媒が形成されていてもよい。また、上流側捕集層 2 4 a より下流側捕集層 2 4 b の触媒量が多くてもよいし、上流側捕集層表面 2 5 a より下流側捕集層 2 5 b の触媒量が多くてもよい。また、触媒は、隔壁部や捕集層の厚さ方向について触媒量が変化するものであってもよい。

【 0 0 3 8 】

ここで、触媒量の測定方法について説明する。上流側の触媒量 a , A , A_s の測定位置は、図 7 に示すように、ハニカムフィルタ 2 0 の上流側端面から全長の約 $1 / 6$ の位置の断面において、中央点及び、この中央点に対して上下左右に位置する任意の 4 点を含む 5 箇所とし、5 箇所の測定値の平均を触媒量とする。また、下流側の触媒量 b , B , B_s の測定位置は、図 7 に示すように、ハニカムフィルタ 2 0 の下流側端面から全長の約 $1 / 6$ の位置の断面において、中央点及び、この中央点に対して上下左右に位置する任意の 4 点を含む 5 箇所とし、5 箇所の測定値の平均を触媒量とする。測定は以下のように行うものとする。まず、隔壁部 2 2 の触媒量 a , b 及び捕集層 2 4 の触媒量 A , B の測定用試料として、ハニカムフィルタ 2 0 の隔壁基材を測定断面 (X - Y 平面) が測定面となるように切り出し、樹脂埋めした後に研磨したものを用意する。また、捕集層表面 2 5 の触媒量 A_s , B_s の測定用試料として、ハニカムフィルタ 2 0 の隔壁基材を捕集層 2 4 の表面 (膜面) が測定面となるように切り出したものを用意する。続いて、走査型電子顕微鏡 (SEM) 観察を行い、観察した領域で元素分析を行うことにより触媒量を算出する。ここで、SEM の倍率は 1 0 0 倍 ~ 1 0 0 0 倍とすることが好ましい。元素分析には、例えばエネルギー分散型 X 線分析装置 (EDX) や、電子プローブマイクロアナライザ (EPMA) などを用いることができる。EDX での計測は、観察視野におけるスキャン計測を行い、得られた値 (質量 %) をその計測領域における濃度とし、各測定部位での値同士を相対比較することで各測定部の相対関係を評価するものとしてもよい。なお、触媒中の貴金属成分 (以下 PGM とも称する) を測定するものとしてもよいし、貴金属成分の担体としてのアルミナの量を測定し、これを貴金属成分の含有量に対応する触媒量としてもよい。具体的には、観察視野における 5 ~ 1 0 点の任意の位置において元素分析を行い、検出された成分の中の触媒成分に分類されるものの中で最も多いものを触媒担体と判定し、その触媒担体の質量 % をその観察視野における触媒量として扱うものとする。例えば、酸化触媒がコートされており、検出された触媒成分の内、最も多いものがアルミナであれば、そのアル

ミナの量を触媒量として扱うものとしてもよい。あるいは、触媒成分（Ptなど）が直接測定可能であれば、コートされている触媒における触媒成分（例えばPt）の質量%をその計測領域における触媒量として扱うものとしてもよい。例えば、上流側隔壁部と下流側隔壁部での触媒量の比較を行う場合など、各計測部の触媒量の相対関係を評価する場合には、EDXにて得られた質量%の値をそのまま比較に用いてもよい。また、質量%に対して、計測対象である八ニカムフィルタの総重量を掛けて、八ニカムフィルタの体積で割ることによって、その計測部における見かけ上の単位体積あたりの触媒量として扱ってもよい。

【0039】

接合層27は、八ニカムセグメント21を接合する層であり、無機粒子、無機繊維及び結合材などを含むものとしてもよい。無機粒子は、上述した無機材料の粒子とすることができ、その平均粒径は $0.1\mu\text{m}$ 以上 $30\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。無機繊維は、上述したものとしてもよく、例えば平均径が $0.5\mu\text{m}$ 以上 $8\mu\text{m}$ 以下、平均長さが $100\mu\text{m}$ 以上 $500\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。結合材としてはコロイダルシリカや粘土などとすることができる。接合層27は、 0.5mm 以上 2mm 以下の範囲で形成されていることが好ましい。なお、平均粒径は、レーザ回折/散乱式粒度分布測定装置を用い、水を分散媒として測定したメディアン径（D50）をいうものとする。外周保護部28は、八ニカムフィルタ20の外周を保護する層であり、上述した無機粒子、無機繊維及び結合材などを含むものとしてもよい。

10

【0040】

八ニカムフィルタ20において、 $40\sim 800$ におけるセル23の通過孔方向の熱膨張係数は、 $6.0 \times 10^{-6}/$ 以下であることが好ましく、 $1.0 \times 10^{-6}/$ 以下であることがより好ましく、 $0.8 \times 10^{-6}/$ 以下であることが更に好ましい。この熱膨張係数が $6.0 \times 10^{-6}/$ 以下であると、高温の排気に晒された際に発生する熱応力を許容範囲内に抑えることができる。

20

【0041】

次に、この八ニカムフィルタ20の製造方法について説明する。この八ニカムフィルタ20の製造方法は、例えば、一方の端部が開口され且つ他方の端部が目封止され流体の流路となる複数のセルを形成する多孔質の隔壁部22を形成する隔壁部形成工程と、排気に含まれるPMを捕集・除去する捕集層24を形成する捕集層形成工程と、一方の端部が開口され且つ他方の端部が目封止され流体の流路となる複数のセルを形成する複数の多孔質の隔壁部を備えた八ニカム構造体を、全体を触媒成分に接触させて触媒を形成する全体触媒形成工程と、一方の端部が開口され且つ他方の端部が目封止され流体の流路となる複数のセルを形成する複数の多孔質の隔壁部を備えた八ニカム構造体を、上流側だけ触媒成分に接触させて触媒を形成する部分触媒形成工程と、を含むものとしてもよい。

30

【0042】

この八ニカムフィルタの製造方法において、隔壁部形成工程では、隔壁部22の原料を混合し、所定の成形方法で隔壁部22を成形する。ここでは、隔壁部22は、捕集層24の形成前且つ焼成前の成形体である八ニカム成形体の成形に伴い成形される。隔壁部22の原料としては、例えば基材と造孔材と分散媒とを混合して坏土やスラリーを調製してもよい。基材としては、上述した無機材料を用いることができる。例えば、SiCを基材とするものにおいてはSiC粉末及び金属Si粉末を80:20の質量割合で混合し、水等の分散媒、造孔材を加えて、更に、これに有機バインダ等を添加して混練し、可塑性の坏土を形成することができる。SiC粉末及び金属Si粉末原料（成形原料）を混練して坏土を調製する手段は、特に制限はなく、例えば、ニーダー、真空土練機等を用いる方法を挙げることができる。造孔材としては、のちの焼成により燃焼するものが好ましく、例えば澱粉、コークス、発泡樹脂などを用いることができる。この坏土には、適宜、バインダーや分散剤などを添加してもよい。バインダーとしては、例えばセルローズ系などの有機系バインダを用いることが好ましい。分散剤としては、エチレングリコールなど界面活性剤を用いることができる。この隔壁部22は、例えば、セル23が並んで配設される形状

40

50

の金型を用いて上述した任意の形状に押出成形することにより八ニカム成形体として形成するものとしてもよい。続いて、八ニカム成形体に目封止部 26 を形成する処理を行う。この目封止部 26 は、一方の端部が開口され且つ他方の端部が目封止されたセル 23 と、一方の端部が目封止され且つ他方の端部が開口されたセル 23 と、が交互に配置されるよう形成することが好ましい。目封止に用いる原料は、上述した隔壁部 22 を形成する原料を用いるものとしてもよい。また、得られた八ニカム成形体は、乾燥処理・仮焼処理・焼成処理を行うことが好ましい。仮焼処理は、焼成温度よりも低い温度で八ニカム成形体に含まれる有機物成分を燃焼除去する処理である。焼成温度は、コーゼライト原料では、1400 ~ 1450 とし、Si 結合 SiC では、1450 とすることができる。このような工程を経て、捕集層 24 を形成する前の八ニカム構造体を得ることができる。なお、ここでいう八ニカム構造体とは、八ニカムセグメント 21 を形成するものであってもよいし、複数の八ニカムセグメント 21 を接合した八ニカムフィルタ 20 を形成するものであってもよい。

10

20

30

40

50

【0043】

この八ニカムフィルタの製造方法において、捕集層形成工程は、湿式で行ってもよいし、乾式で行ってもよい。また、これらの捕集層形成工程では、八ニカムフィルタ 20 の下流側捕集層 24b が上流側捕集層 24a より形成厚が厚くなるよう捕集層 24 を形成してもよい。この捕集層 24 の平均厚さは、10 μm 以上 80 μm 以下であることが好ましい。捕集層の厚さが 10 μm 以上では PM を捕集しやすく、80 μm 以下では流体が隔壁を通過する抵抗をより低減可能であり、圧力損失をより低減することができる。この捕集層の平均厚さは、20 μm 以上 60 μm 以下であることがより好ましく、30 μm 以上 50 μm 以下であることが更に好ましい。

【0044】

捕集層形成工程を湿式で行う場合、例えば、捕集層 24 の原料を含むスラリーを調製し、このスラリーをセル 23 へ供給することにより捕集層 24 を形成するものとしてもよい。このスラリーは、捕集層 24 の原料として、例えば、無機繊維と結合材とバインダーと分散媒とを混合して調製してもよい。あるいは、捕集層 24 の原料として、例えば、無機粒子と結合材とバインダーと分散媒とを混合して調製してもよい。無機繊維は、上述したものをを用いることができ、例えば平均径が 0.5 μm 以上 8 μm 以下、平均長さが 100 μm 以上 500 μm 以下であるものが好ましい。無機粒子としては、上述した無機材料の粒子を用いることができる。例えば、SiC を基材とするものにおいては、例えば平均粒径が 0.1 μm 以上 30 μm 以下の SiC 粒子を用いることができる。結合材としては、コロイダルシリカや粘土などを用いることができる。バインダーとしては、例えばセルロース系の有機系バインダを用いることが好ましい。分散剤としては、エチレングリコールなど界面活性剤を用いることができる。なお、平均粒径は、レーザ回折/散乱式粒度分布測定装置を用い、水を分散媒として測定したメディアン径 (D50) をいうものとする。

【0045】

この捕集層形成工程では、セル 23 の出口側から吸引することによりスラリーに含まれる固形分を隔壁部 22 上に形成するものとしてもよいし、セル 23 の入口側からスラリーを圧送することによりスラリーに含まれる固形分を隔壁部 22 上に形成するものとしてもよい。このうち、後者の方が捕集層 24 の厚さをより均一にすることができる。捕集層 24 は、隔壁部 22 上に原料の層を形成したあと乾燥及び熱処理を行い固定化することが好ましい。熱処理での温度としては、例えば 200 以上 900 以下の温度とすることが好ましく、650 以上 750 以下の温度とするのがより好ましい。熱処理温度が 200 以上では含まれている有機物を十分除去することができ、900 以下では細孔の減少を抑制することができる。

【0046】

捕集層形成工程を乾式で行う場合、例えば、気体 (空気) を捕集層の原料の搬送媒体とし、捕集層の原料を含む気体を入口セルへ供給するものとしてもよい。こうすれば、捕集層を構成する粒子群がより粗に形成されるため、極めて高い気孔率の捕集層を作製するこ

とができ、好ましい。捕集層の原料は、例えば、無機繊維や無機粒子を用いてもよい。無機繊維は上述したものをを用いることができ、例えば平均径が $0.5\mu\text{m}$ 以上 $8\mu\text{m}$ 以下、平均長さが $100\mu\text{m}$ 以上 $500\mu\text{m}$ 以下であるものが好ましい。無機粒子としては、上述した無機材料の粒子を用いることができる。例えば、平均粒径が $0.5\mu\text{m}$ 以上 $15\mu\text{m}$ 以下のSiC粒子やコーゼライト粒子を用いることができる。この捕集層の原料は、隔壁部22の平均細孔径よりも小さい平均粒径を有することが好ましい。このとき、隔壁部22と捕集層24との無機材料を同じ材質とすることが好ましい。また、無機粒子を含む気体を流入させる際に、気体の出口側を吸引することが好ましい。また、捕集層24の形成において、無機繊維や無機粒子と共に結合材も供給してもよい。結合材としてはゾル材料、コロイド材料から選択でき特にコロイダルシリカを用いることが好ましい。無機粒子はシリカにより被覆されており且つ無機粒子同士、及び無機粒子と隔壁部の材料とがシリカにより結合されていることが好ましい。例えば、コーゼライトやチタン酸アルミニウムなどの酸化物材料の場合には、無機粒子同士、及び無機粒子と隔壁部の材料とが焼結により結合されているのが好ましい。捕集層24は、隔壁部22上に原料の層を形成したあと、熱処理を行い結合することが好ましい。熱処理での温度としては、例えば 650 以上 1350 以下の温度とするのが好ましい。熱処理温度が 650 以上では十分な結合力を確保することができ、 1350 以下であると過度な粒子の酸化による細孔の閉塞を抑制することができる。

【0047】

この八ニカムフィルタ20の製造方法では、八ニカム構造体を、全体を触媒成分に接触させて触媒を形成する全体触媒形成工程及び、上流側だけ触媒成分に接触させて触媒を形成する部分触媒形成工程を行う。この全体触媒形成工程及び部分触媒形成工程は、隔壁部形成工程後、捕集層形成工程前に行ってもよいし、捕集層形成工程後に行ってもよい。また、全体触媒形成工程と部分触媒形成工程は、どちらを先に行ってもよい。全体触媒形成工程を先に行う場合、例えば、全体触媒形成工程ののち、触媒を乾燥させる全体触媒乾燥工程を行い、次いで、部分触媒形成工程ののち、触媒を乾燥させる部分触媒乾燥工程を行い、最後に焼成または高温での熱処理により触媒を担持させる焼成工程（熱処理工程）を行うものとしてもよい。また、全体触媒形成工程の後に焼成又は高温での熱処理により触媒を担持させる焼成工程（熱処理工程）を行い、その後部分触媒形成工程を行い、さらに焼成工程（熱処理工程）を行うものとしてもよい。部分触媒形成工程を先に行う場合も、同様とすることができる。捕集層24に形成する触媒としては、上述したような、未燃焼ガスを酸化する触媒や NO_x を分解する触媒などを適宜選択することができる。また、触媒の形成方法は特に限定されないが、例えば、八ニカム構造体の捕集層24に対して、触媒成分を含む触媒液をウォッシュコートしてもよいし、ディッピング法等の従来公知のセラミック膜形成方法を利用してよい。この際、触媒量は触媒を含む触媒液の濃度や触媒担持に要する時間等を制御することにより所望の値に調整することができる。なお、未燃焼ガスを酸化する触媒や NO_x を分解する触媒などの触媒成分は、高分散状態で担持させるため、予めアルミナのような比表面積の大きな耐熱性無機酸化物に一旦担持させた後、八ニカム構造体の隔壁等に担持させてもよい。また、触媒は、例えば、吸引法等の従来公知の触媒担持方法を応用して、触媒スラリーを隔壁及び/又はPM捕集層の細孔内に担持させ、乾燥、焼成する方法等により形成してもよい。

【0048】

ここでは、触媒の形成方法としてディッピング法を用いた場合について、図8, 9を用いて説明する。まず、八ニカム構造体の全体が浸かるように触媒を含む触媒液を満たした容器を準備し、そこに八ニカム構造体の全体を浸漬する（図8(a)参照）。所定時間浸漬した八ニカム構造体を容器から引き上げ、触媒成分を十分に乾燥させる（図8(b)参照）。このようにして、八ニカム構造体の上流側及び下流側の両方に均一に触媒を形成する。また、触媒を乾燥することにより、部分触媒形成工程において、全体触媒形成工程で形成された触媒成分の溶出を抑制することができる。次に、八ニカム構造体の上流側が浸漬するように触媒液を満たした容器を準備し、そこに八ニカム構造体の上流側を浸漬する

10

20

30

40

50

(図8(c)参照)。所定時間浸漬したハニカム構造体を容器から引き上げ、触媒成分を十分に乾燥させる(図8(d)参照)。これにより、ハニカム構造体の上流側にはさらに触媒が形成されるため、上流側の触媒量が多くなる。上流側を浸漬する触媒液の触媒の濃度をより高いものとしておけば、上流側の触媒の濃度を下流側よりもより容易に大きくすることができる。なお、図8(c)のようにハニカム構造体の上流側を触媒液に浸漬している場合には、触媒液側が開口しているセルのみならず、触媒液側に目封止部26を有するセルについても触媒液が侵入するため(図9参照)、上流側全体は均一に触媒成分が形成される。このとき、触媒粒子は隔壁部内の細孔よりも粒径が小さく、隔壁内部を通過可能であることが好ましい。

【0049】

また、このハニカムフィルタ20の製造方法は、例えば、一方の端部が開口され且つ他方の端部が目封止され流体の流路となる複数のセルを形成する多孔質の隔壁部22を形成する隔壁部形成工程と、排気に含まれるPMを捕集・除去する捕集層24を形成する捕集層形成工程と、一方の端部が開口され且つ他方の端部が目封止され流体の流路となる複数のセルを形成する複数の多孔質の隔壁部を備えたハニカム構造体を、上流側だけ触媒成分に接触させて触媒を形成する上流側触媒形成工程と、一方の端部が開口され且つ他方の端部が目封止され流体の流路となる複数のセルを形成する複数の多孔質の隔壁部を備えたハニカム構造体を、下流側だけ前記触媒成分よりも低濃度の触媒成分に接触させて触媒を形成する下流側触媒形成工程と、を含むものとしてもよい。

【0050】

隔壁部形成工程及び捕集層形成工程は、上述と同様に行うものとしてすることができる。このハニカムフィルタ20の製造方法では、ハニカム構造体を、上流側だけ触媒成分に接触させて触媒を形成する上流側触媒形成工程及び、下流側だけ上流側と接触させた触媒成分よりも低濃度の触媒成分に接触させて触媒を形成する下流側触媒形成工程を行う。この上流側触媒形成工程及び下流側触媒形成工程は、隔壁部形成工程後、捕集層形成工程前に行ってもよいし、捕集層形成工程後に行ってもよい。また、上流側触媒形成工程と下流側触媒形成工程は、どちらを先に行ってもよい。上流側触媒形成工程を先に行う場合、例えば、上流側触媒形成工程ののち、触媒を乾燥させる上流側触媒乾燥工程を行い、次いで、下流側触媒形成工程ののち、触媒を乾燥させる下流側触媒乾燥工程を行い、最後に、焼成又は高温での熱処理により触媒を担持させる焼成工程(熱処理工程)を行うものとしてもよい。また、上流側触媒形成工程の後に焼成又は高温での熱処理により触媒を担持させる焼成工程(熱処理工程)を行い、その後下流側触媒形成工程を行い、さらに焼成工程(熱処理工程)を行うものとしてもよい。下流側触媒形成工程を先に行う場合も、同様とすることができる。捕集層24に形成する触媒としては、上述したような、未燃焼ガスを酸化する触媒やNO_xを分解する触媒などを適宜選択することができる。また触媒の形成方法も、上述の全体触媒形成工程や部分触媒形成工程と同様の方法を用いることができる。

【0051】

以上説明した実施形態のハニカムフィルタ及び、以上説明した実施形態の製造方法によって製造したハニカムフィルタによれば、上流側隔壁部22aの触媒量aと下流側隔壁部22bの触媒量bとの比率が適切であり、固体成分を捕集・除去する層である捕集層とを備えているため、圧力損失の上昇を抑制し、浄化効率や昇温性能をより高めることができる。

【0052】

なお、本発明は上述した実施形態に何ら限定されることはなく、本発明の技術的範囲に属する限り種々の態様で実施し得ることはいうまでもない。

【0053】

例えば、上述した実施形態では、ハニカムセグメント21を接合層27により接合したハニカムフィルタ20としたが、図10に示すように、一体成形されたハニカムフィルタ40としてもよい。ハニカムフィルタ40において、隔壁部42、セル43、捕集層44、目封止部46及び外周保護部48などは、ハニカムフィルタ20の隔壁部22、セル2

10

20

30

40

50

3、捕集層24、目封止部26及び外周保護部28と同様の構成とすることができる。このようにしても、圧力損失の上昇を抑制し、浄化効率や昇温性能をより高めることができる。

【0054】

上述した実施形態では、ハニカムフィルタ20には触媒が含まれるものとしたが、流通する流体に含まれる除去対象物質を浄化処理可能なものであれば特にこれに限定されない。また、上述した実施形態では、自動車用のハニカムフィルタ20として説明したが、流体に含まれる固体成分を捕集・除去するものであれば特にこれに限定されず、発電エンジン用のハニカムフィルタとしてもよいし、建設機器用のハニカムフィルタとしてもよい。

【実施例】

【0055】

以下には、ハニカムフィルタを具体的に製造した例を実施例として説明する。

【0056】

[ハニカムフィルタの作製]

まず、以下のようにハニカムセグメントを作製した。SiC粉末及び金属Si粉末を80：20の質量割合で混合し、これにメチルセルロース及びヒドロキシプロポキシメチルセルロース、界面活性剤及び水を添加して混練し、可塑性の坯土を得て、所定の金型を用いて坯土を押出成形し、所望形状のハニカムセグメント成形体を成形した。ここでは、隔壁部の厚さが305 μ m、断面が35mm \times 35mm、長さが152.4mmの形状に成形した。次に、得られたハニカムセグメント成形体をマイクロ波により乾燥させ、更に熱風にて乾燥させたあと、目封止をして、酸化雰囲気において550、3時間で仮焼きした後に、不活性雰囲気下にて1400、2時間の条件で本焼成を行った。目封止部の形成は、セグメント成形体の一方の端面のセル開口部に交互にマスクを施し、マスクした端面をSiC原料を含有する目封止スラリーに浸漬し、開口部と目封止部とが交互に配設されるように行った。また、他方の端面にも同様にマスクを施し、一方が開口し他方が目封止されたセルと一方が目封止され他方が開口したセルとが交互に配設されるように目封止部を形成した。このようにしてハニカムセグメントを作製した。隔壁部の気孔率は42%であった。

【0057】

次に、捕集層の形成を湿式で行った。まず、上述のように作製したハニカムセグメントについて、無機粒子としてSiC(平均粒径15 μ m)を2.5重量%、有機バインダとしてカルボキシメチルセルロースを0.5重量%、結合材としてコロイダルシリカを2重量%、分散媒としての水を95重量%となるよう混合し、捕集層形成用のスラリーを得た。次に、図10に示す捕集層形成装置50を用いて捕集層を形成した。まず、作製したハニカムセグメントの一端に治具51に固定すると共に、ハニカムセグメントの他端に供給固定筒54を固定した。治具51の中央には貫通孔52が形成されている。また、供給固定筒54の先端には、スラリー供給用の供給口53が形成されている。供給固定筒54とハニカムセグメント21との間には、スラリーの供給量を調整する供給量調整板56が配設されている。この供給量調整板56は、スラリーの流量を調整する部材である。次に、所定の膜厚が形成されるよう予め経験的に得た位置に供給量調整板56を固定し、供給口53からスラリーを圧送し供給口53側に目封止部26が形成されていないハニカムセグメントのセル内部にスラリーを供給した(図11の左図)。次に、治具51の貫通孔52を吸引し、スラリーの溶媒である水を隔壁部22を介して排出させた(図11の中央図)。このとき、供給固定筒54側に開口部を有するセル23の内部にスラリーの固体分が残留し隔壁部上に捕集層が形成された。そして、得られたハニカム構造体を熱風乾燥機で乾燥させたのち、700で1時間熱処理して捕集層を形成したハニカムセグメントを得た(図11右図)。

【0058】

次に、捕集層を形成したハニカムセグメントの側面に、アルミナシリケートファイバ、コロイダルシリカ、ポリビニルアルコール、炭化珪素、および水を混練してなる接合用ス

10

20

30

40

50

ラリーを塗布し、互いに組み付けて圧着した後、加熱乾燥して、全体形状が四角形状の八ニカムセグメント接合体を得た。さらに、その八ニカムセグメント接合体を、円柱形状に研削加工した後、その周囲を、接合用スラリーと同等の材料からなる外周コート用スラリーで被覆し、乾燥により硬化させることにより所望の形状、セグメント形状、セル構造を有する円柱形状の八ニカムフィルタを得た。ここでは、八ニカムフィルタは、断面の直径が143.8mm、長さが152.4mmの形状とした。

【0059】

(比較例1)

次に、触媒の担持を以下のように行った。まず、重量比でアルミナ：白金：セリア系材料 = 7 : 0.5 : 2.5とし、セリア系材料を重量比でCe : Zr : Pr : Y : Mn = 60 : 20 : 10 : 5 : 5とした原料を混合し、溶媒を水とした触媒のスラリーを調製した。以下では、触媒のスラリーとはこの組成のものを示し、触媒の粒径や濃度を適宜調整して用いるものとした。また、触媒の粒径が捕集層の細孔径よりも小さく捕集層を通過可能なものを小粒径、触媒の細孔径が捕集層の細孔径よりも大きく捕集層の表面に捕集されるものを大粒径と称するものとした。次に、所定濃度の小粒径の触媒のスラリーに、八ニカムフィルタの下流側端面を所定の高さまで浸漬させ、上流側より、所定の吸引圧力と吸引流量に調整しながら所定時間にわたって吸引して触媒を形成し、120分2時間で乾燥させ、550分1時間で焼付けを行った。なお、八ニカムフィルタの単位体積あたりの触媒量は全体で20g/Lとなるようにした(以下同様とする)。このようにして、上流側隔壁部の触媒量aと下流側隔壁部の触媒量bとの比が $a/b = 1$ 、上流側捕集層の触媒量Aと下流側捕集層の触媒量Bとの比が $A/B = 1$ 、上流側捕集層表面の触媒量 A_s 、下流側捕集層表面の触媒量 B_s との比が $A_s/B_s = 1$ となるように触媒を担持した比較例1の八ニカムフィルタを作製した。

【0060】

(比較例2)

所定濃度の小粒径の触媒のスラリーに、八ニカムフィルタの下流側端面を所定の高さまで浸漬させ、上流側より、所定の吸引圧力と吸引流量に調整しながら所定時間にわたって吸引して触媒を形成し、120分2時間で乾燥させた。これにより、上流側・下流側で均一な濃度の触媒が隔壁部、捕集層、捕集層表面に固定された。次に、所定濃度の小粒径の触媒スラリーに八ニカムフィルタの上流側端面を所定の高さまで所定時間浸漬させて触媒を形成し、捕集層表面から隔壁部に向けて押し出し圧力0.3MPaでエアーを吹き付けて捕集層及び捕集層表面に形成された触媒を隔壁部に押し出した。そして、120分2時間で乾燥させた後、550分1時間で焼付けを行った。このようにして、 $a/b = 1.03$ 、 $A/B = 1$ 、 $A_s/B_s = 1$ となるように比較例2の八ニカムフィルタを作製した。

【0061】

(実施例1~6)

$a/b = 1.05$ となるようにした以外は比較例2と同様の工程により実施例1の八ニカムフィルタを作製した。また、 $a/b = 1.08$ となるようにした以外は比較例2と同様の工程により実施例2の八ニカムフィルタを作製した。また、 $a/b = 1.1$ となるようにした以外は比較例2と同様の工程により実施例3の八ニカムフィルタを作製した。また、 $a/b = 1.5$ となるようにした以外は比較例2と同様の工程により実施例4の八ニカムフィルタを作製した。また、 $a/b = 2$ となるようにした以外は比較例2と同様の工程により実施例5の八ニカムフィルタを作製した。また、 $a/b = 3$ となるようにした以外は比較例2と同様の工程により実施例6の八ニカムフィルタを作製した。

【0062】

(比較例3)

$a/b = 5$ となるようにした以外は比較例2と同様の工程により比較例3の八ニカムフィルタを作製した。

【0063】

(比較例4~6)

10

20

30

40

50

捕集層を形成する工程を省略し、 $a/b = 1.05$ となるようにした以外は比較例 2 と同様の工程により比較例 4 の八ニカムフィルタを作製した。また、 $a/b = 1.5$ となるようにした以外は比較例 4 と同様の工程により比較例 5 の八ニカムフィルタを作製した。また、 $a/b = 3.0$ となるようにした以外は比較例 4 と同様の工程により比較例 6 の八ニカムフィルタを作製した。

【0064】

(実施例 7 ~ 15)

所定濃度の小粒径の触媒のスラリーに、八ニカムフィルタの下流側端面を所定の高さまで浸漬させ、上流側より、所定の吸引圧力と吸引流量に調整しながら所定時間にわたって吸引して触媒を形成し、120 2 時間で乾燥させた。次に、所定濃度の小粒径の触媒スラリーに、八ニカムフィルタの上流側端面を所定の高さまで所定時間浸漬させて触媒を形成し、その後捕集層表面から隔壁部に向けてエアーを吹き付けて捕集層及び捕集層表面の触媒を隔壁部に押し出し、120 2 時間で乾燥させた。これにより、隔壁部は上流側が高濃度、捕集層及び捕集層表面は上流側・下流側で均一な濃度の触媒が固定された。さらに、所定濃度の小粒径の触媒スラリーに、八ニカムフィルタの上流側端面を所定の高さまで所定時間浸漬させて触媒を形成し、その後捕集層表面から隔壁部に向けてエアーを吹き付けて捕集層表面の触媒を捕集層内部に押し出し、120 2 時間で乾燥させた後、550 1 時間で焼付けを行った。このようにして、 $a/b = 1.5$ 、 $A/B = 1.03$ 、 $A_s/B_s = 1$ となるように実施例 7 の八ニカムフィルタを作製した。また、 $A/B = 1.05$ となるようにした以外は実施例 7 と同様の工程により実施例 8 の八ニカムフィルタを作製した。また、 $A/B = 1.08$ となるようにした以外は実施例 7 と同様の工程により実施例 9 の八ニカムフィルタを作製した。また、 $A/B = 1.1$ となるようにした以外は実施例 7 と同様の工程により実施例 10 の八ニカムフィルタを作製した。また、 $A/B = 1.5$ となるようにした以外は実施例 7 と同様の工程により実施例 11 の八ニカムフィルタを作製した。また、 $A/B = 2$ となるようにした以外は実施例 7 と同様の工程により実施例 12 の八ニカムフィルタを作製した。また、 $A/B = 3$ となるようにした以外は実施例 7 と同様の工程により実施例 13 の八ニカムフィルタを作製した。また、 $A/B = 5$ となるようにした以外は実施例 7 と同様の工程により実施例 14 の八ニカムフィルタを作製した。また、 $A/B = 8$ となるようにした以外は実施例 7 と同様の工程により実施例 15 の八ニカムフィルタを作製した。

【0065】

(実施例 16 ~ 25)

所定濃度の小粒径の触媒のスラリーに、八ニカムフィルタの下流側端面を所定の高さまで浸漬させ、上流側より、所定の吸引圧力と吸引流量に調整しながら所定時間にわたって吸引して触媒を形成し、120 2 時間で乾燥させた。次に、所定濃度の小粒径の触媒スラリーに、八ニカムフィルタの上流側端面を所定の高さまで所定時間浸漬させて触媒を形成し、120 2 時間で乾燥させた。これにより、上流側が高濃度となるように隔壁部、捕集層、捕集層表面に触媒が固定された。ついで、所定濃度の小粒径の触媒スラリーに八ニカムフィルタの上流側端面を所定の高さまで所定時間浸漬させて触媒を形成し、120 2 時間で乾燥させた後、550 1 時間で焼付けを行った。このようにして、 $a/b = 1.5$ 、 $A/B = 1.5$ 、 $A_s/B_s = 1.03$ となるように実施例 16 の八ニカムフィルタを作製した。また、 $A_s/B_s = 1.05$ となるようにした以外は実施例 16 と同様の工程により実施例 17 の八ニカムフィルタを作製した。また、 $A_s/B_s = 1.08$ となるようにした以外は実施例 16 と同様の工程により実施例 18 の八ニカムフィルタを作製した。また、 $A_s/B_s = 1.1$ となるようにした以外は実施例 16 と同様の工程により実施例 19 の八ニカムフィルタを作製した。また、 $A_s/B_s = 1.5$ となるようにした以外は実施例 16 と同様の工程により実施例 20 の八ニカムフィルタを作製した。また、 $A_s/B_s = 2$ となるようにした以外は実施例 16 と同様の工程により実施例 21 の八ニカムフィルタを作製した。また、 $A_s/B_s = 3$ となるようにした以外は実施例 16 と同様の工程により実施例 22 の八ニカムフィルタを作製した。また、 $A_s/B_s = 5$ となるようにした以外は

実施例 16 と同様の工程により実施例 23 の八ニカムフィルタを作製した。また、 $A_s / B_s = 8$ となるようにした以外は実施例 16 と同様の工程により実施例 24 の八ニカムフィルタを作製した。また、 $A_s / B_s = 10$ となるようにした以外は実施例 16 と同様の工程により実施例 25 の八ニカムフィルタを作製した。

【0066】

(実施例 26)

捕集層の形成を乾式で行った以外は、実施例 22 と同様の工程により実施例 26 の八ニカムフィルタを作製した。乾式での捕集層の形成は、以下のように行った。まず、上述のように作製した八ニカムセグメントの排ガス流入側の開口端部より、隔壁の平均細孔径よりも小さい平均粒径を有する SiC 粒子を含む空気を流入させ、且つ八ニカムセグメントの流出側より吸引しながら、排ガス流入側の隔壁の表層に堆積させた。次に、大気雰囲気下にて 1300、2 時間の条件の熱処理により、隔壁の表層に堆積させた SiC 粒子同士、及び堆積させた SiC 粒子と隔壁を構成する SiC 及び Si 粒子と結合させた。このように、捕集層を形成した八ニカムセグメントを得た。

10

【0067】

(実施例 27)

比較例 6 と同様に捕集層のない八ニカムセグメントへ $a / b = 3$ となるように触媒をコートしたあとで、実施例 1 と同様の工程を経て捕集層の形成を湿式で行い、得られた八ニカムフィルタを実施例 27 とした。即ち、この実施例 27 は、隔壁部には触媒が形成されているが捕集層には触媒が形成されていないものであり、 $a / b = 3$ 、 $A / B =$ なし、 $A_s / B_s =$ なし、である。この実施例 27 の測定結果は、上記実施例と共に後述する表 1 に記載した。

20

【0068】

[触媒量の測定]

作成した八ニカムフィルタについて、触媒量を以下のように測定した。まず、隔壁部 22 の触媒量 a 、 b 及び捕集層 24 の触媒量 A 、 B の測定用試料として、八ニカムフィルタ 20 の隔壁基材を測定断面 ($X - Y$ 平面) が測定面となるように切り出し樹脂埋めした後に研磨したものを用意した。樹脂埋めには、スペシフィックスエポキシ系樹脂 (ストルアス社製) とスペシフィックス - 20 硬化剤 (ストルアス社製) を混合して硬化させる 2 液タイプのものを用いた。また、捕集層表面 25 の触媒量 A_s 、 B_s の測定用試料として、八ニカムフィルタ 20 の隔壁基材を捕集層 24 の表面 (膜面) が測定面となるように切り出したものを用意した。続いて、走査型電子顕微鏡 (S - 3200N, 日立ハイテクノロジーズ製) を用いて 500 倍の倍率で SEM 観察を行い、観察した領域でエネルギー分散型 X 線分析装置 (EMAX - 5770W, 堀場製作所製) を用いて元素分析を行った。元素分析では、アルミニウム量を測定し、これを触媒量とした。なお、隔壁部および捕集層では、それぞれ触媒が厚さ方向に均一に担持されていた。

30

【0069】

[耐久後 HC 浄化試験]

流入ガス温度 200 ~ 650 の昇降温を 270 sec で行うサイクルを 1 サイクルとして排ガスを流入し、これを 200 サイクル繰り返す耐久試験を実施した。耐久試験後の八ニカムフィルタを 2.0 L ディーゼルエンジンの排ガス後流部に設置し、エンジン回転数 2000 rpm、トルク 60 Nm の定常状態でエンジンを駆動し、八ニカムフィルタの上流側のガスの温度が安定したときの入口の HC に対する出口の HC 量の割合を耐久後浄化効率 (%) として算出した。

40

【0070】

[圧力損失試験]

PM を含む 200 の排ガスを 2.27 Nm³ / 分の流量で流して、八ニカムフィルタ内部に PM を徐々に堆積させ、八ニカムフィルタの外形体積に対する PM 体積量が 6 g / L に達した時点における八ニカムフィルタの入口と出口との圧力を測定し、入口側と出口側の圧力差を圧力損失 (kPa) として算出した。

50

【 0 0 7 1 】

[P M再生試験]

圧力損失試験と同様にして P Mを堆積させたハニカムフィルタを用意した。次に、2.0 Lディーゼルエンジンの排ガス後流部に設置し、エンジン回転数 2000 rpm、トルク 60 Nmの定常状態でエンジンを駆動し、ハニカムフィルタの上流側のガス温度が安定したらポストインジェクションを入れ、ガス温度 650 度の燃焼ガスを流入させて再生を 10 分間行った。P M堆積後再生前後のハニカムフィルタの重量を測定し、(再生前重量 - 再生後重量) / 初期 P M重量で表される P Mの再生効率 (%) を算出した。

【 0 0 7 2 】

[実験結果]

表 1 には、実施例 1 ~ 6 及び比較例 1 ~ 6 の実験結果を示した。比較例 1 は、隔壁部、捕集層、捕集層表面のいずれも上流側・下流側で均一に触媒が担持されたものである。実施例 1 ~ 6 及び比較例 2, 3 は、隔壁部のみ上流側に触媒が多く担持され、捕集層、捕集層表面には上流側・下流側で均一に触媒が担持されたものである。比較例 4 ~ 6 は、捕集層が形成されていないものである。この結果より、a / b を大きくすると、耐久後浄化効率 (H C 除去効率) が向上することが分かった。捕集層が形成されていない比較例 4 ~ 6 では、a / b = 1 の実施例よりも耐久後浄化効率が低いことから、捕集層を設けることと a / b を所定値とすることとの相乗効果によって、耐久後浄化効率が高められることが分かった。特に、1.05 a / b 3.00 であれば、圧力損失の上昇を抑制し、耐久後浄化効率を低減できることが分かった。このうち、1.5 a / b 3.0 であれば、耐久後浄化効率をより高めることができることが分かった。このような効果が得られた理由としては、排ガスと触媒との上流側での接触が多いと、H C 成分などの酸化により発生した酸化熱がハニカムフィルタ全体により早くより無駄なく伝播するため昇温性能が良好となり、触媒の活性が高まって浄化効率が向上したり、1 回の再生処理での P Mの燃焼量が増加したためと推察された。また、隔壁表面に捕集層が存在することで隔壁内部の触媒が P Mなどと直接接触することを抑制し、P Mに含まれる硫黄などによる触媒の被毒を抑制するなどして、耐久試験後であっても H C の浄化効率を良好にできるものと推察された。また、捕集層には触媒が形成されていない実施例 27 では、耐久後浄化効率が 68.8 %、この変化率が 43 %、圧損が 7 kPa、この変化率が 0 %、P M再生効率が 69.6 %、この変化率が 4 %であった。この結果より、捕集層に触媒が形成されていなくても、上流側と下流側との触媒量が異なると、よい特性が得られることがわかった。

【 0 0 7 3 】

10

20

30

【表 1】

	捕集層	a/b	A/B	A _S /B _S	耐久後浄化効率		圧損		PM再生効率	
					変化率		変化率		変化率	
					%	%	kPa	%	%	%
比較例1	湿式	1	1	1	48.0	-	7.0	-	67.0	-
比較例2	湿式	1.03	1	1	48.1	0	7.0	0	67.2	0
実施例1	湿式	1.05	1	1	50.6	5	7.0	0	67.1	0
実施例2	湿式	1.08	1	1	52.2	9	7.0	0	67.1	0
実施例3	湿式	1.1	1	1	53.2	11	7.0	0	67.3	0
実施例4	湿式	1.5	1	1	58.4	22	7.0	0	68.0	1
実施例5	湿式	2	1	1	63.6	33	6.9	-1	68.7	2
実施例6	湿式	3	1	1	68.8	43	7.0	0	69.6	4
実施例26	湿式	3	-	-	68.8	43	7.0	0	69.6	4
比較例3	湿式	5	1	1	74.0	54	9.1	30	73.6	10
比較例4	なし	1.05	-	-	35.8	-25	8.4	20	69.1	3
比較例5	なし	1.5	-	-	37.6	-22	8.4	19	69.0	3
比較例6	なし	3	-	-	40.7	-15	8.4	20	71.2	6

a: 上流側隔壁部触媒量(g/L) / b: 下流側隔壁部触媒量(g/L)

A: 上流側捕集層触媒量(g/L) / B: 下流側捕集層触媒量(g/L)

A_S: 上流側捕集層表面触媒量(g/L) / B_S: 下流側捕集層表面触媒量(g/L)

※ 変化率は、比較例1に対する変化率。

【0074】

表2には、実施例4, 7~15の実験結果を示した。実施例4, 7~15は、隔壁部の触媒が a / b = 1.5 で一定、捕集層表面の触媒が A_S / B_S = 1 で一定であり、A / B を 1 ~ 8 までの間で変化させたものである。この結果より、A / B を大きくすると、耐久後浄化効率（HC除去効率）がより向上することが分かった。また、1.08 A / B 5.00 であれば、圧力損失の上昇をより抑制し、耐久後浄化効率をより高めることが分かった。このうち、1.50 A / B 5.00 であれば浄化効率をより高めることができ、2.00 A / B 5.00 であれば浄化効率をさらに高めることが分かった。

【0075】

10

20

30

【表 2】

実施例	捕集層	a/b	A/B	A _s /B _s	耐久後浄化効率		圧損		PM再生効率	
					変化率		変化率		変化率	
					%	%	kPa	%	%	%
実施例4	湿式	1.5	1	1	58.4	-	7.0	-	68.0	-
実施例7	湿式	1.5	1.03	1	58.4	0	7.0	0	68.0	0
実施例8	湿式	1.5	1.05	1	66.7	14	7.0	0	68.0	0
実施例9	湿式	1.5	1.08	1	83.4	43	7.0	0	68.0	0
実施例10	湿式	1.5	1.1	1	87.5	50	7.0	0	68.1	0
実施例11	湿式	1.5	1.5	1	90.8	56	6.9	-1	68.1	0
実施例12	湿式	1.5	2	1	93.8	61	6.9	-1	68.1	0
実施例13	湿式	1.5	3	1	95.8	64	6.9	-1	68.2	0
実施例14	湿式	1.5	5	1	97.1	66	7.0	0	68.0	0
実施例15	湿式	1.5	8	1	98.3	68	8.7	25	68.1	0

a: 上流側隔壁部触媒量(g/L) / b: 下流側隔壁部触媒量(g/L)

A: 上流側捕集層触媒量(g/L) / B: 下流側捕集層触媒量(g/L)

A_s: 上流側捕集層表面触媒量(g/L) / B_s: 下流側捕集層表面触媒量(g/L)

※ 変化率は、実施例4に対する変化率。

10

20

【0076】

表3には、実施例11, 16~26の実験結果を示した。実施例11, 16~25は、隔壁部の触媒が $a/b = 1.5$ で一定、捕集層の触媒が $A/B = 1.5$ で一定であり、 A_s/B_s を1~10までの間で変化させたものである。この結果より、 A_s/B_s を大きくすると、耐久後浄化効率(HC除去効率)が向上し、PM再生効率も向上することが分かった。また、 $1.10 < A_s/B_s < 8.00$ であれば、圧力損失の上昇をより抑制し、PM再生効率もより向上することが分かった。このうち、 $1.50 < A_s/B_s < 8.00$ であればPM再生効率がより向上し、 $3.00 < A_s/B_s < 8.00$ であればPM再生効率が更に向上することが分かった。また、捕集層を乾式で形成した実施例26は、捕集層の形成方法以外は同様の工程で作製した実施例22とほぼ同等の結果であったことから、捕集層の形成方法はどのようなものであってもよいと推察された。

30

【0077】

【表 3】

実施例	捕集層	a/b	A/B	A _s /B _s	耐久後浄化効率		圧損		PM再生効率	
					変化率		変化率		変化率	
					%	%	kPa	%	%	%
実施例11	湿式	1.5	1.5	1	90.8	-	6.9	-	68.1	-
実施例16	湿式	1.5	1.5	1.03	90.9	0	6.9	0	68.1	0
実施例17	湿式	1.5	1.5	1.05	90.9	0	6.9	0	68.1	0
実施例18	湿式	1.5	1.5	1.08	91.3	1	6.9	0	68.2	0
実施例19	湿式	1.5	1.5	1.1	91.8	1	6.9	0	77.6	14
実施例20	湿式	1.5	1.5	1.5	92.7	2	6.9	0	84.0	23
実施例21	湿式	1.5	1.5	2	93.6	3	6.8	-1	87.2	28
実施例22	湿式	1.5	1.5	3	94.1	4	6.8	-1	90.4	33
実施例23	湿式	1.5	1.5	5	94.5	4	6.9	0	93.6	38
実施例24	湿式	1.5	1.5	8	94.8	4	6.9	0	95.2	40
実施例25	湿式	1.5	1.5	10	95.0	5	8.3	20	96.8	42
実施例26	乾式	1.5	1.5	3	92.3	2	6.5	-8	90.2	35

a: 上流側隔壁部触媒量(g/L) / b: 下流側隔壁部触媒量(g/L)

A: 上流側捕集層触媒量(g/L) / B: 下流側捕集層触媒量(g/L)

A_s: 上流側捕集層表面触媒量(g/L) / B_s: 下流側捕集層表面触媒量(g/L)

※ 変化率は、実施例11に対する変化率。

10

20

【0078】

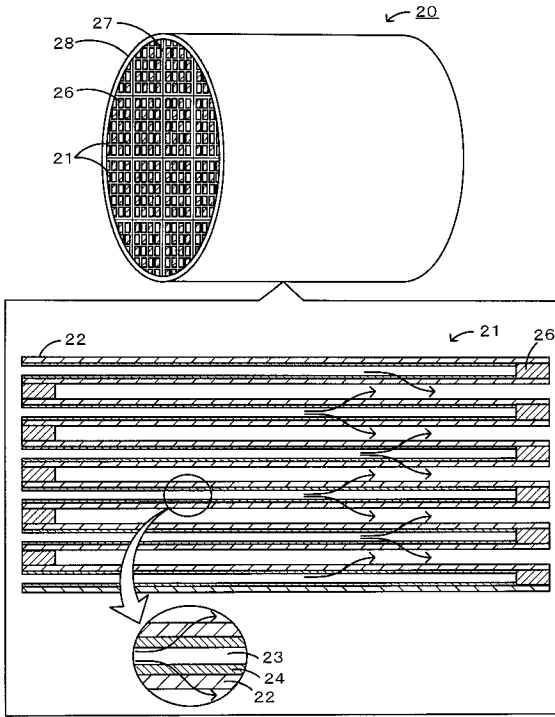
本出願は、2010年3月31日に出願された日本国特許出願第2010-81903号を優先権主張の基礎としており、引用によりその内容の全てが本明細書に含まれる。

【産業上の利用可能性】

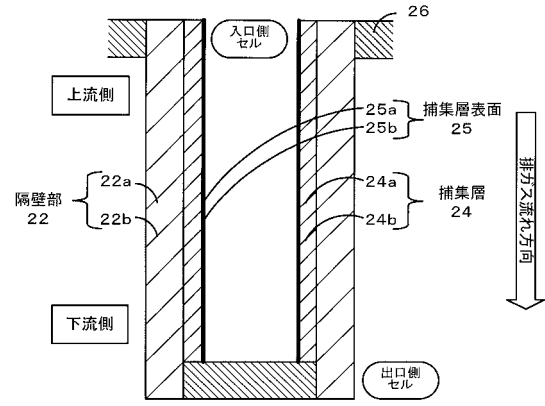
【0079】

本発明は、自動車用エンジン、建設機械用及び産業用の定置エンジン並びに燃焼機器等から排出される排ガスを浄化するためのフィルターとして好適に使用することができる。

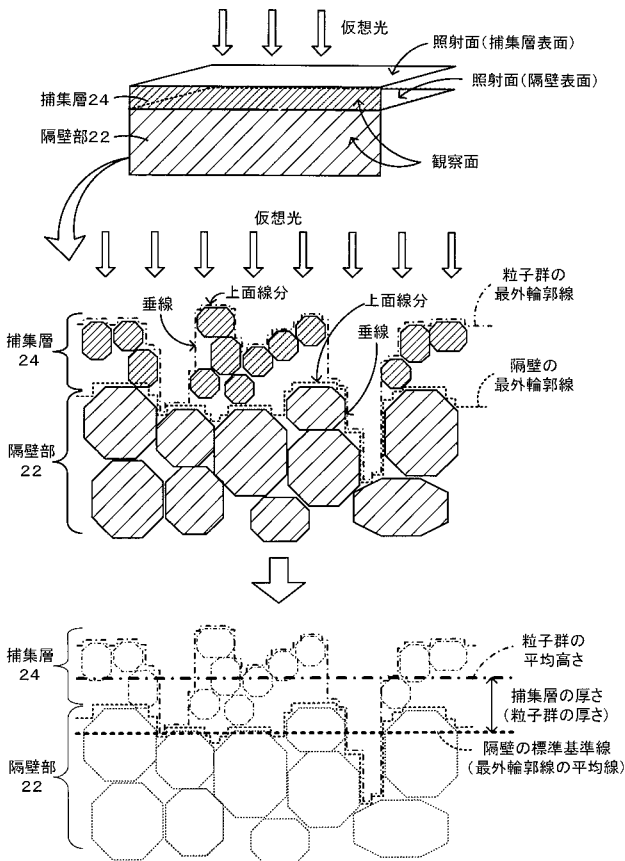
【 図 1 】



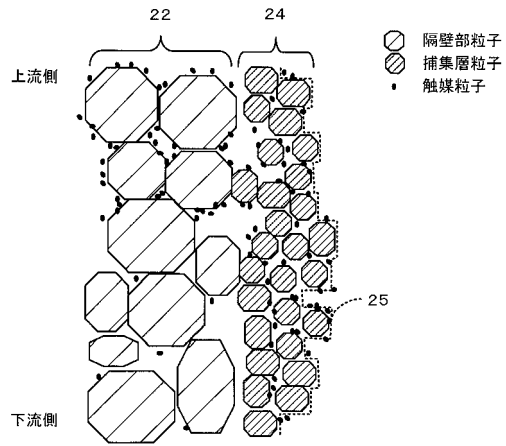
【 図 2 】



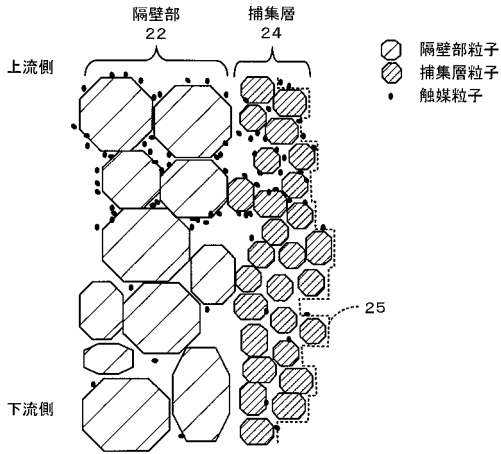
【 図 3 】



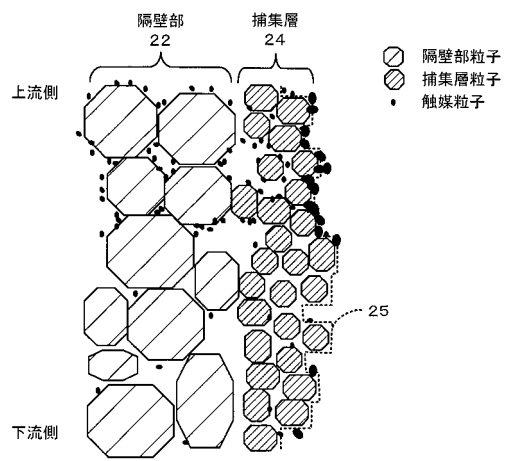
【 図 4 】



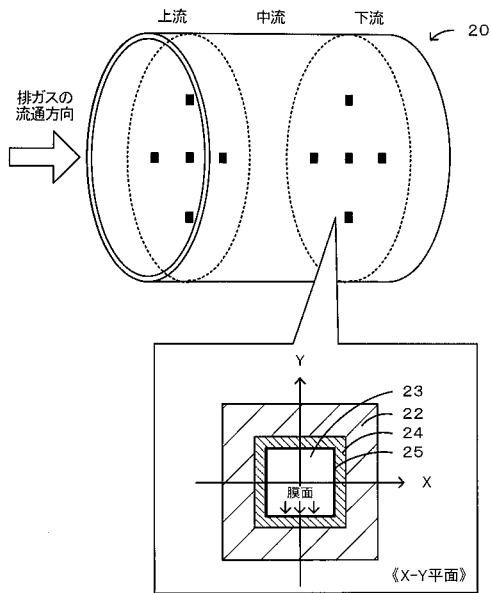
【 図 5 】



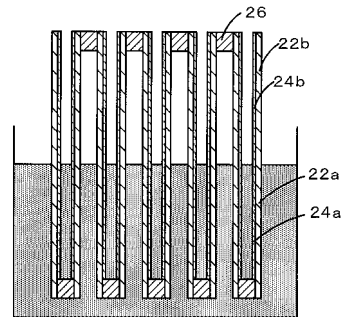
【 図 6 】



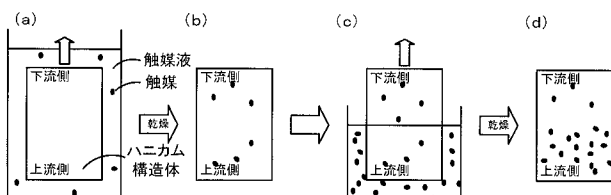
【 図 7 】



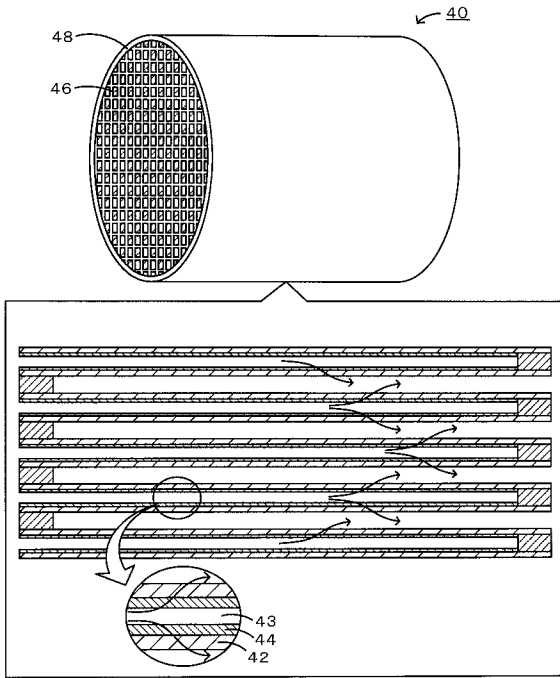
【 図 9 】



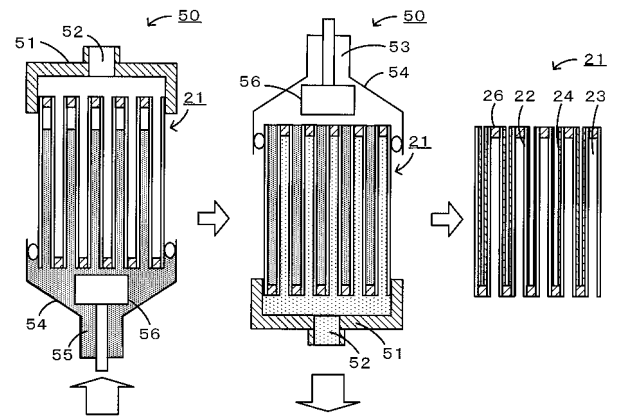
【 図 8 】



【図10】



【図11】



【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/JP2011/058081
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER <i>B01J35/04</i> (2006.01) i, <i>B01D39/20</i> (2006.01) i, <i>B01D46/00</i> (2006.01) i, <i>B01D53/86</i> (2006.01) i, <i>B01D53/94</i> (2006.01) i, <i>F01N3/02</i> (2006.01) i 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) <i>B01J35/04</i> , <i>B01D39/20</i> , <i>B01D46/00</i> , <i>B01D53/86</i> , <i>B01D53/94</i> , <i>F01N3/02</i> Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2011 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2011 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2011 Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2006-189027 A (Denso Corp.), 20 July 2006 (20.07.2006), claims 5, 6; paragraphs [0013] to [0015], [0028] to [0031]; examples 2, 3; fig. 10 to 12 & DE 102005058043 A & FR 2878898 A1	1-4 5
X Y	JP 2006-175386 A (Cataler Corp.), 06 July 2006 (06.07.2006), claims 1 to 5; example 1; fig. 1, 3 & US 2006/0142153 A1 & EP 1679119 A1 & EP 1859864 A1 & DE 602005009313 D & DE 602005017943 D	1-4 5
Y	JP 2002-177794 A (Denso Corp.), 25 June 2002 (25.06.2002), claim 5; paragraphs [0060], [0061]; fig. 9, 10 (Family: none)	5
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> 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 "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 08 July, 2011 (08.07.11)		Date of mailing of the international search report 19 July, 2011 (19.07.11)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer
Facsimile No.		Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/058081

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:
See extra sheet.

1. As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3. As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/058081

Continuation of Box No.III of continuation of first sheet(2)

Since a filter for purification of exhaust gas in a diesel engine wherein a catalyst is supported on the upstream side in an amount more than that on the downstream side is described in the following documents 1 and 2 respectively, the probability such that the afore-said filter for purification of exhaust gas satisfies a/b ratio specified in claim 1 is high. Therefore, the invention in claim 1 cannot be considered to be novel in the light of the inventions described in the documents 1 and 2, and does not have a special technical feature.

Consequently, the inventions in claims 1 - 3 are classified into main invention.

Document 1: JP 2006-189027 A (Denso Corp.), 20 July 2006 (20.07.2006), claims 5, 6, paragraphs [0013] to [0015], [0028] to [0031], examples 2, 3, fig. 10 to 12 & DE 102005058043 A & FR 2878898 A1

Document 2: JP 2006-175386 A (Cataler Corp.), 06 July 2006 (06.07.2006), claims 1 to 5, example 1, fig. 1, 3 & US 2006/0142153 A1 & EP 1679119 A1 & EP 1859864 A1 & DE 602005009313 D & DE 602005017943 D

国際調査報告

国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 1 / 0 5 8 0 8 1

第II欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項 (PCT17条(2)(a))の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. 請求項 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. 請求項 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. 請求項 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第III欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるときの国際調査機関は認めた。
(特別ページ 参照)

1. 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求項について作成した。
2. 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求項について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求項のみについて作成した。
4. 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求項について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- 追加調査手数料及び、該当する場合には、異議申立手数料の納付と共に、出願人から異議申立てがあった。
- 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあったが、異議申立手数料が納付命令書に示した期間内に支払われなかった。
- 追加調査手数料の納付はあったが、異議申立てはなかった。

様式PCT/ISA/210 (第1ページの続葉(2)) (2009年7月)

国際調査報告		国際出願番号 PCT/JP2011/058081									
A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. B01J35/04(2006.01)i, B01D39/20(2006.01)i, B01D46/00(2006.01)i, B01D53/86(2006.01)i, B01D53/94(2006.01)i, F01N3/02(2006.01)i											
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. B01J35/04, B01D39/20, B01D46/00, B01D53/86, B01D53/94, F01N3/02											
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2011年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2011年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2011年</td> </tr> </table>				日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2011年	日本国実用新案登録公報	1996-2011年	日本国登録実用新案公報	1994-2011年
日本国実用新案公報	1922-1996年										
日本国公開実用新案公報	1971-2011年										
日本国実用新案登録公報	1996-2011年										
日本国登録実用新案公報	1994-2011年										
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)											
C. 関連すると認められる文献											
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号									
X Y	JP 2006-189027 A (株式会社デンソー) 2006.07.20, 請求項 5, 6, 【0013】 - 【0015】, 【0028】 - 【0031】, 実施例 2, 3, 図 10-12 & DE 102005058043 A & FR 2878898 A1	1-4 5									
X Y	JP 2006-175386 A (株式会社キャタラー) 2006.07.06, 請求項 1-5, 実施例 1, 図 1, 3 & US 2006/0142153 A1 & EP 1679119 A1 & EP 1859864 A1 & DE 602005009313 D & DE 602005017943 D	1-4 5									
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。											
* 引用文献のカテゴリー		の日の後に公表された文献									
「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの		「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの									
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの		「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの									
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)		「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの									
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献		「&」同一パテントファミリー文献									
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願											
国際調査を完了した日 08.07.2011		国際調査報告の発送日 19.07.2011									
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官 (権限のある職員) 後藤 政博	4G 8926								
		電話番号 03-3581-1101	内線 3416								

国際調査報告		国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 1 / 0 5 8 0 8 1
C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	JP 2002-177794 A (株式会社デンソー) 2002.06.25, 請求項 5, 【0060】 , 【0061】 , 図 9, 10 (ファミリーなし)	5

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP2011/058081

下記文献 1, 2 には、上流側に下流側よりも触媒を多く担持させた、ディーゼルエンジンの排気ガス浄化用フィルタが記載されているから、前記排気ガス浄化用フィルタは、請求項 1 で特定した a / b 比を満たす蓋然性が高い。したがって、請求項 1 に係る発明は、文献 1, 2 に記載された発明に対して新規性が認められず、特別な技術的特徴を有しない。そこで、請求項 1 - 3 に係る発明が、主発明に区分される。

文献 1 : JP 2006-189027 A (株式会社デンソー) 2006.07.20, 請求項 5, 6, 【0013】 - 【0015】, 【0028】 - 【0031】, 実施例 2, 3, 図 10-12 & DE 102005058043 A & FR 2878898 A1

文献 2 : JP 2006-175386 A (株式会社キャタラー) 2006.07.06, 請求項 1-5, 実施例 1, 図 1, 3 & US 2006/0142153 A1 & EP 1679119 A1 & EP 1859864 A1 & DE 602005009313 D & DE 602005017943 D

フロントページの続き

(51) Int.Cl.	F I			テーマコード(参考)
F 0 1 N 3/022 (2006.01)	B 0 1 D	39/20	Z A B D	4 G 1 6 9
F 0 1 N 3/023 (2006.01)	F 0 1 N	3/02	3 0 1 C	
F 0 1 N 3/035 (2006.01)	F 0 1 N	3/02	3 2 1 A	
F 0 1 N 3/28 (2006.01)	F 0 1 N	3/28	3 0 1 Q	

(81) 指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, 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, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, 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, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW

Fターム(参考) 3G091 AA02 AB02 AB06 AB09 AB13 BA01 BA39 GA06 GA18 GB02W
 GB02Y GB03W GB03Y GB04W GB05W GB06W GB07W GB09X GB09Y
 4D019 AA01 BA05 BB06 BC07 CA01 CB06 CB09
 4D048 AA14 AB01 BA03X BA08X BA10X BA18X BA19X BA28X BA30X BA41X
 BA42X BB02 BB14 BB16 CD05
 4D058 JA38 MA44 SA08 TA06
 4G169 AA01 AA03 AA08 BA01B BA05B BA13A BA13B BB04B BB06B BB15B
 BC40B BC43B BC44B BC62B BC75B BD05B CA02 CA03 CA07 CA18
 DA06 EA19 EA27 EC29 FA01 FA02 FA06 FB14 FB23 FB30

(注) この公表は、国際事務局(WIPO)により国際公開された公報を基に作成したものである。なおこの公表に係る日本語特許出願(日本語実用新案登録出願)の国際公開の効果は、特許法第184条の10第1項(実用新案法第48条の13第2項)により生ずるものであり、本掲載とは関係ありません。