



(19)
Bundesrepublik Deutschland
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 601 15 308 T2 2006.07.13**

(12) **Übersetzung der europäischen Patentschrift**

(97) **EP 1 136 115 B1**

(51) Int Cl.⁸: **B01D 53/94 (2006.01)**

(21) Deutsches Aktenzeichen: **601 15 308.1**

(96) Europäisches Aktenzeichen: **01 107 031.5**

(96) Europäischer Anmeldetag: **21.03.2001**

(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: **26.09.2001**

(97) Veröffentlichungstag

der Patenterteilung beim EPA: **30.11.2005**

(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: **13.07.2006**

(30) Unionspriorität:

2000080478 22.03.2000 JP

2000080482 22.03.2000 JP

(84) Benannte Vertragsstaaten:

DE, FR, GB

(73) Patentinhaber:

Cataler Corp., Shizuoka, JP

(72) Erfinder:

Matsumoto, Shigeji, Ogasa-gun, Shizuoka-ken, 437-1492, JP; Kasahara, Koichi, Ogasa-gun, Shizuoka-ken, 437-1492, JP; Sato, Yasunori, Ogasa-gun, Shizuoka-ken, 437-1492, JP

(74) Vertreter:

TBK-Patent, 80336 München

(54) Bezeichnung: **Katalysator zur Reinigung eines Abgases**

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99 (1) Europäisches Patentübereinkommen).

Die Übersetzung ist gemäß Artikel II § 3 Abs. 1 IntPatÜG 1991 vom Patentinhaber eingereicht worden. Sie wurde vom Deutschen Patent- und Markenamt inhaltlich nicht geprüft.

Beschreibung

HINTERGRUND DER ERFINDUNG

Gebiet der Erfindung

[0001] Die Erfindung bezieht sich auf einen Katalysator vom Tandemtyp zur Reinigung eines Abgases, der einen auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator und einen auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator umfasst.

Beschreibung des in Beziehung stehenden Stands der Technik

[0002] Wegen der Verschärfungen der Regulierungsbestimmungen für den Ausstoß von Abgasen aus Automobilen in letzter Zeit wurde eine weitere Verringerung von Kohlenwasserstoffen (KW), Kohlenmonoxid (CO) und Stickoxiden (NO_x) erforderlich. Viele der herkömmlichen Katalysatoren zur Reinigung von Abgasen umfassen ein Verbundoxid, das Ceroxid oder Cer einschließt, in einem feuerfesten anorganischen Oxid, wie Aluminiumoxid, und ähnliches, das als eine (mit einem katalytischen Bestandteil) versehene oder beladene Schicht bzw. Beladungsschicht (loading layer) dient. Beispielsweise wird in der japanischen Patentschrift Nr. 2,690,661 ein monolithischer Trägerkatalysator offenbart. Der monolithische Trägerkatalysator umfasst die nachstehenden Komponenten: einen an der Einlass-Seite des Abgases angeordneten Katalysator, der eine Beladungsschicht einschließt, die aus Palladium, einem Erdalkalimetalloxid, einem Lanthanoxid, einem aktivierten Aluminiumoxid und einem Verbundmaterial oder einer festen Lösung aus einem Ceroxid und einem Zirconiumoxid in vorgegebenen Mengen besteht; und einen an der Auslass-Seite des Abgases angeordneten Katalysator, der ein Edelmetall und ein feuerfestes anorganisches Oxid einschließt. In dieser Veröffentlichung wird die Wirkung beschrieben, dass die Positionen des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators und des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators invers angeordnet sein können. In diesem Fall kann jedoch möglicherweise der Nachteil auftreten, dass die Reinigungsleistungen für CO und NO_x, die in einem Abgas enthalten sind, so unzureichend werden, dass den Vorgaben zur Verschärfung der Bestimmungen der Abgasregulierung nicht in ausreichendem Maße entsprochen werden kann.

[0003] Darüberhinaus wird in der ungeprüften japanischen Patentschrift (KOKAI) Nr. 10-249,200 ein integrierter Katalysator offenbart. In diesem Katalysator werden der Teilchendurchmesser und die verwendete Menge einer Bariumverbindung gesteuert, um insbesondere die Reinigungsleistung für NO_x zu erhöhen. Der Katalysator weist eine Beladungsschicht auf, die unter Verwendung von Palladium als Katalysatorbestandteil gebildet wird. In diesem Fall kann jedoch der Nachteil auftreten, dass die Reinigungsleistung für die KW nicht ausreicht.

[0004] Die WO 96/17671 beschreibt einen stabilen eng-gekoppelten Katalysator für die Verringerung der Kohlenwasserstoffemission von Benzinmotoren während des Kaltstarts, um die Schadstoffe im Abgasstrom von Automotoren bei einer Temperatur von 350 °C oder weniger zu verringern, wobei ein Dreiwegekatalysator als Teil eines eng-gekoppelten katalytischen Gegenstandes auf einem Träger eingeschlossen sein kann, der sich innerhalb des eng-gekoppelten Katalysatorkanisters stromabwärts von dem eng-gekoppelten Katalysatorträger befindet.

[0005] Die WO 97/43035 beschreibt einen katalytischen Gegenstand zur Abgasbehandlung, der eine stromaufwärts angeordnete katalytische Zone und mindestens eine stromabwärts angeordnete katalytische Zone umfasst, wobei die stromaufwärts angeordnete Katalysatorzusammensetzung eine Einzelschicht umfasst, die im wesentlichen frei von einem Bestandteil zur Sauerstoffspeicherung ist. Gemäß einer anderen Ausführungsform umfasst der katalytische Gegenstand einen aus Schichten aufgebauten Katalysatorverbundstoff, der zwei stromaufwärts gelegene Schichten enthält, die aus einem Träger und einer katalytischen Schicht bestehen, wobei die Bodenschicht gegebenenfalls einen partikulären Verbundstoff aus Zirkoniumoxid und Cerdioxid einschließt.

[0006] Die US-amerikanische Patentschrift US-A-5,948,723 beschreibt einen aus Schichten aufgebauten Katalysatorverbundstoff, der eine erste (innere) und eine zweite (äußere) Schicht, die auf der ersten Schicht aufgebracht ist, umfasst. Die erste oder innere Schicht umfasst mindestens einen ersten lanthanoxidstabilisierten Aluminiumoxidträger, mindestens einen nicht-stabilisierten Träger und mindestens einen Edelmetallbestandteil, der auf dem lanthanoxid-stabilisierten Aluminiumoxidträger und dem nicht-stabilisierten feuerfesten Oxidträger angeordnet ist. Darüberhinaus umfasst die erste Schicht gegebenenfalls und bevorzugt einen Bestandteil zur Sauerstoffspeicherung mit einer bestimmten Zusammensetzung mit einem Cergehalt von 10 bis 60 Gew.-%.

[0007] Die Patentschrift WO 97/23278 beschreibt eine Vorrichtung zur Abgasbehandlung, die einen stromaufwärts angeordneten Katalysator und einen stromabwärts angeordneten Katalysator umfasst. Das stromaufwärts angeordnete katalytische Material umfasst einen Platingruppen-Metallbestandteil, der auf einem feuerfesten Metalloxidträger dispergiert ist, und im wesentlichen frei von einem Bestandteil zur Sauerstoffspeicherung ist. Darüberhinaus umfasst das stromabwärts angeordnete Katalysatormaterial ein oder mehrere Katalysatormetallbestandteile, die auf einem feuerfesten Metalloxidträger dispergiert sind, und einen Bestandteil zur Sauerstoffspeicherung.

[0008] Die Erfinder der Erfindung entdeckten, dass es möglich ist, durch die Verwendung von zwei Katalysatoren, einem auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator und einem auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator, bezogen auf den Abgasstrom, und dadurch, dass der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator von Cer befreit ist, oder die darin enthaltene Cermenge so stark wie möglich verringert ist, die Reinigungsleistungen für CO und NO_x zu verbessern, wobei die Reinigungsleistung für KW beibehalten wird. Auf diese Weise realisierten sie die Erfindung.

[0009] Ein erfindungsgemäßer Katalysator zur Reinigung eines Abgases ist dadurch gekennzeichnet, dass er die nachstehenden Komponenten umfasst:

einen auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator, der in Bezug auf den Abgasstrom auf der stromaufwärts gelegenen Seite angeordnet ist und die nachstehenden Komponenten einschließt: einen ersten zylinderförmigen Träger mit mehreren Durchgangslöchern, die den Träger in axialer Richtung durchdringen; eine erste feuerfeste, (mit einem katalytischen Bestandteil) beladene Schicht bzw. Beladungsschicht aus einem anorganischen Oxid, die auf den Innenflächen gebildet ist, die die Durchgangslöcher begrenzen; und einen ersten Katalysatorbestandteil, den die erste Beladungsschicht enthält und aus einem ersten Edelmetall besteht;

einen auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator, der in Bezug auf den Abgasstrom auf der stromabwärts gelegenen Seite angeordnet ist und die nachstehenden Komponenten einschließt: einen zweiten zylinderförmigen Träger mit mehreren Durchgangslöchern, die den Träger in axialer Richtung durchdringen; eine zweite feuerfeste, (mit einem katalytischen Bestandteil) beladene Schicht bzw. Beladungsschicht aus einem anorganischen Oxid, die auf den Innenflächen gebildet ist, die die Durchgangslöcher begrenzen; und einen zweiten Katalysatorbestandteil, den die zweite Beladungsschicht enthält bzw. trägt und aus einem zweiten Edelmetall besteht;

wobei der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator von dem ersten Katalysatorbestandteil aufgebaut wird, der aus mindestens einem Element besteht, das aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus Palladium, Palladium und Rhodium, und Palladium und Platin, als das erste Edelmetall, besteht, und die erste Beladungsschicht aus einem Aluminiumoxid besteht, das Barium und Lanthan, Cer, Zirkonium und Yttrium, wie in Anspruch 1 definiert, enthält; und

der auf der stromabwärtigen Seite gelegene Katalysator von dem zweiten Katalysatorbestandteil aufgebaut wird, der aus mindestens einem Element besteht, das aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus Platin, Palladium und Rhodium, als das zweite Edelmetall, besteht, und die zweite Beladungsschicht aus mindestens einem Element besteht, das aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus einem Aluminiumoxid besteht, das Lanthan und mindestens ein Element enthält, das aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus Cer, einer festen Lösung von Cer und Zirkonium und einer festen Lösung aus Cer, Zirkonium und Yttrium besteht.

[0010] Es ist bevorzugt, dass in dem Katalysator zur Reinigung eines Abgases das Verhältnis von Palladium zu Barium Pd : Ba = 1,0 : 100 bis 1,0 : 1,0 betragen kann, bezogen auf das Elementargewicht bzw. Gewicht der Elemente in dem auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator.

[0011] Es ist bevorzugt, dass in dem Katalysator zur Reinigung eines Abgases das Volumenverhältnis von dem auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator zu dem auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator, d.h. Auf der stromaufwärtigen Seite gelegener Katalysator : Auf der stromabwärtigen Seite gelegener Katalysator = 1,0 : 10 bis 3,0 : 1,0, betragen kann.

[0012] Es ist bevorzugt, dass in dem Katalysator zur Reinigung eines Abgases der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator und der auf der stromabwärtigen Seite gelegene Katalysator auf und/oder in einem identischen Träger gebildet sein können.

[0013] Der Katalysator zur Reinigung eines Abgases wird von einem Katalysatorpaar aufgebaut, einem auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator, der in Bezug auf den Abgasstrom auf der stromaufwärts gelegenen Seite angeordnet ist, und einen auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator, der in Bezug auf den Abgasstrom auf der stromabwärts gelegenen Seite angeordnet ist, wobei der auf der stromaufwärtigen

Seite gelegene Katalysator und der auf der stromabwärtigen Seite gelegene Katalysator jeweils einen zylinderförmigen Träger mit mehreren Durchgangslöchern, die den Träger in axialer Richtung durchdringen, eine feuerfeste Beladungsschicht aus einem anorganischen Oxid, die auf den Innenflächen ausgebildet ist, die die Durchgangslöcher begrenzen, und einen Katalysatorbestandteil, den die Beladungsschicht enthält bzw. trägt, und aus einem Edelmetall besteht, einschließen.

[0014] Der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator und der auf der stromabwärtigen Seite gelegene Katalysator können jeweils auf der in Bezug auf den Abgasstrom stromaufwärts gelegenen Seite und der in Bezug auf den Abgasstrom stromabwärts gelegenen Seite angeordnet sein, auf eine Weise, dass sie zueinander benachbart sind, oder dass ein geeigneter Abstand zwischen ihnen zur Verfügung gestellt wird. Das Abgas wird von der stromaufwärts gelegenen zu der stromabwärts gelegenen Seite durch beide der vorstehenden Katalysatoren geleitet, wobei eine Reinigung von KW, CO und NO_x erfolgt, und an die Außenseite abgegeben.

[0015] Was den ersten und den zweiten Träger angeht, so sind sie zylindrisch geformt, weisen mehrere Durchgangslöcher auf, die in axialer Richtung verlaufen, und sind dementsprechend mit einer Struktur ausgebildet, bei der ein Abgas die Durchgangslöcher passieren kann. Beispielsweise ist es möglich, sowohl ein Substrat, das aus einer Keramik gefertigt ist und honigwabeförmige Durchgangslöcher aufweist, als auch ein Substrat zu verwenden, das aus einem Metall gefertigt ist und honigwabeförmige Durchgangslöcher aufweist. Bei dem Keramiksubstrat und dem metallischen Substrat kann es sich um Substrate handeln, wie sie üblicherweise als Träger verwendet werden.

[0016] Der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator wird von dem ersten Katalysatorbestandteil, der aus mindestens einem Element besteht, das aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus Palladium, Palladium und Rhodium, und Palladium und Platin besteht, als das erste Edelmetall, und der ersten Beladungsschicht aufgebaut, die aus einem Aluminiumoxid besteht, das mindestens Barium und Lanthan enthält.

[0017] Eines der Merkmale des Katalysators zur Reinigung eines Abgases liegt darin, dass die erste Beladungsschicht des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators frei von Cerelementen sein kann oder diese in einer so klein wie möglichen Menge enthält, und dass nur die zweite Beladungsschicht des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators mit einer relativ großen Menge an Cerelementen versehen bzw. beladen (loaded) sein kann.

[0018] Auf den Innenflächen der Durchgangslöcher des ersten und des zweiten Trägers sind die ersten und zweiten feuerfesten anorganischen Oxide, die mit dem ersten und dem zweiten Edelmetall beladen sind, als erste bzw. zweite Beladungsschichten ausgebildet. In dem auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator und dem auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator unterscheiden sich die Elementzusammensetzungen des ersten Edelmetalls und des ersten feuerfesten anorganischen Oxids, die die erste Beladungsschicht bilden, oder die Mengen der Verbundstoffe davon, von denjenigen des zweiten Edelmetalls und des zweiten feuerfesten anorganischen Oxids, die die zweite Beladungsschicht bilden.

[0019] Das erste feuerfeste anorganische Oxid, das die erste Beladungsschicht des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators bildet, kann aus einem Aluminiumoxid bestehen, das mindestens Bariumelemente und Lanthanelemente, und gegebenenfalls Cerelemente, Cerelemente und Zirkoniumelemente, und Cerelemente, Zirkoniumelemente und Yttriumelemente enthält. Die Cerelemente können stabilisiert und ihr Gehalt dadurch verringert werden, dass sie in Zirkoniumelementen oder in Zirkoniumelementen und Yttriumelementen gelöst werden.

[0020] Die erste Beladungsschicht des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators besteht aus einem Aluminiumoxid, das mindestens Bariumelemente und Lanthanelemente enthält. Die Lanthanelemente dienen dazu, die Wärmestabilität eines Aluminiumoxids und/oder eines aktivierten Aluminiumoxids zu erhöhen. Es ist bevorzugt, dass die Lanthanelemente in dem Aluminiumoxid gelöst werden können. Die Bariumelemente sind als Adsorptionsmittel für das NO_x bekannt. Wenn die Bariumelemente zusammen mit einem Edelmetall, wie Palladium, und ähnlichem, verwendet werden, tritt der Vorteil auf, dass eine Abnahme der Umwandlungsleistung für das NO_x verhindert wird. Die Abnahme der Umwandlungsleistung für das NO_x rührt vom Palladium und ähnlichem her, das eine durch die KW verursachte Adsorptionsvergiftung erfährt. Es ist nicht bevorzugt, dass der Gehalt an den Palladiumelementen und den Bariumelementen von dem vorstehend erwähnten Bereich (z.B. Pd : Ba = 1,0 : 100 bis 1,0 : 1,0, bezogen auf das Elementargewicht) abweicht, da sich die Umwandlungswirkung für das NO_x verringert. Es ist bevorzugt, dass die Bariumelemente als Oxidteilchen in dem Aluminiumoxid dispergiert sein können.

[0021] Was die quantitativen Verhältnisse der Bariumelemente und Lanthanelemente angeht, so ist es bevorzugt, dass die Bariumelemente in einer Menge von 1,0 bis 100 g, bezogen auf 1 Liter des Volumens des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators, auftreten können, und dass die Lanthanelemente in einer Menge von 0,8 bis 8,0 g, weiter bevorzugt von 1,0 bis 7,0 g, bezogen auf 1 Liter des Volumens des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators, auftreten können. Es ist bevorzugt, dass es sich bei dem Aluminiumoxid um aktiviertes Aluminiumoxid handeln kann, und dass es in einer Menge von 50 bis 200 g, bezogen auf 1 Liter des Volumens des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators, auftreten kann.

[0022] Es ist möglich, dass die erste Beladungsschicht des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators in dem Katalysator zur Reinigung eines Abgases des Weiteren aus mindestens einem Element besteht, das aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus Cer, einer festen Lösung aus Cer und Zirkonium, und einer festen Lösung aus Cer, Zirkonium und Yttrium besteht.

[0023] Beispielsweise ist es in der ersten Beladungsschicht des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators bevorzugt, dass die Menge der darin enthaltenen Cerelemente in einen Bereich von 0,01 bis 0,1 mol, weiter bevorzugt in einem Bereich von 0,01 bis 0,05 mol, fällt, bezogen auf 1 Liter des Volumens des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators.

[0024] Wenn die Menge der in dem auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator enthaltenen Cerelemente 0,1 mol überschreitet, so ist dies für einen Katalysator zur Reinigung eines Abgases als Ganzes nicht bevorzugt, da die Umwandlung der KW abnimmt, so dass der auf der stromabwärtigen Seite gelegene Katalysator diese Abnahme nicht kompensieren kann. Es ist des Weiteren bevorzugt, dass die Menge der Cerelemente 0,05 mol oder weniger beträgt. Es ist bevorzugt, dass der Gehalt der Cerelemente weniger beträgt, da die Cerelemente zusammen mit dem Zirkoniumelementen als feste Lösung oder zusammen mit den Zirkoniumelementen und den Yttriumelementen als feste Lösung auftreten können, so dass die Wärmestabilität der Cerelemente weiter erhöht werden kann.

[0025] Erfindungsgemäß fällt in der ersten Beladungsschicht des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators das quantitative Verhältnis von Cerelementen zu Zirkoniumelementen als auch zu Yttriumelementen in einen Bereich von Ce : Zr: Y = 2,0 : 1,0 : 0,1-0,42 – 1,0 : 2,0 : 0,2-0,84, bezogen auf das Elementargewicht.

[0026] Es ist bevorzugt, dass in der ersten Beladungsschicht des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators das Aluminiumoxid mit den entsprechenden Elementen, den Bariumelementen, den Lanthanelementen und/oder den Cerelementen, in einer Menge von 10 bis 30 g für die Bariumelemente, in einer Menge von 3,0 bis 5,0 g für die Lanthanelemente und/oder in einer Menge von 0,6 bis 2,0 g für die Cerelemente, bezogen auf 100 g Aluminiumoxid, in dem Aluminiumoxid beladen ist.

[0027] Das Lanthan dient dazu, die Wärmestabilität eines Aluminiumoxids und/oder eines aktivierten Aluminiumoxids zu erhöhen. Das Lanthan kann in dem Aluminiumoxid enthalten sein. Es ist weiter bevorzugt, dass das Lanthan in dem Aluminiumoxid gelöst ist.

[0028] Was das erste Edelmetall des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators angeht, so kann mindestens ein Element verwendet werden, das aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus Palladium, Palladium und Rhodium, und Palladium und Platin besteht. Es ist bevorzugt, dass das erste Edelmetall in einer Menge von 0,01 bis 10 g, bezogen auf 1 Liter des Volumens des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators, ein- bzw. aufgebracht sein kann, um die Reinigungsleistungen des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators zu erhöhen.

[0029] Was die Beladungsmengen der entsprechen Edelmetalle angeht, so ist es bevorzugt, dass das Palladium in einer Menge von 0,01 bis 10 g, bezogen auf 1 Liter des Volumens des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators, verwendet wird. Wenn das Platin oder das Rhodium zusammen mit dem Palladium verwendet wird, ist es in Hinblick auf die Reinigungswirkungen und die Kosten bevorzugt, das Palladium in einer Menge von 0,01 bis 5,0 g, bezogen auf 1 Liter des Volumens des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators, das Rhodium in einer Menge von 0 bis 1,0 g, ebenfalls darauf bezogen, und das Platin in einer Menge von 0 bis 5,0 g, ebenfalls darauf bezogen, zu verwenden.

[0030] Es tritt eine Wechselwirkung zwischen dem Barium und dem Edelmetall, wie dem Palladium, und ähnliches auf. D.h. es wird angenommen, dass die Umwandlungsleistung für das NO_x abnimmt, weil das Palladium einer Adsorptionsvergiftung durch die KW in einem Abgas unterliegt, das sich in einem treibstoff-angerei-

cherten Zustand befindet. Dementsprechend ist es möglich, wenn Barium vorhanden ist, die KW-Adsorptionsvergiftung des Palladium zu verringern. Wie vorstehend dargelegt, ist es bevorzugt, dass das Verhältnis von dem Palladium zu dem Barium $\text{Pd: Ba} = 1,0 : 100$ bis $1,0 : 1,0$, bezogen auf das Elementargewicht, betragen kann, um diese vorteilhaften Wirkungen zur Geltung kommen zu lassen. Es ist nicht bevorzugt, dass das Verhältnis von diesem Bereich abweicht, da die Umwandlungswirkung für das NO_x abnimmt.

[0031] Es wird angenommen, dass der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator auf die nachstehende Weise funktioniert. Da der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator die Cerelemente nicht als Bestandteilelement der ersten Beladungsschicht einschließt oder sie in einer so klein wie möglichen Menge einschließt, wird verhindert, dass der Sauerstoff, der in dem Abgas enthalten ist, vollständig von den Cerelementen in dem Katalysatorsystem verbraucht wird, und dementsprechend wird verhindert, dass die Umgebungstemperatur als reduzierende Atmosphäre fungiert. Somit erzeugt der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator eine viel stärker oxidierende Atmosphäre, oxidiert die KW durch das erste Edelmetall, so dass sich die KW-Reinigungsleistung verbessert, und kompensiert das unzureichende KW-Reinigungsvermögen des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators. Außerdem ist es auch möglich, die Umwandlungswirkungen für das CO und NO_x in dem auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator zu erhöhen.

[0032] Der auf der stromabwärtigen Seite gelegene Katalysator wird von einem zweiten Katalysatorbestandteil, der aus mindestens einem Element besteht, das aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus Platin, Palladium und Rhodium besteht, als zweites Edelmetall, und von der zweiten Beladungsschicht aufgebaut; die aus mindestens einem Element besteht, das aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus einem Aluminiumoxid, das Lanthan, Cer, eine feste Lösung von Cer und Zirkonium, und eine feste Lösung von Cer, Zirkonium und Yttrium enthält, besteht.

[0033] Das zweite Edelmetall ist so in der zweiten Beladungsschicht auf- bzw. eingebracht (loaded), dass schädliche Bestandteile, die in einem Abgas enthalten sind und die mittels des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators nicht in ausreichendem Maße gereinigt werden können, auf dem Aluminiumoxid gereinigt werden, das durch das Lanthan wärmestabilisiert wird.

[0034] Was das zweite Edelmetall angeht, so ist es möglich, das Platin, das Palladium und das Rhodium unabhängig zu verwenden, oder sie kombiniert zu verwenden. Wenn das zweite Edelmetall unabhängig verwendet wird, ist es in Hinblick auf die katalytische Aktivität wirkungsvoll, es in einer Menge von 0,05 bis 10 g, weiter bevorzugt von 0,05 bis 5,0 g, bezogen auf 1 Liter des Volumens des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators, zu verwenden, um die Reinigungsleistungen aufrechtzuerhalten. Da das Edelmetall teuer ist, ist es erwünscht, es in einer so klein wie möglichen Menge zu verwenden, so dass es in den Bereich fällt, der die vorteilhaften Wirkungen aufrechterhalten kann. Wenn sie kombiniert verwendet werden, ist es bevorzugt, wenn die Reinigungsleistungen und die Kosten in Betracht gezogen werden, dass das Platin in einer Menge von 0,05 bis 1,0 g, das Palladium in einer Menge von 0,05 bis 2,0 g, und das Rhodium in einer Menge von 0,05 g bis 0,3 g, bezogen auf einen Liter des Volumens des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators, verwendet werden, da sie teuer sind. Auf diese Weise ist es möglich, die gewünschten Reinigungswirkungen zu erhalten.

[0035] Die zweite Beladungsschicht des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators wird von mindestens einem Element aufgebaut, das aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus einem Aluminiumoxid besteht, das Lanthan, Cer, eine feste Lösung aus Cer und Zirkonium, und eine feste Lösung aus Cer, Zirkonium und Yttrium enthält. Im Gegensatz zu dem auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator wird die Atmosphäre in dem auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator in eine stärker reduzierende Atmosphäre umgewandelt, da der auf der stromabwärtigen Seite gelegene Katalysator Cerelemente in einer relativ großen Menge einschließt, und dadurch wird es möglich, die Umwandlungswirkungen für das CO und NO_x zu erhöhen.

[0036] Die zweite Beladungsschicht des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators kann das Aluminiumoxid einschließen, das die Lanthanelemente, und die Cerelemente enthält. Die Cerelemente können zusammen mit den Zirkoniumelementen eine feste Lösung bilden, oder sie können zusammen mit den Zirkoniumelementen und den Yttriumelementen eine feste Lösung bilden.

[0037] Das Aluminiumoxid, das die Lanthanelemente enthält, kann das gleiche sein, das in dem auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator verwendet wird. Beispielsweise ist es bevorzugt, wenn die Lanthanelemente in einer Menge von 3,0 bis 5,0 g, bezogen auf 100 g Aluminiumoxid, enthalten sind, da die Aktivität und die Haltbarkeit des Aluminiumoxids bei gehobenen Temperaturen aufrechterhalten werden kann.

[0038] Es ist in dem auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator bevorzugt, dass die Lanthanelemente in der zweiten Beladungsschicht in einer Menge von 0,8 bis 4,5 g, bezogen auf 1 Liter des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators, und das Aluminiumoxid in einer Menge von 50 bis 250 g, ebenfalls darauf bezogen, enthalten sind. Es ist bevorzugt, dass die Cerelemente unabhängig vorhanden sind, um die Reinigungswirkungen und die Haltbarkeit des Katalysators zu verbessern. Oder aber es ist bevorzugt, dass sie als feste Lösung von Cerelementen und Zirkoniumelementen oder als feste Lösung von Cerelementen, Zirkoniumelementen und Yttriumelementen vorliegen.

[0039] Da die Cerelemente in dem auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator vorhanden sind, können das CO und NO_x, die nicht in ausreichendem Maße von dem auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator gereinigt wurden, verringert und gereinigt werden. Somit kann der vorliegende Katalysator zur Reinigung eines Abgases eine Verbesserung der Reinigungsleistungen als Katalysator zur Reinigung eines Abgases als Ganzes bewirken.

[0040] Die Menge der Cerelemente, die in der zweiten Beladungsschicht des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators enthalten sind, kann relativ größer als diejenige des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators gemacht werden. Die Cerelemente können beispielsweise in der zweiten Beladungsschicht bevorzugt in einer Menge von 28 bis 112 g (d.h. von 0,2 bis 0,8 mol), weiter bevorzugt von 42 bis 112 g (d.h. von 0,3 bis 0,8 mol), bezogen auf 1 Liter des Volumens des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators, vorhanden sein. Um die Wirkung der NO_x-Umwandlung deutlich zu erhöhen, ist es bevorzugt, dass die Zirkoniumelemente, die zusammen mit den Cerelementen eine feste Lösung bilden, bevorzugt in solch einer Menge auftreten, dass gilt: Ce : Zr = 2,0 : 1,0 – 1,0 : 2,0, bezogen auf das Elementargewicht. Des Weiteren können die Yttriumelemente, die zusammen mit den Cerelementen und den Zirkoniumelementen eine feste Lösung bilden, bevorzugt in einer Menge auftreten, dass für das Verhältnis von Zr zu Y gilt: Zr : Y = 10 : 1,0 bis 7,0 : 3,0, bezogen auf das Elementargewicht.

[0041] Darüberhinaus ist es möglich, die Menge der zweiten Beladungsschicht des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators kleiner als die Menge der ersten Beladungsschicht des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators zu machen.

[0042] In dem Fall, in dem der vorstehend beschriebene, auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator und der vorstehend beschriebene, auf der stromabwärtigen Seite gelegene Katalysator als Paar in dem Abgasdurchgang angeordnet sind, ist es bevorzugt, um insgesamt gut ausgeglichene Reinigungsleistungen als Katalysator zur Reinigung eines Abgases zu erzeugen, dass das Volumenverhältnis von beiden in einen Bereich von Auf der stromaufwärtigen Seite gelegener Katalysator : Auf der stromabwärtigen Seite gelegener Katalysator = 1,0 : 10 – 3,0 : 1,0, weiter bevorzugt in einen Bereich von Auf der stromaufwärtigen Seite gelegener Katalysator : Auf der stromabwärtigen Seite gelegener Katalysator = 2,0 : 8 bis 7,0 : 3,0 fällt, wie aus der [Fig. 4](#) oder der [Fig. 8](#) und der [Fig. 5](#) oder der [Fig. 9](#) verständlich wird. Durch Einstellen des Volumenverhältnisses beider Katalysatoren auf Werte, die in diesen Bereich fallen, erhöhen sich die Reinigungswirkungen (oder Umwandlungswirkungen) für KW, CO und NO_x, so dass es möglich ist, den Verschärfungen der Regulierungsbestimmungen für den Abgasausstoß, die schwierige Bedingungen auferlegen, gerecht zu werden.

[0043] Der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator und der auf der stromabwärtigen Seite gelegene Katalysator können in dem Abgasdurchgang vereint angeordnet sein. Wenn sie, wie in [Fig. 10](#) gezeigt, zueinander benachbart angeordnet sind, oder wenn sie, wie in [Fig. 11](#) gezeigt, durch das Bereitstellen eines Abstands zwischen ihnen voneinander getrennt angeordnet sind, ist es möglich, ähnliche Reinigungswirkungen zu erhalten.

[0044] Außerdem ist es möglich, selbst wenn die erste Beladungsschicht des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators und die zweite Beladungsschicht des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators auf und/oder in einem einzelnen Träger gebildet sind, ähnlich vorteilhafte Wirkungen zu erwarten.

[0045] Der auf der stromabwärtigen Seite gelegene Katalysator ist mit mindestens einem Element beladen, das aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus Platin, Palladium und Rhodium besteht. Es ist möglich, die schädlichen Bestandteile, die von dem auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator nicht ausreichend gereinigt wurden, mittels der zweiten Beladungsschicht mit der vorstehend beschriebenen Zusammensetzung und mindestens einem der vorstehend erwähnten zweiten Edelmetalle zu verringern und zu reinigen.

[0046] In dem auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator wird wegen der in der zweiten Beladungsschicht vorhandenen Cerelemente eine Atmosphäre erzeugt, die sich von der Umgebungsatmosphäre

des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators unterscheidet. Dementsprechend ist es möglich, das CO und NO_x zu reinigen, die nicht in ausreichendem Maße von dem auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator gereinigt wurden. Somit arbeiten der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator und der auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator zusammen, so dass es möglich wird, die Leistung des Katalysators zur Reinigung eines Abgases als Ganzes zu verbessern.

[0047] Darüberhinaus ist es möglich, durch eine kontinuierliche bzw. zusammenhängende Bildung der auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen ersten Beladungsschicht und der auf der stromabwärtigen Seite gelegenen zweiten Beladungsschicht auf und/oder in einem identischen Träger einen Katalysator zur Reinigung eines Abgases zu erhalten, der ähnlich vorteilhafte Wirkungen erzeugt. Beispielsweise kann bei der Bildung der ersten und der zweiten Beladungsschichten eine gewünschte Beladungsschicht (z.B. die erste Beladungsschicht) zuerst nur mittels der Aufbringung auf oder in eine der entgegengesetzten Seiten eines Trägers gebildet werden, und der Rest der Beladungsschicht (z.B. die andere oder zweite Beladungsschicht) kann danach mittels der Aufbringung auf oder in die andere, entgegengesetzte Seite des Trägers gebildet werden.

[0048] In Übereinstimmung mit dem erfindungsgemäßen Katalysator zur Reinigung eines Abgases wird die Zusammensetzung der ersten wärmebeständigen Beladungsschicht aus einem anorganischen Oxid des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators unterschiedlich von derjenigen der zweiten wärmebeständigen Beladungsschicht aus einem anorganischen Oxid des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators gestaltet, und es wird dafür gesorgt, dass die Cerelemente nur in dem auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator auftreten, und/oder auch in verringerter Menge in dem auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator vorhanden sind. Somit teilen und kompensieren der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator und der auf der stromabwärtigen Seite gelegene Katalysator die Reinigungsfunktionen miteinander, wodurch nicht nur die Reinigungsleistung für die KW in einem Abgas verbessert wird, sondern darüberhinaus gleichzeitig damit die Reinigungsleistungen für das CO und NO_x verbessert werden. Als Ergebnis kann ein neuer Katalysator zur Reinigung eines Abgases erhalten werden, der viel höhere Reinigungsleistungen zeigt. Dementsprechend ist es möglich, selbst unter den schwierigen Bedingungen der verschärften Abgasemissionsbestimmungen den Regulierungsstandards zu genügen.

KURZE BESCHREIBUNG DER ZEICHNUNGEN

[0049] Eine vollständigeren Würdigung der Erfindung und vieler ihrer Vorteile ist leicht möglich, wenn sie unter Bezugnahme auf die nachstehenden detaillierten Erläuterungen in Verbindung mit den beigefügten Zeichnungen und der detaillierten Beschreibung, die alle Teil der Offenbarung sind, besser verständlich wird.

[0050] [Fig. 1](#) ist ein Diagramm, das die Bedingungen in einer Dauerhaftigkeitsprüfung zeigt, der die jeweiligen Katalysatoren der Beispiele und der Vergleichsbeispiele unterzogen wurden;

[0051] [Fig. 2](#) ist ein Balkendiagramm, das die KW-Umwandlungen darstellt, die die jeweiligen Katalysatoren der Beispiele Nr. 1 bis Nr. 5 und der Vergleichsbeispiele Nr. 1 bis Nr. 4 zeigten;

[0052] [Fig. 3](#) ist ein Balkendiagramm, das die NO_x-Umwandlungen darstellt, die die jeweiligen Katalysatoren der Beispiele Nr. 1 bis Nr. 5 und der Vergleichsbeispiele Nr. 1 bis Nr. 4 zeigten;

[0053] [Fig. 4](#) ist ein Diagramm, das die KW-Umwandlungen darstellt, die die entsprechenden Katalysatoren von Beispiel Nr. 1 zeigten; KW-Umwandlungen, die von den Unterschieden der Volumenverhältnisse der auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysatoren zu den auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysatoren abhängen;

[0054] [Fig. 5](#) ist ein Diagramm, das die NO_x-Umwandlungen darstellt, die die entsprechenden Katalysatoren von Beispiel 1 zeigten; NO_x-Umwandlungen, die von den Unterschieden der Volumenverhältnisse der auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysatoren zu den auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysatoren abhängen;

[0055] [Fig. 6](#) ist ein Balkendiagramm, das die KW-Umwandlungen darstellt, die die jeweiligen Katalysatoren von Beispiel Nr. 6 bis Nr. 14 und von Vergleichsbeispiel Nr. 5 zeigten;

[0056] [Fig. 7](#) ist ein Balkendiagramm, das die NO_x-Umwandlungen darstellt, die die jeweiligen Katalysatoren von Beispiel Nr. 6 bis Mr. 14 und von Vergleichsbeispiel Nr. 5 zeigten;

[0057] **Fig. 8** ist ein Diagramm, das die KW-Umwandlungen darstellt, die die jeweiligen Katalysatoren von Beispiel 6 zeigten; KW-Umwandlungen, die von den Unterschieden der Volumenverhältnisse der auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysatoren zu den auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysatoren abhängen;

[0058] **Fig. 9** ist ein Diagramm, das die NO_x-Umwandlungen darstellt, die die jeweiligen Katalysatoren von Beispiel 6 zeigten; NO_x-Umwandlungen, die von den Unterschieden der Volumenverhältnisse der auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysatoren zu den auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysatoren abhängen;

[0059] **Fig. 10** ist eine schematische Darstellung, um zu erläutern, wie der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator und der auf der stromabwärtigen Seite gelegene Katalysator in einem erfindungsgemäßen Katalysator zur Reinigung eines Abgases angeordnet sind;

[0060] **Fig. 11** ist eine weitere schematische Darstellung, um zu erläutern, wie der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator und der auf der stromabwärtigen Seite gelegene Katalysator in einem erfindungsgemäßen Katalysator zur Reinigung eines Abgases angeordnet sind; und

[0061] **Fig. 12** ist eine teilweise vergrößerte schematische Schnittansicht eines auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators oder eines auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators in einem erfindungsgemäßen Katalysator zur Reinigung eines Abgases.

DETAILLIERTE BESCHREIBUNG DER BEVORZUGTEN AUSFÜHRUNGSFORMEN

[0062] Nachdem die Erfindung im allgemeinen beschrieben wurde, kann ein weiteres Verständnis der Erfindung durch die Bezugnahme auf bestimmte bevorzugte Ausführungsformen erreicht werden, die hier nur zum Zwecke der Erläuterung zur Verfügung gestellt werden und den Geltungsbereich der beigefügten Ansprüche nicht einschränken sollen.

[0063] Der erfindungsgemäße Katalysator zur Reinigung eines Abgases wird nachstehend unter Bezugnahme auf Beispiele und Vergleichsbeispiele im Detail beschrieben.

[0064] Wie in **Fig. 12** gezeigt ist, umfasst ein erfindungsgemäßer Katalysator zur Reinigung eines Abgases beispielsweise einen auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator **1**, der einen ersten zylinderförmigen Träger **11** und eine erste feuerfeste Beladungsschicht **12** aus einem anorganischen Oxid, die auf den Innenflächen des ersten zylinderförmigen Trägers **11** gebildet ist, einschließt, und einen auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator **2**, der einen zweiten zylinderförmigen Träger **21** und eine zweite feuerfeste Beladungsschicht **22** aus einem anorganischen Oxid, die auf den Innenflächen des zweiten zylinderförmigen Trägers **21** gebildet ist, einschließt.

Beispiel Nr. 1 (entspricht nicht der Erfindung)

(Auf der stromaufwärtigen Seite gelegener Katalysator)

[0065] 120 g Aluminiumoxid, das 3,9 g Lanthan enthielt, 39,6 g Bariumsulfat und 40 g eines Aluminiumoxid-Sols wurden gemischt und gerührt, um eine Aufschlammung herzustellen. Zu dieser Aufschlammung wurde eine wässrige Palladiumlösung gegeben, die bei einer Umwandlung in Pd einer Menge von 1,5 g entsprach, und umfassend gerührt, um es auf das Aluminiumoxid aufzubringen bzw. das Aluminiumoxid damit zu beladen, wodurch eine Aufschlammung zum Beschichten hergestellt wurde. Die resultierende Aufschlammung wurde auf einen Träger aufgebracht, dessen Volumen ungefähr 500 cm³ betrug und der aus Cordierit gefertigt war, und danach getrocknet. Auf diese Weise wurde der Träger in einen auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator umgewandelt. Es sei darauf hingewiesen, dass das Verhältnis von Pd zu Ba 1,0 : 15,5 (d.h. Pd : Ba = 1,0 : 15,5), bezogen auf das Elementargewicht, betrug.

(Auf der stromabwärtigen Seite gelegener Katalysator)

[0066] 120 g Aluminiumoxid, das 3,9 g Lanthan enthielt, 52 g einer festen Ceroxid-Lösung, die Zirkonium und Yttrium einschloss, und 40 g eines Aluminiumoxid-Sols wurden gemischt und umfassend gerührt, um eine Aufschlammung herzustellen. Es sei darauf hingewiesen, dass das Verhältnis der Elementarzusammensetzung der festen Ceroxid-Lösung Ce : Zr : Y = 10 : 9,0 : 1,0, bezogen auf das Elementargewicht, betrug. Zu dieser

Aufschlammung wurde eine wässrige Platinlösung gegeben und umfassend gerührt, um dadurch eine Aufschlammung herzustellen, in der das Aluminiumoxid und die feste Ceroxid-Lösung, die Zirkonium und Yttrium einschloss, mit dem Platin beladen waren. Was die wässrige Platinlösung angeht, so entsprach sie bei einer Umwandlung in Pt 1,0 g. Die resultierende Aufschlammung wurde auf einen Träger aufgebracht, dessen Volumen ungefähr 1000 cm^3 betrug und der aus Cordierit gefertigt war, und getrocknet. Der Träger wurde danach in eine wässrige Rhodidlösung eingetaucht, um den Träger mit dem Rh zu beladen, getrocknet, und danach in einen auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator umgewandelt. Was die wässrige Rhodidlösung angeht, so entsprach sie bei einer Umwandlung in Rh 0,2 g.

[0067] Es sei darauf hingewiesen, dass das Verhältnis aus dem Volumen des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators (500 cm^3) zu dem Volumen des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators (1.000 cm^3) 1,0 : 2,0 (d.h. Auf der stromaufwärtigen Seite gelegener Katalysator : Auf der stromabwärtigen Seite gelegener Katalysator = 1,0 : 2,0) betrug.

Beispiel Nr. 2 (entspricht nicht der Erfindung)

[0068] Außer dass das Edelmetall in dem auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator von Beispiel Nr. 1 durch 0,75 g Palladium und 0,75 g Platin ersetzt worden war, wurde der auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator von Beispiel Nr. 2 auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel Nr. 1 hergestellt.

[0069] Was den auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator angeht, so wurde ein Katalysator verwendet, der auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel Nr. 1 hergestellt worden war.

[0070] Es sei darauf hingewiesen, dass das Verhältnis von dem Palladium zu dem Barium 1,0 : 31,0 (d.h. Pd : Ba = 1,0 : 31,1), bezogen auf das Elementargewicht, in dem auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator betrug.

Beispiel Nr. 3 (entspricht nicht der Erfindung)

[0071] Außer dass das Edelmetall in dem auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator von Beispiel Nr. 1 durch 1,35 g Palladium und 0,15 g Rhodium ersetzt worden war, wurde der auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator von Beispiel Nr. 3 auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel Nr. 1 hergestellt.

[0072] Was den auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator angeht, so wurde ein Katalysator verwendet, der auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel Nr. 1 hergestellt worden war.

[0073] Es sei darauf hingewiesen, dass das Verhältnis von dem Palladium zu dem Barium 1,0 : 17;3 (d.h. Pd : Ba = 1,0 : 17,3), bezogen auf das Elementargewicht, in dem auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator betrug.

Beispiel Nr. 4 (entspricht nicht der Erfindung)

[0074] Außer dass die Menge des Bariumsulfates auf das Doppelte (79,2 g) der Menge des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators des Beispiels Nr. 1 eingestellt worden war, und dass die Beschichtungsmenge in Bezug auf 1 Liter des resultierenden auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators auf 178 g erhöht worden war, wurde der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator des Beispiels Nr. 4 auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel Nr. 1 hergestellt.

[0075] Was den auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator angeht, so wurde ein Katalysator verwendet, der auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel Nr. 1 hergestellt worden war.

[0076] Es sei darauf hingewiesen, dass das Verhältnis von dem Palladium zu dem Barium 1,0 : 31,1 (d.h. Pd : Ba = 1,0 : 31,1), bezogen auf das Elementargewicht, in dem auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator betrug.

Beispiel Nr. 5 (entspricht nicht der Erfindung)

[0077] Außer dass die Menge des Bariumsulfates auf die Hälfte (19,8 g) der Menge des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators des Beispiels Nr. 1 eingestellt worden war, und dass die Beschichtungsmenge in Bezug auf 1 Liter des resultierenden auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators auf 142

g verringert worden war, wurde der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator des Beispiels Nr. 5 auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel Nr. 1 hergestellt.

[0078] Was den auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator angeht, so wurde ein Katalysator verwendet, der auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel Nr. 1 hergestellt worden war.

[0079] Es sei darauf hingewiesen, dass das Verhältnis von dem Palladium zu dem Barium 1,0 : 7,8 (d.h. Pd : Ba = 1,0 : 7,8), bezogen auf das Elementargewicht, in dem auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator betrug.

Vergleichsbeispiel Nr. 1

[0080] Außer dass 86 g Ceroxid zugegeben worden waren, um bei der Herstellung des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators des Beispiel Nr. 1 eine Aufschlammung zum Beschichten zu erzeugen, und dass die Beschichtungsmenge in bezug auf 1 Liter des resultierenden, auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators auf 240 g erhöht worden war, wurde der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator des Vergleichsbeispiels Nr. 1 auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel Nr. 1 hergestellt.

[0081] Was den auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator angeht, so wurde ein Katalysator verwendet, der auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel Nr. 1 hergestellt worden war.

Vergleichsbeispiel Nr. 2

[0082] Außer dass eine feste Ceroxidlösung, die Zirkonium einschloss, an Stelle des Ceroxids bei der Herstellung des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators von Vergleichsbeispiel Nr. 1 verwendet worden war, wurde der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator des Vergleichsbeispiels Nr. 2 auf die gleiche Weise wie derjenige von Vergleichsbeispiel Nr. 1 hergestellt. Es sei darauf hingewiesen, dass das Verhältnis der Elementarzusammensetzung des Cers zu dem Zirkonium 1,0 : 1,0 (d.h. Ce : Zr = 1,0 1,0), bezogen auf das Elementargewicht, in der festen Ceroxidlösung, betrug.

[0083] Was den auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator angeht, so wurde ein Katalysator verwendet, der auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel Nr. 1 hergestellt worden war.

Vergleichsbeispiel Nr. 3

[0084] Außer dass eine feste Ceroxidlösung, die Zirkonium und Yttrium einschloss, an Stelle des Ceroxids bei der Herstellung des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators von Vergleichsbeispiel Nr. 1 verwendet worden war, wurde der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator des Vergleichsbeispiels Nr. 3 auf die gleiche Weise wie derjenige von Vergleichsbeispiel Nr. 1 hergestellt. Es sei darauf hingewiesen, dass das Verhältnis der Elementarzusammensetzung des Cers zu dem Zirkonium als auch zu dem Yttrium 10 : 9,0 1,0 (d.h. Ce : Zr : Y = 10 : 9,0 : 1,0), bezogen auf das Elementargewicht, in der festen Ceroxidlösung betrug.

[0085] Was den auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator angeht, so wurde ein Katalysator verwendet, der auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel Nr. 1 hergestellt worden war.

Vergleichsbeispiel Nr. 4

[0086] Außer dass die Menge des Ceroxids bei der Herstellung des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators von Vergleichsbeispiel Nr. 1 auf 43 g (die Hälfte der Menge in Vergleichsbeispiel Nr. 1) eingestellt worden war, und dass die Beschichtungsmenge in Bezug auf 1 Liter des resultierenden, auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators auf 197 g verringert worden war, wurde der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator des Vergleichsbeispiels Nr. 4 auf die gleiche Weise wie derjenige von Vergleichsbeispiel Nr. 1 hergestellt.

[0087] Was den auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator angeht, so wurde ein Katalysator verwendet, der auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel Nr. 1 hergestellt worden war.

[0088] Was die auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysatoren der vorstehend beschriebenen entsprechenden Katalysatoren angeht, so fasst Tabelle 1 die Gehalte der jeweiligen Bestandteile, bezogen auf 1

Liter der jeweiligen auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysatoren, zusammen.

Tabelle 1

	Beschich- tungs- menge (g)	Aluminium- oxid (g)	Lanthan (g)	Barium (g)	Cerver- bindung (g)	Zusammens. d. Cerver- bindung	Edel- metall	Menge des Edelme- tales (g)
Bsp. Nr. 1	154	113	3,9	23,3	0	Keine	Pd	1,5
Bsp. Nr. 2	154	113	3,9	23,3	0	Keine	Pd & Pt	1,5
Bsp. Nr. 3	154	113	3,9	23,3	0	Keine	Pd & Rh	1,5
Bsp. Nr. 4	178	113	3,9	46,6	0	Keine	Pd	1,5
Bsp. Nr. 5	142	113	3,9	11,7	0	Keine	Pd	1,5
Vergl.- bsp. Nr. 1	240	113	3,9	23,3	86	Ceroxid	Pd	1,5
Vergl.- bsp. Nr. 2	240	113	3,9	23,3	86	feste Lösung von Ce-Zr	Pd	1,5
Vergl.- bsp. Nr. 3	240	113	3,9	23,3	86	feste Lösung von Ce-Zr-Y	Pd	1,5
Vergl.- bsp. Nr. 4	197	113	3,9	23,3	43	Ceroxid	Pd	1,5

(Beurteilung der Katalysatoren)

[0089] Die entsprechenden Katalysatoren, die in den Beispielen Nr. 1 bis 5 und den Vergleichsbeispielen Nr. 1 bis 4 erhalten worden waren, wurden auf einen Benzinmotor mit einem Hubvolumen von 4.000 ccm montiert und einer Dauerhaftigkeitsprüfung unterzogen, die 50 Stunden lang bei einer Gaseinlasstemperatur von 900 °C erfolgte. In [Fig. 1](#) ist ein Diagramm gezeigt, das die Dauerhaftigkeitsprüfung im Detail erläutert. Zunächst wurde 40 Sekunden lang stöchiometrisches Gas und danach 16 Sekunden lang ein treibstoffreiches Gas in die entsprechenden Katalysatoren strömen gelassen. 5 Sekunden nachdem das stöchiometrische Gas in ein Gas umgewandelt worden war, das sich im treibstoffreichen Zustand befand, wurde 15 Sekunden lang Sekundärluft in die entsprechenden Katalysatoren eingeleitet. Auf diese Weise erfolgte wiederholt 3000mal ein Zyklus mit jeweils insgesamt 60 Sekunden (d.h. 50 Stunden). Danach wurden die jeweiligen Katalysatoren auf einen Fahrzeugmotor mit einem Hubvolumen von 1.500 cc montiert und die Abgasreinigungsleistungen wurden im "EPA75"-Beurteilungsmodus beurteilt. Die Ergebnisse der Beurteilung der Umwandlungen der Kohlenwasserstoffe sind in [Fig. 2](#) als Balkendiagramm gezeigt, und die Ergebnisse der Beurteilung der Umwandlungen des NOx sind in [Fig. 3](#) als Balkendiagramm gezeigt.

[0090] Wie in [Fig. 2](#) zu sehen ist, zeigten die entsprechenden Katalysatoren der Beispiele Nr. 1 bis 5 geringere Verhältnisse an verbliebenen KW und höhere Umwandlungen (oder geringere KW-Emissionen) als diejenigen der entsprechenden Katalysatoren der Vergleichsbeispiele Nr. 1 bis 4. Aus der Zeichnung geht auch hervor, dass der Katalysator des Beispiels Nr. 1 den entsprechenden Katalysatoren der Beispiele in Bezug auf die KW-Umwandlungen überlegen war.

[0091] [Fig. 3](#) zeigt die Ergebnisse der NOx-Umwandlungsmessungen. Aus der Zeichnung geht hervor, dass die entsprechenden Katalysatoren der Beispiele Nr. 1 bis 5 höhere NOx-Umwandlungen (oder geringere NOx-Emissionen) als diejenigen der entsprechenden Katalysatoren der Vergleichsbeispiele Nr. 1 bis 4 zeigten.

[0092] [Fig. 4](#) und [Fig. 5](#) illustrieren die Ergebnisse einer Untersuchung der KW-Umwandlungen und der NOx-Umwandlungen, die Katalysatoren zeigten, die durch das Variieren des Volumenverhältnisses von Auf der stromaufwärtigen Seite gelegener Katalysator zu Auf der stromabwärtigen Seite gelegener Katalysator in einem Bereich von 1/9 bis 9/1 in dem in Beispiel Nr. 1 beschriebenen Katalysator hergestellt worden waren. Als Ergebnis zeigen die Zeichnungen, dass dann, wenn das Volumenverhältnis von Auf der stromaufwärtigen Seite gelegener Katalysator zu Auf der stromabwärtigen Seite gelegener Katalysator in einen Bereich von 2/8 bis 7/3 fällt, es möglich war, den Erfordernissen der KW- und NOx-Umwandlungen auf gut ausgeglichene Weise zu genügen.

Beispiel Nr. 6 (entspricht nicht der Erfindung)

[0093] (Auf der stromaufwärtigen Seite gelegener Katalysator) 120 g Aluminiumoxid, das 3,9 g Lanthan enthielt, 39,6 g Bariumsulfat, 5,2 g Ceroxid, das in Bezug auf 1 Liter des resultierenden, auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators 0,03 mol entsprach, und 40 g eines Aluminiumoxid-Sols wurden gemischt und gerührt, und anschließend zu einer Aufschlammung verarbeitet. Zu dieser Aufschlammung wurde eine wässrige Palladiumlösung gegeben, die bei einer Umwandlung in Pd 1,5 g entsprach, und umfassend gerührt, um das Aluminiumoxid und das Ceroxid mit dem Palladium zu beladen, wodurch eine Aufschlammung zum Beschichten hergestellt wurde.

[0094] Die resultierende Aufschlammung wurde auf einen Träger aufgebracht, dessen Volumen ungefähr 500 cm³ betrug und der aus Cordierit gefertigt worden war, und wurde danach getrocknet. Auf diese Weise wurde der Träger in einen auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator umgewandelt. Es sei darauf hingewiesen, dass das Verhältnis von Pd zu Ba 1,0 : 15,5 (d.h. Pd : Ba = 1,0 : 15,5), bezogen auf das Elementargewicht, betrug.

(Auf der stromabwärtigen Seite gelegener Katalysator)

[0095] 120 g eines Aluminiumoxids, das 3,9 g Lanthan enthielt, 52 g einer festen Ceroxidlösung, die Zirkonium und Yttrium einschloss, und 40 g eines Aluminiumoxid-Sols wurden gemischt, umfassend gerührt und danach zu einer Aufschlammung verarbeitet. Es sei darauf hingewiesen, dass das Verhältnis der Elementarzusammensetzung der entsprechenden Elemente Ce : Zr : Y = 50 : 45 : 5,0, bezogen auf das Elementargewicht, in der festen Ceroxidlösung betrug. Zu dieser Aufschlammung wurde eine wässrige Platinlösung gegeben und es wurde umfassend gerührt, um das Aluminiumoxid und die feste Ceroxid-Lösung, die Zirkonium und Yttrium einschloss, mit dem Platin zu beladen, wodurch eine Aufschlammung zum Beschichten hergestellt wurde. Was

die wässrige Platinlösung angeht, so entsprach sie bei einer Umwandlung in Pt 1,0 g. Die resultierende Aufschlammung wurde auf einen Träger aufgebracht, dessen Volumen ungefähr 1.000 cm³ betrug und der aus Cordierit hergestellt worden war, und getrocknet. Der Träger wurde danach in eine wässrige Rhodiumlösung eingetaucht, um den Träger in einer Menge von 0,2 g, bezogen auf 1 Liter des resultierenden, auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators, mit Rh zu beladen; getrocknet und danach in einen auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator umgewandelt.

[0096] Der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator und der auf der stromabwärtigen Seite gelegene Katalysator wurden zu einem Paar kombiniert, und als Katalysator des Beispiels Nr. 6 bezeichnet.

[0097] Es sei darauf hingewiesen, dass das Verhältnis aus dem Volumen des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators zu dem Volumen des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators 1,0 : 2,0 betrug (d.h. Auf der stromaufwärtigen Seite gelegener Katalysator : Auf der stromabwärtigen Seite gelegener Katalysator = 1,0 : 2,0, bezogen auf das Volumen).

Beispiel Nr. 7

[0098] Außer dass das Ceroxid des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators in Beispiel Nr. 6 durch 5,2 g einer festen Oxidlösung, die Cer und Zirkonium einschloss, bezogen auf 1 Liter der resultierenden Katalysators, ersetzt worden war, wurde der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator von Beispiel 7 auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel Nr. 6 hergestellt. Es sei darauf hingewiesen, dass das Verhältnis der entsprechenden Elemente Ce : Zr = 45 : 5,0, bezogen auf das Elementargewicht, in der festen Oxidlösung betrug.

[0099] Was den auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator angeht, so wurde ein Katalysator verwendet, der auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel Nr. 6 hergestellt worden war.

Beispiel Nr. 8

[0100] [0085] Außer dass das Ceroxid des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators in Beispiel Nr. 6 durch 5,2 g einer festen Oxidlösung, die Cer, Zirkonium und Yttrium einschloss, bezogen auf 1 Liter der resultierenden Katalysators, ersetzt worden war, wurde der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator von Beispiel Nr. 8 auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel Nr. 6 hergestellt. Es sei darauf hingewiesen, dass das Verhältnis der entsprechenden Elemente Ce : Zr : Y = 50 : 45 : 5,0, bezogen auf das Elementargewicht, in der festen Oxidlösung betrug.

[0101] Was den auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator angeht, so wurde ein Katalysator verwendet, der auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel Nr. 6 hergestellt worden war.

Beispiel Nr. 9

[0102] Außer dass das Ceroxid des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators in Beispiel Nr. 6 durch eine feste Oxidlösung, die Cer, Zirkonium und Yttrium einschloss, ersetzt worden war, dass die feste Oxidlösung in einer verringerten Menge von 1,53 g, bezogen auf 1 Liter des resultierenden Katalysators, verwendet worden war, und dass die Beschichtungsmenge in Bezug auf 1 Liter des resultierenden Katalysators auf 155 g verringert worden war, wurde der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator von Beispiel Nr. 9 auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel Nr. 6 hergestellt. Es sei darauf hingewiesen, dass das Verhältnis der entsprechenden Elemente Ce : Zr : Y = 50 : 45 : 5,0, bezogen auf das Elementargewicht, in der festen Oxidlösung betrug.

[0103] Was den auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator angeht, so wurde ein Katalysator verwendet, der auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel Nr. 6 hergestellt worden war.

Beispiel Nr. 10

[0104] Außer dass die feste Oxidlösung, die Cer, Zirkonium und Yttrium einschloss, des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators in Beispiel Nr. 8 in einer erhöhten Menge von 7,64 g, bezogen auf 1 Liter des resultierenden Katalysators, verwendet worden war, und dass die Beschichtungsmenge in Bezug auf 1 Liter des resultierenden Katalysators auf 162 g erhöht worden war, wurde der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator von Beispiel Nr. 10 auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel Nr. 8 hergestellt. Es

sei darauf hingewiesen, dass das Verhältnis der entsprechenden Elemente Ce : Zr : Y = 50 : 45 : 5,0, bezogen auf das Elementargewicht, in der festen Oxidlösung betrug.

[0105] Was den auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator angeht, so wurde ein Katalysator verwendet, der auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel Nr. 6 hergestellt worden war.

Beispiel Nr. 11

[0106] Außer dass die feste Oxidlösung, die Cer, Zirkonium und Yttrium einschloss, des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators in Beispiel Nr. 8 in einer erhöhten Menge von 15,3 g, bezogen auf 1 Liter des resultierenden Katalysators, verwendet worden war, und dass die Beschichtungsmenge in Bezug auf 1 Liter des resultierenden Katalysators auf 169 g erhöht worden war, wurde der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator von Beispiel Nr. 11 auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel Nr. 8 hergestellt. Es sei darauf hingewiesen, dass das Verhältnis der entsprechenden Elemente Ce : Zr : Y = 50 : 45 : 5,0, bezogen auf das Elementargewicht, in der festen Oxidlösung betrug.

[0107] Was den auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator angeht, so wurde ein Katalysator verwendet, der auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel Nr. 6 hergestellt worden war.

Beispiel Nr. 12

[0108] Außer dass die 1,5 g Pd in dem auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator in Beispiel 8 durch 0,75 g Pd und 0,75 g Pt ersetzt worden waren, wurde der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator von Beispiel 12 auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel 8 hergestellt.

[0109] Was den auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator angeht, so wurde ein Katalysator verwendet, der auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel Nr. 6 hergestellt worden war.

Beispiel Nr. 13

[0110] Außer dass die 1,5 g Pd in dem auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator in Beispiel 8 durch 1,2 g Pd und 0,3 g Rh ersetzt worden waren, wurde der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator von Beispiel 13 auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel 8 hergestellt.

[0111] Was den auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator angeht, so wurde ein Katalysator verwendet, der auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel Nr. 6 hergestellt worden war.

Beispiel Nr. 14 (entspricht nicht der Erfindung)

(Auf der stromaufwärtigen Seite gelegener Katalysator)

[0112] Außer dass das Ceroxid in Beispiel Nr. 6 nicht zugegeben worden war, und dass die Beschichtungsmenge in Bezug auf 1 Liter des resultierenden Katalysators auf 154 g verringert worden war, wurde der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator auf die gleiche Weise wie derjenige in Beispiel 6 hergestellt und als der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator von Beispiel Nr. 14 bezeichnet.

[0113] Was den auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator angeht, so wurde ein Katalysator verwendet, der auf die gleiche Weise wie derjenige von Beispiel Nr. 6 hergestellt worden war.

Vergleichsbeispiel Nr. 5

(Auf der stromaufwärtigen Seite gelegener Katalysator)

[0114] 120 g Aluminiumoxid, das 3,9 g Lanthan enthielt, 39,6 g Bariumsulfat, 86 g Ceroxid, das in Bezug auf 1 Liter des resultierenden, auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators 0,5 mol Cerelementen entsprach, und 40 g eines Aluminiumoxid-Sols wurden gemischt und gerührt, und danach zu einer Aufschlammung verarbeitet. Zu dieser Aufschlammung wurde eine wässrige Palladiumlösung, die bei einer Umwandlung in Pd einer Menge von 1,5 g entsprach, gegeben und umfassend gerührt, um das Aluminiumoxid und das Ceroxid mit dem Palladium zu beladen, wodurch eine Aufschlammung zum Beschichten hergestellt wurde. Die resultierende Aufschlammung wurde auf einen Träger aufgebracht, dessen Volumen ungefähr 500 cm³ betrug

und der aus Cordierit gefertigt war, getrocknet und danach in einen auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator umgewandelt.

(Auf der stromabwärtigen Seite gelegener Katalysator)

[0115] 120 g Aluminiumoxid, das 3,9 g Lanthan enthielt, 52 g einer festen Ceroxid-Lösung, die Zirkonium und Yttrium einschloss, und 40 g eines Aluminiumoxid-Sols wurden gemischt, umfassend gerührt und danach zu einer Aufschlämmung verarbeitet. Es sei darauf hingewiesen, dass das Verhältnis der Elementarzusammensetzung der festen Ceroxid-Lösung $Ce : Zr : Y = 50 : 45 : 5,0$, bezogen auf das Elementargewicht, betrug. Zu dieser Aufschlämmung wurde eine wässrige Platinlösung gegeben und umfassend gerührt, um das Aluminiumoxid und die feste Ceroxid-Lösung, die Zirkonium und Yttrium einschloss, mit dem Platin zu beladen, wodurch eine Aufschlämmung zum Beschichten hergestellt wurde. Was die wässrige Platinlösung angeht, so entsprach sie bei einer Umwandlung in Pt 1,0 g. Die resultierende Aufschlämmung wurde auf einen Träger aufgebracht, dessen Volumen ungefähr 1000 cm^3 betrug und der aus Cordierit gefertigt war, und getrocknet. Der Träger wurde danach in eine wässrige Rhodiumlösung eingetaucht, um den Träger mit dem Rh in einer Menge von 0,2 g, bezogen auf 1 Liter des resultierenden, auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators, zu beladen, getrocknet, und danach in einen auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator umgewandelt.

[0116] Tabelle 2 fasst die Gehalte der entsprechenden Bestandteile in den Beladungsschichten als auch die Beladungsmengen der entsprechenden Edelmetalle darin in Bezug auf 1 Liter der entsprechenden auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysatoren in dem vorstehend beschriebenen Beispielen Nr. 6 bis 14 und dem Vergleichsbeispiel Nr. 5 zusammen.

Tabelle 2

Bsp. Nr.	Beschichtungs- menge (g)	Aluminium- oxid (g)	Lanthan (g)	Barium (g)	Cerver- bindung (g)	Zusammens. d. Cerver- bindung	Edel- metall	Menge des Edelme- talles (g)
Bsp. Nr. 6	159	113	3,9	23,3	5,2	Ceroxid	Pd	1,5
Bsp. Nr. 7	159	113	3,9	23,3	5,2	Feste Lösung aus Ce-Zr	Pd	1,5
Bsp. Nr. 8	159	113	3,9	23,3	5,2	Feste Lösung aus Ce-Zr-Y	Pd	1,5
Bsp. Nr. 9	155	113	3,9	23,3	1,53	Feste Lösung aus Ce-Zr-Y	Pd	1,5
Bsp. Nr. 10	162	113	3,9	23,3	7,64	Feste Lösung aus Ce-Zr-Y	Pd	1,5
Bsp. Nr. 11	169	113	3,9	23,3	15,3	Feste Lösung aus Ce-Zr-Y	Pd	1,5
Bsp. Nr. 12	159	113	3,9	23,3	5,2	Feste Lösung aus Ce-Zr-Y	Pd & Pt	1,5
Bsp. Nr. 13	159	113	3,9	23,3	5,2	Feste Lösung aus Ce-Zr-Y	Pd & Rh	1,5
Bsp. Nr. 14	154	113	3,9	23,3	0	Keine	Pd	1,5
Vergl.- bsp. Nr. 5	240	113	3,9	23,3	86,0	Ceroxid	Pd	1,5

[0117] Außer dass die entsprechenden Katalysatoren, die in den Beispielen Nr. 6 bis 14 und dem Vergleichsbeispielen Nr. 5 erhalten worden waren, auf einen Benzinmotor mit einem Hubvolumen von 2.000 ccm montiert wurden, wurden sie auf die gleiche Weise einer Dauerhaftigkeitsprüfung unterzogen, wie die entsprechenden Katalysatoren der Beispiele Nr. 1 bis 5 und den Vergleichsbeispielen Nr. 1 bis 4 einer Dauerhaftigkeitsprüfung unterzogen worden waren. Danach wurden die entsprechenden Katalysatoren der Beispiele Nr. 6 bis 14 und des Vergleichsbeispiels Nr. 5 auf einen Fahrzeugmotor mit einem Hubvolumen von 1.500 ccm montiert und die Abgasreinigungsleistungen wurden im "EPA75"-Beurteilungsmodus auf die gleiche Weise beurteilt, wie die entsprechenden Katalysatoren von Beispiel Nr. 1 bis 5 und Vergleichsbeispiel Nr. 1 bis 4 beurteilt worden waren. Die Ergebnisse der Beurteilung bezüglich der Umwandlungen des KW sind in [Fig. 6](#) als Balkendiagramm gezeigt, und die Ergebnisse der Beurteilung bezüglich der Umwandlungen des NOx sind in [Fig. 7](#) als Balkendiagramm gezeigt.

[0118] Wie in [Fig. 6](#) dargestellt, zeigten die entsprechenden Katalysatoren der Beispiele Nr. 6 bis 14 im Vergleich zu dem Vergleichsbeispiel Nr. 5, in dem der Gehalt der Cerelemente in dem auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator groß war, viel geringere KW-Emissionen und erwiesen sich dementsprechend in Bezug auf die Reinigungsleistungen als gut.

[0119] Es sei darauf hingewiesen, dass es sich beim Beispiel 14 um einen Fall handelte, in dem der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator frei von Cerelementen war. Beispiel 14 zeigte eine bemerkenswert geringe KW-Emission. Wie in [Fig. 7](#) gezeigt, erfolgte in Beispiel 14 jedoch keine so ausgeprägte Reinigung des NOx wie in den Beispielen Nr. 6 bis 13, wobei aber eine niedrigere NOx-Emission auftrat als sie sich in Vergleichsbeispiel Nr. 5 zeigte (z.B. weniger als 0,2 g/Meile). Somit erwies sich, dass das NOx in Vergleichsbeispiel Nr. 5, wie in [Fig. 7](#) dargestellt, viel unzureichender als in all den Beispielen Nr. 6 bis 14 gereinigt worden war.

[0120] Die Beispiele Nr. 6 bis 14 des Katalysators zur Reinigung eines Abgases waren in Bezug auf die KW- und NOx-Umwandlungen gut und sie verringerten dementsprechend den Ausstoß an ungereinigten Substanzen.

[0121] In [Fig. 8](#) und [Fig. 9](#) sind die Ergebnisse einer Untersuchung bezüglich der KW-Umwandlungen und der NOx-Umwandlungen dargestellt, die die Katalysatoren zeigten, die durch das Variieren des Volumenverhältnisses von dem auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators zu dem auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator in einem Bereich von 1/9 bis 9/1 in dem in Beispiel Nr. 6 beschriebenen Katalysator hergestellt worden waren. Als Ergebnis zeigt die Zeichnung, dass es möglich war, den Erfordernissen der KW- und NOx-Umwandlungen gerecht zu werden, wenn das Volumenverhältnis von dem auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators zu dem auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator in einen Bereich von 2/8 bis 7/3 fiel.

[0122] Nachdem die Erfindung nun vollständig beschrieben wurde, versteht es sich für den Fachmann auf diesem Gebiet der Technik von selbst, dass viele Änderungen und Modifikationen erfolgen können, ohne von der Wesensart des Geltungsbereiches der wie vorstehend dargelegten Erfindung, die die beigefügten Ansprüche einschließt, abzuweichen.

Patentansprüche

1. Katalysator zur Reinigung eines Abgases, der die nachstehenden Komponenten umfasst:
einen auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator, der in Bezug auf den Abgasstrom auf der stromaufwärts gelegenen Seite angeordnet ist und die nachstehenden Komponenten einschließt: einen ersten zylinderförmigen Träger mit mehreren Durchgangslöchern, die den Träger in axialer Richtung durchdringen; eine erste feuerfeste Beladungsschicht aus einem anorganische Oxid, die auf den Innenflächen gebildet ist, die die Durchgangslöcher begrenzen; und einen ersten Katalysatorbestandteil, den die erste Beladungsschicht enthält, und der aus einem ersten Edelmetall besteht;
einen auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator, der in Bezug auf den Abgasstrom auf der stromabwärts gelegenen Seite angeordnet ist und die nachstehenden Komponenten einschließt: einen zweiten zylinderförmigen Träger mit mehreren Durchgangslöchern, die den Träger in axialer Richtung durchdringen; eine zweite feuerfeste Beladungsschicht aus einem anorganische Oxid, die auf den Innenflächen gebildet ist, die die Durchgangslöcher begrenzen; und einen zweiten Katalysatorbestandteil, den die zweite Beladungsschicht enthält, und der aus einem zweiten Edelmetall besteht;

wobei der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator von dem ersten Katalysatorbestandteil aufgebaut wird, der aus mindestens einem Element besteht, das aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus Palladium, Palladium und Rhodium, und Palladium und Platin, als das erste Edelmetall, besteht, und die erste Beladungsschicht aus einem Aluminiumoxid besteht, das Barium und Lanthan, Cer, Zirkonium und Yttrium enthält, wobei das Cer in mindestens einer Form vorhanden ist, die aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus einer festen Lösung aus Cer und Zirkonium, und einer festen Lösung aus Cer, Zirkonium und Yttrium besteht, wobei das quantitative Verhältnis von dem Cer zu dem Zirkonium als auch zu dem Yttrium in einen Bereich von $Ce : Zr : Y = 2,0 : 1,0 : 0,1 - 0,42$ bis $1,0 : 2,0 : 0,2 - 0,84$ fällt, bezogen auf das Elementargewicht, und wobei die Menge des Cers in einen Bereich von 0,01 bis 0,1 Mol fällt, bezogen auf 1 Liter des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators; und wobei der auf der stromabwärtigen Seite gelegene Katalysator von dem zweiten Katalysatorbestandteil aufgebaut wird, der aus mindestens einem Element besteht, das aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus Platin, Palladium und Rhodium, als das zweite Edelmetall, besteht, und die zweite Beladungsschicht aus Aluminiumoxid besteht, das Lanthan und mindestens ein Element enthält, das aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus Cer, einer festen Lösung aus Cer und Zirkonium, und einer festen Lösung aus Cer, Zirkonium und Yttrium besteht.

2. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem das Verhältnis von dem Palladium zu dem Barium $Pd : Ba = 1,0 : 100$ bis $1,0 : 1,0$, bezogen auf das Elementargewicht, in dem auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator beträgt.

3. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem das Volumenverhältnis von dem auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysator zu dem auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysator, d.h. auf der stromaufwärtigen Seite gelegener Katalysator : auf der stromabwärtigen Seite gelegener Katalysator = $1,0 : 10$ bis $3,0 : 1,0$ beträgt.

4. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem der auf der stromaufwärtigen Seite gelegene Katalysator und der auf der stromabwärtigen Seite gelegene Katalysator auf und/oder in einem identischen Träger gebildet sind.

5. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem das Lanthan in dem Aluminiumoxid in der ersten Beladungsschicht des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators gelöst ist.

6. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem das Barium als Oxidteilchen in dem Aluminiumoxid in der ersten Beladungsschicht des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators dispergiert ist.

7. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem das Barium in der ersten Beladungsschicht des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators in Bezug auf 1 Liter des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators in einer Menge von 1,0 bis 100 g, bezogen auf das Elementargewicht, enthalten ist.

8. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem das Lanthan in der ersten Beladungsschicht des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators in Bezug auf 1 Liter des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators in einer Menge von 0,8 bis 8,0 g, bezogen auf das Elementargewicht, enthalten ist.

9. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem es sich bei dem Aluminiumoxid um aktiviertes Aluminiumoxid handelt.

10. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem das Aluminiumoxid in der ersten Beladungsschicht des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators in einer Menge von 50 bis 200 g, bezogen auf 1 Liter des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators, eingeschlossen ist.

11. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem der erste Katalysatorbestandteil aus dem ersten Edelmetall in einer Menge von 0,01 bis 10 g, bezogen auf 1 Liter des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators, besteht.

12. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem der erste Katalysatorbestandteil des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators aus Palladium besteht, und das Palladium in einer Menge von 0,01 bis 10 g, bezogen auf 1 Liter des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators, in

der ersten Beladungsschicht eingebracht ist.

13. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem der erste Katalysatorbestandteil des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators aus Palladium und Rhodium besteht, und das Palladium in der ersten Beladungsschicht in einer Menge von 0,01 bis 5,0 g, bezogen auf 1 Liter des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators, eingebracht ist, und das Rhodium in der ersten Beladungsschicht in einer Menge von 0 bis 1,0 g, bezogen darauf, eingebracht ist.

14. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem der erste Katalysatorbestandteil des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators aus Palladium und Platin besteht, und das Palladium in der ersten Beladungsschicht in einer Menge von 0,01 bis 5,0 g, bezogen auf 1 Liter des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators, eingebracht ist, und das Platin in der ersten Beladungsschicht in einer Menge von 0 bis 5,0 g, bezogen darauf, eingebracht ist.

15. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem die Menge des Cers, die in der ersten Beladungsschicht des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators enthalten ist, in einen Bereich von 0,01 bis 0,05 Mol, bezogen auf 1 Liter des auf der Stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators, fällt.

16. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem das Barium in einer Menge von 10 bis 30 g, bezogen auf 100 g des Aluminiumoxids, in der ersten Beladungsschicht des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators enthalten ist.

17. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem das Lanthan in einer Menge von 3,0 bis 5,0 g, bezogen auf 100 g des Aluminiumoxids, in der ersten Beladungsschicht des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators enthalten ist.

18. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem das Cer in einer Menge von 0,6 bis 2,0 g, bezogen auf 100 g des Aluminiumoxids, in der ersten Beladungsschicht des auf der stromaufwärtigen Seite gelegenen Katalysators enthalten ist.

19. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem die zweite Beladungsschicht des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators aus Lanthan in einer Menge von 0,8 bis 4,5 g, bezogen auf 1 Liter des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators, besteht.

20. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem die zweite Beladungsschicht des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators aus dem Aluminiumoxid in einer Menge von 50 bis 250 g, bezogen auf 1 Liter des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators, besteht.

21. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem der zweite Katalysatorbestandteil des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators aus dem zweiten Edelmetall in einer Menge von 0,05 bis 10 g, bezogen auf 1 Liter des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators, besteht.

22. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem der zweite Katalysatorbestandteil des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators aus Platin in einer Menge von 0,05 bis 1,0 g, bezogen auf 1 Liter des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators, und aus Palladium in einer Menge von 0,05 bis 2,0 g, darauf bezogen, besteht.

23. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem der zweite Katalysatorbestandteil des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators aus Platin in einer Menge von 0,05 bis 1,0 g, bezogen auf 1 Liter des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators, und aus Rhodium in einer Menge von 0,05 bis 0,3 g, darauf bezogen, besteht.

24. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem der zweite Katalysatorbestandteil des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators aus Palladium in einer Menge von 0,05 bis 2,0 g, bezogen auf 1 Liter des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators, und aus Rhodium in einer Menge von 0,05 bis 0,3 g, darauf bezogen, besteht.

25. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem der zweite Katalysatorbestandteil des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators aus Platin in einer Menge von 0,05 bis 1,0 g, be-

zogen auf 1 Liter des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators, und aus Palladium in einer Menge von 0,05 bis 2,0 g, darauf bezogen, und aus Rhodium in einer Menge von 0,05 bis 0,3 g, darauf bezogen, besteht.

26. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem das Lanthan in einer Menge von 3,0 bis 5,0 g, bezogen auf 100 g des Aluminiumoxids, in der zweiten Beladungsschicht des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators enthalten ist.

27. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem die zweite Beladungsschicht des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators aus Cer in einer Menge von 0,2 bis 0,8 Mol, bezogen 1 Liter des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators, besteht.

28. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem die zweite Beladungsschicht des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators aus einer festen Lösung aus Cer und Zirkonium besteht, und das Verhältnis von dem Cer zu dem Zirkonium in einen Bereich von $Ce : Zr = 2,0 \text{ } 1,0 - 1,0 : 2,0$ fällt, bezogen auf das Elementargewicht.

29. Katalysator zur Reinigung eines Abgases nach Anspruch 1, in dem die zweite Beladungsschicht des auf der stromabwärtigen Seite gelegenen Katalysators aus einer festen Lösung aus Cer, Zirkonium und Yttrium besteht, und das Verhältnis von dem Zirkonium zu dem Yttrium in einen Bereich von $Zr : Y = 10 : 1,0 - 7,0 : 3,0$ fällt, bezogen auf das Elementargewicht.

Es folgen 6 Blatt Zeichnungen

FIG. 1

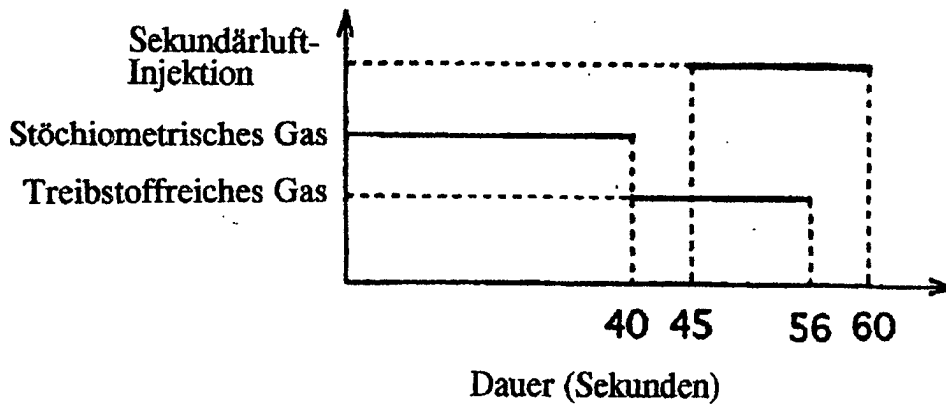


FIG. 2

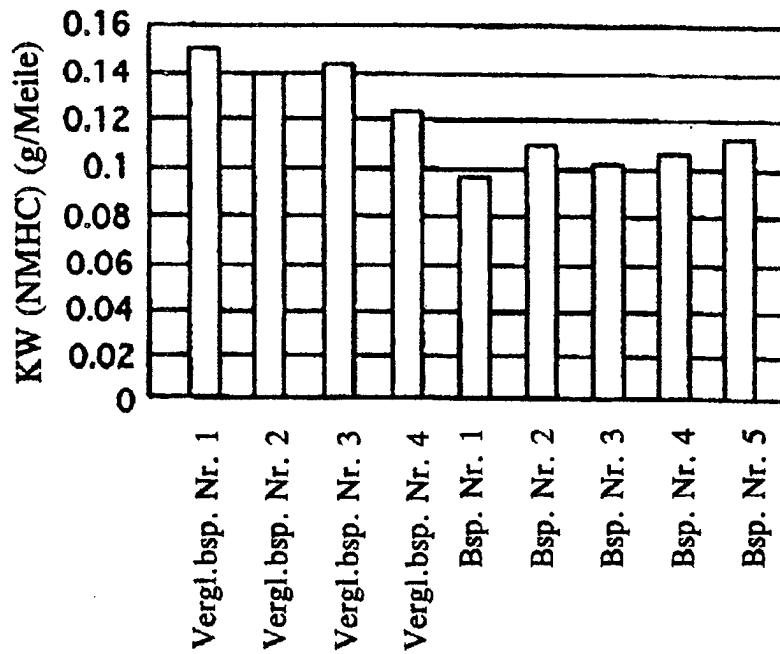


FIG. 3

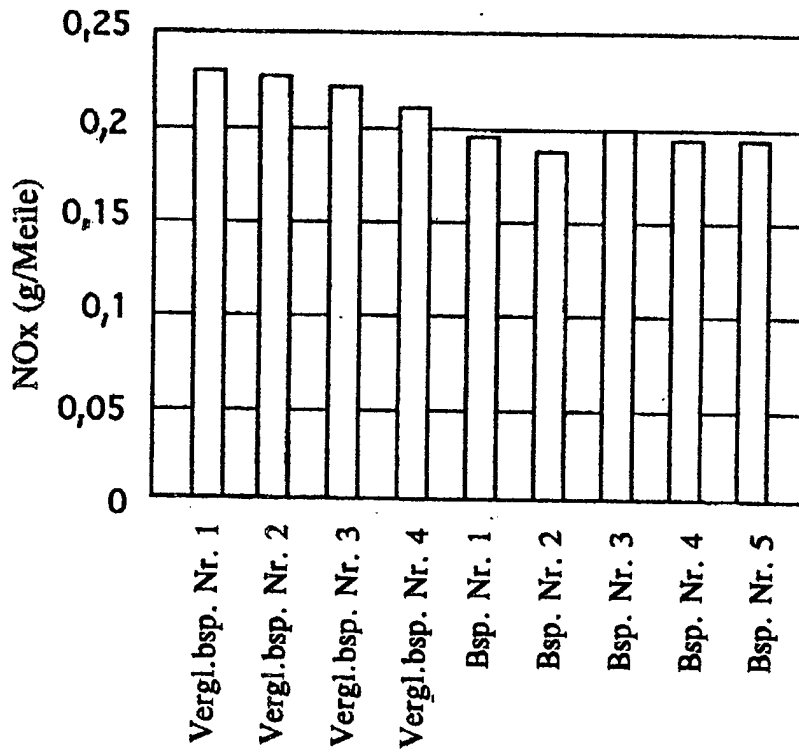


FIG. 4

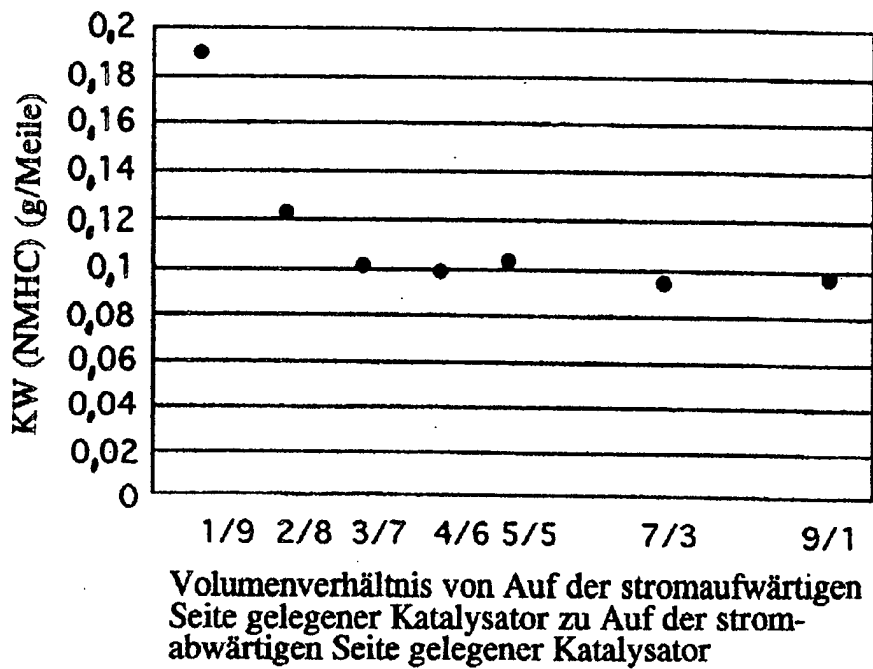


FIG. 5

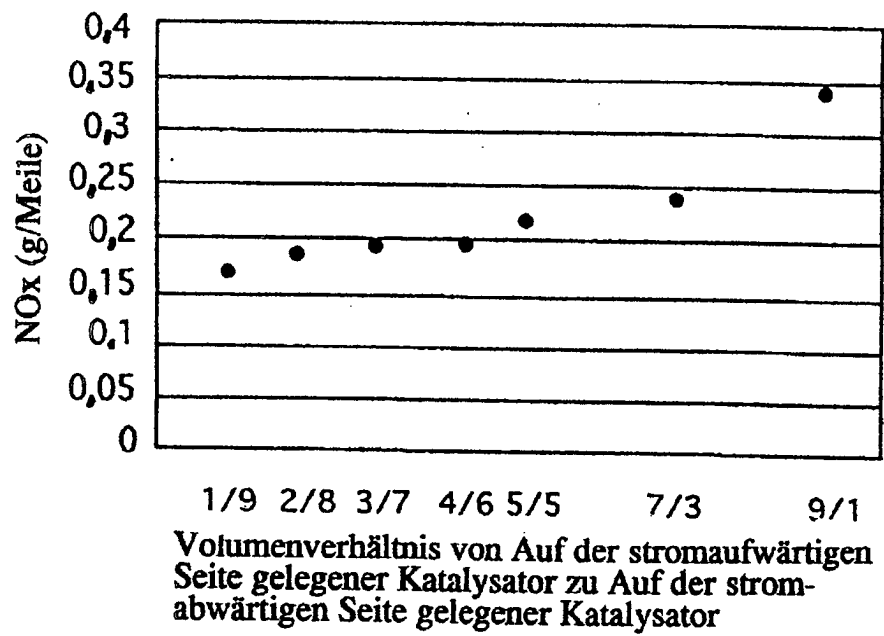


FIG. 6

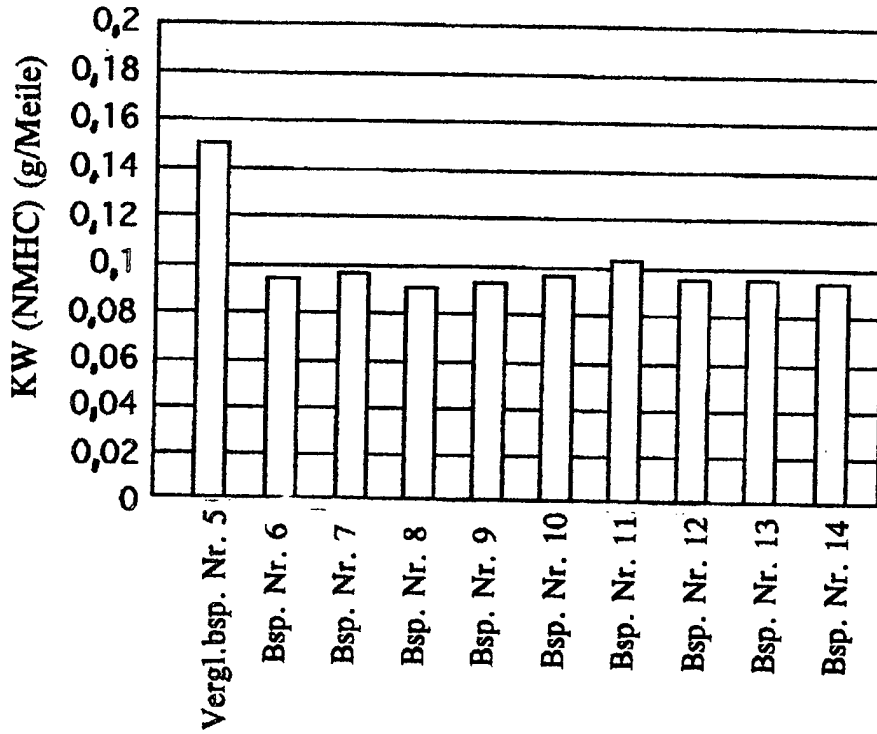


FIG. 7

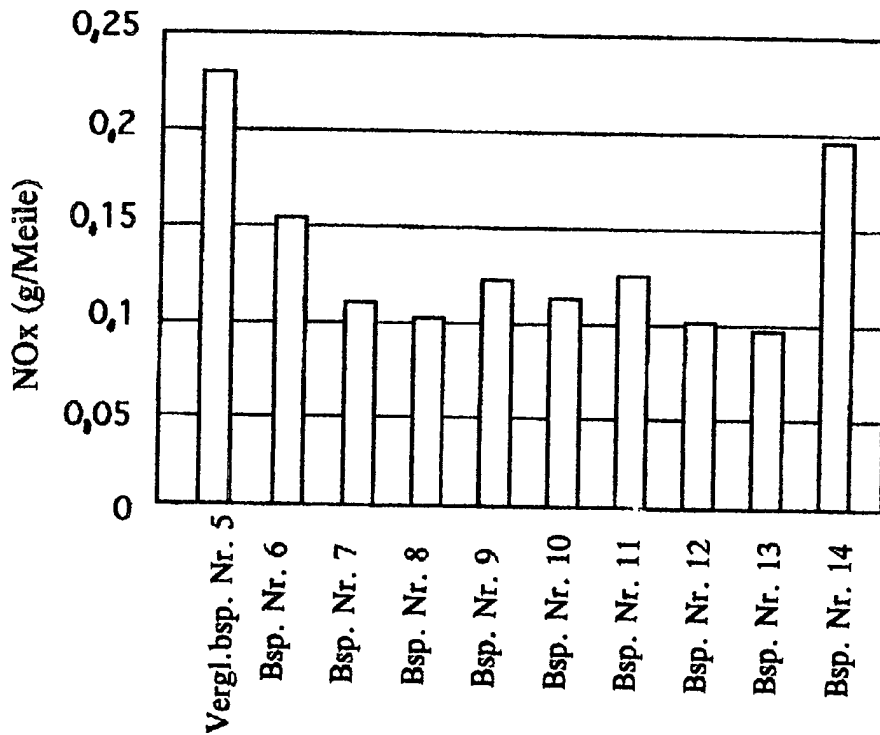


FIG. 8

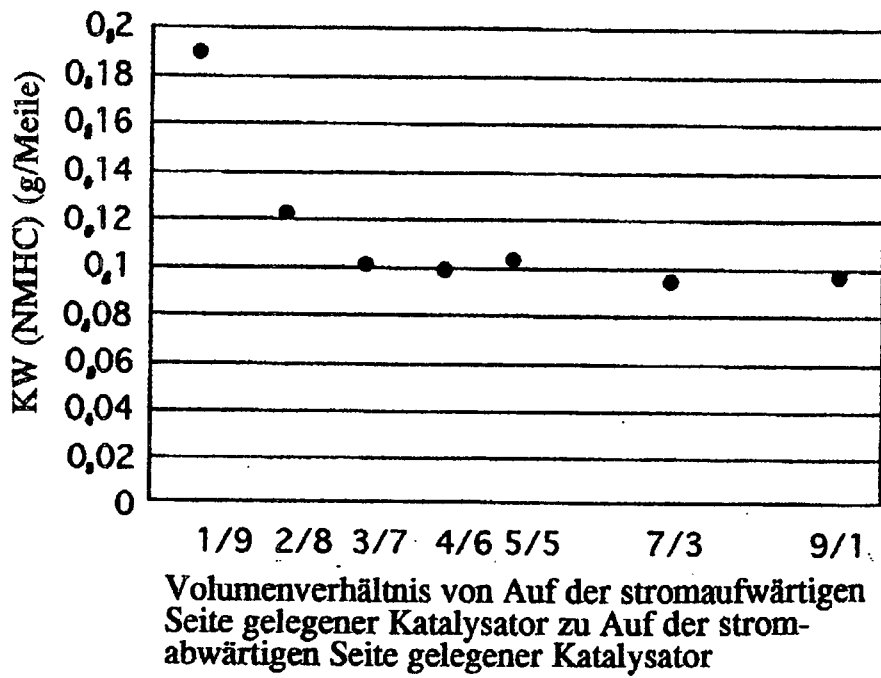


FIG. 9

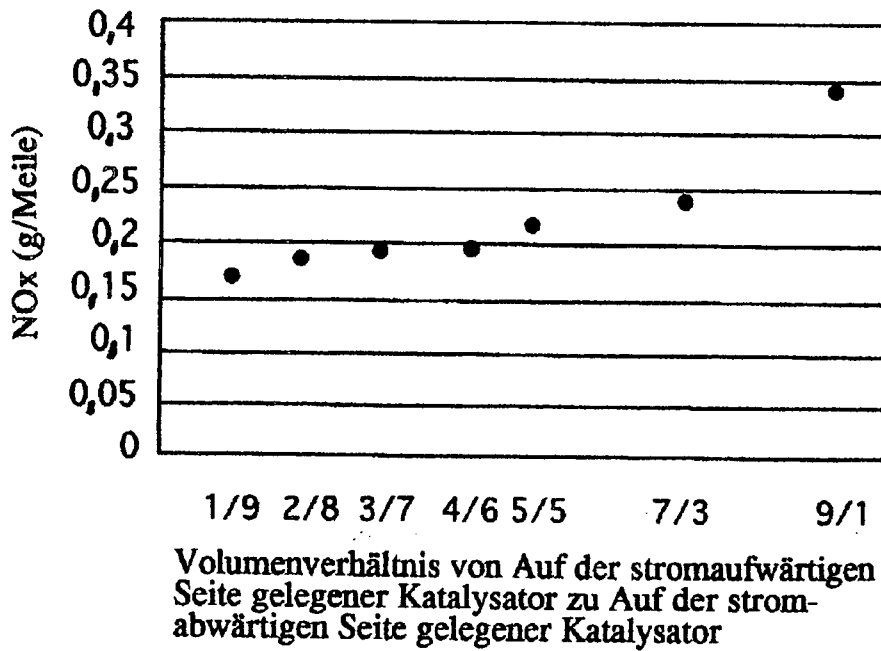


FIG. 10

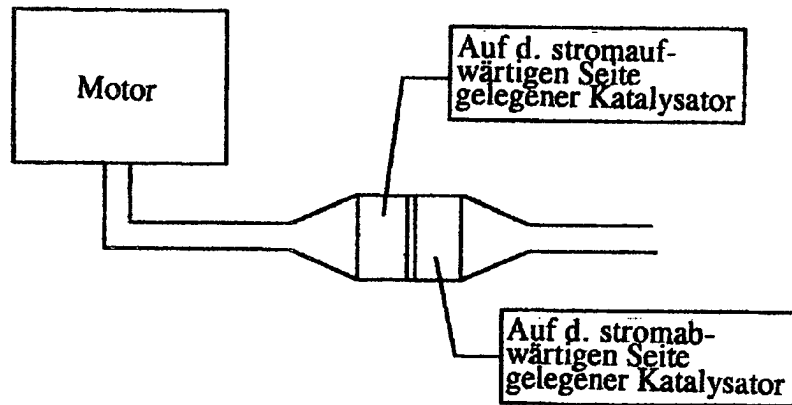


FIG. 11

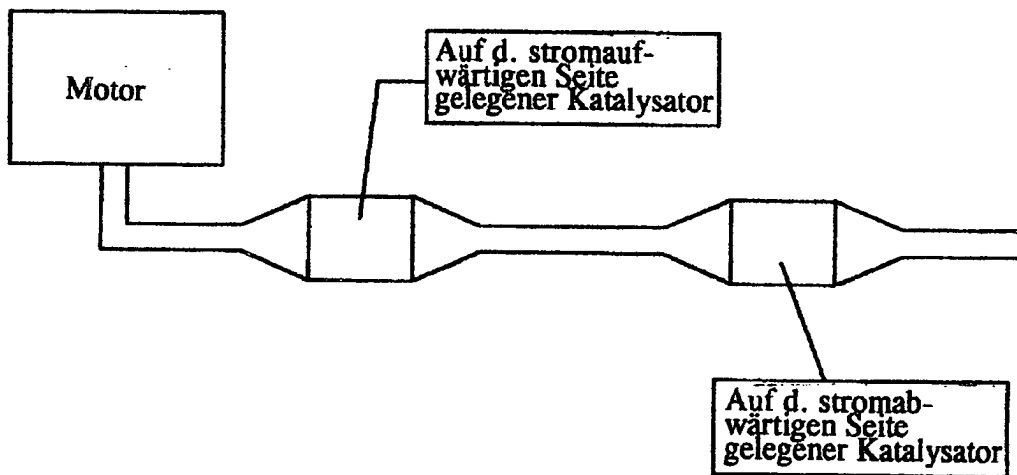


FIG. 12

