



(19)  
Bundesrepublik Deutschland  
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 698 16 537 T2** 2004.04.08

(12) **Übersetzung der europäischen Patentschrift**

(97) **EP 0 895 812 B1**

(21) Deutsches Aktenzeichen: **698 16 537.3**

(96) Europäisches Aktenzeichen: **98 114 817.4**

(96) Europäischer Anmeldetag: **06.08.1998**

(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: **10.02.1999**

(97) Veröffentlichungstag

der Patenterteilung beim EPA: **23.07.2003**

(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: **08.04.2004**

(51) Int Cl.7: **B01J 37/02**

**B01J 29/06, B01J 29/03, B01D 53/94**

(30) Unionspriorität:  
**21336497 07.08.1997 JP**

(73) Patentinhaber:  
**Mazda Motor Corp., Hiroshima, JP**

(74) Vertreter:  
**Rechts- und Patentanwälte Lorenz Seidler Gossel,  
80538 München**

(84) Benannte Vertragsstaaten:  
**DE, ES, FR, GB, IT**

(72) Erfinder:  
**Kurokawa, Takahiro, Aki-gun, Hiroshima, JP;  
Watanabe, Yasuto, Aki-gun, Hiroshima, JP; Ueoka,  
Toshitsugu, Aki-gun, Hiroshima, JP; Takayama,  
Osamu, Aki-gun, Hiroshima, JP; Koda, Yuki,  
Aki-gun, Hiroshima, JP**

(54) Bezeichnung: **Katalysator zur Reinigung von Abgas und Verfahren für seine Herstellung**

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****Zusammenfassung der Erfindung****Hintergrund der Erfindung****1. Gebiet der Erfindung**

[0001] Die vorliegende Erfindung betrifft einen Abgasrezirkulationskatalysator.

**2. Beschreibung des verwandten Fachgebiets**

[0002] Es sind Katalysatoren für die Reduzierung und Reinigung von Stickstoffoxiden (NO<sub>x</sub>) in Abgasen aus einem Dieselmotor bekannt, in welchem ein mageres Luft-Kraftstoff-Gemisch mit einem zu hohen Luftfaktor ( $\lambda$ ) von höher als 1 (eins) verbrannt wird. Wie beispielsweise in der ungeprüften japanischen Patentveröffentlichung Nr. 8-254 407 beschrieben, enthält ein solcher Katalysator Platin (Pt) und Rhodium (Rh), die durch mesoporöses kristallines Silikat getragen sind. Dieser Katalysator wurde mit der Absicht der Nutzung von Mesoporen des kristallinen Silicats entwickelt, um die Aktivierungstemperatur dieses Katalysators auf die höhere Seite zu verschieben, sowie zur Verhinderung des Sinterns der Edelmetalle. Außerdem ist, wie beispielsweise in der ungeprüften japanischen Patentveröffentlichung Nr. 7-51 542 beschrieben, der Einsatz eines Abgasreinigungskatalysators bekannt, welcher aus einer Mischung aus einem Zeolith-haltigen Kobalt (Co) und Zeolith-haltigen Palladium (Pd) zusammengesetzt ist, um schädliche Emissionen, wie Stickstoffoxide (NO<sub>x</sub>), Kohlenwasserstoffe (HC) und Kohlenmonoxid (CO) zu reinigen. Kobalt (Co) und Palladium (Pd) können durch ein Ionenaustauschverfahren oder ein Imprägnierungsverfahren geträgert werden.

[0003] Wenn ein Katalysator zur Reduzierung und Reinigung von Stickstoffoxiden (NO<sub>x</sub>) in Abgasen eingesetzt wird, werden Kohlenwasserstoffe (HC) in dem Abgas als Reduktionsmittel verwendet. Abgase aus Dieselmotoren enthalten weniger Kohlenwasserstoffe (HC) als Reduktionsmittel, doch schließt ein großer Anteil der Kohlenwasserstoffe (HC) inaktive große Komponenten, wie Paraffin und dergleichen, ein (ungefähr 30% der Kohlenwasserstoffe mit 2 bis 3 Kohlenstoffatomen, ungefähr 15% der Kohlenwasserstoffe mit 6 bis 12 Kohlenstoffatomen und ungefähr 55% Kohlenwasserstoffe mit 13 bis 20 Kohlenstoffatomen), so dass mit ihnen als Reduktionsmittel schwer zu arbeiten ist.

[0004] Die US-A-5 292 696 beschreibt, dass die HC-Adsorptionsfähigkeit stärker verbessert wird durch getrenntes Bilden einer Schicht aus Pd/H-ZSM-5 Zeolith, gebildet durch Variieren der Brenntemperatur und -zeit nach dem Ionenaustausch mit Pd, und einer Schicht aus Zeolith, bei dem es sich nicht um den oben stehenden Zeolith handelt, z. B. Cu/H-ZSM-5-Zeolith, bei dem ein Ionenaustausch mit Cu auf denselben Träger von Monolith-Typ erfolgte.

[0005] Es ist ein Ziel der Erfindung, einen Abgasreinigungskatalysator bereitzustellen, welcher große Kohlenwasserstoffe in Abgasen einfängt und crackt oder sie zu höher aktiven Kohlenwasserstoffen, die als Reduktionsmittel geeignet sind, modifiziert.

[0006] Die vorgenannten Ziele der vorliegenden Erfindung werden durch Bereitstellen eines Abgasreinigungskatalysators erreicht, welcher eine katalytische Komponente, die aus aktiven Metallen, getragen auf einem Zeolith, mittels Ionenaustauschverfahren, aufgebaut ist, und eine mesoporöse Zusammensetzung von ungefähr gleichmäßiger Größe der Mesoporen enthält. Der Abgasreinigungskatalysator der Erfindung zeigt eine hohe NO<sub>x</sub>-Umwandlungseffizienz selbst bei einem mageren Luft/Kraftstoff-Verhältnis der Atmosphäre, wie einem Abgas, das magerer als ungefähr 22 ist (zum Beispiel Abgas, das mehr als 10% Sauerstoff aus einem Dieselmotor enthält und Abgas, das mehr als 4 Sauerstoff aus einem Benzinmotor enthält). Der Grund hierfür soll der sein, dass die katalytische Komponente, welche auf einem Zeolith getragene aktive Metalle durch ein Ionenaustauschverfahren enthält, ausgezeichnete Dienste beim Cracken großer Kohlenwasserstoffe (HC) in Abgasen, welche durch die mesoporöse Zusammensetzung von ungefähr gleichmäßiger Größe der Mesoporen eingefangen werden, zu gering und hoch aktivierten Kohlenwasserstoff (HC), wie Olefin und dergleichen, leistet und der gering aktivierte Kohlenwasserstoff (HC) Stickstoffoxide (NO<sub>x</sub>) in dem Abgas reduziert.

[0007] Der Ausdruck "aktives Metall", wie hierin verwendet, soll ein Metall wie Übergangsmetalle bedeuten, welches katalytische Aktivität liefert. Platin (Pt) oder Platin (Pt) in Kombination mit einem Edelmetall oder einem Übergangsmetall, wie Rhodium (Rh) oder Iridium (Ir), ist als aktives Metall des Abgasreinigungskatalysators am stärksten bevorzugt. Es gibt einige Arten von Zeolith, wie einen MFI-Typ,  $\beta$ -Typ und Y(FAU)-Typ, verfügbar als Trägermaterial von aktivem Metall. Eine der typischen mesoporösen Zusammensetzungen ist Silicat von ungefähr gleichmäßiger Größe (1–25 nm) der Mesoporen. Die geeignetsten Größen von Mesoporen liegen zwischen 1 und 5 nm und insbesondere zwischen 2 und 3 nm.

[0008] Die mesoporöse Zusammensetzung kann darauf getragenes Ceroxid enthalten, welches die Wirkung der Verbesserung der NO<sub>x</sub>-Umwandlungseffizienz des Katalysators besitzt. Dies liegt daran, dass das von der mesoporösen Zusammensetzung getragene Ceroxid große Kohlenwasserstoffe (HC), welche durch die mesoporöse Zusammensetzung eingefangen werden, crackt und das Cracken der Kohlenwasserstoffe (HC) mit dem aktiven Metall beschleunigt wird. Es ist bevorzugt, dass die mesoporöse Zusammensetzung einen Ceroxidgehalt, ausgedrückt als Cergehalt von 1 bis 50 g pro 1 Liter eines Katalysator-Trägereils, aufweist.

[0009] Es ist ebenfalls bevorzugt, eine katalytische Komponente zu verwenden, die aus einem in einem Zeolith getragenen aktiven Metall ohne die Anwendung eines Ionenaustauschverfahrens zusammengesetzt ist, zusammen mit einer katalytischen Komponente, die aus einem aktiven Metall, getragen von einem Zeolith durch ein Ionenaustauschverfahren, zusammengesetzt ist. Dieser Katalysator-Typ verbessert die katalytische Aktivität für Kohlenwasserstoffe (HC) und Kohlenmonoxide (CO) bei niedrigen Temperaturen und schränkt ebenso die NO<sub>x</sub>-Umwandlungseffizienz ein. Dies liegt daran, weil die katalytische Komponente, die aus einem von einem Zeolith getragenen aktiven Metall ohne die Anwendung eines Ionenaustauschverfahrens zusammengesetzt ist, zur Umwandlung von Kohlenwasserstoffen (HC) bei niedrigeren Temperaturen beiträgt. Es kann ein Imprägnierungsverfahren, ein Verdampfungstrocknungsverfahren oder ein Verdampfungs-Verfestigungsverfahren Anwendung finden, um ein aktives Metall auf Zeolith zu tragen.

[0010] Folglich ist ein stärker bevorzugter Abgasreinigungskatalysator aus einer mesoporösen Zusammensetzung von ungefähr gleichmäßiger Größe der Mesoporen aufgebaut, welche geeignet ist zum Einfangen von Kohlenwasserstoffen (HC), und einer katalytischen Komponente, welche ein von einem Zeolith durch ein Ionenaustauschverfahren getragenes aktives Metall enthält, um die durch die mesoporöse Zusammensetzung eingefangenen Kohlenwasserstoffe (HC) zu reduzieren.

[0011] Ein weiterer bevorzugter Abgasreinigungskatalysator ist aus einer Zusammensetzung aufgebaut, welche Kohlenwasserstoffe (HC) einfängt und crackt, und einer katalytischen Komponente, welche ein aktives Metall enthält, das Stickstoffoxide (NO<sub>x</sub>) mit den gecrackten Kohlenwasserstoffen (HC) reduziert. Eine mesoporöse Zusammensetzung, welche darauf getragenes Ceroxid enthält, eignet sich als die Zusammensetzung.

[0012] Die katalytische Komponente, zusammengesetzt aus einem von Zeolith getragenen aktiven Metall durch ein Ionenaustauschverfahren, und die mesoporöse Zusammensetzung von ungefähr gleichmäßiger Größe der Mesoporen kann in der Form einer Mischung auf ein Katalysator-Trägerteil, wie ein bienenwabenförmiges Kordierit-Bett, oder ansonsten in der Form von Deck- bzw. Unterschichten auf ein Katalysator-Trägerteil, wie ein bienenwabenförmiges Kordierit-Bett, aufgebracht werden. Der Katalysator vom Mehrschichten-Typ hat die Tendenz, eine höhere NO<sub>x</sub>-Umwandlungseffizienz zu leisten als der Katalysator vom gemischten Typ. Dies liegt daran, dass bei dem Katalysator vom Mehrschicht-Typ große Kohlenwasserstoffe (HC) zum einen durch die weniger als mesoporöse Verbundschicht aufgefangen wurden, die von der durch aktives Metall getragenen Zeolithschicht überzogen ist, mit hoher Wahrscheinlichkeit gecrackt werden und andererseits bei dem Katalysator vom gemischten Typ ein großer Teil der

großen Kohlenwasserstoffe (HC), die selbst durch die weniger als mesoporöse Verbundschicht aufgefangen wurden, freigesetzt werden, ohne gecrackt zu werden, oder die katalytische Komponente leicht mit Abgasen in Berührung kommt. Während der Abgasreinigungskatalysator, welcher aus einer katalytischen Komponente, welche ein von Zeolith getragenes aktives Metall durch ein Ionenaustauschverfahren enthält, und einer mesoporösen Zusammensetzung, welche darauf getragenes Ceroxid enthält, aufgebaut ist, als gemischter Typ oder Mehrschicht-Typ bereitgestellt werden kann, liefert der Katalysator vom gemischten Typ eine wesentlich niedrigere NO<sub>x</sub>-Umwandlungseffizienz als der Katalysator vom Mehrschicht-Typ. Obwohl der Grund hierfür nicht immer offensichtlich ist, nimmt man an, dass es zu einer unerwünschten Wechselwirkung zwischen dem Ceroxid auf den mesoporösen Komposit und dem aktiven Metall auf den Zeolith kommt. Daher ist der Katalysator vom Mehrschicht-Typ stärker bevorzugt als der Katalysator vom gemischten Typ.

[0013] Die katalytische Komponente, die aus einem von Zeolith durch ein Ionenaustauschverfahren getragenen aktiven Metall zusammengesetzt ist, die katalytische Komponente, die aus einem von Zeolith ohne die Anwendung eines Ionenaustauschverfahrens getragenen aktiven Metall zusammengesetzt ist, und die mesoporöse Zusammensetzung von ungefähr gleichmäßiger Größe der Mesoporen, kann in der Form einer Mischung auf ein Katalysator-Trägerteil, wie ein bienenwabenförmiges Kordierit-Bett oder ansonsten in der Form von Deck- bzw. Unterschichten auf ein Katalysator-Trägerteil, wie ein bienenwabenförmiges Kordierit-Bett, aufgebracht werden. Weiterhin kann die katalytische Komponente, welche aus einem von Zeolith durch ein Ionenaustauschverfahren getragenen aktiven Metall zusammengesetzt ist, die katalytische Komponente, welche aus einem von Zeolith ohne Verwendung eines Ionenaustauschverfahrens getragenen aktiven Metall zusammengesetzt ist, und die mesoporöse Zusammensetzung von ungefähr gleichmäßiger Größe der Mesoporen und welche Ceroxid darauf trägt, in der Form einer Mischung auf ein Katalysator-Trägerteil, wie ein bienenwabenförmiges Kordierit-Bett, aufgebracht werden. Ähnlich wie der Katalysator vom gemischten Typ, der aufgebaut ist aus der katalytischen Komponente, welche aus einem von Zeolith durch ein Ionenaustauschverfahren getragenen aktiven Metall aufgebaut ist, und die mesoporöse Zusammensetzung von ungefähr gleichmäßiger Größe der Mesoporen und welche Ceroxid darauf trägt, leistet dieser Katalysator vom Mischungstyp eine geringe NO<sub>x</sub>-Umwandlungseffizienz. Folglich ist der Katalysator vom Mehrschicht-Typ stärker bevorzugt als der Katalysator vom gemischten Typ.

[0014] Jeder der oben stehend beschriebenen Abgasreinigungskatalysatoren ist von Nutzen für Abgase, die magerer sind als ein Luft/Kraftstoff-Verhältnis von ungefähr 22, wie beispielsweise Abgas, das

mehr als 10% Sauerstoff aus einem Dieselmotor enthält, und Abgas, das mehr als 4% Sauerstoff aus einem Benzinmotor enthält.

[0015] Der Mehrschicht-Abgasreinigungskatalysator, zusammengesetzt aus einer katalytischen Komponente, wobei ein aktives Metall auf Zeolith durch ein Ionenaustauschverfahren getragen wird, und einer mesoporösen Zusammensetzung von ungefähr gleichmäßiger Größe der Mesoporen und wobei Ceroxid darauf getragen wird, wird durch eine Verfahren hergestellt, welches die Schritte der Herstellung einer katalytischen Komponente, wobei ein aktives Material von Zeolith durch ein Ionenaustauschverfahren getragen wird, der Herstellung einer mesoporösen Zusammensetzung, wobei Ceroxid auf einer mesoporösen Zusammensetzung getragen wird, der Bildung einer Unterschicht der mesoporösen Zusammensetzung auf einem Katalysator-Trägerteil und der Bildung einer Deckschicht der katalytischen Komponente über der Unterschicht umfasst.

[0016] Der Mehrschicht-Abgasreinigungskatalysator, zusammengesetzt aus einer katalytischen Komponente, wobei ein aktives Metall auf Zeolith durch ein Ionenaustauschverfahren getragen wird, und einer mesoporösen Zusammensetzung von ungefähr gleichmäßiger Größe der Mesoporen und wobei Ceroxid darauf getragen wird, wird durch eine Verfahren hergestellt, welches die Schritte der Herstellung einer katalytischen Komponente, wobei ein aktives Material von Zeolith durch ein Ionenaustauschverfahren getragen wird, der Herstellung einer mesoporösen Zusammensetzung, wobei Ceroxid auf einer mesoporösen Zusammensetzung getragen wird, der Bildung einer Unterschicht der mesoporösen Zusammensetzung auf einem Katalysator-Trägerteil und der Bildung einer Deckschicht der katalytischen Komponente über der Unterschicht umfasst.

[0017] Der Mehrschicht-Abgasreinigungskatalysator, zusammengesetzt aus einer ersten katalytischen Komponente, wobei ein aktives Metall auf Zeolith getragen wird, und einer mesoporösen Zusammensetzung wird durch ein Verfahren hergestellt, welches die Schritte der Herstellung einer ersten katalytischen Komponente, wobei ein aktives Material von Zeolith durch ein Ionenaustauschverfahren getragen wird, der Herstellung einer zweiten katalytischen Komponente, wobei ein aktives Material von Zeolith ohne die Anwendung eines Ionenaustauschverfahrens getragen wird, der Bildung einer Unterschicht der mesoporösen Zusammensetzung auf einem Katalysator-Trägerteil und der Bildung einer Deckschicht der ersten und zweiten katalytischen Komponente über der Unterschicht umfasst.

[0018] Der Mehrschicht-Abgasreinigungskatalysator, zusammengesetzt aus einer ersten katalytischen Komponente, wobei ein aktives Metall auf Zeolith getragen wird, einer zweiten katalytischen Komponente, wobei ein aktives Metall von Zeolith getragen wird, und einer mesoporösen Zusammensetzung, welche Ceroxid darauf trägt, wird durch ein Verfahren herge-

stellt, welches die Schritte der Herstellung einer Zusammensetzung, wobei Ceroxid auf einem mesoporösen Komposit getragen wird, der Herstellung einer ersten katalytischen Komponente, wobei ein aktives Material von Zeolith durch ein Ionenaustauschverfahren getragen wird, der Herstellung einer zweiten katalytischen Komponente, wobei ein aktives Metall von Zeolith ohne die Anwendung eines Ionenaustauschverfahrens getragen wird, der Bildung einer Unterschicht der mesoporösen Zusammensetzung auf einem Katalysator-Trägerteil und der Bildung einer Deckschicht der ersten und zweiten katalytischen Komponente über der Unterschicht umfasst.

[0019] Um ein aktives Metall auf Zeolith zu tragen, können verschiedene andere Verfahren angewandt werden, wie ein Verdampfungs-Verfestigungsverfahren und ein Sprühtrocknungsverfahren, sowie ein Imprägnierungsverfahren an Stelle eines Ionenaustauschverfahrens.

#### Kurze Beschreibung der Zeichnungen

[0020] Die vorgenannten und andere Ziele und Merkmale der vorliegenden Erfindung sind klar anhand der folgenden ausführlichen Beschreibung bevorzugter Ausführungsformen zu verstehen, wenn sie in Verbindung mit den beigefügten Zeichnungen gelesen werden, in denen:

[0021] die **Fig. 1** eine schematische Veranschaulichung eines Abgasreinigungskatalysators vom gemischten Typ in Übereinstimmung mit einer Ausführungsform der Erfindung ist;

[0022] die **Fig. 2** eine Veranschaulichung eines Abgasreinigungskatalysators vom gemischten Typ in Übereinstimmung mit einer Ausführungsform der Erfindung ist;

[0023] die **Fig. 3** eine Veranschaulichung eines Abgasreinigungskatalysators vom Mehrschicht-Typ in Übereinstimmung mit einer weiteren Ausführungsform der Erfindung ist;

[0024] die **Fig. 4** eine Veranschaulichung eines Abgasreinigungskatalysators vom Mehrschicht-Typ in Übereinstimmung mit einer weiteren Ausführungsform der Erfindung ist;

[0025] die **Fig. 5** ein graphisches Diagramm ist, welches die NO<sub>x</sub>-Umwandlungseffizienz für eine erste Gruppe von Abgasreinigungskatalysatoren zeigt;

[0026] die **Fig. 6** ein graphisches Diagramm ist, welches die T-50-Temperatur in Bezug auf Kohlenwasserstoff (HC) und Kohlenmonoxid (CO) für die erste Gruppe von Abgasreinigungskatalysatoren zeigt;

[0027] die **Fig. 7** eine Veranschaulichung eines Abgasreinigungskatalysators vom gemischten Typ in Übereinstimmung mit einer weiteren Ausführungsform der Erfindung ist;

[0028] die **Fig. 8** eine Veranschaulichung eines Abgasreinigungskatalysators vom gemischten Typ in Übereinstimmung mit einer weiteren Ausführungsform der Erfindung ist;

[0029] die **Fig. 9** ein graphisches Diagramm ist, wel-

ches die NO<sub>x</sub>-Umwandlungseffizienz für eine zweite Gruppe der Abgasreinigungskatalysatoren zeigt;

[0030] die **Fig. 10** ein graphisches Diagramm ist, welches die T-50-Temperatur in Bezug auf Kohlenwasserstoff (HC) und Kohlenmonoxid (CO) für die zweite Gruppe von Abgasreinigungskatalysatoren zeigt;

[0031] die **Fig. 11** ein graphisches Diagramm ist, welches die NO<sub>x</sub>-Umwandlungseffizienz für eine dritte Gruppe von Abgasreinigungskatalysatoren zeigt;

[0032] die **Fig. 12** ein graphisches Diagramm ist, welches die T-50-Temperatur in Bezug auf Kohlenwasserstoff (HC) und Kohlenmonoxid (CO) für die dritte Gruppe der Abgasreinigungskatalysatoren zeigt;

[0033] die **Fig. 13** ein graphisches Diagramm ist, welches die NO<sub>x</sub>-Umwandlungseffizienz für eine vierte Gruppe von Abgasreinigungskatalysatoren zeigt; und

[0034] die **Fig. 14** ein graphisches Diagramm ist, welches die T-50-Temperatur in Bezug auf Kohlenwasserstoff (HC) und Kohlenmonoxid (CO) für die vierte Gruppe von Abgasreinigungskatalysatoren zeigt.

Ausführliche Beschreibung der bevorzugten Ausführungsform

[0035] Die Bedeutungen der Ausdrücke und Abkürzungen wie im Folgenden verwendet, sind wie folgt:

[0036] Der Ausdruck "mesoporöses Silicat mit geträgertem Ce", wie im Folgenden verwendet, soll mesoporöses Silicat mit damit getragenen metallischem Cer bedeuten und sich darauf beziehen, der Ausdruck "MFI-Zeolith mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt", wie im Folgenden verwendet, soll Zeolith vom MFI-Typ bedeuten und sich darauf beziehen, wobei Platin von diesem durch ein Ionenaustauschverfahren getragen wird, und der Ausdruck "MFI-Zeolith mit durch Trockenverfestigung geträgertem Pt" wie im Folgenden verwendet, soll Zeolith vom MFI-Typ bedeuten und sich darauf beziehen, wobei Platin durch dieses durch ein Trocknungs- und Verfestigungsverfahren getragen wird.

[0037] Um einen Katalysator der Erfindung bereitzustellen, wurden verschiedene Komponenten wie folgt hergestellt:

#### (A) Mesoporöses Silicat

[0038] Pulverförmiges mesoporöses Silicat (poröse Materialien aus SiO<sub>2</sub> schließen NaHSi<sub>2</sub>O<sub>5</sub> oder Si<sub>2</sub>O<sub>5</sub> ein) wurde durch ein hydrothermisches Kristallisationsverfahren aufgebaut. Als ein Templat verwendet wurde eine organische Basis, um den Durchmesser von Mesoporen zu regulieren. Insbesondere wurde eine Mischung aus kolloidalem Silica, Tetradecyl-trimethylammoniumbromid (Templatmaterial) und ionenausgetauschtem Wasser als mesoporöse Silicatmischung hergestellt und ausreichend bei Raumtem-

peratur drei Stunden lang umgerührt. Das Gewichtsverhältnis des Silicon-(Si-)Gehalts von kolloidalem Silica, dem Templatmaterial und dem Wasser mit Ionenaustausch beträgt 11 : 7 : 660. Während des Umrührens der mesoporösen Silicatmischung wurde Natriumhydroxid (NaOH) zugesetzt, um das Wasserstoffpotenzial (pH) der Mischung auf 9 bis 11 einzustellen. Im Anschluss wurde die Mischung für 14 bis 20 Stunden in einem Autoklaven bei 120°C erwärmt und auf dieser Temperatur gehalten. Nach dem Auftrennen der mesoporösen Silicatmischung zu einem mesoporösen Silicatpulver und einem Lösungsmittel durch einen Zentrifugen-Separator wurde das mesoporöse Silicatpulver ausreichend gespült und bei 400°C einer Wärmebehandlung unterzogen. Der mittlere Durchmesser der Mesoporen war 2,5 nm. Die Art und Menge des Templatmaterials und die hydrothermischen Kristallisationsbedingungen wurden entsprechend den erforderlichen Durchmessern der Mesoporen verändert.

#### (B) mesoporöses Silicat mit geträgertem Ce

[0039] Das mesoporöse Silicatpulver wurde in eine Cernitratlösung in einem Gewichtsverhältnis von Cer und Wasser von 10 : 22 gegeben. Die Cernitratlösung wurde durch Hinzugeben von Cer zu 20 g Wasser erzeugt. Nach dem Rühren der mesoporösen Silicatpulvermischung, bis das Wasser verdunstete, wurde das mesoporöse Silicatpulver entnommen und danach getrocknet und als Ce-getragenes mesoporöses Silicat gebrannt.

#### (C) MFI-Zeolith mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt

[0040] MFI-Zeolithpulver, das mit dem 10- bis 50-fachen des MFI-Zeolithpulvers an destilliertem Wasser zugegeben wurde, wurde auf 90 bis 120°C erwärmt und danach mit einer geeigneten Menge an Platin-Amin-Komplex versetzt. Das Gewichtsverhältnis von MFI-Pulver und Platin betrug 10 : 0,037. Nachdem die MFI-Zeolithpulvermischung drei Stunden lang auf 90 bis 120°C gehalten wurde und gespült wurde, wurde die MFI-Zeolithpulvermischung bei 120°C getrocknet und bei 200 bis 500°C, geeigneterweise bei 300°C, gebrannt.

#### (D) MFI-Zeolith mit durch Trockenverfestigung geträgertem Pt

[0041] MFI-Zeolith mit durch Trockenverfestigung geträgertem Pt wurde durch ein Sprühtrocknungsverfahren hergestellt. MFI-Zeolithpulver wurde mit destilliertem Wasser des 1- bis 10fachen des MFI-Zeolithpulvers und einer geeigneten Menge eines Platin-Amin-Komplexes versetzt und bei Raumtemperatur zwei Stunden lang umgerührt. Das Gewichtsverhältnis vom MFI-Pulver und Platin war 10 : 0,148. Die MFI-Zeolithpulvermischung wurde mit einem Zer-

stäuber in einen auf 140 bis 190°C mit Heißluft gehaltenen Raum gesprüht. MFI-Zeolithpulver, das durch Kontakt zwischen den Tropfen der MFI-Zeolithpulvermischung und der Heißluft rasch trocknete, wurde bei 200 bis 500°C, geeigneterweise bei 300°C, gebrannt. [0042] Die **Fig. 1** zeigt einen Katalysator vom gemischten Typ eines ersten Beispiels (Ex.-I bzw. Bsp.-I) in Übereinstimmung mit einer Ausführungsform der Erfindung. Der Katalysator war aus einer Einzelschicht einer Mischung aus mesoporösem Silicat **2** und MFI-Zeolith **3** mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt, welcher auf ein Katalysator-Trägerenteil **1**, wie ein bienenwabenförmiges Kordierit-Bett, beschichtet war, zusammengesetzt.

[0043] Die Katalysatormischung wurde durch Mischen von mesoporösem Silicat und MFI-Zeolith mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt in einem Gewichtsverhältnis von 1 : 4 hergestellt und mit einer spezifischen Menge an Bindemittel, wie Aluminiumoxidhydrat, und einer geeigneten Menge an destilliertem Wasser zugesetzt. Nach einem Waschbeschichten auf das Katalysator-Trägerenteil **1** wurde die beschichtete Schicht der Aufschlammungsmischung bei ungefähr 150°C getrocknet und weiter gebrannt bei ungefähr 300°C. Das Gewichtsverhältnis der Gesamtmenge des mesoporösen Silicats und MFI-Zeoliths mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt und des Bindemittels war ungefähr 9 : 1, und die Gesamtmenge von mesoporösen Silicat und MFI-Zeolith mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt war 30 Gew.-% im Verhältnis zu dem Katalysator-Trägerenteil **1**, dessen Gewicht pro 1 Liter 450 g betrug (was im Folgenden als 0,5 g/l ausgedrückt wird). Der Katalysator hatte einen Platingehalt von 0,5 g pro 1 Liter des Katalysator-Trägerenteils **1** und enthielt weniger als 1% Verunreinigungen.

[0044] Die **Fig. 2** zeigt einen Katalysator vom gemischten Typ des zweiten Beispiels (Ex.-II) in Übereinstimmung mit einer Ausführungsform der Erfindung. Der Katalysator war aus einer Einzelschicht einer Mischung aus MFI-Zeolith **3** mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt und Ce-getragenen mesoporösem Silicat **4**, die auf ein Katalysator-Trägerenteil **1**, wie ein bienenwabenförmiges Kordierit-Bett, beschichtet war, zusammengesetzt. Der Katalysator wurde unter denselben Bedingungen und in derselben Weise wie das erste Beispiel des Katalysators vom gemischten Typ hergestellt. Der Katalysator hatte einen Ceroxidgehalt, ausgedrückt als Cergehalt, von 30 g/l. Das Mischverhältnis und die Gesamtmenge an MFI-Zeolith **3** mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt und Ce-getragenen mesoporösem Silicat **4** und der Platingehalt waren die gleichen wie in dem ersten Beispiel des Katalysators vom gemischten Typ. Der Katalysator enthielt weniger als 1% Verunreinigungen.

[0045] Die **Fig. 3** zeigt einen Katalysator vom Mehrschicht-Typ eines dritten Beispiels (Ex.-III) in Übereinstimmung mit einer Ausführungsform der Erfindung. Der Katalysator war aus einer Unterschicht aus

mesoporösem Silicat **2**, das auf ein Katalysator-Trägerenteil **1**, wie ein bienenwabenförmiges Kordierit-Bett, beschichtet war, und einer Deckschicht aus MFI-Zeolith **3** mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt, zusammengesetzt.

[0046] Eine mesoporöse Silicatmischung wurde durch Mischen von mesoporösem Silicat und einem Bindemittel in einem Gewichtsverhältnis vom beispielsweise 9 : 1 hergestellt und anschließend mit destilliertem Wasser versetzt. Nach einer Waschbeschichtung auf das Katalysator-Trägerenteil **1** wurde die aufbeschichtete Schicht aus der Aufschlammungsmischung bei ungefähr 150°C getrocknet und weiter bei ungefähr 300°C als Unterschicht gebrannt. Eine Deckschicht aus einer MFI-Zeolithmischung mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt wurde unter denselben Bedingungen und in derselben Weise wie die Unterschicht aus mesoporösem Silicat gebildet. Das Mischungsverhältnis und die Gesamtmenge an MFI-Zeolith **3** mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt und mesoporösem Silicat **2** und der Platingehalt waren dieselben wie in dem ersten Beispiel des Katalysators vom gemischten Typ. Der Katalysator enthielt weniger als 1% Verunreinigungen.

[0047] Die **Fig. 4** zeigt einen Katalysator vom Mehrschicht-Typ eines vierten Beispiels (Ex.-IV) in Übereinstimmung mit einer Ausführungsform der Erfindung. Der Katalysator war aus einer Unterschicht aus Ce-getragenen mesoporösem Silicat **4**, das auf ein Katalysator-Trägerenteil **1**, wie bienenwabenförmiges Kordierit-Bett beschichtet war, und einer Deckschicht aus MFI-Zeolith **3** mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt zusammengesetzt.

[0048] Der Katalysator wurde unter denselben Bedingungen und in derselben Weise wie das dritte Beispiel des Katalysators vom Mehrschicht-Typ hergestellt. Das Mischverhältnis und die Gesamtmenge an MFI-Zeolith mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt und Ce-getragenen mesoporösem Silicat und der Platingehalt waren dieselben wie in dem ersten Beispiel des Katalysators vom gemischten Typ. Der Katalysator hatte einen Ceroxidgehalt, ausgedrückt als Cergehalt, von 30 g/l und enthielt weniger als 1% Verunreinigungen.

[0049] Katalysatoren vom umgekehrten bzw. reversen Mehrschicht-Typ des fünften und sechsten Beispiels (Ex.-V und Ex.-VI) in Übereinstimmung mit Ausführungsformen der Erfindung weiter verarbeitet und wiesen dieselben Schichten auf, die aber umgekehrt geschichtet waren wie jene des dritten beziehungsweise vierten Beispiels der Katalysatoren vom Mehrschicht-Typ.

[0050] Jeder Katalysator wurde unter denselben Bedingungen und in der gleichen Weise wie die vorhergehenden Beispiele hergestellt. Das Mischungsverhältnis und die Gesamtmenge an MFI-Zeolith mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt und mesoporösem Silicat oder MFI-Zeolith mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt und Ce-getragenen mesoporösem Silicat und der Platingehalt waren die gleichen

wie in dem dritten oder vierten Beispiel des Katalysators vom Mehrschicht-Typ. Das sechste Beispiel des Katalysators vom Mehrschicht-Typ hatte einen Ceridgehalt, ausgedrückt als Cergehalt, von 30 g/l. Jedes aus dem fünften und sechsten Beispiel der Katalysatoren vom Mehrschicht-Typ enthielt weniger als 1% Verunreinigungen.

[0051] Zwei Vergleichskatalysatoren wurden hergestellt. Der erste Vergleichskatalysator (C-1) war aus 30 Gew.-% MFI-Zeolith mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt, das nur von einem Katalysator-Trägerteil **1**, wie einem bienenwabenförmigen Kordierit-Bett, getragen wurde, aufgebaut. Der zweite Vergleichskatalysator (C-2) war aus 30 Gew.-% MFI-Zeolith mit durch Trockenverfestigung geträgertem Pt, das nur von einem Katalysator-Trägerteil **1**, wie einem bienenwabenförmigen Kordierit-Bett, getragen wurde, aufgebaut. Jeder Vergleichskatalysator hatte einen Platingehalt von 0,5 g/l.

[0052] Vergleichstests wurden durchgeführt zur Bewertung der Stickstoffoxid-(NO<sub>x</sub>)-Umwandlungseffizienz und der Niedrigtemperatur-Aktivität. Für jeden der Katalysatoren des ersten bis sechsten Beispiels und der ersten und zweiten Vergleichskatalysatoren wurde die mittlere NO<sub>x</sub>-Umwandlungseffizienz der Messergebnisse bei 250°C, 275°C und 300°C berechnet. Ein simuliertes Abgas kam zum Einsatz, welches 170 ppmC Propylen, 170 ppm Stickstoffoxide (NO<sub>x</sub>), 200 ppm Kohlenmonoxid (CO), 100 ppm Schwefeldioxid (SO<sub>2</sub>) und 10% Sauerstoff (O<sub>2</sub>) enthielt. Das simulierte Abgas wurde einem Testkatalysator mit einer Raumgeschwindigkeit von 85.000/h zugeführt. Weiterhin wurde für jeden Katalysator die T-50-Temperatur in Hinblick auf Kohlenwasserstoffe (HC) und Kohlenmonoxid (CO) gemessen. Wie allgemein im Fachbereich bekannt ist, bedeutet der Ausdruck "T-50-Temperatur" die Umwandler-Einlass-Temperatur von Abgas, bei welcher ein Katalysator 50% Umwandlungseffizienz zeigt. Ein Motor-Labortest wurde für Niedrigtemperatur-Aktivitätsmessungen angewandt.

[0053] Die Resultate dieser Tests sind in den **Fig. 5** und **6** gezeigt.

[0054] Wie in **Fig. 5** gezeigt wird, zeigen mit Ausnahme des Beispielskatalysators Ex.-II die Beispielkatalysatoren eine NO<sub>x</sub>-Umwandlungseffizienz, welche deutlich höher ist als jene der Vergleichskatalysatoren. Dies resultiert aus der Wirkung einer Verbindung aus mesoporösem Silicat und MFI-Zeolith. Als Grund für die geringere NO<sub>x</sub>-Umwandlungseffizienz des Beispielkatalysators Ex.-II wird angenommen, dass es zu einer unerwünschten Wechselwirkung zwischen Cer (Ce) und Platin (Pt) in Zeolith kommt. Es versteht sich, dass die Katalysatoren vom Mehrschicht-Typ eine höhere NO<sub>x</sub>-Umwandlungseffizienz haben als die Katalysatoren vom Mischungstyp. Dies wird so angenommen, weil große Kohlenwasserstoffe (HC), die durch mesoporöses Silicat in Folge der Stratifizierung eingefangen werden, in effizienter Weise durch die Deckschicht des Zeoliths vom

MFI-Typ ge-crackt werden und zur Umwandlung von Stickstoffoxiden (NO<sub>x</sub>) genutzt werden. Es ist kennzeichnend, dass der Katalysator vom Mehrschicht-Typ, welcher Cer (Ce) enthält, eine höhere NO<sub>x</sub>-Umwandlungseffizienz zeigt. Der Katalysator vom umgekehrten Mehrschicht-Typ zeigt eine NO<sub>x</sub>-Umwandlungseffizienz, die niedriger ist als bei dem Katalysator vom Mehrschicht-Typ. Dies, so nimmt man an, liegt daran, dass der Zeolith vom MFI-Typ ziemlich hart mit Abgasen in Berührung kommt.

[0055] Wie sich in **Fig. 6** zeigt, ist es offensichtlich, dass es keinen Unterschied bei der T-50-Temperatur gibt. Dies lehrt, dass selbst das Vermischen von mesoporösem Silicat oder darin enthaltenem mesoporösem Cer mit dem Katalysator vom MFI-Zeolith-Typ oder das Aufbeschichten auf den Katalysator vom MFI-Zeolith-Typ keine Herabsetzung der Niedrigtemperatur-Aktivität im Hinblick auf Kohlenwasserstoffe (HC) bewirkt.

[0056] Die Bewertung wurde für ein An-Bord-Beispiel und Vergleichskatalysatoren durchgeführt. Jeder der Katalysatoren Ex.-III vom Mehrschicht-Typ der Vergleichskatalysator C-1 wurden in eine Abgasleitung eines 1,9 Liter turbogetriebenen Dieselmotors mit direkter Kraftstoffeinspritzung gegeben. Die NO<sub>x</sub>-Umwandlungseffizienz war 34% für den Katalysator Ex.-III vom Mehrschicht-Typ und 25% für den Vergleichskatalysator C-1, als Messungen durchgeführt wurden, während der Motor im N-EC-Modus lief. Aus den Resultaten ergab sich dass der An-Bord Katalysator der Erfindung überaus nützlich war.

[0057] Die **Fig. 7** zeigt einen Katalysator vom gemischten Typ eines siebten Beispiels (Ex.-VII) in Übereinstimmung mit einer Ausführungsform der Erfindung. Der Katalysator war aus einer Mischung von MFI-Zeolith **5** mit durch Trockenverfestigung geträgertem Pt, mesoporösem Silicat **2** und MFI-Zeolith **3** mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt, der auf ein Katalysator-Trägerteil **1**, wie ein bienenwabenförmiges Kordierit-Bett, beschichtet war, zusammengesetzt.

[0058] Eine Katalysatormischung, die durch Mischen von MFI-Zeolith **3** mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt und MFI-Zeolith **5** mit durch Trockenverfestigung geträgertem Pt in einem Gewichtsverhältnis von 1 : 1 hergestellt wurde, wurde mit mesoporösem Silicat in einem Gewichtsverhältnis von 4 : 1 zugesetzt. Der Katalysator wurde auf das Katalysator-Trägerteil **1** unter denselben Bedingungen und in derselben Weise wie im ersten und zweiten Beispiel der Katalysatoren vom Mischungstyp beschichtet. Das Gesamtgewichtsverhältnis des Katalysators war 30% des Katalysator-Trägerteils **1**. Der Platingehalt des MFI-Zeolith **3** mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt war 1 g/l und der Platingehalt des MFI-Zeolith **5** mit durch Trockenverfestigung geträgertem Pt war 0,25 g/l.

[0059] Die **Fig. 8** zeigt einen Katalysator vom Mischungstyp eines achten Beispiels (Ex.-VIII) in Übereinstimmung mit einer Ausführungsform der Erfin-

dung. Der Katalysator war aus einer Mischung aus MFI-Zeolith **3** mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt, mesoporösem Silicat **4** mit geträgertem Ce und MFI-Zeolith **5** mit durch Trockenverfestigung geträgertem Pt, welcher auf ein Katalysator-Trägerteil **1**, wie ein bienenwabenförmiges Kordierit-Bett, beschichtet war, zusammengesetzt.

[0060] Der Katalysator wurde hergestellt und auf ein Katalysator-Trägerteil **1** unter denselben Bedingungen und in derselben Weise wie bei dem siebten Beispiel des Katalysator vom Mischungstyp beschichtet. Der Katalysator hatte einen Ceroxidgehalt, ausgedrückt als Cergehalt, von 30 g/l.

[0061] Ein Katalysator vom Mehrschichttyp des neunten Beispiels (Ex.-IX) in Übereinstimmung mit einer Ausführungsform der Erfindung wurde hergestellt. Der Katalysator war aus einer Unterschicht aus mesoporösem Silicat und einer Deckschicht aus einer Mischung aus MFI-Zeolith mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt und MFI-Zeolith mit durch Trockenverfestigung geträgertem Pt zusammengesetzt. Mit der Ausnahme, dass MFI-Zeolith mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt und MFI-Zeolith mit durch Trockenverfestigung geträgertem Pt in einem Gewichtsverhältnis von 1 : 1 gemischt wurden, wurde der neunte Beispielkatalysator hergestellt und auf ein Katalysator-Trägerteil, wie ein honigwabenförmiges Kordierit-Bett, unter denselben Bedingungen und in derselben Weise wie bei dem oben stehend beschriebenen Katalysator vom Mehrschicht-Typ beschichtet.

[0062] Ein Katalysator vom Mehrschicht-Typ eines zehnten Beispiels (Ex.-X) in Übereinstimmung mit einer Ausführungsform der Erfindung wurde hergestellt. Der Katalysator war aus einer Unterschicht aus mesoporösem Silicat mit geträgertem Ce und einer Deckschicht aus einer Mischung aus MFI-Zeolith mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt und MFI-Zeolith mit durch Trockenverfestigung geträgertem Pt zusammengesetzt. Mit der Ausnahme, dass MFI-Zeolith mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt und MFI-Zeolith mit durch Trockenverfestigung geträgertem Pt in einem Gewichtsverhältnis von 1 : 1 gemischt wurden, wurde der zehnte Beispielkatalysator hergestellt und auf ein Katalysator-Trägerteil wie ein bienenwabenförmiges Kordierit-Bett, unter denselben Bedingungen und in derselben Weise wie bei dem fünften Beispiel des Katalysators vom Mehrschicht-Typ beschichtet.

[0063] Weiterhin wurden vier Vergleichskatalysatoren hergestellt. Der dritte Vergleichskatalysator (C-3) war aus 30 Gew.-% MFI-Zeolith mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt, der nur auf einem Katalysator-Trägerteil, wie einem bienenwabenförmigen Kordierit-Bett, getragen wurde, zusammengesetzt. Der Vergleichskatalysator hatte einen Platingehalt von 0,5 g/l. Der vierte bis sechste Vergleichskatalysator (C-4, C-5 bzw. C-6) waren aus 30 Gew.-% MFI-Zeolith mit durch Trockenverfestigung geträgertem Pt, das nur auf einem Katalysator-Trägerteil, wie einem

bienenwabenförmigen Bett, getragen wurde, zusammengesetzt. Diese Vergleichskatalysatoren wiesen Platingehalte von 0,5 g/l, 1,0 g/l beziehungsweise 2,0 g/l auf.

[0064] Vergleichstests wurden für den fünften bis zehnten Beispielkatalysator und den dritten bis sechsten Vergleichskatalysator durchgeführt zur Bewertung der Stickstoffoxid(NOx)-Umwandlungseffizienz und der Niedrigtemperatur-Aktivität unter denselben Bedingungen und in derselben Weise, wie für den ersten bis vierten Beispielkatalysator und den ersten und zweiten Vergleichskatalysator durchgeführt.

[0065] Die Resultate dieser Tests sind in den **Fig. 9** und **10** gezeigt.

[0066] Wie sich in **Fig. 9** zeigt, zeigen mit Ausnahme des Beispielkatalysators Ex.-VIII die Beispielkatalysatoren eine NOx-Umwandlungseffizienz, die deutlich höher ist als diejenigen der Vergleichskatalysatoren. Es wird ebenfalls deutlich, dass die Katalysatoren vom Mehrschicht-Typ höhere NOx-Umwandlungseffizienz als der Katalysator vom gemischten Typ aufweisen und dass der Katalysator vom Mehrschicht-Typ, welcher Cer (Ce) enthält, die höchste NOx-Umwandlungseffizienz zeigt. Anhand des Ergebnisses lässt sich sagen, dass der Katalysator welcher sowohl MFI-Zeolith mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt als auch MFI-Zeolith mit durch Trockenverfestigung geträgertem Pt verwendet, die Tendenz hat wie der Katalysator, welcher nur MFI-Zeolith mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt verwendet.

[0067] Wie in **Fig. 10** gezeigt wird, ist es offensichtlich, dass die Katalysatoren, welche kein Cer enthalten, ob es sich nun um einen solchen vom gemischten Typ oder vom Mehrschicht-Typ handelt, signifikant niedrige T-50-Temperaturen zeigen. Folglich ist es, um die Niedrigtemperatur-Aktivität für Kohlenwasserstoffe (HC) und dergleichen zu erhöhen, sowie zur Verbesserung der NOx-Umwandlungseffizienz, bevorzugt, sowohl MFI-Zeolith mit durch Ionenaustausch geträgertem Pt als auch MFI-Zeolith mit durch Trockenverfestigung geträgertem Pt zu verwenden, und es ist indes unerwünscht mesoporöses Silicat, welches Cer enthält, zu verwenden.

[0068] Um die Wirkung von Ce-getragenen mesoporösem Silicat zu bewerten, wurden der erste bis fünfte modifizierte Beispielkatalysator MEx.-I-MEx.-V durch Ersetzen des Cegetragenen mesoporösen Silicats **4** für die Unterschicht **10a** des vierten Beispielkatalysators Ex.-IV hergestellt, welcher die höchste NOx-Umwandlungseffizienz besitzt, mit Aluminiumoxid (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), Ceroxid (CeO<sub>2</sub>), Zeolith vom MFI-Typ von einem Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/SiO<sub>2</sub>-Verhältnis von 30, Zeolith vom FAU-Typ eines Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/SiO<sub>2</sub>-Verhältnisses von 30 beziehungsweise β-Zeolith eines Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/SiO<sub>2</sub>-Verhältnisses von 25. Jeder modifizierte Beispielkatalysator war derselbe in Bezug auf die Oberschichtstruktur und hatte denselben Cergehalt wie der vierte Beispielkatalysator Ex.-IV. Die Resultate der Bewertungstests sind zusammen mit den Resultaten für

den stratifizierten vierten Beispielkatalysator IV und den Vergleichskatalysator C-III in den **Fig. 11** und **12** gezeigt.

[0069] Wie in **Fig. 11** gezeigt, ist es offensichtlich, dass der vierte Beispielkatalysator IV vom Mehrschichttyp die höchste NO<sub>x</sub>-Umwandlungseffizienz zeigt und es keinen Unterschied bezüglich der NO<sub>x</sub>-Umwandlungseffizienz unter den modifizierten Beispielkatalysatoren MEx.-I–MEx.-V gibt. Die Tatsache, dass selbst dann, wenn andere Materialien als das mesoporöse Silicat als Träger für Cer in der Unterschicht zur Anwendung kommen, es zu keiner Wirkung auf die Verbesserung der NO<sub>x</sub>-Umwandlungseffizienz kommt, sorgt für die Begleiterscheinung, dass Mesoporen des Silicats einen ausgezeichneten Dienst bei der Verbesserung der NO<sub>x</sub>-Umwandlungseffizienz leisten, was auf große Kohlenwasserstoffe (HC) zurückzuführen ist, die durch das mesoporöse Silicat in der Unterschicht eingefangen werden.

[0070] Wie in **Fig. 12** gezeigt, ist es offensichtlich, dass es keinen signifikanten Unterschied bei der T-50-Temperatur unter den modifizierten Beispielkatalysatoren MEx.-I–MEx.-V und den Beispielkatalysatoren IV und dem Vergleichskatalysator C-III gibt und folglich die Nutzung von mesoporösem Silicat keine Wirkung auf die T-50-Temperatur besitzt.

[0071] Eine weitere Bewertung wurde durchgeführt, um die Wirkung von Cer in der Unterschicht von mesoporösem Silicat bezüglich des sechsten bis achten modifizierten Beispielkatalysators MEx.-VI–MEx.-VIII zu ermitteln. Der sechste bis achte modifizierte Beispielkatalysator MEx.-VI–MEx.-VIII wurden hergestellt unter Ersetzen von Cer (Ce) in den Cer-haltigen mesoporösem Silicat **4** für die Unterschicht **10a** des vierten stratifizierten Beispielkatalysators Ex.-IV durch Zirconiumoxid (ZrO<sub>2</sub>), Verbindungsoxid von Ceroxid (CeO<sub>2</sub>) und Zirconiumoxid (ZrO<sub>2</sub>), gemischt in einem Gewichtsverhältnis von 3 : 1 bzw. Verbindungsoxid von Ceroxid (CeO<sub>2</sub>) und Zirconiumoxid (ZrO<sub>2</sub>), gemischt in einem Gewichtsverhältnis von 9 : 1. Jeder modifizierte Beispielkatalysator war derselbe in Bezug auf die Oberschichtstruktur und wies denselben Zirconiumoxidgehalt wie den Cergehalt des vierten Beispielkatalysators Ex.-IV auf. Die Resultate der Bewertungstests sind zusammen mit den Resultaten für den stratifizierten vierten Beispielkatalysator IV und den Vergleichskatalysator C-III in den **Fig. 13** und **14** gezeigt.

[0072] Wie in **Fig. 13** gezeigt, ist es offensichtlich, dass der vierte Beispielkatalysator IV vom Mehrschicht-Typ die höchste NO<sub>x</sub>-Umwandlungseffizienz unter diesen zeigt und es keinen Unterschied gibt bezüglich der NO<sub>x</sub>-Umwandlungseffizienz unter den modifizierten Beispielkatalysatoren MExp.-VI–MEx.-VIII. Die Tatsache, dass die Verwendung von anderen Materialien als Cer in der Unterschicht von mesoporösem Silicat keine Wirkung auf die Verbesserung der NO<sub>x</sub>-Umwandlungseffizienz besitzt, führt zu der Schlussfolgerung, dass Cer (Ce)

einen ausgezeichneten Dienst beim Cracken von Kohlenwasserstoffen (HC) leistet, die durch Mesoporen des Silicats eingefangen werden.

[0073] Wie in **Fig. 14** gezeigt wird, ist es offensichtlich, dass es keinen signifikanten Unterschied bei der T-50-Temperatur unter den modifizierten Beispielkatalysatoren MEx.-VI–MEx.-VIII und den Beispielkatalysatoren IV und dem Vergleichskatalysator C-III gibt und folglich die Verwendung von mesoporösem Silicat keine Wirkung auf die T-50-Temperatur besitzt. Folglich lässt sich sagen, dass die Verwendung von Cer keine Wirkung auf die Niedrigtemperatur-Aktivität besitzt.

[0074] Es kann ein Verflüchtigungs-Verfestigungs-Verfahren zum Einsatz kommen anstelle des Sprühtrocknungsverfahrens oder des Ionenaustauschverfahrens, um Platin durch Zeolith vom MFI-Typ mit derselben Wirkung zu tragen. Bei dem Verflüchtigungs-Verfestigungs-Verfahren wird eine Mischung aus Zeolithpulver vom MFI-Typ und eine Platinlösung erhitzt, um flüchtige Komponenten zu verflüchtigen.

[0075] An-Stelle der Installierung eines integrierten Katalysators vom Mischungstyp oder eines integrierten Katalysators vom Mehrschicht-Typ in der Abgasleitung kann separat mesoporöses Silicat oder Ce-getragenes mesoporöses Silicat stromaufwärts vom Pt-getragenen Zeolith vom MFI-Typ in den Abgasleitung platziert werden.

[0076] Es versteht sich, dass die vorliegende Erfindung zwar in Bezug auf bevorzugte Ausführungsformen davon beschrieben wurde, jedoch verschiedene andere Ausführungsformen und Varianten für Fachleute auf dem Gebiet möglich sind, welche innerhalb des Umfangs der Erfindung liegen, und solche anderen Ausführungsformen und Varianten sollen durch die folgenden Ansprüche umfasst sein.

## Patentansprüche

1. Abgasreinigungskatalysator zum Reinigen von Abgasen aus einem Kraftfahrzeugmotor, wobei der Abgasreinigungskatalysator Folgendes umfasst: eine katalytische Komponente, umfassend ein Edelmetall, getragen von einem Zeolith-(**3**) vom MFI-Typ mittels eines Ionenaustauschverfahrens; und ein mesopores Silicat (**2, 4**) mit einer annähernd gleichmäßigen Größe von Mesoporen.

2. Der Abgasreinigungskatalysator gemäß Anspruch 1, wobei die mesoporöse Zusammensetzung Ceroxid darauf trägt.

3. Abgasreinigungskatalysator nach mindestens einem der vorhergehenden Ansprüche, und weiterhin umfassend eine weitere katalytische Komponente, umfassend ein aktives Metall, getragen auf Zeolith ohne die Anwendung eines Ionenaustauschverfahrens.

4. Abgasreinigungskatalysator gemäß Anspruch 3, wobei das aktive Metall der zweiten katalytischen Komponente von dem Zeolith (3) durch ein Verdampfungstrocknungsverfahren getragen wird.

5. Abgasreinigungskatalysator gemäß Anspruch 3, wobei das aktive Metall der zweiten katalytischen Komponente von dem Zeolith (3) durch ein Sprühtrocknungsverfahren getragen wird.

6. Abgasreinigungskatalysator nach mindestens einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei der Motor ein Dieselmotor ist.

7. Abgasreinigungskatalysator nach mindestens einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die mesoporöse Zusammensetzung als eine Unterschicht auf ein Trägerteil (1) aufbeschichtet ist und die katalytische Komponente als eine Deckschicht über der Unterschicht aus einer mesoporen Zusammensetzung beschichtet ist.

Es folgen 11 Blatt Zeichnungen

FIG. 1

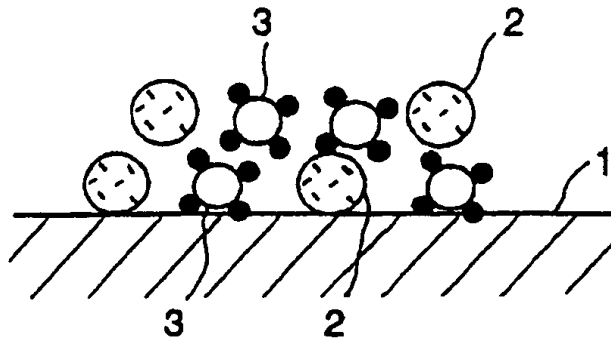


FIG. 2

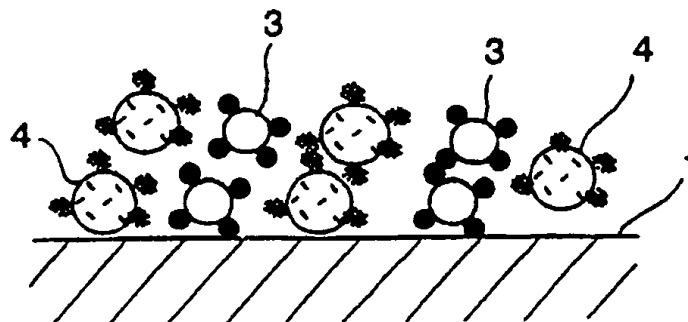


FIG. 3

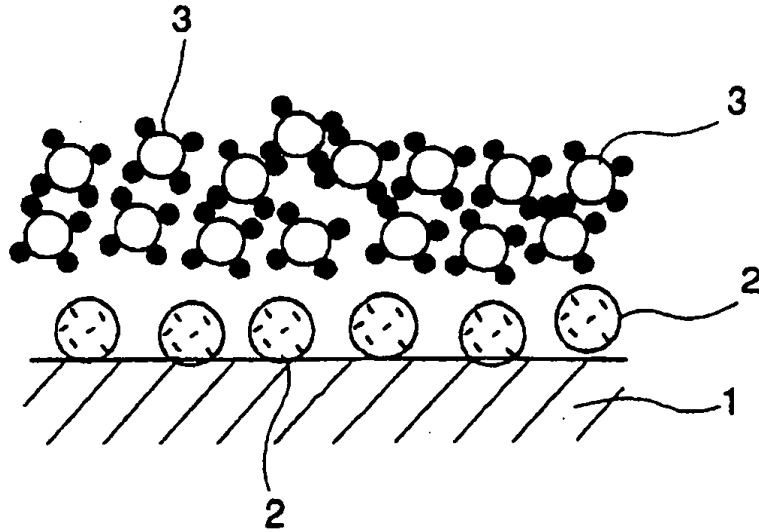


FIG. 4

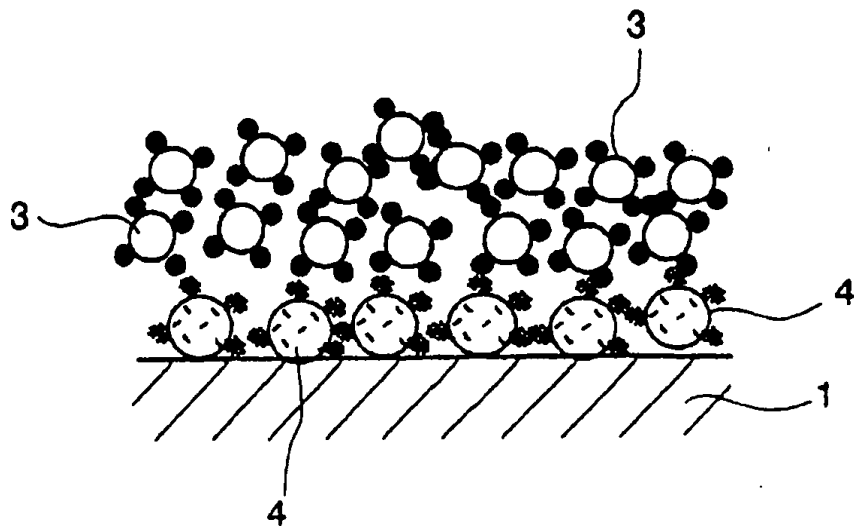


FIG. 5

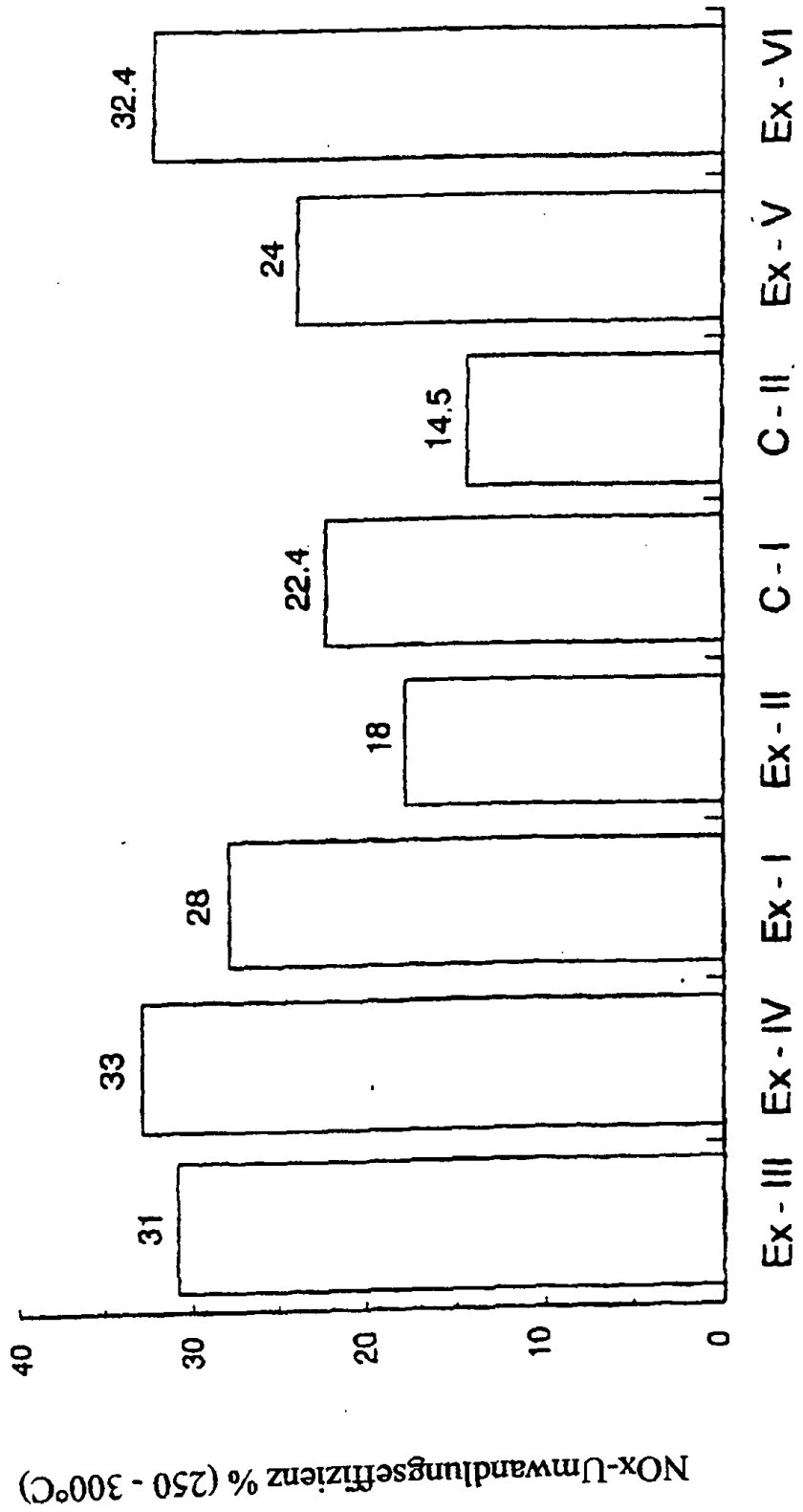


FIG. 6

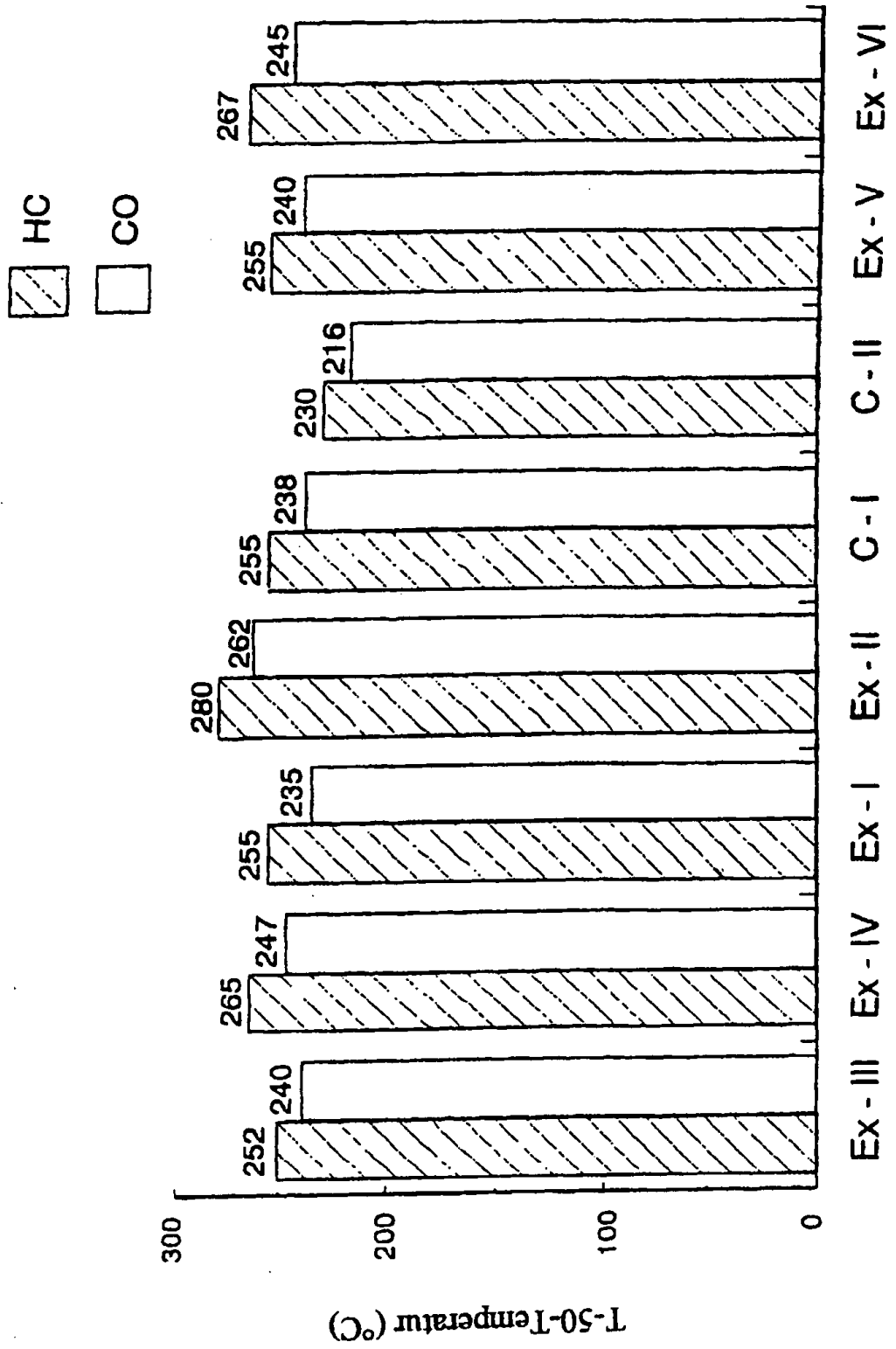


FIG. 7

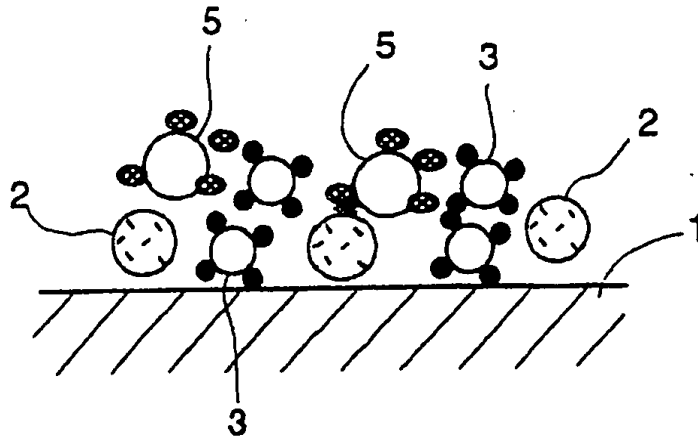


FIG. 8

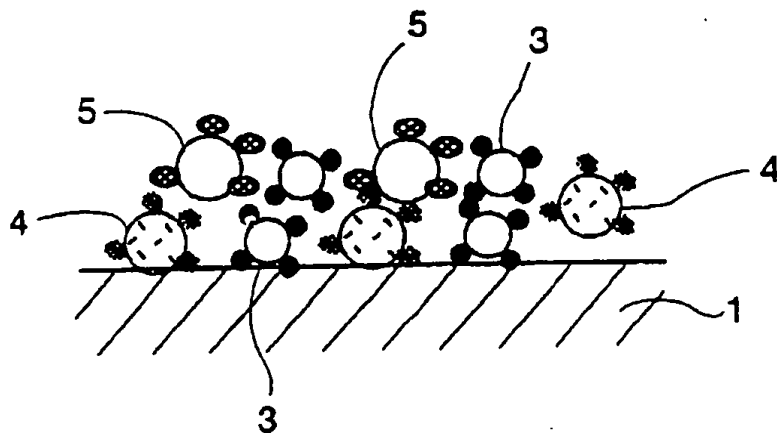


FIG. 9

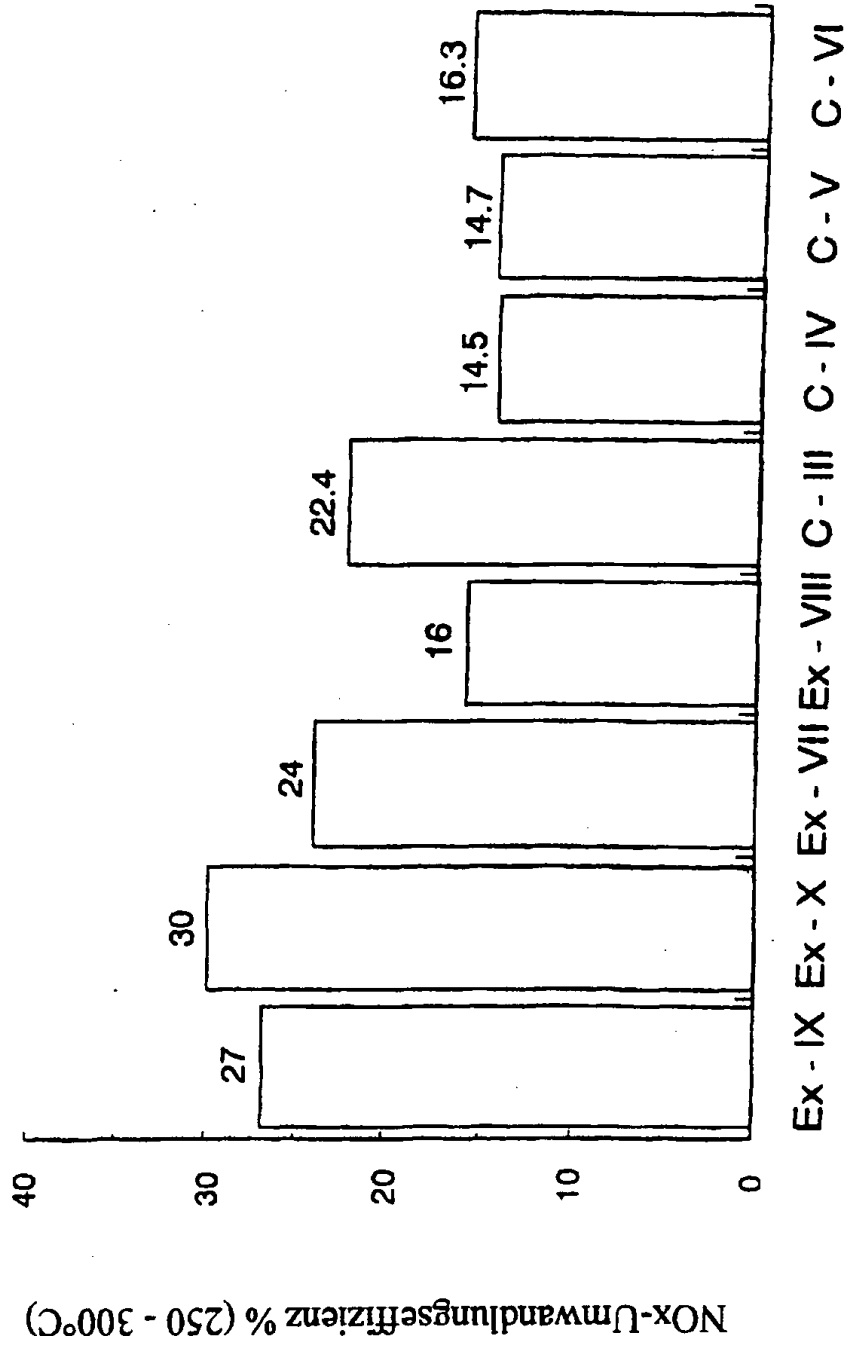


FIG. 10

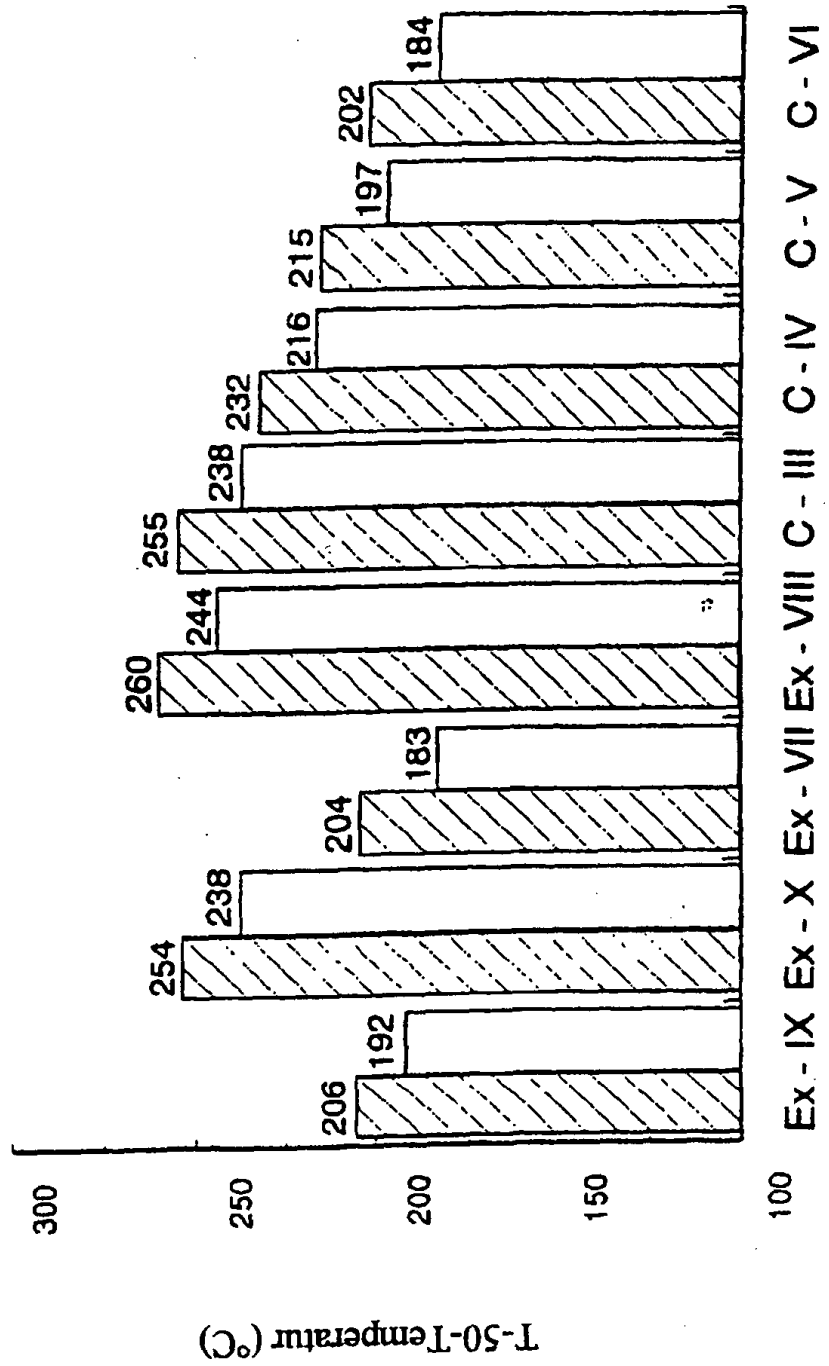


FIG. 11

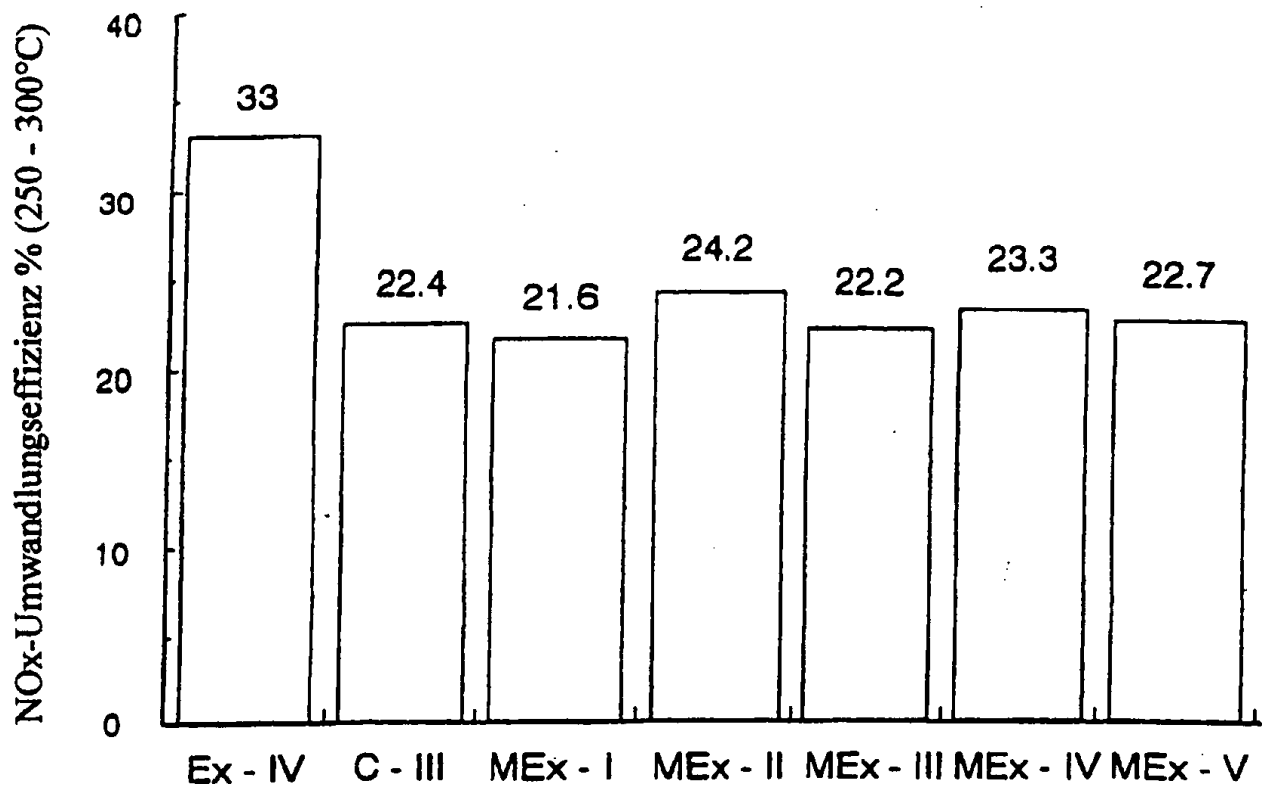


FIG. 12

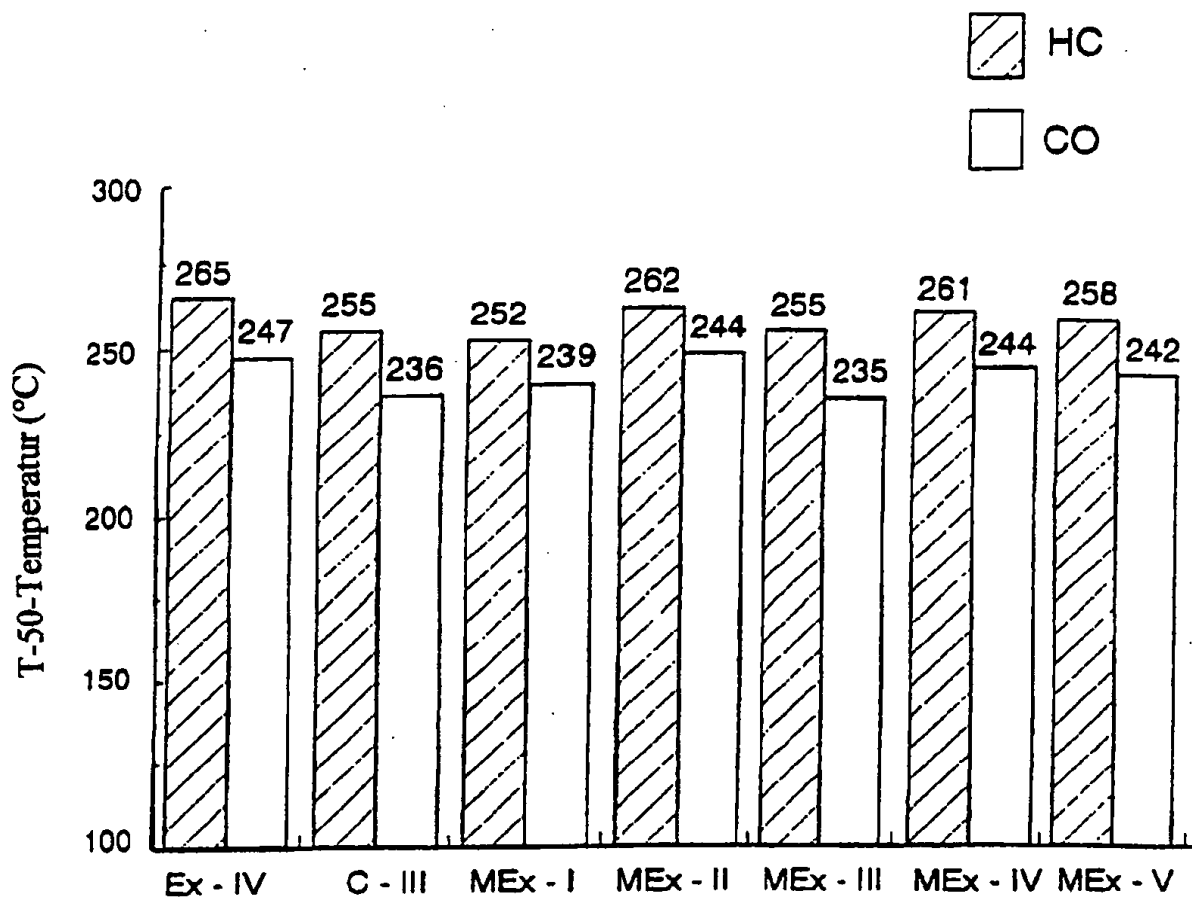


FIG. 13

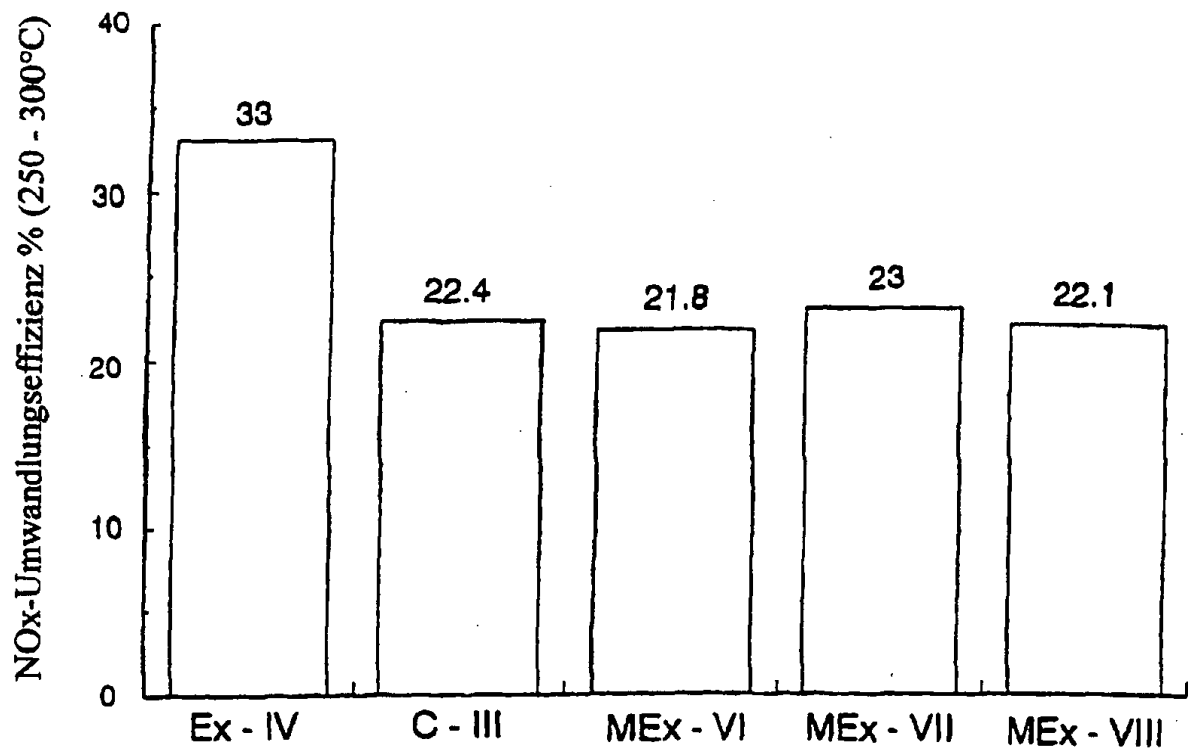


FIG. 14

