



(12) 发明专利申请



(10) 申请公布号 CN 115362015 A

(43) 申请公布日 2022. 11. 18

(21) 申请号 202180024567.0

K·E·福斯 J·A·帕切特

(22) 申请日 2021.03.30

A·R·芒丁

(30) 优先权数据

20166621.1 2020.03.30 EP

(74) 专利代理机构 北京市中咨律师事务所

11247

专利代理师 李颖 林柏楠

(85) PCT国际申请进入国家阶段日

2022.09.26

(51) Int.Cl.

(86) PCT国际申请的申请数据

PCT/EP2021/058331 2021.03.30

B01D 53/00 (2006.01)

B01J 21/06 (2006.01)

B01J 23/745 (2006.01)

(87) PCT国际申请的公布数据

W02021/198276 EN 2021.10.07

B01J 29/68 (2006.01)

B01J 29/72 (2006.01)

(71) 申请人 巴斯夫公司

地址 美国新泽西州

B01J 35/00 (2006.01)

B01J 37/02 (2006.01)

(72) 发明人 E·V·许内克斯 N·麦奎尔

P·科德斯 K·比尔德

J·M·贝克尔 J·K·霍奇茅斯

权利要求书3页 说明书42页 附图9页

(54) 发明名称

选择性催化还原催化剂和制备选择性催化
还原催化剂的方法

(57) 摘要

本发明涉及一种制备用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂的方法,其包括如下步骤:制备包含水和铁盐的第二水性混合物;和在从基底的入口端至出口端的基底轴向长度的y%上将第二混合物布置在根据(ii)获得的包含含有含铜沸石材料的涂层的基底上,其中y在10至x的范围内,获得如下基底,其包含:在第一区域中,包含含铜沸石材料和在基底轴向长度的y%上的铁盐的涂层;和如果x>y,在从入口端至出口端的基底轴向长度的y%延伸到x%的第二区域中,包含含铜沸石材料的涂层。

1. 一种制备用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂的方法,所述催化剂包含含有铁和含铜沸石材料的涂层,所述方法包括

(i) 制备包含水和含铜沸石材料的第一水性混合物;

(ii) 在从基底的入口端至出口端的基底轴向长度的 $x\%$ 上,将根据(i)获得的第一水性混合物布置在基底的内壁表面上,所述基底包含入口端、出口端、从入口端延伸到出口端的基底轴向长度和由贯穿其中的基底内壁界定的多个通道,其中 x 在80至100的范围内;煅烧具有布置在其上的第一水性混合物的基底,获得包含涂层的基底,所述涂层包含含铜沸石材料;

(iii) 制备包含水和铁盐的第二水性混合物;

(iv) 在从基底的入口端至出口端的基底轴向长度的 $y\%$ 上,将根据(iii)获得的第二水性混合物布置在根据(ii)获得的基底上,其中 y 在10至 x 的范围内,获得如下基底,其包含:在第一区域中,包含含铜沸石材料和在基底轴向长度的 $y\%$ 上的铁盐的涂层;和如果 $x > y$,在从入口端至出口端的基底轴向长度的 $y\%$ 延伸到 $x\%$ 的第二区域中,包含含铜沸石材料的涂层;

(v) 煅烧根据(iv)获得的基底。

2. 权利要求1的方法,其中根据(i)制备的水性混合物中所含的含铜沸石材料具有选自CHA、AEI、RTH、LEV、DDR、KFI、ERI、AFX、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型,优选选自CHA、AEI、RTH、AFX、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型,更优选选自CHA和AEI的骨架类型,其中根据(i)制备的第一水性混合物中所含的含铜沸石材料更优选具有骨架类型CHA。

3. 权利要求1的方法,其中根据(i)制备的水性混合物中所含的含铜沸石材料具有选自FER、BEA、MFI、FAU、MOR、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型,更优选选自FER、BEA、MFI、FAU、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型,其中根据(i)制备的水性混合物中所含的含铜沸石材料更优选具有骨架类型FER或BEA。

4. 权利要求1至3任一项的方法,其中根据(i)制备的第一水性混合物包含最多1000ppm,优选0至100ppm,更优选0至10ppm的以元素铁计算的铁。

5. 权利要求1至4任一项的方法,其中根据(ii)煅烧具有布置在其上的第一水性混合物的基底在具有400至800°C,优选500至700°C,更优选550至650°C的温度的气体气氛中进行,所述气体气氛更优选是空气。

6. 权利要求1至5任一项的方法,其中根据(ii)获得的包含含有含铜沸石材料的涂层的基底具有在1至5g/in³的范围内,优选在1.5至4g/in³的范围内,更优选在2至3.5g/in³的范围内,该量以相对于涂层体积的H₂O重量表示。

7. 权利要求1至6任一项的方法,其中根据(iii)制备的第二水性混合物中所含的铁盐是硝酸铁(III)、乙酸铁(II)、柠檬酸铵铁(III)、硫酸铁(II)和草酸铁(II)中的一种或多种,优选硝酸铁(III),更优选九水合硝酸铁(III)。

8. 权利要求1至7任一项的方法,其中根据(iii)制备的第二水性混合物包含基于根据(iii)制备的第二水性混合物的重量计在4至40重量%的范围内,优选在7至30重量%的范围内,更优选在10至25重量%的范围内,更优选在13至22重量%的范围内,更优选在15至20

重量%的范围内的以 Fe_2O_3 计算的量的铁盐。

9. 权利要求1至8任一项的方法, 其中 y 在20至 x 的范围内, 优选在20至60的范围内, 更优选在40至60的范围内, 或优选在80至 x 的范围内, 更优选在90至 x 的范围内, 更优选 $x=y$ 。

10. 一种用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂, 其包含

(a) 基底, 其包含入口端、出口端、从入口端延伸到出口端的基底轴向长度和由贯穿其中的基底内壁界定的多个通道;

(b) 从基底(a)的入口端至出口端在基底轴向长度的 $x\%$ 上布置在基底(a)的内壁表面上的涂层, 其中 x 在80至100的范围内, 所述涂层包含含铜沸石材料;

其中所述催化剂表现出一个或多个区域:

(b.1) 从基底(a)的入口端至出口端延伸基底轴向长度的 $y\%$ 的第一区域, 其中 y 在10至 x 的范围内; 其中第一区域包含含有含铜沸石材料的涂层, 其中, 在所述区域中, 所述涂层进一步包含铁;

(b.2) 如果 $x>y$, 从基底(a)的入口端至出口端的基底轴向长度的 $y\%$ 延伸到 $x\%$ 的第二区域, 其中第二区域包含含有含铜沸石材料的涂层。

11. 权利要求10的催化剂, 其中涂层中所含的含铜沸石材料具有选自CHA、AEI、RTH、LEV、DDR、KFI、ERI、AFX、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型, 更优选选自CHA、AEI、RTH、AFX、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型, 更优选选自CHA和AEI的骨架类型, 其中涂层中所含的含铜沸石材料更优选具有骨架类型CHA; 或

其中根据(i)制备的水性混合物中所含的含铜沸石材料具有选自FER、BEA、MFI、FAU、MOR、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型, 更优选选自FER、BEA、MFI、FAU、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型, 其中根据(i)制备的水性混合物中所含的含铜沸石材料更优选具有骨架类型FER或BEA。

12. 权利要求10或11任一项的催化剂, 其中基于涂层中所含的沸石材料的重量计, 涂层中所含的沸石材料中包含的以 CuO 计算的铜量在1.5至15重量%的范围内, 优选在2至10重量%的范围内, 更优选在3至8重量%的范围内, 更优选在4.5至7重量%的范围内, 更优选在4.6至6重量%的范围内, 更优选在4.8至5.5重量%的范围内。

13. 权利要求10至12任一项的催化剂, 其中第一区域中所含的涂层包含基于沸石材料, 优选具有骨架类型CHA的沸石材料的重量计, 在0.5至3.5重量%的范围内, 优选在1至3重量%的范围内, 更优选在1.5至2.5重量%的范围内或优选在3.1至3.3重量%的范围内量的铁。

14. 权利要求10至13任一项的催化剂, 其中 $x>y$ 。

15. 一种用于处理出自内燃机, 优选出自柴油机的排气的排气处理系统, 所述系统包含根据权利要求10至14任一项的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂和以下一种或多种: 柴油机氧化催化剂、氨氧化催化剂、选择性催化还原催化剂、催化滤烟器和SCR/AMOX催化剂。

16. 一种排气处理催化剂, 其包含

(a) 基底, 其包含入口端、出口端、从入口端延伸到出口端的基底轴向长度和由贯穿其中的基底内壁界定的多个通道;

(b) 在从基底 (a) 的出口端至入口端的基底轴向长度的 $z\%$ 上布置在基底 (a) 的内壁表面上的第一涂层, 其中 z 在 5 至 100 的范围内, 所述涂层包含氨氧化催化剂;

(c) 在从基底 (a) 的入口端至出口端的基底轴向长度的 $x\%$ 上, 布置在第一涂层上或布置在第一涂层和基底的内壁表面上的第二涂层, 其中 x 在 80 至 100 的范围内, 所述涂层包含含铜沸石材料;

其中所述催化剂表现出一个或多个区域:

(b.1) 从基底 (a) 的入口端至出口端延伸基底轴向长度的 $y\%$ 的第一区域, 其中 y 在 10 至 x 的范围内; 其中第一区域包含含有含铜沸石材料的第二涂层, 其中, 在所述区域中, 第二涂层进一步包含铁;

(b.2) 如果 $x > y$, 从基底 (a) 的入口端至出口端的基底轴向长度的 $y\%$ 延伸到 $x\%$ 的第二区域, 其中第二区域包含含有含铜沸石材料的第二涂层。

17. 权利要求 16 的催化剂, 其中 z 在 8 至 50 的范围内, 更优选在 9 至 40 的范围内, 更优选在 10 至 35 的范围内。

18. 权利要求 16 或 17 的催化剂, 其中所述氨氧化催化剂包含铂族金属组分, 其中铂族金属组分是铂、钯、铑、钌和铱中的一种或多种, 优选铂、钯和铑中的一种或多种, 更优选铂和钯中的一种或多种, 更优选铂;

其中所述氨氧化催化剂优选进一步包含负载铂族金属组分的非沸石类氧化物型材料, 其中所述非沸石类氧化物型材料更优选包含氧化铝、二氧化硅、二氧化钛和氧化锆中的一种或多种, 更优选包含氧化铝、二氧化硅和二氧化钛中的一种或多种, 更优选包含氧化铝和二氧化硅中的一种或多种, 其中所述非沸石类氧化物型材料更优选包含氧化铝。

选择性催化还原催化剂和制备选择性催化还原催化剂的方法

[0001] 本发明涉及制备用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂的方法、用于氮氧化物的选择性催化还原 (SCR) 的催化剂、所述催化剂的用途、使用所述催化剂进行 NO_x 的 SCR 的方法和包含所述催化剂的排气处理系统。本发明进一步涉及排气处理催化剂、其制备方法、所述催化剂的用途和使用所述催化剂进行 NO_x 的 SCR 和氨的氧化的方法。

[0002] 作为趋势,现代重型柴油机的 NO_x 发动机排放量由于制造燃料效率更高的发动机而增加,并且后处理系统的 NO_x 转化率要求更加提高。对于一些发动机,大于 95% 的 NO_x 转化率已经是强制性的。同时,实现一氧化二氮 (N_2O) 目标变得更具挑战性,因为这些目标在 0.1 至 0.14g/kWh 的范围内。因此,具有高 NO_x 转化率和中低 N_2O 形成量 ($<0.1\text{g/kWh}$) 的 SCR 催化剂似乎是解决市场需求所必需的。

[0003] 已知的是,Fe-沸石和Cu-沸石组合在一个催化体系中可部分解决这种优化需求。例如,WO 2016/070090 A1公开了一种催化制品,其包含用铜促进的第一分子筛和用铁促进的第二分子筛。US 2011/0305614 A1也公开了一种催化剂,特别是选择性催化还原 (SCR) 催化剂,其包含Cu-CHA和Fe-MFI的混合物。最后,WO 2017/153894 A1公开了一种金属离子交换分子筛,其与至少一种附加金属进行离子交换,如进一步与其它金属如Al、Fe、Cu和Zr交换的Cu-CHA。

[0004] 但是,需要提供能够显著减少 N_2O 排放、同时在标准SCR和快速SCR气体进料条件下都保持高 NO_x 转化水平或甚至改进 NO_x 转化率的选择性催化还原催化剂,以及制备表现出这样的催化性能的选择性催化还原催化剂的方法。

[0005] I. 制备用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂的方法和用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂

[0006] 意外地发现,根据本发明的方法能够提供根据本发明的选择性催化还原催化剂,其能够显著减少 N_2O 排放,同时在标准SCR和快速SCR气体进料条件下都保持高 NO_x 转化水平或甚至改进 NO_x 转化率。

[0007] 因此,本发明涉及一种制备用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂的方法,所述催化剂包含含有铁和含铜沸石材料的涂层,所述方法包括

[0008] (i) 制备包含水和含铜沸石材料的第一水性混合物;

[0009] (ii) 在从基底的入口端至出口端的基底轴向长度的 $x\%$ 上,将根据 (i) 获得的第一水性混合物布置在基底的内壁表面上,所述基底包含入口端、出口端、从入口端延伸到出口端的基底轴向长度和由贯穿其中的基底内壁界定的多个通道,其中 x 在 80 至 100 的范围内;煅烧具有布置在其上的第一水性混合物的基底,获得包含涂层的基底,所述涂层包含含铜沸石材料;

[0010] (iii) 制备包含水和铁盐的第二水性混合物;

[0011] (iv) 在从基底的入口端至出口端的基底轴向长度的 $y\%$ 上,将根据 (iii) 获得的第二水性混合物布置在根据 (ii) 获得的基底上,其中 y 在 10 至 x 的范围内,获得如下基底,其包含:在第一区域中,在基底轴向长度的 $y\%$ 上包含铁盐和含铜沸石材料的涂层;和如果 $x > y$,在从入口端至出口端的基底轴向长度的 $y\%$ 延伸到 $x\%$ 的第二区域中,包含含铜沸石材料的

涂层;

[0012] (v) 煅烧根据 (iv) 获得的基底。

[0013] 在本发明中,要指出,可以想象的是,根据 (i) 获得的第一水性混合物的布置可从基底的出口端向入口端进行,优选在将第一水性混合物布置在基底的整个长度上时。

[0014] 优选的是,根据 (i) 制备的第一水性混合物中所含的含铜沸石材料具有选自ABW、ACO、AEI、AEL、AEN、AET、AFG、AFI、AFN、AFO、AFR、AFS、AFT、AFV、AFX、AFY、AHT、ANA、APC、APD、AST、ASV、ATN、ATO、ATS、ATT、ATV、AVL、AWO、AWW、BCT、BEA、BEC、BIK、BOF、BOG、BOZ、BPH、BRE、BSV、CAN、CAS、CDO、CFI、CGF、CGS、CHA、-CHI、-CLO、CON、CSV、CZP、DAC、DDR、DFO、DFT、DOH、DON、EAB、EDI、EEI、EMT、EON、EPI、ERI、ESV、ETR、EUO、* -EWT、EZT、FAR、FAU、FER、FRA、GIS、GIU、GME、GON、GOO、HEU、IFO、IFR、-IFU、IFW、IFY、IHW、IMF、IRN、IRR、-IRY、ISV、ITE、ITG、ITH、* -ITN、ITR、ITT、-ITV、ITW、IWR、IWS、IWV、IWW、JBW、JNT、JOZ、JRY、JSN、JSR、JST、JSW、KFI、LAU、LEV、LIO、-LIT、LOS、LOV、LTA、LTF、LTJ、LTL、LTN、MAR、MAZ、MEI、MEL、MEP、MER、MFI、MFS、MON、MOR、MOZ、* MRE、MSE、MSO、MTF、MTN、MTT、MTW、MVY、MWF、MWW、NAB、NAT、NES、NON、NPO、NPT、NSI、OBW、OFF、OKO、OSI、OSO、OWE、-PAR、PAU、PCR、PHI、PON、POS、PSI、PUN、RHO、-RON、RRO、RSN、RTE、RTH、RUT、RWR、RWY、SAF、SAO、SAS、SAT、SAV、SBE、SBN、SBS、SBT、SEW、SFE、SFF、SFG、SFH、SFN、SFO、SFS、* SFV、SFW、SGT、SIV、SOD、SOF、SOS、SSF、* -SSO、SSY、STF、STI、* STO、STT、STW、-SVR、SVV、SZR、TER、THO、TOL、TON、TSC、TUN、UEI、UFI、UOS、UOV、UOZ、USI、UTL、UWY、VET、VFI、VNI、VSV、WEI、-WEN、YUG、ZON、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型。

[0015] 更优选的是,根据 (i) 制备的第一水性混合物中所含的含铜沸石材料具有选自CHA、AEI、RTH、LEV、DDR、KFI、ERI、AFX、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型,更优选选自CHA、AEI、RTH、AFX、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型,更优选选自CHA和AEI的骨架类型。更优选的是,根据 (i) 制备的第一水性混合物中所含的含铜沸石材料具有骨架类型CHA。

[0016] 或者,更优选的是,根据 (i) 制备的第一水性混合物中所含的含铜沸石材料具有选自FER、BEA、MFI、FAU、MOR、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型,更优选选自FER、BEA、MFI、FAU、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型。更优选的是,根据 (i) 制备的第一水性混合物中所含的含铜沸石材料具有骨架类型FER或BEA。

[0017] 因此,本发明优选涉及一种制备用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂的方法,所述催化剂包含含有铁和含铜沸石材料的涂层,所述方法包括

[0018] (i) 制备包含水和含铜沸石材料的第一水性混合物;

[0019] (ii) 在从基底的入口端至出口端的基底轴向长度的x%上,将根据 (i) 获得的第一水性混合物布置在基底的内壁表面上,所述基底包含入口端、出口端、从入口端延伸到出口端的基底轴向长度和由贯穿其中的基底内壁界定的多个通道,其中x在80至100的范围内;煅烧具有布置在其上的第一水性混合物的基底,获得包含涂层的基底,所述涂层包含含铜沸石材料;

[0020] (iii) 制备包含水和铁盐的第二水性混合物;

[0021] (iv) 在从基底的入口端至出口端的基底轴向长度的y%上,将根据 (iii) 获得的第

二水性混合物布置在根据 (ii) 获得的基底上, 其中 y 在 10 至 x 的范围内, 获得如下基底, 其包含: 在第一区域中, 包含含铜沸石材料和在基底轴向长度的 $y\%$ 上的铁盐的涂层; 和如果 $x > y$, 在从入口端至出口端的基底轴向长度的 $y\%$ 延伸到 $x\%$ 的第二区域中, 包含含铜沸石材料的涂层;

[0022] (v) 煅烧根据 (iv) 获得的基底;

[0023] 其中根据 (i) 制备的第一水性混合物中所含的沸石材料具有骨架类型CHA。或者, 优选的是, 根据 (i) 制备的第一水性混合物中所含的所述沸石材料具有骨架类型FER或BEA。

[0024] 在本发明中, 优选的是, 沸石材料的骨架结构的95至100重量%, 更优选98至100重量%, 更优选99至100重量%由Si、Al、O和任选H组成, 其中在骨架结构中, 以摩尔 $\text{SiO}_2:\text{Al}_2\text{O}_3$ 计算的Si与Al的摩尔比更优选在2:1至50:1的范围内, 更优选在5:1至45:1的范围内, 更优选在7:1至35:1的范围内, 更优选在10:1至30:1的范围内, 更优选在15:1至22:1的范围内或更优选在24:1至30:1的范围内。

[0025] 更优选的是, 当根据 (i) 制备的第一水性混合物中所含的沸石材料具有骨架类型CHA或FER时, 以摩尔 $\text{SiO}_2:\text{Al}_2\text{O}_3$ 计算的Si与Al的摩尔比在15:1至22:1的范围内。此外, 更优选的是, 当根据 (i) 制备的第一水性混合物中所含的沸石材料具有骨架类型BEA时, 以摩尔 $\text{SiO}_2:\text{Al}_2\text{O}_3$ 计算的Si与Al的摩尔比在24:1至30:1的范围内。

[0026] 优选的是, 根据 (i) 制备的第一水性混合物中所含的沸石材料, 更优选具有骨架类型CHA的沸石材料, 具有通过扫描电子显微术测定的至少0.1微米, 更优选在0.1至3.0微米的范围内, 更优选在0.3至1.5微米的范围内, 更优选在0.4至1.0微米的范围内的平均微晶尺寸。

[0027] 优选的是, 根据 (i) 制备的第一水性混合物中所含的沸石材料具有在300至800 m^2/g 的范围内的BET比表面积, BET比表面积如参比例1中所述测定。

[0028] 更优选的是, 根据 (i) 制备的第一水性混合物中所含的沸石材料, 更优选具有骨架类型CHA的沸石材料, 具有在400至700 m^2/g 的范围内, 更优选在500至630 m^2/g 的范围内的BET比表面积, BET比表面积如参比例1中所述测定。

[0029] 更优选的是, 根据 (i) 制备的第一水性混合物中所含的沸石材料, 更优选具有骨架类型FER的沸石材料, 具有在300至500 m^2/g 的范围内的BET比表面积, BET比表面积如参比例1中所述测定。

[0030] 更优选的是, 根据 (i) 制备的第一水性混合物中所含的沸石材料, 更优选具有骨架类型BEA的沸石材料, 具有在600至800 m^2/g 的范围内的BET比表面积, BET比表面积如参比例1中所述测定。

[0031] 关于根据 (i) 制备的第一水性混合物中所含的沸石材料中包含的以CuO计算的铜量, 优选的是, 其在1.5至15重量%的范围内, 更优选在2至10重量%的范围内, 基于根据 (i) 制备的第一水性混合物中所含的沸石材料的重量计。

[0032] 更优选的是, 基于根据 (i) 制备的第一水性混合物中所含的沸石材料的重量计, 根据 (i) 制备的第一水性混合物中所含的沸石材料中包含的以CuO计算的铜量在3至8重量%的范围内, 更优选在4.5至7重量%的范围内, 更优选在4.6至6重量%的范围内, 更优选在4.8至5.5重量%的范围内。本发明更优选涉及一种制备用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂的方法, 所述催化剂包含含有铁和含铜沸石材料的涂层, 所述方法包括

[0033] (i) 制备包含水和含铜沸石材料的第一水性混合物,其中基于沸石材料的重量计,沸石材料中包含的以CuO计算的铜量在1.5至15重量%的范围内,更优选在2至10重量%的范围内,更优选在3至8重量%的范围内,更优选在4.5至7重量%的范围内,更优选在4.6至6重量%的范围内,更优选在4.8至5.5重量%的范围内;

[0034] (ii) 在从基底的入口端至出口端的基底轴向长度的x%上,将根据(i)获得的第一水性混合物布置在基底的内壁表面上,所述基底包含入口端、出口端、从入口端延伸到出口端的基底轴向长度和由贯穿其中的基底内壁界定的多个通道,其中x在80至100的范围内;煅烧具有布置在其上的第一水性混合物的基底,获得包含涂层的基底,所述涂层包含含铜沸石材料;

[0035] (iii) 制备包含水和铁盐的第二水性混合物;

[0036] (iv) 在从基底的入口端至出口端的基底轴向长度的y%上,将根据(iii)获得的第二水性混合物布置在根据(ii)获得的基底上,其中y在10至x的范围内,获得如下基底,其包含:在第一区域中,包含含铜沸石材料和在基底轴向长度的y%上的铁盐的涂层;和如果 $x > y$,在从入口端至出口端的基底轴向长度的y%延伸到x%的第二区域中,包含含铜沸石材料的涂层;

[0037] (v) 煅烧根据(iv)获得的基底;

[0038] 其中根据(i)制备的第一水性混合物中所含的沸石材料具有骨架类型CHA。

[0039] 也更优选的是,基于根据(i)制备的第一水性混合物中所含的沸石材料的重量计,根据(i)制备的第一水性混合物中所含的沸石材料中包含的以CuO计算的铜量在2.5至6重量%的范围内,更优选在3至5重量%的范围内,更优选在3.2至4重量%的范围内。本发明更优选涉及一种制备用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂的方法,所述催化剂包含含有铁和含铜沸石材料的涂层,所述方法包括

[0040] (i) 制备包含水和含铜沸石材料的第一水性混合物,其中基于沸石材料的重量计,沸石材料中包含的以CuO计算的铜量在2.5至6重量%的范围内,更优选在3至5重量%的范围内,更优选在3.2至4重量%的范围内;

[0041] (ii) 在从基底的入口端至出口端的基底轴向长度的x%上,将根据(i)获得的第一水性混合物布置在基底的内壁表面上,所述基底包含入口端、出口端、从入口端延伸到出口端的基底轴向长度和由贯穿其中的基底内壁界定的多个通道,其中x在80至100的范围内;煅烧具有布置在其上的第一水性混合物的基底,获得包含涂层的基底,所述涂层包含含铜沸石材料;

[0042] (iii) 制备包含水和铁盐的第二水性混合物;

[0043] (iv) 在从基底的入口端至出口端的基底轴向长度的y%上,将根据(iii)获得的第二水性混合物布置在根据(ii)获得的基底上,其中y在10至x的范围内,获得如下基底,其包含:在第一区域中,包含含铜沸石材料和在基底轴向长度的y%上的铁盐的涂层;和如果 $x > y$,在从入口端至出口端的基底轴向长度的y%延伸到x%的第二区域中,包含含铜沸石材料的涂层;

[0044] (v) 煅烧根据(iv)获得的基底;

[0045] 其中根据(i)制备的第一水性混合物中所含的沸石材料具有骨架类型FER或BEA。

[0046] 在本发明中,优选的是,根据(i)制备的第一水性混合物进一步包含氧化物型组分

的前体,其中所述前体更优选是铝盐、硅盐、锆盐和钛盐中的一种或多种,更优选锆盐和铝盐中的一种或多种,更优选锆盐,更优选乙酸锆。

[0047] 优选的是,在根据(i)制备的第一水性混合物中,以氧化物,更优选以氧化铝、二氧化硅、氧化锆或二氧化钛计算的氧化物型组分的前体的量,更优选以 ZrO_2 计算的锆盐的量在1至10重量%的范围内,更优选在2至8重量%的范围内,更优选在3至7重量%的范围内,基于根据(i)制备的第一水性混合物中所含的沸石材料的重量计。

[0048] 优选的是,根据(i)制备的第一水性混合物中所含的水是去离子水。

[0049] 优选的是,根据(i)制备的第一水性混合物包含最多1000ppm,优选0至100ppm,更优选0至10ppm的以元素铁计算的铁。换言之,优选的是,根据(i)制备的第一水性混合物基本不含铁,更优选不含铁。本发明更优选涉及一种制备用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂的方法,所述催化剂包含含有铁和含铜沸石材料的涂层,所述方法包括

[0050] (i)制备包含水和含铜沸石材料的第一水性混合物,其中基于沸石材料的重量计,沸石材料中包含的以CuO计算的铜量在1.5至15重量%的范围内,更优选在2至10重量%的范围内,更优选在3至8重量%的范围内,更优选在4.5至7重量%的范围内,更优选在4.6至6重量%的范围内,更优选在4.8至5.5重量%的范围内,并且其中第一水性混合物包含最多1000ppm,更优选0至100ppm,更优选0至10ppm的以元素铁计算的铁;

[0051] (ii)在从基底的入口端至出口端的基底轴向长度的x%上,将根据(i)获得的第一水性混合物布置在基底的内壁表面上,所述基底包含入口端、出口端、从入口端延伸到出口端的基底轴向长度和由贯穿其中的基底内壁界定的多个通道,其中x在80至100的范围内;煅烧具有布置在其上的第一水性混合物的基底,获得包含涂层的基底,所述涂层包含含铜沸石材料;

[0052] (iii)制备包含水和铁盐的第二水性混合物;

[0053] (iv)在从基底的入口端至出口端的基底轴向长度的y%上,将根据(iii)获得的第二水性混合物布置在根据(ii)获得的基底上,其中y在10至x的范围内,获得如下基底,其包含:在第一区域中,在基底轴向长度的y%上包含铁盐和含铜沸石材料的涂层;和如果 $x > y$,在从入口端至出口端的基底轴向长度的y%延伸到x%的第二区域中,包含含铜沸石材料的涂层;

[0054] (v)煅烧根据(iv)获得的基底;

[0055] 其中根据(i)制备的第一水性混合物中所含的沸石材料具有骨架类型CHA。或者,优选的是,根据(i)制备的第一水性混合物中所含的所述沸石材料具有骨架类型FER或BEA,更优选的是,基于沸石材料的重量计,沸石材料中包含的以CuO计算的铜量在2.5至6重量%的范围内,更优选在3至5重量%的范围内,更优选在3.2至4重量%的范围内。

[0056] 在本发明中,优选的是,根据(i)制备的第一水性混合物的98至100重量%,更优选99至100重量%,更优选99.5至100重量%,更优选99.9至100重量%由水、含铜沸石材料和更优选如上文定义的氧化物的前体组成。

[0057] 优选的是,在根据(i)制备第一水性混合物之后和在根据(ii)将所述混合物布置在基底上之前,将第一水性混合物研磨或混合,更优选直至第一水性混合物的粒子具有在3至20微米的范围内,更优选在5至15微米的范围内,更优选在6至8微米的范围内或更优选在9至12微米的范围内的 Dv_{90} , Dv_{90} 如参比例2中所述测定。更优选的是,当根据(i)制备的第

一水性混合物中所含的沸石材料具有骨架类型CHA时,在根据(i)制备第一水性混合物之后和在根据(ii)将所述混合物布置在基底上之前,将第一水性混合物研磨或混合,更优选直至第一水性混合物的粒子具有在9至12微米的范围内的Dv90。此外,更优选的是,当根据(i)制备的第一水性混合物中所含的沸石材料具有骨架类型FER或BEA时,在根据(i)制备第一水性混合物之后和在根据(ii)将所述混合物布置在基底上之前,将第一水性混合物研磨或混合,更优选直至第一水性混合物的粒子具有在6至8微米的范围内的Dv90。

[0058] 关于(ii)中提供的基底,优选的是,其是流通型基底或壁流式过滤器基底,更优选流通型基底。

[0059] 关于(ii)中提供的基底,优选的是,其包含陶瓷物质,更优选由陶瓷物质组成,其中陶瓷物质更优选包含以下这些,更优选由以下这些组成:氧化铝、二氧化硅、硅酸盐、铝硅酸盐、堇青石、莫来石、铝钛酸盐、碳化硅、氧化锆、氧化镁,更优选尖晶石,和二氧化钛中的一种或多种,更优选碳化硅和堇青石中的一种或多种,更优选堇青石。

[0060] 优选的是,x在90至100的范围内,更优选在95至100的范围内,更优选在98至100的范围内,更优选在99至100的范围内。

[0061] 优选的是,在根据(ii)煅烧之前,具有布置在其上的第一水性混合物的基底在具有90至250℃,更优选100至150℃的温度的气体气氛中干燥,该气体气氛更优选是空气。

[0062] 优选的是,干燥进行10至360分钟,更优选20至240分钟,更优选30至90分钟的持续时间。

[0063] 关于根据(ii)煅烧具有布置在其上的第一水性混合物的基底,优选的是,其在具有400至800℃,更优选500至700℃,更优选550至650℃的温度的气体气氛中进行,该气体气氛更优选是空气。

[0064] 关于根据(ii)煅烧具有布置在其上的第一水性混合物的基底,优选的是,其在气体气氛中进行5至360分钟,更优选20至240分钟,更优选30至90分钟的持续时间,该气体气氛更优选包含空气,更优选由空气组成。

[0065] 优选的是,根据(ii)获得的包含含有含铜沸石材料的涂层的基底具有在1至5g/in³的范围内,更优选在1.5至4g/in³的范围内,更优选在2至3.5g/in³的范围内水吸附量,该量以相对于涂层体积的H₂O重量表示,水吸附量如参比例5中定义的测定。本发明更优选涉及一种制备用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂的方法,所述催化剂包含含有铁和含铜沸石材料的涂层,所述方法包括

[0066] (i) 制备包含水和含铜沸石材料的第一水性混合物;

[0067] (ii) 在从基底的入口端至出口端的基底轴向长度的x%上,将根据(i)获得的第一水性混合物布置在基底的内壁表面上,所述基底包含入口端、出口端、从入口端延伸到出口端的基底轴向长度和由贯穿其中的基底内壁界定的多个通道,其中x在80至100的范围内;煅烧具有布置在其上的第一水性混合物的基底,获得包含涂层的基底,所述涂层包含含铜沸石材料,其中根据(ii)获得的包含含有含铜沸石材料的涂层的基底具有在1至5g/in³的范围内,更优选在1.5至4g/in³的范围内,更优选在2至3.5g/in³的范围内水吸附量,该量以相对于涂层体积的H₂O重量表示,水吸附量如参比例5中定义的测定;

[0068] (iii) 制备包含水和铁盐的第二水性混合物;

[0069] (iv) 在从基底的入口端至出口端的基底轴向长度的y%上,将根据(iii)获得的第

二水性混合物布置在根据(ii)获得的基底上,其中y在10至x的范围内,获得如下基底,其包含:在第一区域中,在基底轴向长度的y%上包含铁盐和含铜沸石材料的涂层;和如果 $x > y$,在从入口端至出口端的基底轴向长度的y%延伸到x%的第二区域中,包含含铜沸石材料的涂层;

[0070] (v) 煅烧根据(iv)获得的基底;

[0071] 其中根据(i)制备的第一水性混合物中所含的沸石材料具有骨架类型CHA或FER或BEA。

[0072] 在本发明中,优选的是,根据(iii)制备的第二水性混合物中所含的铁盐是硝酸铁(III)、乙酸铁(II)、柠檬酸铵铁(III)、硫酸铁(II)和草酸铁(II)中的一种或多种,更优选硝酸铁(III),更优选九水合硝酸铁(III)。

[0073] 关于根据(iii)制备的第二水性混合物,优选的是,其包含基于根据(iii)制备的第二水性混合物的重量计在4至40重量%的范围内,更优选在7至30重量%的范围内,更优选在10至25重量%的范围内,更优选在13至22重量%的范围内,更优选在15至20重量%的范围内以 Fe_2O_3 计算的量的铁盐。

[0074] 优选的是,根据(iii)制备的第二水性混合物中所含的水是去离子水。

[0075] 优选的是,根据(iii)制备的第二水性混合物的98至100重量%,更优选99至100重量%,更优选99.5至100重量%,更优选99.9至100重量%由水和铁盐,更优选硝酸铁(III)组成。

[0076] 优选的是,根据(iv)将根据(iii)获得的第二水性混合物布置在根据(ii)获得的基底上包括将根据(ii)获得的包含含有含铜沸石材料的涂层的基底浸渍到根据(iii)制备的第二水性混合物中,更优选持续5至120秒,更优选7至80秒,更优选9至60秒,更优选10至50秒。

[0077] 优选的是,y在20至x的范围内。更优选的是,y在20至60的范围内,更优选在40至60的范围内。或者,更优选的是,y在80至x的范围内,更优选在90至x的范围内,更优选 $x = y$ 。

[0078] 优选的是,在根据(v)煅烧之前,(iv)中获得的基底在具有80至250℃,更优选90至200℃,更优选100至150℃,更优选110至130℃的温度的气体气氛中干燥。

[0079] 优选的是,在根据(v)煅烧之前,(iv)中获得的基底在气体气氛中干燥10至180分钟,更优选20至120分钟,更优选30至90分钟,更优选40至80分钟的持续时间。

[0080] 优选的是,该气体气氛包含空气,更优选由空气组成。

[0081] 优选的是,根据(v)的煅烧在具有400至800℃,更优选450至700℃,更优选500至650℃,更优选550至650℃的温度的气体气氛中进行。

[0082] 关于根据(v)的煅烧,优选的是,其在气体气氛中进行10至180分钟,更优选20至120分钟,更优选30至90分钟,更优选40至80分钟的持续时间。

[0083] 优选的是,该气体气氛包含空气,更优选由空气组成。

[0084] 优选的是,根据本发明的方法由(i)、(ii)、(iii)、(iv)和(v)组成。

[0085] 本发明进一步涉及一种用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂,优选通过根据本发明的方法可获得或获得的催化剂,其包含

[0086] (a) 基底,其包含入口端、出口端、从入口端延伸到出口端的基底轴向长度和由贯穿其中的基底内壁界定的多个通道;

[0087] (b) 从基底 (a) 的入口端至出口端在基底轴向长度的 $x\%$ 上布置在基底 (a) 的内壁表面上的涂层, 其中 x 在 80 至 100 的范围内, 所述涂层包含含铜沸石材料;

[0088] 其中所述催化剂表现出一个或多个区域:

[0089] (b.1) 从基底 (a) 的入口端至出口端延伸基底轴向长度的 $y\%$ 的第一区域, 其中 y 在 10 至 x 的范围内; 其中第一区域包含含有含铜沸石材料的涂层, 其中, 在所述区域中, 所述涂层进一步包含铁;

[0090] (b.2) 如果 $x > y$, 从基底 (a) 的入口端至出口端的基底轴向长度的 $y\%$ 延伸到 $x\%$ 的第二区域, 其中第二区域包含含有含铜沸石材料的涂层。

[0091] 关于涂层中所含的含铜沸石材料, 优选的是, 其具有选自 ABW、ACO、AEI、AEL、AEN、AET、AFG、AFI、AFN、AFO、AFR、AFS、AFT、AFV、AFX、AFY、AHT、ANA、APC、APD、AST、ASV、ATN、ATO、ATS、ATT、ATV、AVL、AWO、AWW、BCT、BEA、BEC、BIK、BOF、BOG、BOZ、BPH、BRE、BSV、CAN、CAS、CDO、CFI、CGF、CGS、CHA、-CHI、-CLO、CON、CSV、CZP、DAC、DDR、DFO、DFT、DOH、DON、EAB、EDI、EEI、EMT、EON、EPI、ERI、ESV、ETR、EUO、* -EWT、EZT、FAR、FAU、FER、FRA、GIS、GIU、GME、GON、GOO、HEU、IFO、IFR、-IFU、IFW、IFY、IHW、IMF、IRN、IRR、-IRY、ISV、ITE、ITG、ITH、* -ITN、ITR、ITT、-ITV、ITW、IWR、IWS、IWV、IWW、JBW、JNT、JOZ、JRY、JSN、JSR、JST、JSW、KFI、LAU、LEV、LIO、-LIT、LOS、LOV、LTA、LTF、LTJ、LTL、LTN、MAR、MAZ、MEI、MEL、MEP、MER、MFI、MFS、MON、MOR、MOZ、* MRE、MSE、MSO、MTF、MTN、MTT、MTW、MVY、MWF、MWW、NAB、NAT、NES、NON、NPO、NPT、NSI、OBW、OFF、OKO、OSI、OSO、OWE、-PAR、PAU、PCR、PHI、PON、POS、PSI、PUN、RHO、-RON、RRO、RSN、RTE、RTH、RUT、RWR、RWY、SAF、SAO、SAS、SAT、SAV、SBE、SBN、SBS、SBT、SEW、SFE、SFF、SFG、SFH、SFN、SFO、SFS、* SFV、SFW、SGT、SIV、SOD、SOF、SOS、SSF、* -SSO、SSY、STF、STI、* STO、STT、STW、-SVR、SVV、SZR、TER、THO、TOL、TON、TSC、TUN、UEI、UFI、UOS、UOV、UOZ、USI、UTL、UWY、VET、VFI、VNI、VSV、WEI、-WEN、YUG、ZON、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型。

[0092] 更优选的是, 涂层中所含的含铜沸石材料具有选自 CHA、AEI、RTH、LEV、DDR、KFI、ERI、AFX、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型, 更优选选自 CHA、AEI、RTH、AFX、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型, 更优选选自 CHA 和 AEI 的骨架类型。更优选的是, 涂层中所含的含铜沸石材料具有骨架类型 CHA。因此, 本发明更优选涉及一种用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂, 更优选通过根据本发明的方法可获得或获得的催化剂, 其包含

[0093] (a) 基底, 其包含入口端、出口端、从入口端延伸到出口端的基底轴向长度和由贯穿其中的基底内壁界定的多个通道;

[0094] (b) 从基底 (a) 的入口端至出口端在基底轴向长度的 $x\%$ 上布置在基底 (a) 的内壁表面上的涂层, 其中 x 在 80 至 100 的范围内, 所述涂层包含含铜沸石材料;

[0095] 其中所述催化剂表现出一个或多个区域:

[0096] (b.1) 从基底 (a) 的入口端至出口端延伸基底轴向长度的 $y\%$ 的第一区域, 其中 y 在 10 至 x 的范围内; 其中第一区域包含含有含铜沸石材料的涂层, 其中, 在所述区域中, 所述涂层进一步包含铁;

[0097] (b.2) 如果 $x > y$, 从基底 (a) 的入口端至出口端的基底轴向长度的 $y\%$ 延伸到 $x\%$ 的第二区域, 其中第二区域包含含有含铜沸石材料的涂层;

[0098] 其中涂层中所含的含铜沸石材料具有骨架类型CHA。

[0099] 或者,更优选的是,涂层中所含的含铜沸石材料具有选自FER、BEA、MFI、FAU、MOR、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型,更优选选自FER、BEA、MFI、FAU、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型。更优选的是,涂层中所含的含铜沸石材料具有骨架类型FER或BEA。因此,本发明更优选涉及一种用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂,更优选通过根据本发明的方法可获得或获得的催化剂,其包含

[0100] (a) 基底,其包含入口端、出口端、从入口端延伸到出口端的基底轴向长度和由贯穿其中的基底内壁界定的多个通道;

[0101] (b) 从基底(a)的入口端至出口端在基底轴向长度的x%上布置在基底(a)的内壁表面上的涂层,其中x在80至100的范围内,所述涂层包含含铜沸石材料;

[0102] 其中所述催化剂表现出一个或多个区域:

[0103] (b.1) 从基底(a)的入口端至出口端延伸基底轴向长度的y%的第一区域,其中y在10至x的范围内;其中第一区域包含含有含铜沸石材料的涂层,其中,在所述区域中,所述涂层进一步包含铁;

[0104] (b.2) 如果 $x > y$,从基底(a)的入口端至出口端的基底轴向长度的y%延伸到x%的第二区域,其中第二区域包含含有含铜沸石材料的涂层;

[0105] 其中涂层中所含的含铜沸石材料具有骨架类型FER或BEA。

[0106] 在本发明中,优选的是,沸石材料的骨架结构的95至100重量%,更优选98至100重量%,更优选99至100重量%由Si、Al、O和任选H组成。优选的是,在骨架结构中,以摩尔 $\text{SiO}_2:\text{Al}_2\text{O}_3$ 计算的Si与Al的摩尔比在2:1至50:1的范围内,更优选在5:1至45:1的范围内,更优选在7:1至35:1的范围内,更优选在10:1至30:1的范围内,更优选在15:1至22:1的范围内或更优选在24:1至30:1的范围内。

[0107] 更优选的是,当涂层中所含的沸石材料具有骨架类型CHA或FER时,以摩尔 $\text{SiO}_2:\text{Al}_2\text{O}_3$ 计算的Si与Al的摩尔比在15:1至22:1的范围内。此外,更优选的是,当涂层中所含的沸石材料具有骨架类型BEA时,以摩尔 $\text{SiO}_2:\text{Al}_2\text{O}_3$ 计算的Si与Al的摩尔比在24:1至30:1的范围内。

[0108] 优选的是,涂层中所含的沸石材料,更优选具有骨架类型CHA的沸石材料,具有通过扫描电子显微术测定的至少0.1微米,更优选在0.1至3.0微米的范围内,更优选在0.3至1.5微米的范围内,更优选在0.4至1.0微米的范围内的平均微晶尺寸。

[0109] 关于涂层中所含的沸石材料中包含的以CuO计算的铜量,优选的是,基于涂层中所含的沸石材料的重量计,其在1.5至15重量%的范围内,更优选在2至10重量%的范围内。

[0110] 更优选的是,基于涂层中所含的沸石材料的重量计,涂层中所含的沸石材料中包含的以CuO计算的铜量在3至8重量%的范围内,更优选在4.5至7重量%的范围内,更优选在4.6至6重量%的范围内,更优选在4.8至5.5重量%的范围内。因此,本发明更优选涉及一种用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂,更优选通过根据本发明的方法可获得或获得的催化剂,其包含

[0111] (a) 基底,其包含入口端、出口端、从入口端延伸到出口端的基底轴向长度和由贯穿其中的基底内壁界定的多个通道;

[0112] (b) 从基底(a)的入口端至出口端在基底轴向长度的x%上布置在基底(a)的内壁表面上的涂层,其中x在80至100的范围内,所述涂层包含含铜沸石材料;

[0113] 其中所述催化剂表现出一个或多个区域:

[0114] (b.1) 从基底(a)的入口端至出口端延伸基底轴向长度的y%的第一区域,其中y在10至x的范围内;其中第一区域包含含有含铜沸石材料的涂层,其中,在所述区域中,所述涂层进一步包含铁;

[0115] (b.2) 如果 $x > y$,从基底(a)的入口端至出口端的基底轴向长度的y%延伸到x%的第二区域,其中第二区域包含含有含铜沸石材料的涂层;

[0116] 其中涂层中所含的含铜沸石材料具有骨架类型CHA;

[0117] 其中基于涂层中所含的沸石材料的重量计,涂层中所含的沸石材料中包含的以CuO计算的铜量在4.5至7重量%的范围内,更优选在4.6至6重量%的范围内,更优选在4.8至5.5重量%的范围内。

[0118] 也更优选的是,基于涂层中所含的沸石材料的重量计,涂层中所含的沸石材料中包含的以CuO计算的铜量在2.5至6重量%的范围内,更优选在3至5重量%的范围内,更优选在3.2至4重量%的范围内。因此,本发明更优选涉及一种用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂,更优选通过根据本发明的方法可获得或获得的催化剂,其包含

[0119] (a) 基底,其包含入口端、出口端、从入口端延伸到出口端的基底轴向长度和由贯穿其中的基底内壁界定的多个通道;

[0120] (b) 从基底(a)的入口端至出口端在基底轴向长度的x%上布置在基底(a)的内壁表面上的涂层,其中x在80至100的范围内,所述涂层包含含铜沸石材料;

[0121] 其中所述催化剂表现出一个或多个区域:

[0122] (b.1) 从基底(a)的入口端至出口端延伸基底轴向长度的y%的第一区域,其中y在10至x的范围内;其中第一区域包含含有含铜沸石材料的涂层,其中,在所述区域中,所述涂层进一步包含铁;

[0123] (b.2) 如果 $x > y$,从基底(a)的入口端至出口端的基底轴向长度的y%延伸到x%的第二区域,其中第二区域包含含有含铜沸石材料的涂层;

[0124] 其中涂层中所含的含铜沸石材料具有骨架类型FER或BEA;

[0125] 其中基于涂层中所含的沸石材料的重量计,涂层中所含的沸石材料中包含的以CuO计算的铜量在2.5至6重量%的范围内,更优选在3至5重量%的范围内,更优选在3.2至4重量%的范围内。

[0126] 在本发明中,优选的是,该涂层进一步包含氧化物型组分,其中所述氧化物型组分更优选是氧化铝、二氧化硅、氧化锆和二氧化钛中的一种或多种,更优选氧化锆和氧化铝中的一种或多种,更优选氧化锆。

[0127] 关于以氧化物计算的氧化物型组分的量,优选以 ZrO_2 计算的氧化锆的量,优选的是,基于涂层中所含的沸石材料的重量计,其在1至10重量%的范围内,更优选在2至8重量%的范围内,更优选在3至7重量%的范围内。

[0128] 优选的是,x在90至100的范围内,更优选在95至100的范围内,更优选在98至100的范围内,更优选在99至100的范围内。

[0129] 关于涂层的载量,优选的是,其在1至6g/in³的范围内,更优选在1.5至4g/in³的范

围内,更优选在1.75至3g/in³的范围内。

[0130] 优选的是,y在20至x的范围内。更优选的是,y在20至60的范围内,更优选在40至60的范围内。或者,优选的是,y在80至x的范围内,更优选在90至x的范围内,更优选 $x=y$ 。

[0131] 关于铁的量,优选的是,第一区域中所含的涂层包含在0.5至3.5重量%的范围内,更优选在1至3重量%的范围内,更优选在1.5至2.5重量%的范围内或更优选在3.1至3.3重量%的范围内量的铁,所述量基于沸石材料的重量计,所述沸石材料优选具有骨架类型CHA。

[0132] 关于铁的量,优选的是,第一区域中所含的涂层包含在0.5至3.5重量%的范围内,更优选在0.75至3重量%的范围内,更优选在1至2重量%的范围内量的铁,所述量基于沸石材料的重量计,沸石材料优选具有骨架类型FER。

[0133] 关于铁的量,优选的是,第一区域中所含的涂层包含在0.5至3.5重量%的范围内,更优选在1至3重量%的范围内,更优选在1.2至2重量%的范围内量的铁,所述量基于沸石材料的重量计,沸石材料优选具有骨架类型BEA。

[0134] 优选的是,第一区域中所含的涂层的98至100重量%,更优选99至100重量%,更优选99.5至100重量%,更优选99.9至100重量%由铁、含铜沸石材料和更优选如上文定义的氧化物型组分组成。

[0135] 优选的是,该催化剂表现出两个区域。

[0136] 优选的是, $x>y$ 。

[0137] 优选的是,第二区域中所含的涂层的0至0.001重量%,更优选0至0.0001重量%,更优选0至0.00001重量%由铁组成,以 Fe_2O_3 计算。换言之,优选的是,第二区域中的涂层基本不含铁,更优选不含铁。

[0138] 优选的是,第二区域中所含的涂层的98至100重量%,更优选99至100重量%,更优选99.5至100重量%,更优选99.9至100重量%由含铜沸石材料和更优选如上文定义的氧化物型组分组成。

[0139] 优选的是,该涂层的0至0.001重量%,更优选0至0.0001重量%,更优选0至0.00001重量%由钒组成。换言之,优选的是,该涂层基本不含钒,更优选不含钒。

[0140] 优选的是,该涂层的0至0.001重量%,更优选0至0.0001重量%,更优选0至0.00001重量%由任意铂族金属组成。换言之,优选的是,该涂层基本不含任何铂族金属,更优选不含任何铂族金属。

[0141] 关于基底(a),优选的是,其是流通型基底或壁流式过滤器基底,更优选流通型基底。

[0142] 优选的是,基底(a)包含陶瓷物质,更优选由陶瓷物质组成,其中陶瓷物质更优选包含以下这些,更优选由以下这些组成:氧化铝、二氧化硅、硅酸盐、铝硅酸盐、堇青石、莫来石、铝钛酸盐、碳化硅、氧化锆、氧化镁,更优选尖晶石,和二氧化钛中的一种或多种,更优选碳化硅和堇青石中的一种或多种。更优选的是,陶瓷物质包含堇青石,更优选由堇青石组成。更优选的是,基底(a)是堇青石流通型基底。

[0143] 优选的是,本发明的催化剂由基底(a)和涂层(b)组成。

[0144] 本发明进一步涉及根据本发明的催化剂用于氮氧化物,优选出自柴油机的氮氧化物的选择性催化还原的用途。

[0145] 本发明进一步涉及一种选择性催化还原氮氧化物的方法,所述方法包括

[0146] (1) 提供排气料流,优选来自柴油机的排气料流;

[0147] (2) 使(1)中提供的排气料流经过根据本发明的用于选择性催化还原的催化剂。

[0148] 本发明进一步涉及一种用于处理出自内燃机,优选出自柴油机的排气的排气处理系统,所述系统包含根据本发明的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂和以下一种或多种:柴油机氧化催化剂、氨氧化催化剂、选择性催化还原催化剂、催化滤烟器和SCR/氨氧化(AMOX)催化剂。

[0149] 根据优选的第一个方面,本发明的系统包含柴油机氧化催化剂、催化滤烟器和根据本发明的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂,其中柴油机氧化催化剂位于催化滤烟器上游,并且其中催化滤烟器位于根据本发明的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂上游。根据所述方面更优选的是,柴油机氧化催化剂是所述系统的第一催化剂并且在发动机和柴油机氧化催化剂之间不存在催化剂。

[0150] 根据第一个方面,优选的是,该系统进一步包含位于根据本发明的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂下游的选择性催化还原催化剂;其中该系统更优选进一步包含氨氧化催化剂,所述氨氧化催化剂位于选择性催化还原催化剂下游。

[0151] 根据所述第一个方面,优选的是,该系统进一步包含还原剂喷射器,所述还原剂喷射器位于催化滤烟器下游和根据本发明的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂上游,其中还原剂更优选是脲。

[0152] 根据优选的第二个方面,本发明的系统包含柴油机氧化催化剂、催化滤烟器和用于氮氧化物的选择性催化还原的根据本发明的催化剂,其中柴油机氧化催化剂位于根据本发明的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂上游,并且其中根据本发明的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂位于催化滤烟器上游;其中柴油机氧化催化剂更优选是所述系统的第一催化剂,更优选在发动机和柴油机氧化催化剂之间不存在催化剂。

[0153] 根据第二个方面,优选的是,该系统进一步包含位于根据本发明的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂下游和催化滤烟器上游的选择性催化还原催化剂。根据所述方面,更优选的是,该系统进一步包含氨氧化催化剂,所述氨氧化催化剂位于选择性催化还原催化剂下游和催化滤烟器上游。

[0154] 根据第二个方面,优选的是,该系统进一步包含位于催化滤烟器下游的SCR/AMOX催化剂,其中该系统更优选进一步包含位于SCR/AMOX催化剂上游和催化滤烟器下游的还原剂喷射器,还原剂更优选是脲。在本发明中,要指出,SCR/AMOX催化剂优选包含基底,其包含布置在基底上的AMOX涂层和布置在AMOX涂层上的SCR涂层,其中AMOX涂层更优选包含负载在非沸石类氧化物型材料上的铂族金属,更优选铂。所述非沸石类氧化物型材料更优选包含以下材料,更优选由以下材料组成:氧化铝、二氧化硅、二氧化钛和氧化锆中的一种或多种,更优选氧化铝、二氧化硅和二氧化钛中的一种或多种,更优选氧化铝和二氧化硅中的一种或多种,更优选氧化铝。此外,更优选的是,SCR催化剂包含含铜沸石材料,更优选如上文关于本发明的SCR催化剂定义的含铜沸石材料。

[0155] 根据第二个方面,优选的是,该系统进一步包含还原剂喷射器,所述还原剂喷射器位于柴油机氧化催化剂下游和根据本发明的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂上游,其中还原剂更优选是脲。

[0156] 根据优选的第三个方面,本发明的系统包含根据本发明的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂和催化滤烟器,其中根据本发明的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂位于催化滤烟器上游;其中根据本发明的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂更优选是所述系统的第一催化剂,更优选在发动机和根据本发明的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂之间不存在催化剂。

[0157] 根据第三个方面,优选的是,该系统进一步包含位于根据本发明的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂下游和催化滤烟器上游的选择性催化还原催化剂。根据所述方面,更优选的是,该系统进一步包含氨氧化催化剂,所述氨氧化催化剂位于选择性催化还原催化剂下游和催化滤烟器上游。

[0158] 根据第三个方面,优选的是,该系统进一步包含位于催化滤烟器下游的SCR/AMOX催化剂,其中该系统更优选进一步包含位于SCR/AMOX催化剂上游和催化滤烟器下游的还原剂喷射器,还原剂更优选是脲。在本发明中,要指出,SCR/AMOX催化剂优选如上文定义。

[0159] 根据第三个方面,优选的是,该系统进一步包含第一还原剂喷射器,第一还原剂喷射器位于根据本发明的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂上游,其中还原剂更优选是脲。

[0160] 根据第四个方面,优选的是,该系统包含根据本发明的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂和位于根据本发明的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂下游的SCR/AMOX催化剂。更优选的是,在根据本发明的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂和SCR/AMOX催化剂之间不存在附加催化剂。在本发明中,要指出,SCR/AMOX催化剂优选如上文定义。

[0161] II. 排气处理催化剂

[0162] 也意外地发现,根据本发明的排气处理催化剂表现出高NO_x转化率和氨氧化,同时表现出减少的N₂O排放。

[0163] 因此,本发明涉及一种排气处理催化剂,其包含

[0164] (a) 基底,其包含入口端、出口端、从入口端延伸到出口端的基底轴向长度和由贯穿其中的基底内壁界定的多个通道;

[0165] (b) 在从基底(a)的出口端至入口端的基底轴向长度的z%上布置在基底(a)的内壁表面上的第一涂层,其中z在5至100的范围内,第一涂层包含氨氧化催化剂;

[0166] (c) 在从基底(a)的入口端至出口端的基底轴向长度的x%上,布置在第一涂层上或布置在第一涂层和基底的内壁表面上的第二涂层,其中x在80至100的范围内,第二涂层包含含铜沸石材料;

[0167] 其中所述催化剂表现出一个或多个区域:

[0168] (b.1) 从基底(a)的入口端至出口端延伸基底轴向长度的y%的第一区域,其中y在10至x的范围内;其中第一区域包含含有含铜沸石材料的第二涂层,其中,在所述区域中,第二涂层进一步包含铁;

[0169] (b.2) 如果x>y,从基底(a)的入口端至出口端的基底轴向长度的y%延伸到x%的第二区域,其中第二区域包含含有含铜沸石材料的第二涂层。

[0170] 关于第一涂层(b),优选的是,z在7至70的范围内,更优选在8至50的范围内,更优选在9至40的范围内,更优选在10至35的范围内。更优选的是,第一区域不含第一涂层。

[0171] 关于第一涂层 (b), 优选的是, 氨氧化催化剂包含铂族金属组分, 其中铂族金属组分更优选是铂、钯、铑、钌和铱中的一种或多种, 更优选铂、钯和铑中的一种或多种, 更优选铂和钯中的一种或多种, 更优选铂。

[0172] 优选的是, 第一涂层 (b) 包含以元素铂族金属计算, 更优选以元素铂计算在 1 至 200g/ft³ 的范围内, 更优选在 2 至 100g/ft³ 的范围内的载量的铂族金属组分, 更优选铂。

[0173] 优选的是, 氨氧化催化剂进一步包含负载铂族金属组分的非沸石类氧化物型材料, 其中非沸石类氧化物型材料更优选包含氧化铝、二氧化硅、二氧化钛和氧化锆中的一种或多种, 更优选氧化铝、二氧化硅和二氧化钛中的一种或多种, 更优选氧化铝和二氧化硅中的一种或多种, 其中非沸石类氧化物型材料更优选包含氧化铝。更优选的是, 非沸石类氧化物型材料由氧化铝组成。

[0174] 因此, 本发明优选涉及一种排气处理催化剂, 其包含

[0175] (a) 基底, 其包含入口端、出口端、从入口端延伸到出口端的基底轴向长度和由贯穿其中的基底内壁界定的多个通道;

[0176] (b) 在从基底 (a) 的出口端至入口端的基底轴向长度的 z% 上布置在基底 (a) 的内壁表面上的第一涂层, 其中 z 在 5 至 100 的范围内, 第一涂层包含铂族金属组分和负载铂族金属组分的非沸石类氧化物型材料;

[0177] (c) 在从基底 (a) 的入口端至出口端的基底轴向长度的 x% 上, 布置在第一涂层上或布置在第一涂层和基底的内壁表面上的第二涂层, 其中 x 在 80 至 100 的范围内, 第二涂层包含含铜沸石材料;

[0178] 其中所述催化剂表现出一个或多个区域:

[0179] (b.1) 从基底 (a) 的入口端至出口端延伸基底轴向长度的 y% 的第一区域, 其中 y 在 10 至 x 的范围内; 其中第一区域包含含有含铜沸石材料的第二涂层, 其中, 在所述区域中, 第二涂层进一步包含铁;

[0180] (b.2) 如果 $x > y$, 从基底 (a) 的入口端至出口端的基底轴向长度的 y% 延伸到 x% 的第二区域, 其中第二区域包含含有含铜沸石材料的第二涂层。

[0181] 在本发明中, 优选的是, 氨氧化催化剂的 98 至 100 重量%, 更优选 99 至 100 重量%, 更优选 99.5 至 100 重量%, 更优选 99.9 至 100 重量% 由铂族金属组分和非沸石类氧化物型材料组成。

[0182] 优选的是, 该催化剂包含 0.25 至 10g/in³, 更优选 0.5 至 8g/in³, 更优选 1 至 5g/in³ 的载量的第一涂层 (b)。

[0183] 第一涂层的优选 98 至 100 重量%, 更优选 99 至 100 重量%, 更优选 99.5 至 100 重量%, 更优选 99.9 至 100 重量% 由氨氧化催化剂组成。

[0184] 关于第二涂层 (c), 优选的是, 所述第二涂层中所含的含铜沸石材料具有选自 ABW、ACO、AEI、AEL、AEN、AET、AFG、AFI、AFN、AFO、AFR、AFS、AFT、AFV、AFX、AFY、AHT、ANA、APC、APD、AST、ASV、ATN、ATO、ATS、ATT、ATV、AVL、AWO、AWW、BCT、BEA、BEC、BIK、BOF、BOG、BOZ、BPH、BRE、BSV、CAN、CAS、CDO、CFI、CGF、CGS、CHA、-CHI、-CLO、CON、CSV、CZP、DAC、DDR、DFO、DFT、DOH、DON、EAB、EDI、EEI、EMT、EON、EPI、ERI、ESV、ETR、EUO、*-EWT、EZT、FAR、FAU、FER、FRA、GIS、GIU、GME、GON、GOO、HEU、IFO、IFR、-IFU、IFW、IFY、IHW、IMF、IRN、IRR、-IRY、ISV、ITE、ITG、ITH、*-ITN、ITR、ITT、-ITV、ITW、IWR、IWS、IWW、JBW、JNT、JOZ、JRY、JSN、JSR、JST、JSW、

KFI、LAU、LEV、LIO、-LIT、LOS、LOV、LTA、LTF、LTJ、LTL、LTN、MAR、MAZ、MEI、MEL、MEP、MER、MFI、MFS、MON、MOR、MOZ、* MRE、MSE、MSO、MTF、MTN、MTT、MTW、MVY、MWF、MWW、NAB、NAT、NES、NON、NPO、NPT、NSI、OBW、OFF、OKO、OSI、OSO、OWE、-PAR、PAU、PCR、PHI、PON、POS、PSI、PUN、RHO、-RON、RRO、RSN、RTE、RTH、RUT、RWR、RWY、SAF、SAO、SAS、SAT、SAV、SBE、SBN、SBS、SBT、SEW、SFE、SFF、SFG、SFH、SFN、SFO、SFS、* SFV、SFW、SGT、SIV、SOD、SOF、SOS、SSF、* -SSO、SSY、STF、STI、* STO、STT、STW、-SVR、SVV、SZR、TER、THO、TOL、TON、TSC、TUN、UEI、UFI、UOS、UOV、UOZ、USI、UTL、UWY、VET、VFI、VNI、VSV、WEI、-WEN、YUG、ZON、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型。

[0185] 更优选的是，所述第二涂层中所含的含铜沸石材料具有选自CHA、AEI、RTH、LEV、DDR、KFI、ERI、AFX、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型，更优选选自CHA、AEI、RTH、AFX、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型，更优选选自CHA和AEI的骨架类型。更优选的是，所述第二涂层中所含的含铜沸石材料具有骨架类型CHA。

[0186] 因此，本发明优选涉及一种排气处理催化剂，其包含

[0187] (a) 基底，其包含入口端、出口端、从入口端延伸到出口端的基底轴向长度和由贯穿其中的基底内壁界定的多个通道；

[0188] (b) 在从基底(a)的出口端至入口端的基底轴向长度的 $z\%$ 上布置在基底(a)的内壁表面上的第一涂层，其中 z 在5至100的范围内，第一涂层包含铂族金属组分和负载铂族金属组分的非沸石类氧化物型材料；

[0189] (c) 在从基底(a)的入口端至出口端的基底轴向长度的 $x\%$ 上，布置在第一涂层上或布置在第一涂层和基底的内壁表面上的第二涂层，其中 x 在80至100的范围内，第二涂层包含含铜沸石材料，其中所述沸石材料具有选自CHA、AEI、RTH、LEV、DDR、KFI、ERI、AFX、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型，更优选选自CHA、AEI、RTH、AFX、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型，更优选选自CHA和AEI的骨架类型，更优选CHA；

[0190] 其中所述催化剂表现出一个或多个区域：

[0191] (b.1) 从基底(a)的入口端至出口端延伸基底轴向长度的 $y\%$ 的第一区域，其中 y 在10至 x 的范围内；其中第一区域包含含有含铜沸石材料的第二涂层，其中，在所述区域中，第二涂层进一步包含铁；

[0192] (b.2) 如果 $x > y$ ，从基底(a)的入口端至出口端的基底轴向长度的 $y\%$ 延伸到 $x\%$ 的第二区域，其中第二区域包含含有含铜沸石材料的第二涂层。

[0193] 或者，更优选的是，所述第二涂层中所含的含铜沸石材料具有选自FER、BEA、MFI、FAU、MOR、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型，更优选选自FER、BEA、MFI、FAU、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型的骨架类型。更优选的是，所述第二涂层中所含的含铜沸石材料具有骨架类型FER或BEA。因此，本发明更优选涉及一种排气处理催化剂，其包含

[0194] (a) 基底，其包含入口端、出口端、从入口端延伸到出口端的基底轴向长度和由贯穿其中的基底内壁界定的多个通道；

[0195] (b) 在从基底(a)的出口端至入口端的基底轴向长度的 $z\%$ 上布置在基底(a)的内

壁表面上的第一涂层,其中 z 在5至100的范围内,第一涂层包含铂族金属组分和负载铂族金属组分的非沸石类氧化物型材料;

[0196] (c) 在从基底(a)的入口端至出口端的基底轴向长度的 $x\%$ 上,布置在第一涂层上或布置在第一涂层和基底的内壁表面上的第二涂层,其中 x 在80至100的范围内,第二涂层包含含铜沸石材料,其中所述沸石材料具有选自FER、BEA、MFI、FAU、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型,更优选具有骨架类型FER或BEA;

[0197] 其中所述催化剂表现出一个或多个区域:

[0198] (b.1) 从基底(a)的入口端至出口端延伸基底轴向长度的 $y\%$ 的第一区域,其中 y 在10至 x 的范围内;其中第一区域包含含有含铜沸石材料的第二涂层,其中,在所述区域中,第二涂层进一步包含铁;

[0199] (b.2) 如果 $x > y$,从基底(a)的入口端至出口端的基底轴向长度的 $y\%$ 延伸到 $x\%$ 的第二区域,其中第二区域包含含有含铜沸石材料的第二涂层。

[0200] 在本发明中,优选的是,第二涂层(c)中所含的沸石材料的骨架结构的95至100重量%,更优选98至100重量%,更优选99至100重量%由Si、Al和O组成,其中在骨架结构中,以摩尔 $\text{SiO}_2:\text{Al}_2\text{O}_3$ 计算的Si与Al的摩尔比更优选在2:1至50:1的范围内,更优选在5:1至45:1的范围内,更优选在7:1至35:1的范围内,更优选在10:1至30:1的范围内,更优选在15:1至22:1的范围内或更优选在24:1至30:1的范围内。

[0201] 更优选的是,当第二涂层中所含的沸石材料具有骨架类型CHA或FER时,以摩尔 $\text{SiO}_2:\text{Al}_2\text{O}_3$ 计算的Si与Al的摩尔比在15:1至22:1的范围内。此外,更优选的是,当第二涂层中所含的沸石材料具有骨架类型BEA时,以摩尔 $\text{SiO}_2:\text{Al}_2\text{O}_3$ 计算的Si与Al的摩尔比在24:1至30:1的范围内。

[0202] 优选的是,第二涂层中所含的沸石材料,更优选具有骨架类型CHA的沸石材料,具有通过扫描电子显微术测定的至少0.1微米,更优选在0.1至3.0微米的范围内,更优选在0.3至1.5微米的范围内,更优选在0.4至1.0微米的范围内的平均微晶尺寸。

[0203] 关于第二涂层(c),优选的是,基于第二涂层中所含的沸石材料的重量计,所述第二涂层中所含的沸石材料中包含的以CuO计算的铜量在1.5至15重量%的范围内,更优选在2至10重量%的范围内。

[0204] 更优选的是,基于第二涂层中所含的沸石材料的重量计,所述第二涂层中所含的沸石材料中包含的以CuO计算的铜量在3至8重量%的范围内,更优选在4.5至7重量%的范围内,更优选在4.6至6重量%的范围内,更优选在4.8至5.5重量%的范围内。

[0205] 也更优选的是,基于第二涂层中所含的沸石材料的重量计,所述第二涂层中所含的沸石材料中包含的以CuO计算的铜量在2.5至6重量%的范围内,更优选在3至5重量%的范围内,更优选在3.2至4重量%的范围内。

[0206] 更优选的是,当第二涂层中所含的沸石材料具有骨架类型CHA时,基于第二涂层中所含的沸石材料的重量计,所述第二涂层中所含的沸石材料中包含的以CuO计算的铜量在3至8重量%的范围内,更优选在4.5至7重量%的范围内,更优选在4.6至6重量%的范围内,更优选在4.8至5.5重量%的范围内。

[0207] 更优选的是,当第二涂层中所含的沸石材料具有骨架类型FER或BEA时,基于第二涂层中所含的沸石材料的重量计,所述第二涂层中所含的沸石材料中包含的以CuO计算的

铜量在2.5至6重量%的范围内,更优选在3至5重量%的范围内,更优选在3.2至4重量%的范围内。

[0208] 优选的是,第二涂层进一步包含氧化物型组分。优选的是,氧化物型组分是氧化铝、二氧化硅、氧化锆和二氧化钛中的一种或多种,更优选氧化锆和氧化铝中的一种或多种,更优选氧化锆。

[0209] 优选的是,基于第二涂层中所含的沸石材料的重量计,以氧化物计算的氧化物型组分的量,更优选以 ZrO_2 计算的氧化锆的量在1至10重量%的范围内,更优选在2至8重量%的范围内,更优选在3至7重量%的范围内。

[0210] 优选的是,x在90至100的范围内,更优选在95至100的范围内,更优选在98至100的范围内,更优选在99至100的范围内。更优选的是,x在98至100的范围内,更优选在99至100的范围内,且z在9至40的范围内,更优选在10至35的范围内。

[0211] 优选的是,第二涂层的载量在1至6g/in³的范围内,更优选在1.5至4g/in³的范围内,更优选在1.75至3g/in³的范围内。

[0212] 优选的是,y在20至x的范围内。更优选的是,y在20至60的范围内,更优选在40至60的范围内。或者更优选的是,y在80至x的范围内,更优选在90至x的范围内,更优选 $x=y$ 。

[0213] 更优选的是,x在98至100的范围内,更优选在99至100的范围内,y在20至60的范围内,更优选在40至60的范围内,且z在9至40的范围内,更优选在10至35的范围内。

[0214] 优选的是,第二涂层(c)布置在第一涂层(b)和基底的内壁表面上。

[0215] 优选的是,第一区域中所含的第二涂层包含基于沸石材料,优选具有骨架类型CHA的沸石材料的重量计,在0.5至3.5重量%的范围内,更优选在1至3重量%的范围内,更优选在1.5至2.75重量%的范围内或更优选在3.1至3.3重量%的范围内量的铁。

[0216] 优选的是,第一区域中所含的第二涂层包含在0.5至3.5重量%的范围内,更优选在0.75至3重量%的范围内,更优选在1至2重量%的范围内量的铁,基于沸石材料的重量计,沸石材料优选具有骨架类型FER。

[0217] 优选的是,第一区域中所含的第二涂层包含在0.5至3.5重量%的范围内,更优选在1至3重量%的范围内,更优选在1.2至2重量%的范围内量的铁,基于沸石材料的重量计,沸石材料优选具有骨架类型BEA。

[0218] 第一区域中所含的第二涂层的优选98至100重量%,更优选99至100重量%,更优选99.5至100重量%,更优选99.9至100重量%由铁、含铜沸石材料和更优选如上文定义的氧化物型组分组成。

[0219] 优选的是,该催化剂表现出两个区域。更优选的是,第一区域不含第一涂层。

[0220] 优选的是, $x>y$ 。

[0221] 关于第二区域中所含的第二涂层,优选的是,第二区域中所含的第二涂层的0至0.001重量%,更优选0至0.0001重量%,更优选0至0.00001重量%由铁组成,以 Fe_2O_3 计算。换言之,优选的是,第二区域中所含的第二涂层基本不含铁,更优选不含铁。

[0222] 优选的是,第二区域中所含的第二涂层的98至100重量%,更优选99至100重量%,更优选99.5至100重量%,更优选99.9至100重量%由含铜沸石材料和更优选如上文定义的氧化物型组分组成。

[0223] 关于第二涂层,优选的是,第二涂层的0至0.001重量%,更优选0至0.0001重量%,

更优选0至0.00001重量%由钒组成。换言之,优选的是,第二涂层基本不含钒,更优选不含钒。

[0224] 关于第二涂层,优选的是,第二涂层的0至0.001重量%,更优选0至0.0001重量%,更优选0至0.00001重量%由任意铂族金属组成。换言之,优选的是,第二涂层基本不含任何铂族金属,更优选不含任何铂族金属。

[0225] 关于基底(a),优选的是,其是流通型基底或壁流式过滤器基底,更优选流通型基底。

[0226] 优选的是,基底(a)包含陶瓷物质,更优选由陶瓷物质组成,其中陶瓷物质更优选包含以下这些,更优选由以下这些组成:氧化铝、二氧化硅、硅酸盐、铝硅酸盐、堇青石、莫来石、铝钛酸盐、碳化硅、氧化锆、氧化镁,更优选尖晶石,和二氧化钛中的一种或多种,更优选碳化硅和堇青石中的一种或多种。更优选的是,陶瓷物质包含堇青石,更优选由堇青石组成。

[0227] 优选的是,本发明的催化剂由基底(a)、第一涂层(b)和第二涂层(c)组成。

[0228] 本发明进一步涉及根据本发明的排气处理催化剂用于NO_x的选择性催化还原和氨的氧化的用途。

[0229] 本发明进一步涉及一种用于氮氧化物的选择性催化还原和氨的氧化的方法,所述方法包括

[0230] (1) 提供排气料流,优选来自柴油机的排气料流;

[0231] (2) 使(1)中提供的排气料流经过根据本发明的排气处理催化剂。

[0232] 本发明进一步涉及一种制备根据本发明的排气处理催化剂的方法,所述方法包括

[0233] (a) 制备包含水和氨氧化催化剂前体的第一水性混合物;

[0234] (b) 在从基底的出口端至入口端的基底轴向长度的z%上,将根据(i)获得的第一水性混合物布置在基底的内壁表面上,所述基底包含入口端、出口端、从入口端延伸到出口端的基底轴向长度和由贯穿其中的基底内壁界定的多个通道,其中z在5至100的范围内;煅烧具有布置在其上的第一水性混合物的基底,获得包含第一涂层的基底;

[0235] (c) 制备包含水和含铜沸石材料的第二水性混合物;

[0236] (d) 在从基底的入口端至出口端的基底轴向长度的x%上,将根据(c)获得的第二水性混合物布置在根据(b)获得的基底上,其中x在80至100的范围内;煅烧具有布置在其上的第二水性混合物的基底,获得包含第一涂层和含有含铜沸石材料的第二涂层的基底;

[0237] (e) 制备包含水和铁盐的第三水性混合物;

[0238] (f) 在从基底的入口端至出口端的基底轴向长度的y%上,将根据(e)获得的第三水性混合物布置在根据(d)获得的基底上,其中y在10至x的范围内,获得如下基底,其包含:在第一区域中,在基底轴向长度的y%上包含铁盐和含铜沸石材料的第二涂层;和如果x>y,在从入口端至出口端的基底轴向长度的y%延伸到x%的第二区域中,包含含铜沸石材料的第二涂层;

[0239] (g) 煅烧根据(f)获得的基底。

[0240] 在本发明中,要指出,可以想象的是,根据(d)获得的第二水性混合物的布置可从基底的出口端向入口端进行,优选在将第二水性混合物布置在基底的整个长度上时。

[0241] 优选的是,氨氧化催化剂前体包含铂族金属组分源,更优选铂或钯源,更优选铂

源,更优选铂盐。

[0242] 更优选的是,氨氧化催化剂前体进一步包含非沸石类氧化物型材料,其中非沸石类氧化物型材料更优选包含氧化铝、二氧化硅、二氧化钛和氧化锆中的一种或多种,更优选氧化铝、二氧化硅和二氧化钛中的一种或多种,更优选氧化铝和二氧化硅中的一种或多种。更优选的是,非沸石类氧化物型材料包含氧化铝,更优选由氧化铝组成。

[0243] 关于(a),优选的是,其包括

[0244] (a.1) 将铂族金属组分源浸渍在非沸石类氧化物型材料上;

[0245] (a.2) 煅烧根据(a.1)获得的浸渍的非沸石类氧化物型材料;

[0246] (a.3) 将水与根据(a.2)获得的煅烧的浸渍非沸石类氧化物型材料混合。

[0247] 优选的是,(b)中提供的基底是流通型基底或壁流式过滤器基底,更优选流通型基底。

[0248] 优选的是,(b)中提供的基底包含陶瓷物质,更优选由陶瓷物质组成,其中陶瓷物质更优选包含以下这些,更优选由以下这些组成:氧化铝、二氧化硅、硅酸盐、铝硅酸盐、堇青石、莫来石、铝钛酸盐、碳化硅、氧化锆、氧化镁,更优选尖晶石,和二氧化钛中的一种或多种,更优选碳化硅和堇青石中的一种或多种。更优选的是,陶瓷物质更优选包含堇青石,更优选由堇青石组成。

[0249] 优选的是,z在7至70的范围内,更优选在8至50的范围内,更优选在9至40的范围内,更优选在10至35的范围内。

[0250] 优选的是,在根据(b)煅烧之前,具有布置在其上的第一水性混合物的基底在具有90至250℃,更优选100至150℃的温度的气体气氛中干燥,该气体气氛更优选是空气。

[0251] 优选的是,干燥在气体气氛中进行10至360分钟,更优选20至240分钟的持续时间,该气体气氛更优选是空气。

[0252] 优选的是,根据(b)煅烧具有布置在其上的第一水性混合物的基底在具有400至900℃的温度的气体气氛中进行,该气体气氛更优选是空气。

[0253] 优选的是,根据(b)煅烧具有布置在其上的第一水性混合物的基底在气体气氛中进行5至360分钟的持续时间,该气体气氛更优选包含空气,更优选由空气组成。

[0254] 根据(a)制备的第一水性混合物的优选98至100重量%,更优选99至100重量%,更优选99.5至100重量%,更优选99.9至100重量%由水、铂族金属组分源和非沸石类氧化物型材料组成。

[0255] 关于根据(c)制备的第二水性混合物,优选的是,其中所含的含铜沸石材料具有选自ABW、ACO、AEI、AEL、AEN、AET、AFG、AFI、AFN、AFO、AFR、AFS、AFT、AFV、AFX、AFY、AHT、ANA、APC、APD、AST、ASV、ATN、ATO、ATS、ATT、ATV、AVL、AWO、AWW、BCT、BEA、BEC、BIK、BOF、BOG、BOZ、BPH、BRE、BSV、CAN、CAS、CDO、CFI、CGF、CGS、CHA、-CHI、-CLO、CON、CSV、CZP、DAC、DDR、DFO、DFT、DOH、DON、EAB、EDI、EEI、EMT、EON、EPI、ERI、ESV、ETR、EUO、*-EWT、EZT、FAR、FAU、FER、FRA、GIS、GIU、GME、GON、GOO、HEU、IFO、IFR、-IFU、IFW、IFY、IHW、IMF、IRN、IRR、-IRY、ISV、ITE、ITG、ITH、*-ITN、ITR、ITT、-ITV、ITW、IWR、IWS、IWW、JBW、JNT、JOZ、JRY、JSN、JSR、JST、JSW、KFI、LAU、LEV、LIO、-LIT、LOS、LOV、LTA、LTF、LTJ、LTL、LTN、MAR、MAZ、MEI、MEL、MEP、MER、MFI、MFS、MON、MOR、MOZ、*MRE、MSE、MSO、MTF、MTN、MTT、MTW、MVY、MWF、MWW、NAB、NAT、NES、NON、NPO、NPT、NSI、OBW、OFF、OKO、OSI、OSO、OWE、-PAR、PAU、PCR、PHI、PON、POS、PSI、PUN、

RHO、-RON、RRO、RSN、RTE、RTH、RUT、RWR、RWY、SAF、SAO、SAS、SAT、SAV、SBE、SBN、SBS、SBT、SEW、SFE、SFF、SFG、SFH、SFN、SFO、SFS、* SFV、SFW、SGT、SIV、SOD、SOF、SOS、SSF、* -SSO、SSY、STF、STI、* STO、STT、STW、-SVR、SVV、SZR、TER、THO、TOL、TON、TSC、TUN、UEI、UFI、UOS、UOV、UOZ、USI、UTL、UWY、VET、VFI、VNI、VSV、WEI、-WEN、YUG、ZON、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型。

[0256] 更优选的是,根据(c)制备的第二水性混合物中所含的含铜沸石材料具有选自CHA、AEI、RTH、LEV、DDR、KFI、ERI、AFX、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型,更优选选自CHA、AEI、RTH、AFX、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型,更优选选自CHA和AEI的骨架类型。更优选的是,根据(c)制备的第二水性混合物中所含的含铜沸石材料具有骨架类型CHA。

[0257] 或者,更优选的是,根据(c)制备的第二水性混合物中所含的含铜沸石材料具有选自FER、BEA、MFI、FAU、MOR、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型,更优选选自FER、BEA、MFI、FAU、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型的骨架类型。更优选的是,根据(c)制备的第二水性混合物中所含的所述含铜沸石材料具有骨架类型FER或BEA。

[0258] 沸石材料的骨架结构的优选95至100重量%,更优选98至100重量%,更优选99至100重量%由Si、Al、O和任选H组成。优选的是,在骨架结构中,以摩尔 $\text{SiO}_2:\text{Al}_2\text{O}_3$ 计算的Si与Al的摩尔比更优选在2:1至50:1的范围内,更优选在5:1至45:1的范围内,更优选在7:1至35:1的范围内,更优选在10:1至30:1的范围内,更优选在15:1至22:1的范围内或更优选在24:1至30:1的范围内。

[0259] 更优选的是,当根据(c)制备的第二水性混合物中所含的沸石材料具有骨架类型CHA或FER时,以摩尔 $\text{SiO}_2:\text{Al}_2\text{O}_3$ 计算的Si与Al的摩尔比在15:1至22:1的范围内。此外,更优选的是,当根据(c)制备的第二水性混合物中所含的沸石材料具有骨架类型BEA时,以摩尔 $\text{SiO}_2:\text{Al}_2\text{O}_3$ 计算的Si与Al的摩尔比在24:1至30:1的范围内。

[0260] 优选的是,根据(c)制备的第二水性混合物中所含的沸石材料,更优选具有骨架类型CHA的沸石材料,具有通过扫描电子显微术测定的至少0.1微米,优选在0.1至3.0微米的范围内,更优选在0.3至1.5微米的范围内,更优选在0.4至1.0微米的范围内的平均微晶尺寸。

[0261] 优选的是,根据(c)制备的第二水性混合物中所含的沸石材料具有在300至800 m^2/g 的范围内的BET比表面积,BET比表面积如参比例1中所述测定。

[0262] 更优选的是,根据(i)制备的第一水性混合物中所含的沸石材料,更优选具有骨架类型CHA的沸石材料,具有在400至700 m^2/g 的范围内,更优选在500至630 m^2/g 的范围内的BET比表面积,BET比表面积如参比例1中所述测定。

[0263] 更优选的是,根据(i)制备的第一水性混合物中所含的沸石材料,更优选具有骨架类型FER的沸石材料,具有在300至500 m^2/g 的范围内的BET比表面积,BET比表面积如参比例1中所述测定。

[0264] 更优选的是,根据(i)制备的第一水性混合物中所含的沸石材料,更优选具有骨架类型BEA的沸石材料,具有在600至800 m^2/g 的范围内的BET比表面积,BET比表面积如参比例1中所述测定。

[0265] 优选的是,基于根据(c)制备的第二水性混合物中所含的沸石材料的重量计,根据(c)制备的第二水性混合物中所含的沸石材料中包含的以CuO计算的铜量在1.5至15重量%的范围内,更优选在2至10重量%的范围内。

[0266] 更优选的是,基于根据(c)制备的第二水性混合物中所含的沸石材料的重量计,根据(c)制备的第二水性混合物中所含的沸石材料中包含的以CuO计算的铜量在3至8重量%的范围内,更优选在4.5至7重量%的范围内,更优选在4.6至6重量%的范围内,更优选在4.8至5.5重量%的范围内。

[0267] 也更优选的是,基于根据(c)制备的第二水性混合物中所含的沸石材料的重量计,根据(c)制备的第二水性混合物中所含的沸石材料中包含的以CuO计算的铜量在2.5至6重量%的范围内,更优选在3至5重量%的范围内,更优选在3.2至4重量%的范围内。

[0268] 更优选的是,当根据(c)制备的第二水性混合物中所含的沸石材料具有骨架类型CHA时,基于根据(c)制备的第二水性混合物中所含的沸石材料的重量计,所述第二涂层中所含的沸石材料中包含的以CuO计算的铜量在3至8重量%的范围内,更优选在4.5至7重量%的范围内,更优选在4.6至6重量%的范围内,更优选在4.8至5.5重量%的范围内。

[0269] 更优选的是,当根据(c)制备的第二水性混合物中所含的沸石材料具有骨架类型FER或BEA时,基于根据(c)制备的第二水性混合物中所含的沸石材料的重量计,所述第二涂层中所含的沸石材料中包含的以CuO计算的铜量在2.5至6重量%的范围内,更优选在3至5重量%的范围内,更优选在3.2至4重量%的范围内。

[0270] 优选的是,根据(c)制备的第二水性混合物进一步包含氧化物型组分的前体,其中所述前体更优选是铝盐、硅盐、锆盐和钛盐中的一种或多种,更优选锆盐和铝盐中的一种或多种,更优选锆盐。更优选的是,该前体是乙酸锆。

[0271] 优选的是,在根据(c)制备的第二水性混合物中,以氧化物,更优选以氧化铝、二氧化硅、氧化锆或二氧化钛计算的氧化物型组分的前体的量,更优选以 ZrO_2 计算的锆盐的量在1至10重量%的范围内,更优选在2至8重量%的范围内,更优选在3至7重量%的范围内,基于根据(c)制备的第二水性混合物中所含的沸石材料的重量计。

[0272] 优选的是,根据(c)制备的第二水性混合物中所含的水是去离子水。

[0273] 优选的是,根据(c)制备的第二水性混合物包含最多1000ppm,更优选0至100ppm,更优选0至10ppm的以元素铁计算的铁。换言之,优选的是,根据(c)制备的第二水性混合物基本不含铁,更优选不含铁。

[0274] 根据(c)制备的第二水性混合物的优选98至100重量%,更优选99至100重量%,更优选99.5至100重量%,更优选99.9至100重量%由水、含铜沸石材料和更优选如上文定义的氧化物的前体组成。

[0275] 优选的是,在根据(c)制备第二水性混合物之后和在将所述混合物布置在根据(b)获得的基底上之前,将第二水性混合物研磨或混合,更优选直至第二水性混合物的粒子具有在3至20微米的范围内,更优选在5至15微米的范围内,更优选在6至8微米的范围内或更优选在9至12微米的范围内的 Dv_{90} , Dv_{90} 如参比例2中所述测定。

[0276] 优选的是,x在90至100的范围内,更优选在95至100的范围内,更优选在98至100的范围内,更优选在99至100的范围内。

[0277] 优选的是,在根据(d)煅烧之前,具有布置在其上的第二水性混合物的基底在具有

90至250℃,更优选100至150℃的温度的气体气氛中干燥,该气体气氛更优选是空气。

[0278] 优选的是,干燥在气体气氛中进行10至360分钟,更优选20至240分钟,更优选30至90分钟的持续时间,该气体气氛更优选是空气。

[0279] 优选的是,根据(d)煅烧具有布置在其上的第二水性混合物的基底在具有400至800℃,更优选500至700℃,更优选550至650℃的温度的气体气氛中进行,该气体气氛更优选是空气。

[0280] 关于根据(d)煅烧具有布置在其上的第二水性混合物的基底,优选的是,其在气体气氛中进行5至360分钟,更优选20至240分钟,更优选30至90分钟的持续时间,该气体气氛更优选包含空气,更优选由空气组成。

[0281] 优选的是,根据(d)获得的包含含有含铜沸石材料的第二涂层的基底具有在1至5g/in³的范围内,更优选在1.5至4g/in³的范围内,更优选在2至3.5g/in³的范围内的水吸附量,该量以相对于第二涂层体积的H₂O重量表示,水吸附量如参比例5中定义的测定。

[0282] 优选的是,根据(e)制备的第三水性混合物中所含的铁盐是硝酸铁(III)、乙酸铁(II)、柠檬酸铵铁(III)、硫酸铁(II)和草酸铁(II)中的一种或多种,更优选硝酸铁(III),更优选九水合硝酸铁(III)。

[0283] 关于根据(e)制备的第三水性混合物,优选的是,其包含基于根据(e)制备的第三水性混合物的重量计在4至40重量%的范围内,更优选在7至30重量%的范围内,更优选在10至25重量%的范围内,更优选在13至22重量%的范围内,更优选在15至20重量%的范围内的以 Fe_2O_3 计算的量的铁盐。

[0284] 优选的是,根据(e)制备的第三水性混合物中所含的水是去离子水。

[0285] 根据(e)制备的第三水性混合物的优选98至100重量%,更优选99至100重量%,更优选99.5至100重量%,更优选99.9至100重量%由水和铁盐组成。

[0286] 优选的是,根据(f)将根据(e)获得的第三水性混合物布置在根据(d)获得的基底上包括将根据(d)获得的包含含有含铜沸石材料的第二涂层的基底浸渍到根据(e)制备的第三水性混合物中,更优选持续5至120秒,更优选7至80秒,更优选9至60秒,更优选10至50秒。

[0287] 优选的是, y 在 20 至 x 的范围内。更优选的是, y 在 20 至 60 的范围内, 更优选在 40 至 60 的范围内。或者更优选的是, y 在 80 至 x 的范围内, 更优选在 90 至 x 的范围内, 更优选 $x=y$ 。

[0288] 优选的是,在根据(g)煅烧之前,(f)中获得的基底在具有80至250℃,更优选90至200℃,更优选100至150℃,更优选110至130℃的温度的气体气氛中干燥。

[0289] 优选的是,干燥在气体气氛中进行10至180分钟,更优选20至120分钟,更优选30至90分钟,更优选40至80分钟的持续时间。

[0290] 关于气体气氛,优选的是,其包含空气,更优选由空气组成。

[0291] 优选的是,根据(g)的煅烧在具有400至800℃,更优选450至700℃,更优选500至650℃,更优选550至650℃的温度的气体气氛中进行。

[0292] 优选的是,根据(g)的煅烧在气体气氛中进行10至180分钟,更优选20至120分钟,更优选30至90分钟,更优选40至80分钟的持续时间。

[0293] 关于气体气氛,优选的是,其包含空气,更优选由空气组成。

[0294] 优选的是,本发明的方法由(a)、(b)、(c)、(d)、(e)、(f)和(g)组成。

[0295] 通过以下第一组实施方案和由所示从属关系和反向引用得出的实施方案的组合进一步阐明本发明。特别地,在本发明中要指出,在提到一系列实施方案的每种情况下,例如在如“实施方案1至4任一项的方法”之类的术语中,意在向技术人员明确公开这一系列中的每个实施方案,即这一术语的措辞应被技术人员理解为与“实施方案1、2、3和4任一项的方法”同义。此外,要明确指出,下组实施方案不是决定保护范围的一套权利要求,而是代表涉及本发明的一般和优选方面的描述的适当结构化部分。要指出,这也适用于第二组实施方案。

[0296] 1.一种制备用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂的方法,所述催化剂包含含有铁和含铜沸石材料的涂层,所述方法包括

[0297] (i) 制备包含水和含铜沸石材料的第一水性混合物;

[0298] (ii) 在从基底的入口端至出口端的基底轴向长度的 $x\%$ 上,将根据(i)获得的第一水性混合物布置在基底的内壁表面上,所述基底包含入口端、出口端、从入口端延伸到出口端的基底轴向长度和由贯穿其中的基底内壁界定的多个通道,其中 x 在80至100的范围内;煅烧具有布置在其上的第一水性混合物的基底,获得包含涂层的基底,所述涂层包含含铜沸石材料;

[0299] (iii) 制备包含水和铁盐的第二水性混合物;

[0300] (iv) 在从基底的入口端至出口端的基底轴向长度的 $y\%$ 上,将根据(iii)获得的第二水性混合物布置在根据(ii)获得的基底上,其中 y 在10至 x 的范围内,获得如下基底,其包含:在第一区域中,包含含铜沸石材料和在基底轴向长度的 $y\%$ 上的铁盐的涂层;和如果 $x > y$,在从入口端至出口端的基底轴向长度的 $y\%$ 延伸到 $x\%$ 的第二区域中,包含含铜沸石材料的涂层;

[0301] (v) 煅烧根据(iv)获得的基底。

[0302] 2.实施方案1的方法,其中根据(i)制备的水性混合物中所含的含铜沸石材料的骨架类型选自ABW、ACO、AEI、AEL、AEN、AET、AFG、AFI、AFN、AFO、AFR、AFS、AFT、AFV、AFX、AFY、AHT、ANA、APC、APD、AST、ASV、ATN、ATO、ATS、ATT、ATV、AVL、AWO、AWW、BCT、BEA、BEC、BIK、BOF、BOG、BOZ、BPH、BRE、BSV、CAN、CAS、CDO、CFI、CGF、CGS、CHA、-CHI、-CLO、CON、CSV、CZP、DAC、DDR、DFO、DFT、DOH、DON、EAB、EDI、EEI、EMT、EON、EPI、ERI、ESV、ETR、EUO、*-EWT、EZT、FAR、FAU、FER、FRA、GIS、GIU、GME、GON、GOO、HEU、IFO、IFR、-IFU、IFW、IFY、IHW、IMF、IRN、IRR、-IRY、ISV、ITE、ITG、ITH、*-ITN、ITR、ITT、-ITV、ITW、IWR、IWS、IWV、IWW、JBW、JNT、JOZ、JRY、JSN、JSR、JST、JSW、KFI、LAU、LEV、LIO、-LIT、LOS、LOV、LTA、LTF、LTJ、LTL、LTN、MAR、MAZ、MEI、MEL、MEP、MER、MFI、MFS、MON、MOR、MOZ、*MRE、MSE、MSO、MTF、MTN、MTT、MTW、MVY、MWF、MWW、NAB、NAT、NES、NON、NPO、NPT、NSI、OBW、OFF、OKO、OSI、OSO、OWE、-PAR、PAU、PCR、PHI、PON、POS、PSI、PUN、RHO、-RON、RRO、RSN、RTE、RTH、RUT、RWR、RWY、SAF、SAO、SAS、SAT、SAV、SBE、SBN、SBS、SBT、SEW、SFE、SFF、SFG、SFH、SFN、SFO、SFS、*SFV、SFW、SGT、SIV、SOD、SOF、SOS、SSF、*-SSO、SSY、STF、STI、*STO、STT、STW、-SVR、SVV、SZR、TER、THO、TOL、TON、TSC、TUN、UEI、UFI、UOS、UOV、UOZ、USI、UTL、UWY、VET、VFI、VNI、VSV、WEI、-WEN、YUG、ZON、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型,

[0303] 优选选自CHA、AEI、RTH、LEV、DDR、KFI、ERI、AFX、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型,更优选选自CHA、AEI、RTH、AFX、其中两种或更多种的混合物和

其中两种或更多种的混合类型,更优选选自CHA和AEI,其中根据(i)制备的第一水性混合物中所含的含铜沸石材料更优选具有骨架类型CHA,或

[0304] 优选选自FER、BEA、MFI、FAU、MOR、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型,更优选选自FER、BEA、MFI、FAU、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型,其中根据(i)制备的第一水性混合物中所含的含铜沸石材料更优选具有骨架类型FER或BEA。

[0305] 3.实施方案2的方法,其中沸石材料的骨架结构的95至100重量%,优选98至100重量%,更优选99至100重量%由Si、Al、O和任选H组成,其中在骨架结构中,以摩尔 $\text{SiO}_2:\text{Al}_2\text{O}_3$ 计算的Si与Al的摩尔比优选在2:1至50:1的范围内,更优选在5:1至45:1的范围内,更优选在7:1至35:1的范围内,更优选在10:1至30:1的范围内,更优选在15:1至22:1的范围内或更优选在24:1至30:1的范围内。

[0306] 4.实施方案1至3任一项的方法,其中根据(i)制备的第一水性混合物中所含的沸石材料,优选具有骨架类型CHA的沸石材料,具有通过扫描电子显微术测定的至少0.1微米,优选在0.1至3.0微米的范围内,更优选在0.3至1.5微米的范围内,更优选在0.4至1.0微米的范围内的平均微晶尺寸。

[0307] 5.实施方案1至4任一项的方法,其中根据(i)制备的第一水性混合物中所含的沸石材料,优选具有骨架类型CHA的沸石材料,具有在300至800 m^2/g 的范围内的BET比表面积,BET比表面积如参比例1中所述测定。

[0308] 6.实施方案5的方法,其中根据(i)制备的第一水性混合物中所含的沸石材料,优选具有骨架类型CHA的沸石材料,具有在400至700 m^2/g 的范围内,优选在500至630 m^2/g 的范围内的BET比表面积,BET比表面积如参比例1中所述测定。

[0309] 7.实施方案1至6任一项的方法,其中基于根据(i)制备的第一水性混合物中所含的沸石材料的重量计,根据(i)制备的第一水性混合物中所含的沸石材料中包含的以CuO计算的铜量在1.5至15重量%的范围内,优选在2至10重量%的范围内,

[0310] 其中基于根据(i)制备的第一水性混合物中所含的沸石材料的重量计,根据(i)制备的第一水性混合物中所含的沸石材料中包含的以CuO计算的铜量更优选在3至8重量%的范围内,更优选在4.5至7重量%的范围内,更优选在4.6至6重量%的范围内,更优选在4.8至5.5重量%的范围内,或

[0311] 基于根据(i)制备的第一水性混合物中所含的沸石材料的重量计,更优选在3.2至4重量%的范围内。

[0312] 8.实施方案1至7任一项的方法,其中根据(i)制备的第一水性混合物进一步包含氧化物型组分的前体,其中所述前体优选是铝盐、硅盐、锆盐和钛盐中的一种或多种,更优选锆盐和铝盐中的一种或多种,更优选锆盐,更优选乙酸锆。

[0313] 9.实施方案8的方法,其中在根据(i)制备的第一水性混合物中,以氧化物,优选以氧化铝、二氧化硅、氧化锆或二氧化钛计算的氧化物型组分的前体的量,优选以 ZrO_2 计算的锆盐的量在1至10重量%的范围内,优选在2至8重量%的范围内,更优选在3至7重量%的范围内,基于根据(i)制备的第一水性混合物中所含的沸石材料的重量计。

[0314] 10.实施方案1至9任一项的方法,其中根据(i)制备的第一水性混合物中所含的水是去离子水。

[0315] 11. 实施方案1至10任一项的方法, 其中根据(i)制备的第一水性混合物包含最多1000ppm, 优选0至100ppm, 更优选0至10ppm的以元素铁计算的铁。

[0316] 12. 实施方案1至11任一项的方法, 其中根据(i)制备的第一水性混合物的98至100重量%, 优选99至100重量%, 更优选99.5至100重量%, 更优选99.9至100重量%由水、含铜沸石材料和优选如实施方案8或9中定义的氧化物的前体组成。

[0317] 13. 实施方案1至12任一项的方法, 其中在根据(i)制备第一水性混合物之后和在根据(ii)将所述混合物布置在基底上之前, 将第一水性混合物研磨或混合, 优选直至第一水性混合物的粒子具有在3至20微米的范围内, 更优选在5至15微米的范围内, 更优选6至8微米或更优选在9至12微米的范围内的Dv90, Dv90如参比例2中所述测定。

[0318] 14. 实施方案1至13任一项的方法, 其中(ii)中提供的基底是流通型基底或壁流式过滤器基底, 优选流通型基底。

[0319] 15. 实施方案1至14任一项的方法, 其中(ii)中提供的基底包含陶瓷物质, 优选由陶瓷物质组成, 其中陶瓷物质优选包含以下这些, 更优选由以下这些组成: 氧化铝、二氧化硅、硅酸盐、铝硅酸盐、堇青石、莫来石、铝钛酸盐、碳化硅、氧化锆、氧化镁, 更优选尖晶石, 和二氧化钛中的一种或多种, 更优选碳化硅和堇青石中的一种或多种, 更优选堇青石。

[0320] 16. 实施方案1至15任一项的方法, 其中x在90至100的范围内, 优选在95至100的范围内, 更优选在98至100的范围内, 更优选在99至100的范围内。

[0321] 17. 实施方案1至16任一项的方法, 其中在根据(ii)煅烧之前, 具有布置在其上的第一水性混合物的基底在具有90至250℃, 优选100至150℃的温度的气体气氛中干燥, 所述气体气氛更优选是空气;

[0322] 其中干燥优选进行10至360分钟, 更优选20至240分钟, 更优选30至90分钟的持续时间。

[0323] 18. 实施方案1至17任一项的方法, 其中根据(ii)煅烧具有布置在其上的第一水性混合物的基底在具有400至800℃, 优选500至700℃, 更优选550至650℃的温度的气体气氛中进行, 所述气体气氛更优选是空气。

[0324] 19. 实施方案1至18任一项的方法, 其中根据(ii)煅烧具有布置在其上的第一水性混合物的基底在气体气氛中进行5至360分钟, 优选20至240分钟, 更优选30至90分钟的持续时间, 所述气体气氛更优选包含空气, 更优选由空气组成。

[0325] 20. 实施方案1至19任一项的方法, 其中根据(ii)获得的包含含有含铜沸石材料的涂层的基底具有在1至5g/in³的范围内, 优选在1.5至4g/in³的范围内, 更优选在2至3.5g/in³的范围内, 以相对于涂层体积的H₂O重量表示量, 水吸附量如参比例5中定义的测定。

[0326] 21. 实施方案1至20任一项的方法, 其中根据(iii)制备的第二水性混合物中所含的铁盐是硝酸铁(III)、乙酸铁(II)、柠檬酸铵铁(III)、硫酸铁(II)和草酸铁(II)中的一种或多种, 优选硝酸铁(III), 更优选九水合硝酸铁(III)。

[0327] 22. 实施方案1至21任一项的方法, 其中根据(iii)制备的第二水性混合物包含基于根据(iii)制备的第二水性混合物的重量计在4至40重量%的范围内, 优选在7至30重量%的范围内, 更优选在10至25重量%的范围内, 更优选在13至22重量%的范围内, 更优选在15至20重量%的范围内的以Fe₂O₃计算的量的铁盐。

[0328] 23. 实施方案1至22任一项的方法, 其中根据(iii)制备的第二水性混合物中所含的水是去离子水。

[0329] 24. 实施方案1至23任一项的方法, 其中根据(iii)制备的第二水性混合物的98至100重量%, 优选99至100重量%, 更优选99.5至100重量%, 更优选99.9至100重量%由水和铁盐组成。

[0330] 25. 实施方案1至24任一项的方法, 其中根据(iv)将根据(iii)获得的第二水性混合物布置在根据(ii)获得的基底上包括将根据(ii)获得的包含含有含铜沸石材料的涂层的基底浸渍到根据(iii)制备的第二水性混合物中, 优选持续5至120秒, 更优选7至80秒, 更优选9至60秒, 更优选10至50秒。

[0331] 26. 实施方案1至25任一项的方法, 其中y在20至x的范围内, 优选在20至60的范围内, 更优选在40至60的范围内, 或优选在80至x的范围内, 更优选在90至x的范围内, 更优选 $x=y$ 。

[0332] 27. 实施方案1至26任一项的方法, 其中在根据(v)煅烧之前, (iv)中获得的基底在具有80至250°C, 优选90至200°C, 更优选100至150°C, 更优选110至130°C的温度的气体气氛中干燥。

[0333] 28. 实施方案27的方法, 其中干燥在气体气氛中进行10至180分钟, 优选20至120分钟, 更优选30至90分钟, 更优选40至80分钟的持续时间。

[0334] 29. 实施方案27或28的方法, 其中所述气体气氛包含空气, 优选由空气组成。

[0335] 30. 实施方案1至29任一项的方法, 其中根据(v)的煅烧在具有400至800°C, 优选450至700°C, 更优选500至650°C, 更优选550至650°C的温度的气体气氛中进行。

[0336] 31. 实施方案1至30任一项的方法, 其中根据(v)的煅烧在气体气氛中进行10至180分钟, 优选20至120分钟, 更优选30至90分钟, 更优选40至80分钟的持续时间。

[0337] 32. 实施方案30或31的方法, 其中所述气体气氛包含空气, 优选由空气组成。

[0338] 33. 实施方案1至32任一项的方法, 其由(i)、(ii)、(iii)、(iv)和(v)组成。

[0339] 34. 一种用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂, 优选通过根据实施方案1至33任一项的方法可获得或获得的催化剂, 其包含

[0340] (a) 基底, 其包含入口端、出口端、从入口端延伸到出口端的基底轴向长度和由贯穿其中的基底内壁界定的多个通道;

[0341] (b) 从基底(a)的入口端至出口端在基底轴向长度的x%上布置在基底(a)的内壁表面上的涂层, 其中x在80至100的范围内, 所述涂层包含含铜沸石材料;

[0342] 其中所述催化剂表现出一个或多个区域:

[0343] (b.1) 从基底(a)的入口端至出口端延伸基底轴向长度的y%的第一区域, 其中y在10至x的范围内; 其中第一区域包含含有含铜沸石材料的涂层, 其中, 在所述区域中, 所述涂层进一步包含铁;

[0344] (b.2) 如果 $x>y$, 从基底(a)的入口端至出口端的基底轴向长度的y%延伸到x%的第二区域, 其中第二区域包含含有含铜沸石材料的涂层。

[0345] 35. 实施方案34的催化剂, 其中涂层中所含的含铜沸石材料的骨架类型选自ABW、ACO、AEI、AEL、AEN、AET、AFG、AFI、AFN、AFO、AFR、AFS、AFT、AFV、AFX、AFY、AHT、ANA、APC、APD、AST、ASV、ATN、ATO、ATS、ATT、ATV、AVL、AWO、AWW、BCT、BEA、BEC、BIK、BOF、BOG、BOZ、BPH、BRE、

BSV、CAN、CAS、CDO、CFI、CGF、CGS、CHA、-CHI、-CLO、CON、CSV、CZP、DAC、DDR、DFO、DFT、DOH、DON、EAB、EDI、EEI、EMT、EON、EPI、ERI、ESV、ETR、EUO、* -EWT、EZT、FAR、FAU、FER、FRA、GIS、GIU、GME、GON、GOO、HEU、IFO、IFR、-IFU、IFW、IFY、IHW、IMF、IRN、IRR、-IRY、ISV、ITE、ITG、ITH、* -ITN、ITR、ITT、-ITV、ITW、IWR、IWS、IWV、IWW、JBW、JNT、JOZ、JRY、JSN、JSR、JST、JSW、KFI、LAU、LEV、LIO、-LIT、LOS、LOV、LTA、LTF、LTJ、LTL、LTN、MAR、MAZ、MEI、MEL、MEP、MER、MFI、MFS、MON、MOR、MOZ、* MRE、MSE、MSO、MTF、MTN、MTT、MTW、MVY、MWF、MWW、NAB、NAT、NES、NON、NPO、NPT、NSI、OBW、OFF、OKO、OSI、OSO、OWE、-PAR、PAU、PCR、PHI、PON、POS、PSI、PUN、RHO、-RON、RRO、RSN、RTE、RTH、RUT、RWR、RWY、SAF、SAO、SAS、SAT、SAV、SBE、SBN、SBS、SBT、SEW、SFE、SFF、SFG、SFH、SFN、SFO、SFS、* SFV、SFW、SGT、SIV、SOD、SOF、SOS、SSF、* -SSO、SSY、STF、STI、* STO、STT、STW、-SVR、SVV、SZR、TER、THO、TOL、TON、TSC、TUN、UEI、UFI、UOS、UOV、UOZ、USI、UTL、UWY、VET、VFI、VNI、VSV、WEI、-WEN、YUG、ZON、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型，优选选自CHA、AEI、RTH、LEV、DDR、KFI、ERI、AFX、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型，更优选选自CHA、AEI、RTH、AFX、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型，更优选选自CHA和AEI，其中涂层中所含的含铜沸石材料更优选具有骨架类型CHA；或

[0346] 优选选自FER、BEA、MFI、FAU、MOR、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型，更优选选自FER、BEA、MFI、FAU、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型，其中涂层中所含的含铜沸石材料更优选具有骨架类型FER或BEA。

[0347] 36. 实施方案34或35的催化剂，其中沸石材料的骨架结构的95至100重量%，优选98至100重量%，更优选99至100重量%由Si、Al、O和任选H组成，其中在骨架结构中，以摩尔 $\text{SiO}_2:\text{Al}_2\text{O}_3$ 计算的Si与Al的摩尔比优选在2:1至50:1的范围内，更优选在5:1至45:1的范围内，更优选在7:1至35:1的范围内，更优选在10:1至30:1的范围内，更优选在15:1至22:1的范围内或更优选在24:1至30:1的范围内。

[0348] 37. 实施方案34至36任一项的催化剂，其中涂层中所含的沸石材料，优选具有骨架类型CHA的沸石材料，具有通过扫描电子显微术测定的至少0.1微米，优选在0.1至3.0微米的范围内，更优选在0.3至1.5微米的范围内，更优选在0.4至1.0微米的范围内的平均微晶尺寸。

[0349] 38. 实施方案34至37任一项的催化剂，其中基于涂层中所含的沸石材料的重量计，涂层中所含的沸石材料中包含的以CuO计算的铜量在1.5至15重量%的范围内，优选在2至10重量%的范围内；

[0350] 其中基于涂层中所含的沸石材料的重量计，涂层中所含的沸石材料中包含的以CuO计算的铜量更优选在3至8重量%的范围内，更优选在4.5至7重量%的范围内，更优选在4.6至6重量%的范围内，更优选在4.8至5.5重量%的范围内；或

[0351] 基于涂层中所含的沸石材料的重量计，更优选在3.2至4重量%的范围内。

[0352] 39. 实施方案34至38任一项的催化剂，其中所述涂层进一步包含氧化物型组分，其中所述氧化物型组分优选是氧化铝、二氧化硅、氧化锆和二氧化钛中的一种或多种，更优选氧化锆和氧化铝中的一种或多种，更优选氧化锆。

[0353] 40. 实施方案39的催化剂，其中基于涂层中所含的沸石材料的重量计，以氧化物型组分的量，优选以 ZrO_2 计算的氧化锆的量在1至10重量%的范围内，优选在2

至8重量%的范围内,更优选在3至7重量%的范围内。

[0354] 41.实施方案34至40任一项的催化剂,其中x在90至100的范围内,优选在95至100的范围内,更优选在98至100的范围内,更优选在99至100的范围内。

[0355] 42.实施方案34至41任一项的催化剂,其中所述涂层的载量在1至6g/in³的范围内,优选在1.5至4g/in³的范围内,更优选在1.75至3g/in³的范围内。

[0356] 43.实施方案34至42任一项的催化剂,其中y在20至x的范围内,优选在20至60的范围内,更优选在40至60的范围内,或优选在80至x的范围内,更优选在90至x的范围内,更优选x=y。

[0357] 44.实施方案34至43任一项的催化剂,其中第一区域中所含的涂层包含基于沸石材料,优选具有骨架类型CHA的沸石材料的重量计,在0.5至3.5重量%的范围内,优选在1至3重量%的范围内,更优选在1.5至2.5重量%的范围内或优选在3.1至3.3重量%的范围内量的铁。

[0358] 45.实施方案34至44任一项的催化剂,其中第一区域中所含的涂层的98至100重量%,优选99至100重量%,更优选99.5至100重量%,更优选99.9至100重量%由铁、含铜沸石材料和优选如实施方案39或40中定义的氧化物型组分组成。

[0359] 46.实施方案34至45任一项的催化剂,其中所述催化剂表现出两个区域。

[0360] 47.实施方案34至46任一项的催化剂,其中x>y。

[0361] 48.实施方案47的催化剂,其中第二区域中所含的涂层的0至0.001重量%,优选0至0.0001重量%,更优选0至0.00001重量%由铁组成,以Fe₂O₃计算。

[0362] 49.实施方案47或48的催化剂,其中第二区域中所含的涂层的98至100重量%,优选99至100重量%,更优选99.5至100重量%,更优选99.9至100重量%由含铜沸石材料和优选如实施方案39或40中定义的氧化物型组分组成。

[0363] 50.实施方案34至49任一项的催化剂,其中所述涂层的0至0.001重量%,优选0至0.0001重量%,更优选0至0.00001重量%由钒组成。

[0364] 51.实施方案34至50任一项的催化剂,其中所述涂层的0至0.001重量%,优选0至0.0001重量%,更优选0至0.00001重量%由任意铂族金属组成。

[0365] 52.实施方案34至51任一项的催化剂,其中基底(a)是流通型基底或壁流式过滤器基底,优选流通型基底。

[0366] 53.实施方案34至52任一项的催化剂,其中基底(a)包含陶瓷物质,优选由陶瓷物质组成,其中陶瓷物质优选包含以下这些,更优选由以下这些组成:氧化铝、二氧化硅、硅酸盐、铝硅酸盐、堇青石、莫来石、铝钛酸盐、碳化硅、氧化锆、氧化镁,更优选尖晶石,和二氧化钛中的一种或多种,更优选碳化硅和堇青石中的一种或多种。

[0367] 54.实施方案53的催化剂,其中所述陶瓷物质包含堇青石,优选由堇青石组成。

[0368] 55.实施方案34至54任一项的催化剂,其由基底(a)和涂层(b)组成。

[0369] 56.实施方案34至55任一项的催化剂用于氮氧化物,优选出自柴油机的氮氧化物的选择性催化还原的用途。

[0370] 57.一种选择性催化还原氮氧化物的方法,其中所述氮氧化物包含在排气料流中,所述方法包括

[0371] (1) 提供排气料流,优选来自柴油机的排气料流;

[0372] (2)使(1)中提供的排气料流经过根据实施方案34至55任一项的用于选择性催化还原的催化剂。

[0373] 58.一种用于处理出自内燃机,优选出自柴油机的排气的排气处理系统,所述系统包含根据实施方案34至55任一项的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂和以下一种或多种:柴油机氧化催化剂、氨氧化催化剂、选择性催化还原催化剂、催化滤烟器和SCR/AMOX催化剂。

[0374] 59.实施方案58的系统,其包含柴油机氧化催化剂、催化滤烟器和根据实施方案34至55任一项的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂,其中柴油机氧化催化剂位于催化滤烟器上游,并且其中催化滤烟器位于根据实施方案34至55任一项的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂上游;其中柴油机氧化催化剂优选是所述系统的第一催化剂,优选在发动机和柴油机氧化催化剂之间不存在催化剂。

[0375] 60.实施方案59的系统,其中所述系统进一步包含位于根据实施方案34至55任一项的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂下游的选择性催化还原催化剂;其中所述系统优选进一步包含氨氧化催化剂,所述氨氧化催化剂位于选择性催化还原催化剂下游。

[0376] 61.实施方案59或60的系统,其进一步包含还原剂喷射器,所述还原剂喷射器位于催化滤烟器下游和根据实施方案34至55任一项的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂上游,其中还原剂优选是脲。

[0377] 62.实施方案58的系统,其包含柴油机氧化催化剂、催化滤烟器和根据实施方案34至55任一项的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂,其中柴油机氧化催化剂位于根据实施方案34至55任一项的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂上游,并且其中根据实施方案34至55任一项的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂位于催化滤烟器上游;其中柴油机氧化催化剂优选是所述系统的第一催化剂,优选在发动机和柴油机氧化催化剂之间不存在催化剂。

[0378] 63.实施方案62的系统,其中所述系统进一步包含位于根据实施方案34至55任一项的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂下游和催化滤烟器上游的选择性催化还原催化剂;

[0379] 其中所述系统优选进一步包含氨氧化催化剂,所述氨氧化催化剂位于选择性催化还原催化剂下游和催化滤烟器上游。

[0380] 64.实施方案62或63的系统,其中所述系统进一步包含位于催化滤烟器下游的SCR/AMOX催化剂,其中所述系统优选进一步包含位于SCR/AMOX催化剂上游和催化滤烟器下游的还原剂喷射器,还原剂更优选是脲。

[0381] 65.实施方案62至64任一项的系统,其进一步包含还原剂喷射器,所述还原剂喷射器位于柴油机氧化催化剂下游和根据实施方案34至55任一项的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂上游,其中还原剂优选是脲。

[0382] 66.实施方案58的系统,其包含根据实施方案34至55任一项的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂和催化滤烟器,其中根据实施方案34至55任一项的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂位于催化滤烟器上游;其中根据实施方案34至55任一项的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂优选是所述系统的第一催化剂,优选在发动机和根据实施方案34至55任一项的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂之间不存在催化剂。

[0383] 67. 实施方案66的系统, 其中所述系统进一步包含位于根据实施方案34至55任一项的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂下游和催化滤烟器上游的选择性催化还原催化剂;

[0384] 其中所述系统优选进一步包含氨氧化催化剂, 所述氨氧化催化剂位于选择性催化还原催化剂下游和催化滤烟器上游。

[0385] 68. 实施方案66或67的系统, 其进一步包含第一还原剂喷射器, 第一还原剂喷射器位于根据实施方案34至55任一项的用于氮氧化物的选择性催化还原的催化剂上游, 其中还原剂优选是脲。

[0386] 69. 实施方案66至68任一项的系统, 其中所述系统进一步包含位于催化滤烟器下游的SCR/AMOX催化剂, 其中所述系统优选进一步包含位于SCR/AMOX催化剂上游和催化滤烟器下游的还原剂喷射器, 还原剂更优选是脲。

[0387] 通过以下第二组实施方案和由所示从属关系和反向引用得出的实施方案的组合进一步阐明本发明。

[0388] 1'. 一种排气处理催化剂, 其包含

[0389] (a) 基底, 其包含入口端、出口端、从入口端延伸到出口端的基底轴向长度和由贯穿其中的基底内壁界定的多个通道;

[0390] (b) 在从基底(a)的出口端至入口端的基底轴向长度的z%上布置在基底(a)的内壁表面上的第一涂层, 其中z在5至100的范围内, 所述涂层包含氨氧化催化剂;

[0391] (c) 在从基底(a)的入口端至出口端的基底轴向长度的x%上, 布置在第一涂层上或布置在第一涂层和基底的内壁表面上的第二涂层, 其中x在80至100的范围内, 所述涂层包含含铜沸石材料;

[0392] 其中所述催化剂表现出一个或多个区域:

[0393] (b.1) 从基底(a)的入口端至出口端延伸基底轴向长度的y%的第一区域, 其中y在10至x的范围内; 其中第一区域包含含有含铜沸石材料的第二涂层, 其中, 在所述区域中, 第二涂层进一步包含铁;

[0394] (b.2) 如果 $x > y$, 从基底(a)的入口端至出口端的基底轴向长度的y%延伸到x%的第二区域, 其中第二区域包含含有含铜沸石材料的第二涂层。

[0395] 2'. 实施方案1'的催化剂, 其中z在7至70的范围内, 优选在8至50的范围内, 更优选在9至40的范围内, 更优选在10至35的范围内, 其中第一区域优选不含第一涂层。

[0396] 3'. 实施方案1'或2'的催化剂, 其中所述氨氧化催化剂包含铂族金属组分, 其中铂族金属组分是铂、钯、铑、钌和铱中的一种或多种, 优选铂、钯和铑中的一种或多种, 更优选铂和钯中的一种或多种, 更优选铂。

[0397] 4'. 实施方案3'的催化剂, 其中所述氨氧化催化剂进一步包含负载铂族金属组分的非沸石类氧化物型材料, 其中所述非沸石类氧化物型材料优选包含氧化铝、二氧化硅、二氧化钛和氧化锆中的一种或多种, 更优选氧化铝、二氧化硅和二氧化钛中的一种或多种, 更优选氧化铝和二氧化硅中的一种或多种, 其中所述非沸石类氧化物型材料更优选包含氧化铝,

[0398] 其中氨氧化催化剂的98至100重量%, 优选99至100重量%, 更优选99.5至100重量%, 更优选99.9至100重量%由铂族金属组分和非沸石类氧化物型材料组成。

[0399] 5'.实施方案1'至4'任一项的催化剂,其中所述催化剂包含0.25至10g/in³,优选0.5至8g/in³,更优选1至5g/in³的载量的第一涂层。

[0400] 6'.实施方案1'至5'任一项的催化剂,其中第一涂层的98至100重量%,优选99至100重量%,更优选99.5至100重量%,更优选99.9至100重量%由氨氧化催化剂组成。

[0401] 7'.实施方案1'至6'任一项的催化剂,其中第二涂层中所含的含铜沸石材料的骨架类型选自ABW、ACO、AEI、AEL、AEN、AET、AFG、AFI、AFN、AFO、AFR、AFS、AFT、AFV、AFX、AFY、AHT、ANA、APC、APD、AST、ASV、ATN、ATO、ATS、ATT、ATV、AVL、AWO、AWW、BCT、BEA、BEC、BIK、BOF、BOG、BOZ、BPH、BRE、BSV、CAN、CAS、CDO、CFI、CGF、CGS、CHA、-CHI、-CLO、CON、CSV、CZP、DAC、DDR、DFO、DFT、DOH、DON、EAB、EDI、EEI、EMT、EON、EPI、ERI、ESV、ETR、EUO、*-EWT、EZT、FAR、FAU、FER、FRA、GIS、GIU、GME、GON、GOO、HEU、IFO、IFR、-IFU、IFW、IFY、IHW、IMF、IRN、IRR、-IRY、ISV、ITE、ITG、ITH、*-ITN、ITR、ITT、-ITV、ITW、IWR、IWS、IWW、JBW、JNT、JOZ、JRY、JSN、JSR、JST、JSW、KFI、LAU、LEV、LIO、-LIT、LOS、LOV、LTA、LTF、LTJ、LTL、LTN、MAR、MAZ、MEI、MEL、MEP、MER、MFI、MFS、MON、MOR、MOZ、*MRE、MSE、MSO、MTF、MTN、MTT、MTW、MVY、MWF、MWW、NAB、NAT、NES、NON、NPO、NPT、NSI、OBW、OFF、OKO、OSI、OSO、OWE、-PAR、PAU、PCR、PHI、PON、POS、PSI、PUN、RHO、-RON、RRO、RSN、RTE、RTH、RUT、RWR、RWY、SAF、SAO、SAS、SAT、SAV、SBE、SBN、SBS、SBT、SEW、SFE、SFF、SFG、SFH、SFN、SFO、SFS、*SFV、SFW、SGT、SIV、SOD、SOF、SOS、SSF、*-SSO、SSY、STF、STI、*STO、STT、STW、-SVR、SVV、SZR、TER、THO、TOL、TON、TSC、TUN、UEI、UFI、UOS、UOV、UOZ、USI、UTL、UWY、VET、VFI、VNI、VSV、WEI、-WEN、YUG、ZON、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型,

[0402] 优选选自CHA、AEI、RTH、LEV、DDR、KFI、ERI、AFX、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型,更优选选自CHA、AEI、RTH、AFX、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型,更优选选自CHA和AEI,其中第二涂层中所含的含铜沸石材料更优选具有骨架类型CHA;或

[0403] 优选选自FER、BEA、MFI、FAU、MOR、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型,更优选选自FER、BEA、MFI、FAU、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型,其中第二涂层中所含的含铜沸石材料更优选具有骨架类型FER或BEA。

[0404] 8'.实施方案1'至7'任一项的催化剂,其中第二涂层中所含的沸石材料的骨架结构的95至100重量%,优选98至100重量%,更优选99至100重量%由Si、Al和O组成,其中在骨架结构中,以摩尔SiO₂:Al₂O₃计算的Si与Al的摩尔比优选在2:1至50:1的范围内,更优选在5:1至45:1的范围内,更优选在7:1至35:1的范围内,更优选在10:1至30:1的范围内,更优选在15:1至22:1的范围内或更优选在24:1至30:1的范围内。

[0405] 9'.实施方案1'至8'任一项的催化剂,其中第二涂层中所含的沸石材料,优选具有骨架类型CHA的沸石材料,具有通过扫描电子显微术测定的至少0.1微米,优选在0.1至3.0微米的范围内,更优选在0.3至1.5微米的范围内,更优选在0.4至1.0微米的范围内的平均微晶尺寸。

[0406] 10'.实施方案1'至9'任一项的催化剂,其中基于第二涂层中所含的沸石材料的重量计,第二涂层中所含的沸石材料中包含的以CuO计算的铜量在1.5至15重量%的范围内,优选在2至10重量%的范围内;

[0407] 其中基于第二涂层中所含的沸石材料的重量计,第二涂层中所含的沸石材料中包

含的以CuO计算的铜量更优选在3至8重量%的范围内,更优选在4.5至7重量%的范围内,更优选在4.6至6重量%的范围内,更优选在4.8至5.5重量%的范围内;或

[0408] 基于第二涂层中所含的沸石材料的重量计,更优选在3.2至4重量%的范围内。

[0409] 11'.实施方案1'至10'任一项的催化剂,其中第二涂层进一步包含氧化物型组分,其中所述氧化物型组分优选是氧化铝、二氧化硅、氧化锆和二氧化钛中的一种或多种,更优选氧化锆和氧化铝中的一种或多种,更优选氧化锆。

[0410] 12'.实施方案11'的催化剂,其中基于第二涂层中所含的沸石材料的重量计,以氧化物计算的氧化物型组分的量,优选以 ZrO_2 计算的氧化锆的量在1至10重量%的范围内,优选在2至8重量%的范围内,更优选在3至7重量%的范围内。

[0411] 13'.实施方案1'至12'任一项的催化剂,其中x在90至100的范围内,优选在95至100的范围内,更优选在98至100的范围内,更优选在99至100的范围内。

[0412] 14'.实施方案1'至13'任一项的催化剂,其中第二涂层的载量在1至6g/in³的范围内,优选在1.5至4g/in³的范围内,更优选在1.75至3g/in³的范围内。

[0413] 15'.实施方案1'至14'任一项的催化剂,其中y在20至x的范围内,优选在20至60的范围内,更优选在40至60的范围内,或优选在80至x的范围内,更优选在90至x的范围内,更优选x=y。

[0414] 16'.实施方案1'至15'任一项的催化剂,其中第二涂层布置在第一涂层和基底的内壁表面上。

[0415] 17'.实施方案1'至16'任一项的催化剂,其中第一区域中所含的第二涂层包含基于沸石材料,优选具有骨架类型CHA的沸石材料的重量计在0.5至3.5重量%的范围内,优选在1至3重量%的范围内,更优选在1.5至2.75重量%的范围内或优选在3.1至3.3重量%的范围内量的铁。

[0416] 18'.实施方案1'至17'任一项的催化剂,其中第一区域中所含的第二涂层的98至100重量%,优选99至100重量%,更优选99.5至100重量%,更优选99.9至100重量%由铁、含铜沸石材料和优选如实施方案11'或12'中定义的氧化物型组分组成。

[0417] 19'.实施方案1'至18'任一项的催化剂,其中所述催化剂表现出两个区域,其中第一区域优选不含第一涂层。

[0418] 20'.实施方案1'至19'任一项的催化剂,其中x>y。

[0419] 21'.实施方案20'的催化剂,其中第二区域中所含的第二涂层的0至0.001重量%,优选0至0.0001重量%,更优选0至0.00001重量%由铁组成,以 Fe_2O_3 计算。

[0420] 22'.实施方案20'或21'的催化剂,其中第二区域中所含的第二涂层的98至100重量%,优选99至100重量%,更优选99.5至100重量%,更优选99.9至100重量%由含铜沸石材料和优选如实施方案11'或12'中定义的氧化物型组分组成。

[0421] 23'.实施方案1'至22'任一项的催化剂,其中第二涂层的0至0.001重量%,优选0至0.0001重量%,更优选0至0.00001重量%由钒组成。

[0422] 24'.实施方案1'至23'任一项的催化剂,其中第二涂层的0至0.001重量%,优选0至0.0001重量%,更优选0至0.00001重量%由任意铂族金属组成。

[0423] 25'.实施方案1'至23'任一项的催化剂,其中基底(a)是流通型基底或壁流式过滤器基底,优选流通型基底。

[0424] 26'. 实施方案1'至25'任一项的催化剂,其中基底(a)包含陶瓷物质,优选由陶瓷物质组成,其中陶瓷物质优选包含以下这些,更优选由以下这些组成:氧化铝、二氧化硅、硅酸盐、铝硅酸盐、堇青石、莫来石、铝钛酸盐、碳化硅、氧化锆、氧化镁,更优选尖晶石,和二氧化钛中的一种或多种,更优选碳化硅和堇青石中的一种或多种;其中陶瓷物质更包含堇青石,更优选由堇青石组成。

[0425] 27'. 实施方案1'至26'任一项的催化剂,其由基底(a)、第一涂层(b)和第二涂层(c)组成。

[0426] 28'. 根据实施方案1'至27'任一项的催化剂用于 NO_x ,优选出自柴油机的 NO_x 的选择性催化还原和氨的氧化的用途。

[0427] 29'. 一种用于氮氧化物的选择性催化还原和氨的氧化的方法,其中所述氮氧化物包含在排气料流中,所述方法包括

[0428] (1) 提供排气料流,优选来自柴油机的排气料流;

[0429] (2) 使(1)中提供的排气料流经过根据实施方案1'至27'任一项的排气处理催化剂。

[0430] 30'. 一种制备根据实施方案1'至27'任一项的排气处理催化剂的方法,所述方法包括

[0431] (a) 制备包含水和氨氧化催化剂前体的第一水性混合物;

[0432] (b) 在从基底的出口端至入口端的基底轴向长度的 $z\%$ 上,将根据(i)获得的第一水性混合物布置在基底的内壁表面上,所述基底包含入口端、出口端、从入口端延伸到出口端的基底轴向长度和由贯穿其中的基底内壁界定的多个通道,其中 z 在5至100的范围内;煅烧具有布置在其上的第一水性混合物的基底,获得包含第一涂层的基底;

[0433] (c) 制备包含水和含铜沸石材料的第二水性混合物;

[0434] (d) 在从基底的入口端至出口端的基底轴向长度的 $x\%$ 上,将根据(c)获得的第二水性混合物布置在根据(b)获得的基底上,其中 x 在80至100的范围内;煅烧具有布置在其上的第二水性混合物的基底,获得包含第一涂层和含有含铜沸石材料的第二涂层的基底;

[0435] (e) 制备包含水和铁盐的第三水性混合物;

[0436] (f) 在从基底的入口端至出口端的基底轴向长度的 $y\%$ 上,将根据(e)获得的第三水性混合物布置在根据(d)获得的基底上,其中 y 在10至 x 的范围内,获得如下基底,其包含:在第一区域中,在基底轴向长度的 $y\%$ 上包含铁盐和含铜沸石材料的第二涂层;和如果 $x > y$,在从入口端至出口端的基底轴向长度的 $y\%$ 延伸到 $x\%$ 的第二区域中,包含含铜沸石材料的第二涂层;

[0437] (g) 煅烧根据(f)获得的基底。

[0438] 31'. 实施方案30'的方法,其中所述氨氧化催化剂前体包含铂族金属组分源,优选铂或钯源,更优选铂源,更优选铂盐。

[0439] 32'. 实施方案31'的方法,其中所述氨氧化催化剂前体进一步包含非沸石类氧化物型材料,其中所述非沸石类氧化物型材料优选包含氧化铝、二氧化硅、二氧化钛和氧化锆中的一种或多种,更优选氧化铝、二氧化硅和二氧化钛中的一种或多种,更优选氧化铝和二氧化硅中的一种或多种,其中所述非沸石类氧化物型材料更优选包含氧化铝。

[0440] 33'. 实施方案31'或32'的方法,其中(a)包括

- [0441] (a.1) 将铂族金属组分源浸渍在非沸石类氧化物型材料上；
- [0442] (a.2) 煅烧根据(a.1)获得的浸渍的非沸石类氧化物型材料；
- [0443] (a.3) 将水与根据(a.2)获得的煅烧的浸渍非沸石类氧化物型材料混合。
- [0444] 34'. 实施方案30'至33'任一项的方法,其中(b)中提供的基底是流通型基底或壁流式过滤器基底,优选流通型基底。
- [0445] 35'. 实施方案30'至34'任一项的方法,其中(b)中提供的基底包含陶瓷物质,优选由陶瓷物质组成,其中陶瓷物质优选包含以下这些,更优选由以下这些组成:氧化铝、二氧化硅、硅酸盐、铝硅酸盐、堇青石、莫来石、铝钛酸盐、碳化硅、氧化锆、氧化镁,更优选尖晶石,和二氧化钛中的一种或多种,更优选碳化硅和堇青石中的一种或多种,更优选堇青石。
- [0446] 36'. 实施方案30'至35'任一项的方法,其中z在7至70的范围内,优选在8至50的范围内,更优选在9至40的范围内,更优选在10至35的范围内。
- [0447] 37'. 实施方案30'至36'任一项的方法,其中在根据(b)煅烧之前,具有布置在其上的第一水性混合物的基底在具有90至250℃,优选100至150℃的温度的气体气氛中干燥,所述气体气氛更优选是空气；
- [0448] 其中干燥优选进行10至360分钟,更优选20至240分钟的持续时间。
- [0449] 38'. 实施方案30'至37'任一项的方法,其中根据(b)煅烧具有布置在其上的第一水性混合物的基底在具有400至900℃的温度的气体气氛中进行,所述气体气氛更优选是空气，
- [0450] 其中根据(b)煅烧具有布置在其上的第一水性混合物的基底优选在气体气氛中进行5至360分钟的持续时间,所述气体气氛更优选包含空气,更优选由空气组成。
- [0451] 39'. 实施方案30'至38'任一项的方法,其中根据(a)制备的第一水性混合物的98至100重量%,优选99至100重量%,更优选99.5至100重量%,更优选99.9至100重量%由水、铂族金属组分源和非沸石类氧化物型材料组成。
- [0452] 40'. 实施方案30'至39'任一项的方法,其中根据(c)制备的第二水性混合物中所含的含铜沸石材料的骨架类型选自ABW、ACO、AEI、AEL、AEN、AET、AFG、AFI、AFN、AFO、AFR、AFS、AFT、AFV、AFX、AFY、AHT、ANA、APC、APD、AST、ASV、ATN、ATO、ATS、ATT、ATV、AVL、AWO、AWW、BCT、BEA、BEC、BIK、BOF、BOG、BOZ、BPH、BRE、BSV、CAN、CAS、CDO、CFI、CGF、CGS、CHA、-CHI、-CLO、CON、CSV、CZP、DAC、DDR、DFO、DFT、DOH、DON、EAB、EDI、EEI、EMT、EON、EPI、ERI、ESV、ETR、EUO、*-EWT、EZT、FAR、FAU、FER、FRA、GIS、GIU、GME、GON、GOO、HEU、IFO、IFR、-IFU、IFW、IFY、IHW、IMF、IRN、IRR、-IRY、ISV、ITE、ITG、ITH、*-ITN、ITR、ITT、-ITV、ITW、IWR、IWS、IWW、IWW、JBW、JNT、JOZ、JRY、JSN、JSR、JST、JSW、KFI、LAU、LEV、LIO、-LIT、LOS、LOV、LTA、LTF、LTJ、LTL、LTN、MAR、MAZ、MEI、MEL、MEP、MER、MFI、MFS、MON、MOR、MOZ、*MRE、MSE、MSO、MTF、MTN、MTT、MTW、MVY、MWF、MWW、NAB、NAT、NES、NON、NPO、NPT、NSI、OBW、OFF、OKO、OSI、OSO、OWE、-PAR、PAU、PCR、PHI、PON、POS、PSI、PUN、RHO、-RON、RRO、RSN、RTE、RTH、RUT、RWR、RWY、SAF、SAO、SAS、SAT、SAV、SBE、SBN、SBS、SBT、SEW、SFE、SFF、SFG、SFH、SFN、SFO、SFS、*SFV、SFW、SGT、SIV、SOD、SOF、SOS、SSF、*-SSO、SSY、STF、STI、*STO、STT、STW、-SVR、SVV、SZR、TER、THO、TOL、TON、TSC、TUN、UEI、UFI、UOS、UOV、UOZ、USI、UTL、UWY、VET、VFI、VNI、VSV、WEI、-WEN、YUG、ZON、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型，
- [0453] 优选选自CHA、AEI、RTH、LEV、DDR、KFI、ERI、AFX、其中两种或更多种的混合物和其

中两种或更多种的混合类型,更优选选自CHA、AEI、RTH、AFX、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型,更优选选自CHA和AEI,其中根据(c)制备的第二水性混合物中所含的含铜沸石材料更优选具有骨架类型CHA;或

[0454] 优选选自FER、BEA、MFI、FAU、MOR、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型,更优选选自FER、BEA、MFI、FAU、其中两种或更多种的混合物和其中两种或更多种的混合类型,其中根据(c)制备的第二水性混合物中所含的含铜沸石材料更优选具有骨架类型FER或BEA。

[0455] 41'.实施方案40'的方法,其中沸石材料的骨架结构的95至100重量%,优选98至100重量%,更优选99至100重量%由Si、Al、O和任选H组成,其中在骨架结构中,以摩尔 $\text{SiO}_2:\text{Al}_2\text{O}_3$ 计算的Si与Al的摩尔比优选在2:1至50:1的范围内,更优选在5:1至45:1的范围内,更优选在7:1至35:1的范围内,更优选在10:1至30:1的范围内,更优选在15:1至22:1的范围内或更优选在24:1至30:1的范围内。

[0456] 42'.实施方案30'至41'任一项的方法,其中根据(c)制备的第二水性混合物中所含的沸石材料,优选具有骨架类型CHA的沸石材料,具有通过扫描电子显微术测定的至少0.1微米,优选在0.1至3.0微米的范围内,更优选在0.3至1.5微米的范围内,更优选在0.4至1.0微米的范围内的平均微晶尺寸。

[0457] 43'.实施方案30'至42'任一项的方法,其中根据(c)制备的第二水性混合物中所含的沸石材料,优选具有骨架类型CHA的沸石材料,具有在 $300\text{至}800\text{m}^2/\text{g}$ 的范围内,优选在 $400\text{至}700\text{m}^2/\text{g}$ 的范围内,更优选在 $500\text{至}630\text{m}^2/\text{g}$ 的范围内BET比表面积,BET比表面积如参比例1中所述测定。

[0458] 44'.实施方案30'至43'任一项的方法,其中基于根据(c)制备的第二水性混合物中所含的沸石材料的重量计,根据(c)制备的第二水性混合物中所含的沸石材料中包含的以CuO计算的铜量在1.5至15重量%的范围内,优选在2至10重量%的范围内;

[0459] 其中基于根据(c)制备的第二水性混合物中所含的沸石材料的重量计,根据(c)制备的第二水性混合物中所含的沸石材料中包含的以CuO计算的铜量更优选在3至8重量%的范围内,更优选在4.5至7重量%的范围内,更优选在4.6至6重量%的范围内,更优选在4.8至5.5重量%的范围内;或

[0460] 基于根据(c)制备的第二水性混合物中所含的沸石材料的重量计,更优选在3.2至4重量%的范围内。

[0461] 45'.实施方案30'至44'任一项的方法,其中根据(c)制备的第二水性混合物进一步包含氧化物型组分的前体,其中所述前体优选是铝盐、硅盐、锆盐和钛盐中的一种或多种,更优选锆盐和铝盐中的一种或多种,更优选锆盐,更优选乙酸锆。

[0462] 46'.实施方案45'的方法,其中在根据(c)制备的第二水性混合物中,以氧化物,优选以氧化铝、二氧化硅、氧化锆或二氧化钛计算的氧化物型组分的前体的量,优选以 ZrO_2 计算的锆盐的量在1至10重量%的范围内,优选在2至8重量%的范围内,更优选在3至7重量%的范围内,基于根据(c)制备的第二水性混合物中所含的沸石材料的重量计。

[0463] 47'.实施方案30'至46'任一项的方法,其中根据(c)制备的第二水性混合物中所含的水是去离子水。

[0464] 48'.实施方案30'至47'任一项的方法,其中根据(c)制备的第二水性混合物包含

最多1000ppm,优选0至100ppm,更优选0至10ppm的以元素铁计算的铁。

[0465] 49'.实施方案30'至48'任一项的方法,其中根据(c)制备的第二水性混合物的98至100重量%,优选99至100重量%,更优选99.5至100重量%,更优选99.9至100重量%由水、含铜沸石材料和优选如实施方案45'或46'中定义的氧化物的前体组成。

[0466] 50'.实施方案30'至49'任一项的方法,其中在根据(c)制备第二水性混合物之后和在将所述混合物布置在根据(b)获得的基底上之前,将第二水性混合物研磨或混合,优选直至第二水性混合物的粒子具有在3至20微米的范围内,更优选在5至15微米的范围内,更优选在6至8微米的范围内或更优选在9至12微米的范围内的Dv90,Dv90如参比例2中所述测定。

[0467] 51'.实施方案30'至50'任一项的方法,其中x在90至100的范围内,优选在95至100的范围内,更优选在98至100的范围内,更优选在99至100的范围内。

[0468] 52'.实施方案30'至51'任一项的方法,其中在根据(d)煅烧之前,具有布置在其上的第二水性混合物的基底在具有90至250℃,优选100至150℃的温度的气体气氛中干燥,所述气体气氛更优选是空气;

[0469] 其中干燥优选进行10至360分钟,更优选20至240分钟,更优选30至90分钟的持续时间。

[0470] 53'.实施方案30'至52'任一项的方法,其中根据(d)煅烧具有布置在其上的第二水性混合物的基底在具有400至800℃,优选500至700℃,更优选550至650℃的温度的气体气氛中进行,所述气体气氛更优选是空气。

[0471] 54'.实施方案30'至53'任一项的方法,其中根据(d)煅烧具有布置在其上的第二水性混合物的基底在气体气氛中进行5至360分钟,优选20至240分钟,更优选30至90分钟的持续时间,所述气体气氛更优选包含空气,更优选由空气组成。

[0472] 55'.实施方案30'至54'任一项的方法,其中根据(d)获得的包含含有含铜沸石材料的第二涂层的基底具有在1至5g/in³的范围内,优选在1.5至4g/in³的范围内,更优选在2至3.5g/in³的范围内,该量以相对于第二涂层体积的H₂O重量表示,水吸附量如参比例5中定义的测定。

[0473] 56'.实施方案30'至55'任一项的方法,其中根据(e)制备的第三水性混合物中所含的铁盐是硝酸铁(III)、乙酸铁(II)、柠檬酸铵铁(III)、硫酸铁(II)和草酸铁(II)中的一种或多种,优选硝酸铁(III),更优选九水合硝酸铁(III)。

[0474] 57'.实施方案30'至55'任一项的方法,其中根据(e)制备的第三水性混合物包含基于根据(e)制备的第三水性混合物的重量计在4至40重量%的范围内,优选在7至30重量%的范围内,更优选在10至25重量%的范围内,更优选在13至22重量%的范围内,更优选在15至20重量%的范围内的以Fe₂O₃计算的量的铁盐。

[0475] 58'.实施方案30'至57'任一项的方法,其中根据(e)制备的第三水性混合物中所含的水是去离子水。

[0476] 59'.实施方案30'至58'任一项的方法,其中根据(e)制备的第三水性混合物的98至100重量%,优选99至100重量%,更优选99.5至100重量%,更优选99.9至100重量%由水和铁盐组成。

[0477] 60'.实施方案30'至59'任一项的方法,其中根据(f)将根据(e)获得的第三水性混

合物布置在根据(d)获得的基底上包括将根据(d)获得的包含含有含铜沸石材料的第二涂层的基底浸渍到根据(e)制备的第三水性混合物中,优选持续5至120秒,更优选7至80秒,更优选9至60秒,更优选10至50秒。

[0478] 61'.实施方案30'至60'任一项的方法,其中y在20至x的范围内,优选在20至60的范围内,更优选在40至60的范围内,

[0479] 或优选在80至x的范围内,更优选在90至x的范围内,更优选 $x=y$ 。

[0480] 62'.实施方案30'至61'任一项的方法,其中在根据(g)煅烧之前,(f)中获得的基底在具有80至250℃,优选90至200℃,更优选100至150℃,更优选110至130℃的温度的气体气氛中干燥。

[0481] 63'.实施方案62'的方法,其中干燥在气体气氛中进行10至180分钟,优选20至120分钟,更优选30至90分钟,更优选40至80分钟的持续时间。

[0482] 64'.实施方案62'或63'的方法,其中所述气体气氛包含空气,优选由空气组成。

[0483] 65'.实施方案30'至64'任一项的方法,其中根据(g)的煅烧在具有400至800℃,优选450至700℃,更优选500至650℃,更优选550至650℃的温度的气体气氛中进行。

[0484] 66'.实施方案30'至65'任一项的方法,其中根据(g)的煅烧进行10至180分钟,优选20至120分钟,更优选30至90分钟,更优选40至80分钟的持续时间。

[0485] 67'.实施方案65'或66'的方法,其中所述气体气氛包含空气,优选由空气组成。

[0486] 68'.实施方案30'至67'任一项的方法,其由(a)、(b)、(c)、(d)、(e)、(f)和(g)组成。

[0487] 此外,在本发明中,术语“X是A、B和C中的一种或多种”(其中X是给定特征,且A、B和C各自代表所述特征的具体实现)被理解为公开了X是A、或B、或C、或A和B、或A和C、或B和C、或A和B和C。在这方面,要指出,技术人员能够将上述抽象术语转化为具体实例,例如其中X是化学元素且A、B和C是具体元素,如Li、Na和K,或X是温度且A、B和C是具体温度,如10℃、20℃和30℃。在这方面,进一步指出,技术人员能够将上述术语扩展到所述特征的更少的具体实现,例如“X是A和B中的一种或多种”公开了X是A、或B、或A和B,或扩展到所述特征的更多的具体实现,例如“X是A、B、C和D中的一种或多种”公开了X是A、或B、或C、或D、或A和B、或A和C、或A和D、或B和C、或B和D、或C和D、或A和B和C、或A和B和D、或B和C和D、或A和B和C和D。

[0488] 此外,在本发明中,术语“内壁表面”被理解为是壁的“裸露”或“裸”或“空白”表面,即未处理状态下的壁的表面,其除可能污染该表面的任何不可避免的杂质外由壁的材料组成。

[0489] 此外,在本发明中,关于一种或多种组分的重量%的术语“由...组成”是指基于100重量%的所涉整体计,所述组分的重量%的量。例如,词语“其中第二区域的0至0.001重量%由铁组成”是指在组成所述涂层的100重量%的组分中,0至0.001重量%是铁。

[0490] 此外,在本发明中,术语“铂族金属”是指选自铂、钯、铑、铱、钌和铑的金属。

[0491] 通过下列参比例、对比例和实施例进一步例示本发明。

实施例

[0492] 参比例1 BET比表面积的测量

[0493] 根据DIN 66131或DIN-ISO 9277使用液氮测定BET比表面积。

[0494] 参比例2体积基粒度分布的测定

[0495] 通过使用Sympatec HELOS (3200) & QUIXEL设备的静态光散射法测定粒度分布,其中样品的光学浓度在6至10%的范围内。

[0496] 参比例3根据常见液相离子交换 (LPIE) 法制备的Cu-菱沸石

[0497] 用于本文中的一些实施例的包含Cu的具有骨架结构类型CHA的沸石材料基本如US 8,293,199 B2中公开的制备。特别参考US 8,293,199 B2的发明实施例2,第15栏,第26至52行。

[0498] 参比例4通用涂布方法

[0499] 为了用涂层涂布流通型基底,将流通型基底垂直浸渍在给定浆料的一部分中以浸渍基底的特定长度,所述长度等于要施加的涂层的目标长度。以这种方式,洗涂涂料 (washcoat) 接触基底壁。使样品在浆料中停留特定时间,通常1-10秒。然后将基底从浆料中取出,通过从基底中沥出然后通过 (对着浆料渗透方向) 吹送压缩空气而从基底中除去过量浆料。

[0500] 参比例5 Cu-CHA催化剂的水吸附量的测定

[0501] 1) 包含被催化剂涂层 (Cu-CHA) 涂布的芯样品 (例如1英寸x 3英寸芯) 的已经预先干燥和煅烧的催化剂 (在本情况下为对比例1的催化剂) 在环境条件下称重 (室温,在称重前没有额外预干燥或预煅烧)。记录重量A。

[0502] 2) 然后,将催化剂完全浸没在水中30秒,并轻轻地来回移动以释放气泡。

[0503] 3) 将催化剂从水中取出并沥干。

[0504] 4) 催化剂在用于1) 的相同环境条件下再次称重。记录重量B。通过计算重量B与重量A之间的差值,获得催化剂的水吸附量。

[0505] 对比例1选择性催化还原催化剂 (Cu-SCR) 的制备

[0506] 将乙酸氧锆的水溶液与1692克如参比例3中所述制备的具有基于Cu-CHA的重量计5.1重量%的以CuO计算的Cu含量的Cu-CHA沸石 ($\text{SiO}_2:\text{Al}_2\text{O}_3$ 摩尔比大约18:1, BET比表面积 $5\text{m}^2/\text{g}$) 和去离子水混合以形成浆料。然后通过高剪切混合将所得浆料分散直至如参比例2中所述测定的所得 $D_v 90$ 为10微米。然后将浆料布置在未涂布的流通型蜂窝堇青石整体基底 (直径2.54厘米 (1英寸) x 长度:76.2厘米 (3英寸) 圆柱形基底,具有 $400/(2.54)^2$ 个孔室/平方厘米和0.1016毫米 (4密耳) 壁厚度) 的全长上。根据参比例4中描述的方法涂布所述基底。此后,将基底在120°C下干燥60分钟,然后在590°C下煅烧60分钟。煅烧后的洗涂层载量为大约128.15g/l (2.1g/in³), 包括大约121.44g/l (1.99g/in³) 的Cu-CHA和大约6.71g/l (0.11g/in³) 的氧化锆。

[0507] 实施例1选择性催化还原催化剂 (Fe/Cu-SCR) 的制备

[0508] 铁浸渍

[0509] 如参比例5中所述测定根据对比例1制备的Cu-SCR催化剂的水吸附量,并且所述水吸附量为176.97g/l (2.9g/in³) 重量/体积。在参比例5的1) 中规定的相同环境条件下进行铁浸渍。制备100克去离子水和17.85克九水合硝酸铁 ($\text{Fe (III) NO}_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$) 的水溶液。然后将根据对比例1制备的Cu-SCR催化剂以所需区域长度 (33%至100% - 见下表1) 浸渍到硝酸铁水溶液中30秒,然后从溶液中取出。各催化剂随后在空气中在120°C下干燥1小时以除去过量水,随后在590°C下煅烧1小时。

[0510] 表1

	Cu 含量 (wt.-%*)	沸石材料	Fe 含量 (wt.-%**)	Fe 区域 长度(%)	总洗涂层载量 (g/in³)
[0511]	实施例 1.1	CHA (SAR: 18:1)	1.35	33	2.13
	实施例 1.2	CHA (SAR: 18:1)	2.47	50	2.15
	实施例 1.3	CHA (SAR: 18:1)	3.14	100	2.16

[0512] * :Cu含量,以CuO计算,基于沸石材料的重量计的重量%

[0513] ** :Fe含量,以Fe₂O₃计算,基于沸石材料的重量计的重量%

[0514] 实施例2实施例1和对比例1的催化剂的测试-NO_x转化率和N₂O形成

[0515] 实施例1.1、1.2、1.3和对比例1的催化剂在测量前在水热条件(10%O₂/10%H₂O)下在650℃下进一步老化50小时。

[0516] SCR测试条件:

[0517] 空速(SV)=60k h⁻¹,温度:250℃、200℃

[0518] 标准SCR气体进料:550ppm NH₃、500ppm NO、10%H₂O、10%O₂

[0519] 快速SCR气体进料:550ppm NH₃、250ppm NO、250ppm NO₂、10%H₂O、10%O₂

[0520] 结果显示在图1a/1b和2a/2b中。图1a和2a概括在标准SCR气体进料条件下获得的结果,而图1b和2b概括在快速SCR气体进料条件下获得的结果,两种条件都描述在上文。从图1a中可以得出,对比例1的NO_x转化水平在200℃下为74%,在250℃下为99%。所有样品在250℃下的NO_x转化率已经非常高,实施例1.1至1.3的性能与用对比例1测得的性能处于相同水平。因此,为了在NO_x转化率中区分样品,我们必须审视200℃试验点。实施例1.1和1.2在标准SCR气体进料条件下在200℃下的NO_x转化率方面等于或接近对比例(图1a),只有具有100%Fe区域长度的实施例1.3的NO_x转化率明显较低。但是,在图2a中的N₂O生成量中将看出实施例的优势。对比例在200℃下的N₂O生成量可由11减少至3ppm,并且考虑大致相等的NO_x转化率下由11至7ppm(实施例1.2vs.对比例1)。实施例1.1至1.3的较低N₂O生成量的优势在250℃试验点也可见。

[0521] 从图1b和2b中可以得出,通常由于发生快速SCR反应,NO_x转化水平高于使用标准SCR进料气体条件获得的结果。但是,只有100%Fe区域长度样品被测得在200℃下的NO_x转化率为87%,与对比例和实施例1.1和1.2的91至93%NO_x转化率形成对比。即使在快速SCR进料气体条件下,也可在明显低于对比例1的N₂O生成量中看出实施例1.1至1.3的优势。在200℃下,N₂O生成量从20ppm减少6至7ppm。在250℃下,减少3至4ppm,这可检测到,但不那么明显。

[0522] 概括而言,该新型催化剂制造概念已经表明,可实现灵活的含Fe区并且将Fe添加到对比例1中的优点在标准SCR和快速SCR气体进料条件下都将引起N₂O生成量显著减少,同时保持NO_x转化水平。

[0523] 参比例6 Cu-FER和Cu-BEA的制备

[0524] 如下所述制备分别具有骨架类型FER和BEA的Cu-沸石材料,具有基于沸石材料的重量计3.42重量%的目标Cu含量。通过将水与Cu(NO₃)₂在20℃下混合20分钟,制备Cu(NO₃)₂的水性混合物。沸石材料用所述水性Cu(NO₃)₂混合物在搅拌下在环境条件下浸渍35分钟。通过过滤收集Cu浸渍的沸石材料并在120℃下干燥整夜。干燥材料随后在空气中在700℃下煅烧2小时,获得含Cu的沸石材料的粉末。

[0525] 对比例2选择性催化还原催化剂(Cu-SCR)的制备

[0526] 将乙酸氧锆(ZrO₂:基于沸石计5重量%)的水溶液与如参比例6中所述制备的具有基于Cu-FER的重量计3.42重量%的以CuO计算的Cu含量的Cu-FER沸石(SiO₂:Al₂O₃摩尔比大约20:1,BET比表面积400m²/g)和去离子水混合以形成浆料。然后通过高剪切混合将所得浆料分散直至如参比例2中所述测定的所得D_v90为7.5微米。将浆料的pH调节到大约5(目标pH)并且所述浆料具有大约35重量%的固含量。然后将浆料布置在未涂布的流通型蜂窝堇青石整体基底(直径2.54厘米(1英寸) x 长度:76.2厘米(3英寸)圆柱形基底,具有400/(2.54)²个孔室/平方厘米和0.1016毫米(4密耳)壁厚度)的全长上。根据参比例4中描述的方法涂布所述基底。此后,将基底在120℃下干燥60分钟,然后在590℃下煅烧60分钟。煅烧后的洗涂层载量为大约2.1g/in³,包括1.99g/in³的Cu-FER和0.1g/in³的氧化锆。

[0527] 实施例2选择性催化还原催化剂(Fe/Cu-SCR)的制备

[0528] 铁浸渍

[0529] 如参比例5中所述测定根据对比例2制备的Cu-SCR催化剂的水吸附量,并且所述水吸附量为2.6g/in³重量/体积。在参比例5的1)中规定的相同环境条件下进行铁浸渍。制备100克去离子水和17.85克九水合硝酸铁(Fe(III)NO₃·9H₂O)的水溶液。然后将根据对比例2制备的Cu-SCR催化剂以所需区域长度(33%和100%-见下表2)浸渍到硝酸铁水溶液中30秒,然后从溶液中取出。各催化剂随后在空气中在120℃下干燥1小时以除去过量水,随后在590℃下煅烧1小时。

[0530] 表2

	Cu 含量 (wt.-%*)	沸石材料	Fe 含量 (wt.-%**)	Fe 区域 长度(%)	总洗涂层载量 (g/in ³)
[0531] 实施例 2.1	3.42	FER (SAR: 20:1)	1.3	33	2.12
实施例 2.2	3.42	FER (SAR: 20:1)	1.9	100	2.13

[0532] *:Cu含量,以CuO计算,基于沸石材料的重量计的重量%

[0533] **:Fe含量,以Fe₂O₃计算,基于沸石材料的重量计的重量%

[0534] 对比例3选择性催化还原催化剂(Cu-SCR)的制备

[0535] 将乙酸氧锆(ZrO₂:基于沸石计5重量%)的水溶液与如参比例6中所述制备的具有基于Cu-BEA的重量计3.42重量%的以CuO计算的Cu含量的Cu-BEA沸石(SiO₂:Al₂O₃摩尔比大约26:1,BET比表面积700m²/g)和去离子水混合以形成浆料。然后通过高剪切混合将所得浆

料分散直至如参比例2中所述测定的所得 $D_v 90$ 为7.5微米。将浆料的pH调节到大约5(目标pH)并且所述浆料具有大约35重量%的固含量。然后将浆料布置在未涂布的流通型蜂窝堇青石整体基底(直径2.54厘米(1英寸) x 长度:76.2厘米(3英寸)圆柱形基底,具有400/(2.54)²个孔室/平方厘米和0.1016毫米(4密耳)壁厚度)的全长上。根据参比例4中描述的方法涂布所述基底。此后,将基底在120℃下干燥60分钟,然后在590℃下煅烧60分钟。煅烧后的洗涂层载量为2.1g/in³,包括1.99g/in³的Cu-BEA和0.1g/in³的氧化锆。

[0536] 实施例3选择性催化还原催化剂(Fe/Cu-SCR)的制备

[0537] 铁浸渍

[0538] 如参比例5中所述测定根据对比例3制备的Cu-SCR催化剂的水吸附量,并且所述水吸附量为2.6g/in³重量/体积。在参比例5的1)中规定的相同环境条件下进行铁浸渍。制备100克去离子水和17.85克九水合硝酸铁(Fe(III)NO₃·9H₂O)的水溶液。然后将根据对比例3制备的Cu-SCR催化剂以所需区域长度(33%和100%-见下表2)浸渍到硝酸铁水溶液中30秒,然后从溶液中取出。各催化剂随后在空气中在120℃下干燥1小时以除去过量水,随后在590℃下煅烧1小时。

[0539] 表3

	Cu 含量 (wt.-%*)	沸石材料	Fe 含量 (wt.-%**)	Fe 区域 长度(%)	总洗涂层载 量(g/in ³)
[0540] 实施例 3.1	3.42	BEA (SAR: 26:1)	1.1	33	2.11
实施例 3.2	3.42	BEA (SAR: 26:1)	1.63	100	2.12

[0541] *:Cu含量,以CuO计算,基于沸石材料的重量计的重量%

[0542] **:Fe含量,以Fe₂O₃计算,基于沸石材料的重量计的重量%

[0543] 实施例4实施例2和3和对比例2和3的催化剂的测试-NO_x转化率和N₂O形成

[0544] a) Fe/Cu-SCR-FER

[0545] 实施例2.1和2.2和对比例2的催化剂在新鲜条件下测试。

[0546] SCR测试条件:

[0547] 空速(SV)=80k h⁻¹,温度:500℃

[0548] 标准SCR气体进料:900ppm NH₃、750ppm NO、10%H₂O、10%O₂

[0549] 结果显示在图4和5中。图4概括在标准SCR气体进料条件下获得的结果。从图4中可以得出,对比例2的NO_x转化水平在500℃下为大约90%,而实施例2.1和2.2的NO_x转化性能更好,即在相同温度下的NO_x转化率为大约92-93%。此外,从图5中可以得出,实施例2.1和2.2的催化剂也表现出比对比例的催化剂低的一氧化二氮形成。确实,这种形成至少减少了1/2。因此,由所述结果清楚看出,该新型催化剂制造概念已经表明,可实现灵活的含Fe区并且将Fe添加到对比例2中的优点将带来NO_x转化率的改进,特别是在高温下的改进,和N₂O生成量的显著减少。

[0550] b) Fe/Cu-SCR-BEA

[0551] 实施例3.1和3.2和对比例3的催化剂在新鲜条件下测试。

[0552] SCR测试条件:

[0553] 空速(SV) = 80k h⁻¹, 温度: 250、500℃

[0554] 标准SCR气体进料: 900ppm NH₃、750ppm NO、10%H₂O、10%O₂

[0555] 结果显示在图6和7中。图6概括在标准SCR气体进料条件下在250和500℃下获得的结果。从图6中可以得出, 对比例3的NO_x转化水平在250℃下为大约91%且在500℃下为大约91%, 而实施例3.1和3.2的NO_x转化性能在500℃下更好且在250℃下为大约85-88.5%。此外, 从图7中可以得出, 实施例3.1和3.2的催化剂也表现出比对比例的催化剂(34ppm)低的一氧化二氮形成, 其为24-30ppm。因此, 由所述结果清楚看出, 该新型催化剂制造概念已经表明, 可实现灵活的含Fe区并且将Fe添加到对比例3中的优点将带来改进或类似的NO_x转化率和N₂O生成量的显著减少。

[0556] 附图简述

[0557] 图1a显示在标准SCR进料条件下用实施例1.1、1.2、1.3和对比例1的催化剂获得的NO_x转化率。

[0558] 图1b显示在快速SCR进料条件下用实施例1.1、1.2、1.3和对比例1的催化剂获得的NO_x转化率。

[0559] 图2a显示在标准SCR进料条件下用实施例1.1、1.2、1.3和对比例1的催化剂获得的N₂O形成。

[0560] 图2b显示在快速SCR进料条件下用实施例1.1、1.2、1.3和对比例1的催化剂获得的N₂O形成。

[0561] 图3显示根据第二套实施方案的排气处理催化剂的示意图。所示催化剂包含基底1, 优选流通型基底, 其被第一涂层2—氨氧化涂层, 优选包含铂/氧化铝的氨氧化涂层和被第二涂层3(3a+3b)涂布, 其中部分3a包含含铜沸石材料且部分3b包含铁和含铜沸石材料。部分3b形成催化剂的第一区域, 且催化剂的第二区域包含部分3a。第一涂层在第二区域内。

[0562] 图4显示在标准SCR进料条件下用实施例2.1、2.2和对比例2的催化剂获得的NO_x转化率。

[0563] 图5显示在标准SCR进料条件下用实施例2.1、2.2和对比例2的催化剂获得的N₂O形成。

[0564] 图6显示在标准SCR进料条件下用实施例3.1、3.2和对比例3的催化剂获得的NO_x转化率。

[0565] 图7显示在标准SCR进料条件下用实施例3.1、3.2和对比例3的催化剂获得的N₂O形成。

[0566] 引用的文献

[0567] US 2011/0305614 A1

[0568] WO 2016/070090 A1

[0569] WO 2017/153894 A1

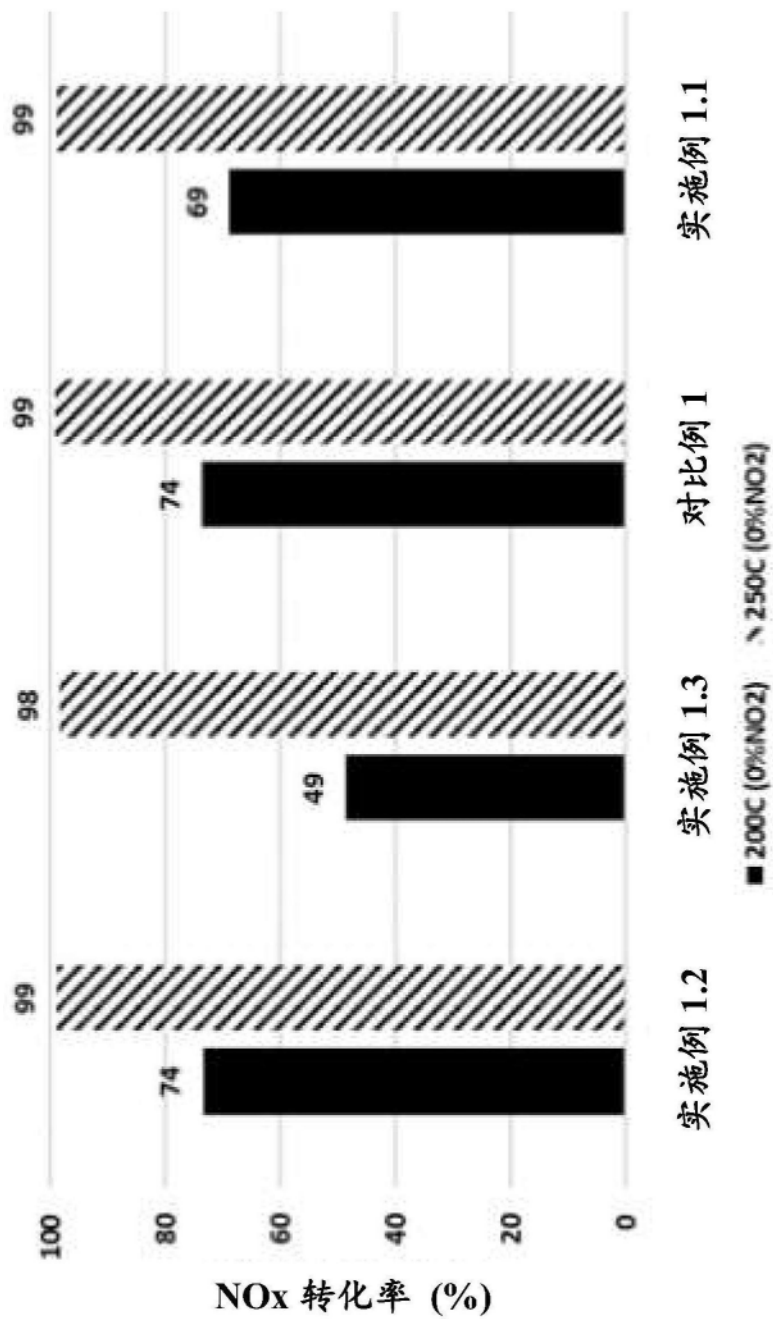


图1a

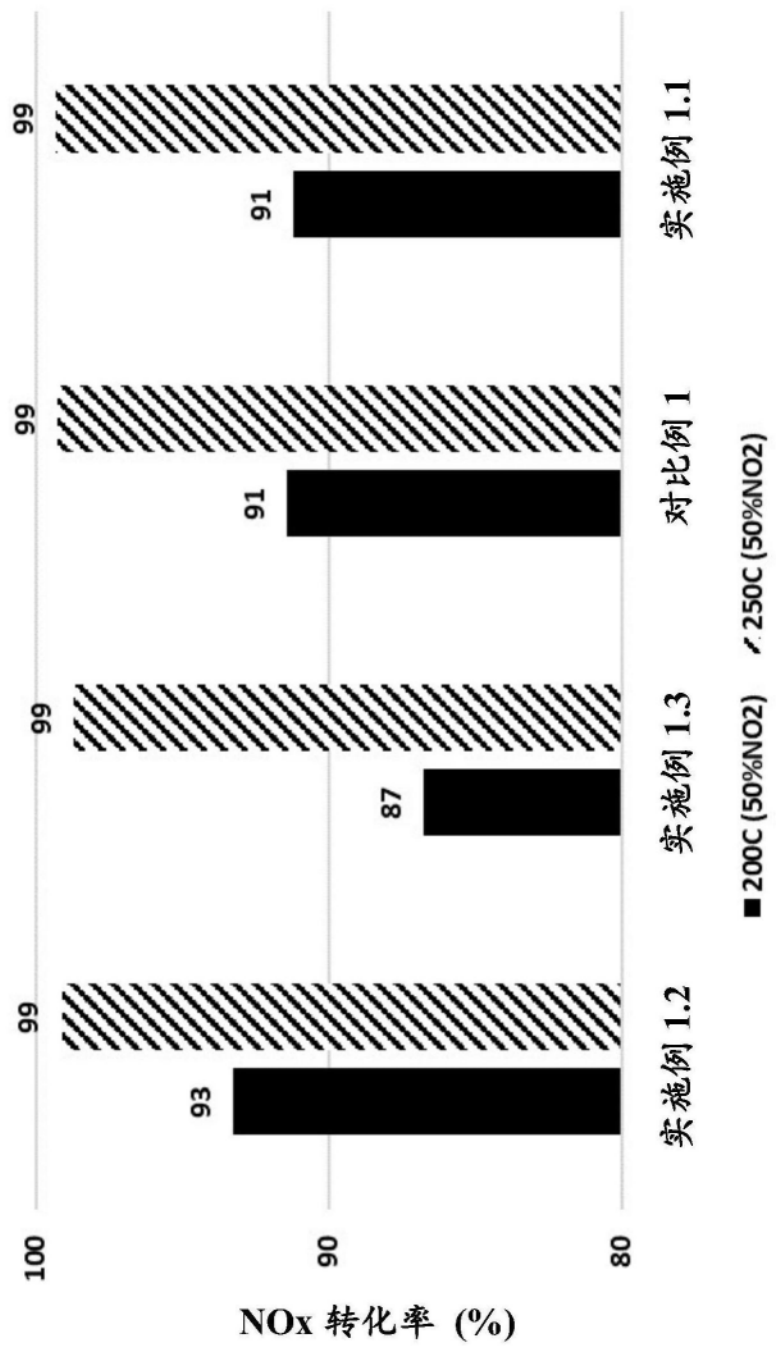


图1b

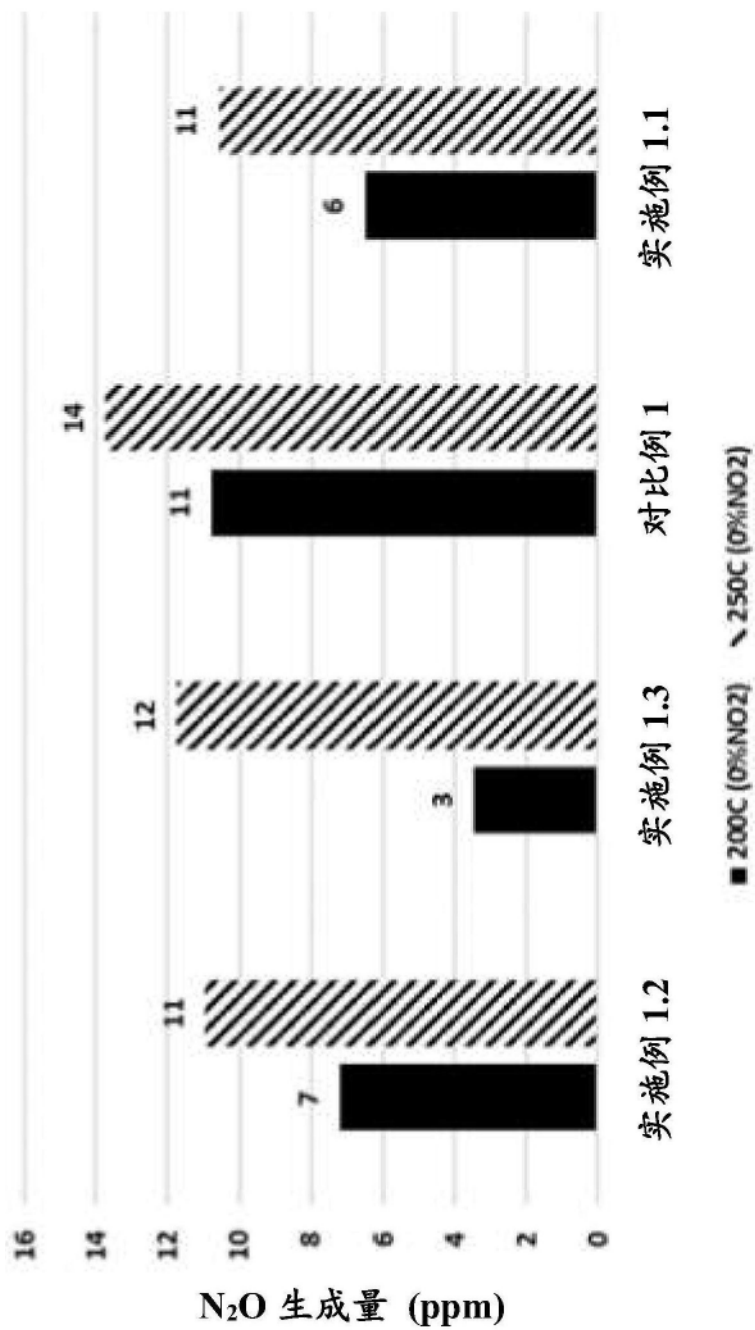


图2a

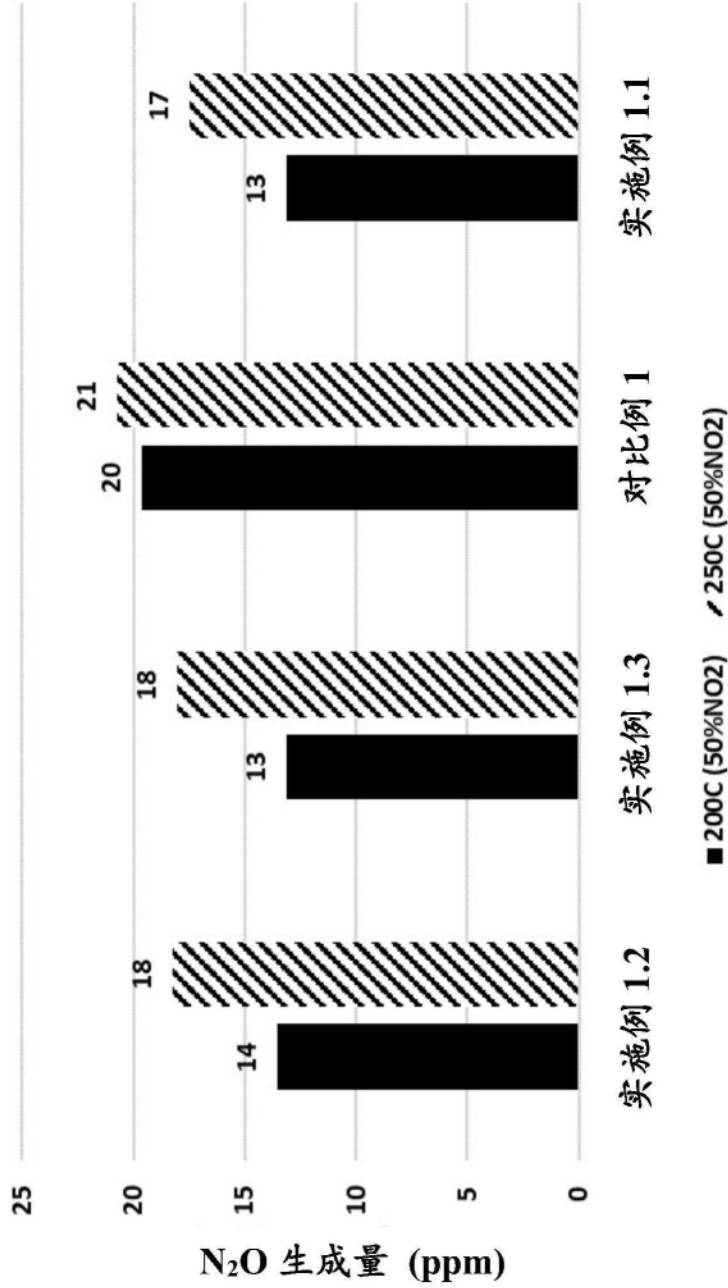


图2b

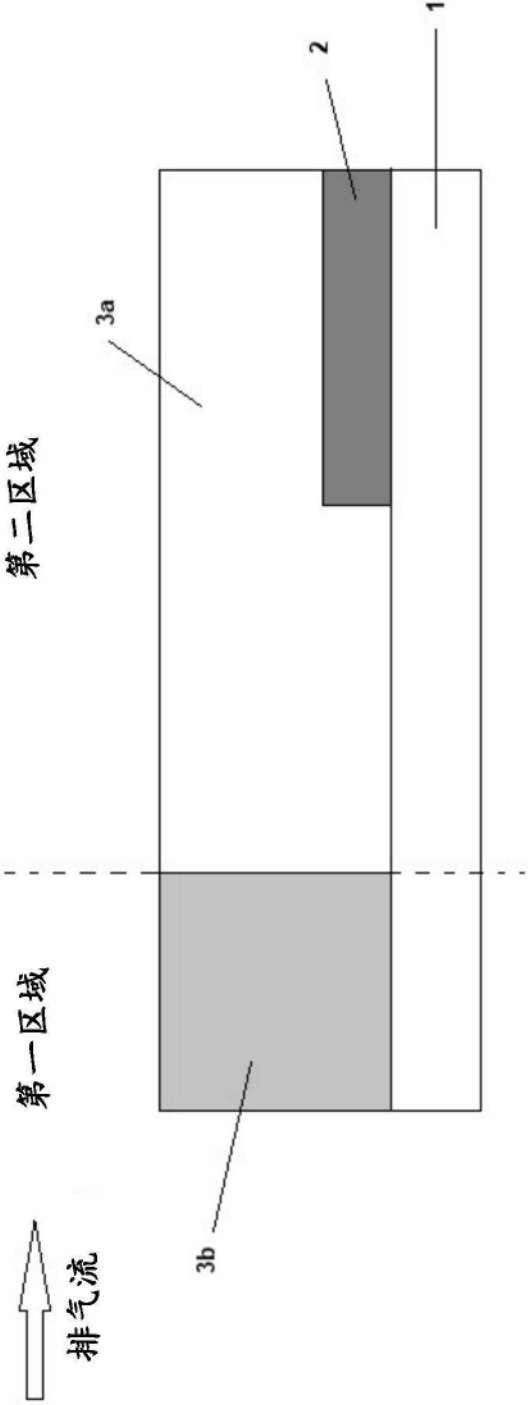


图3

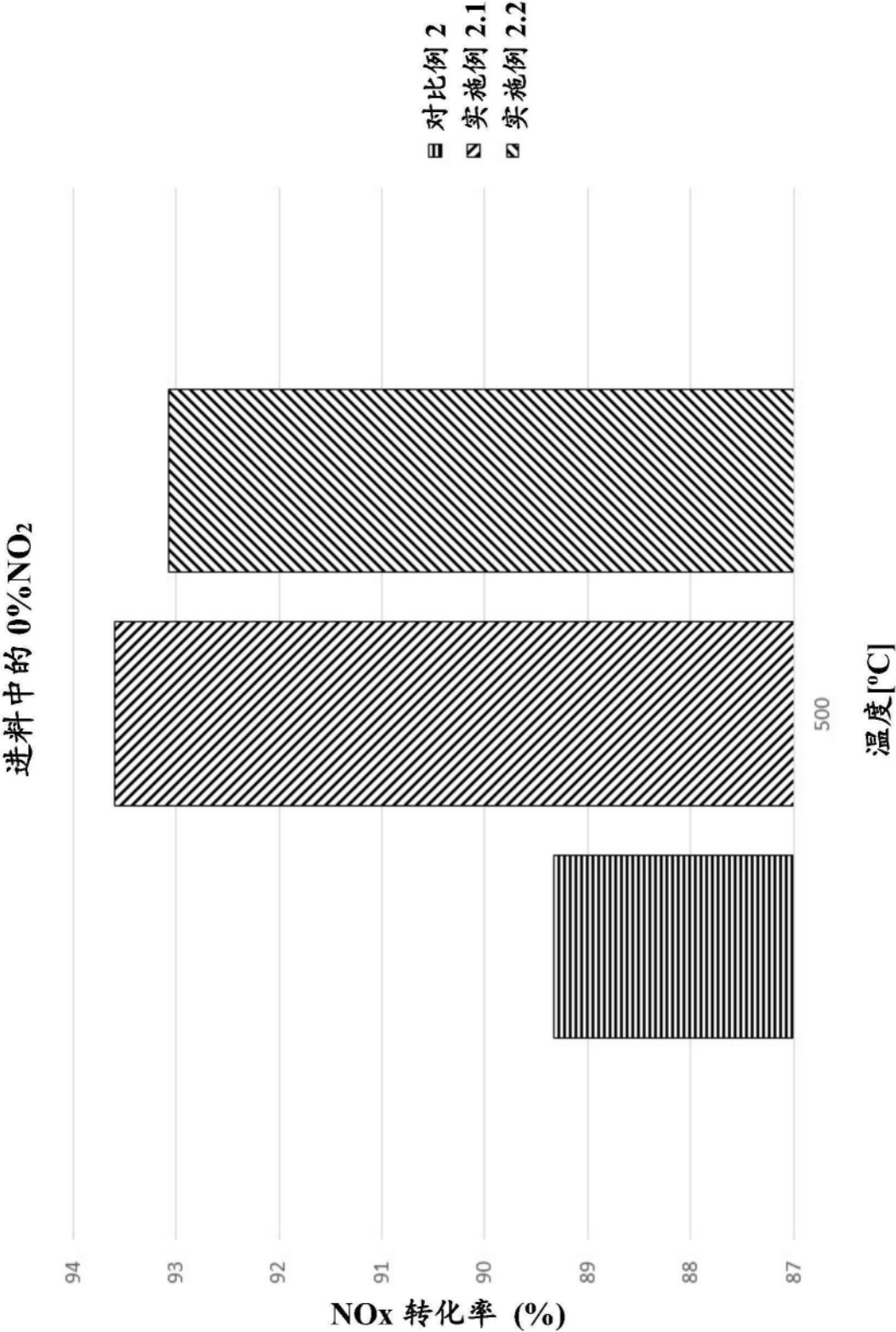


图4

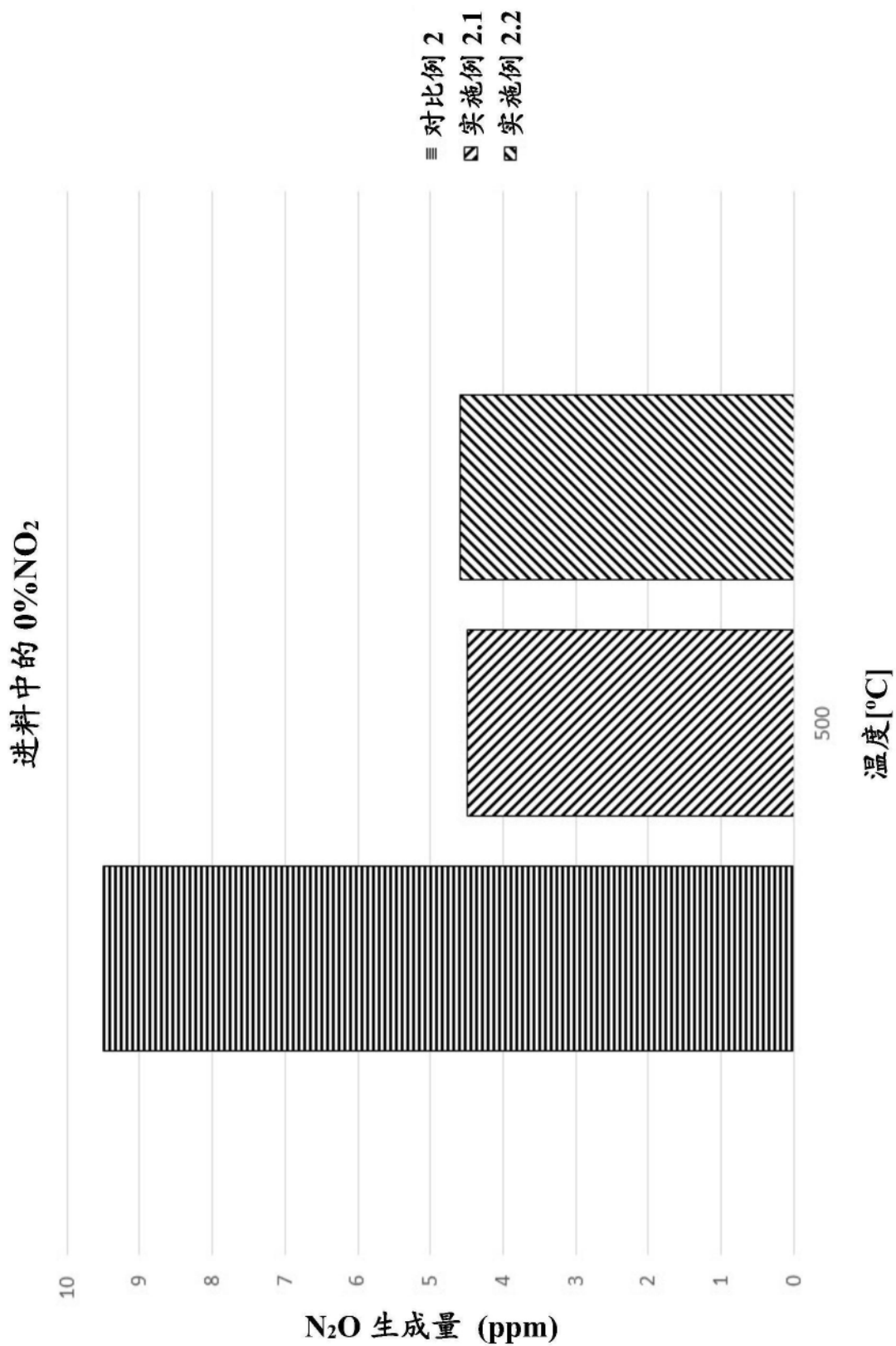


图5

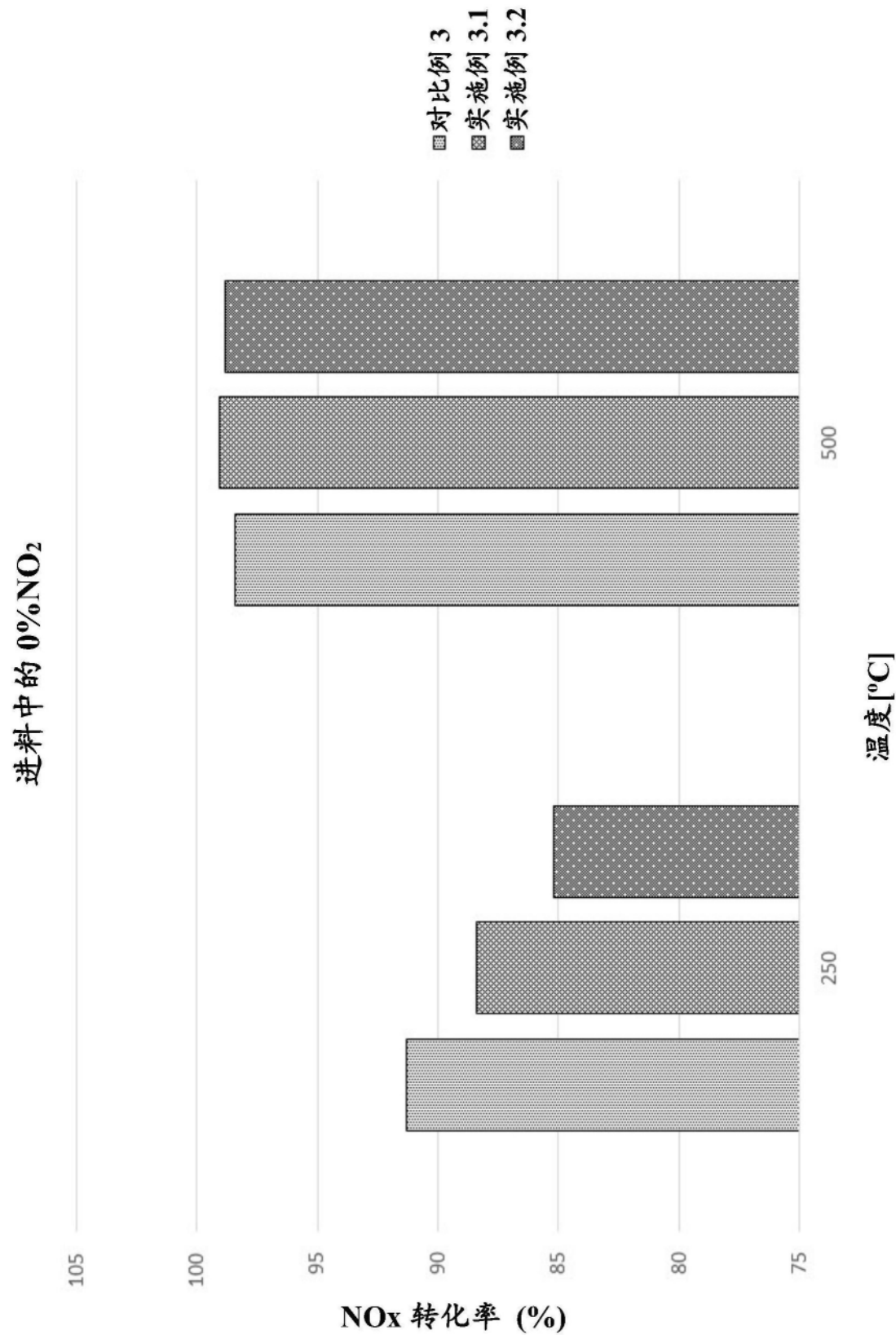


图6

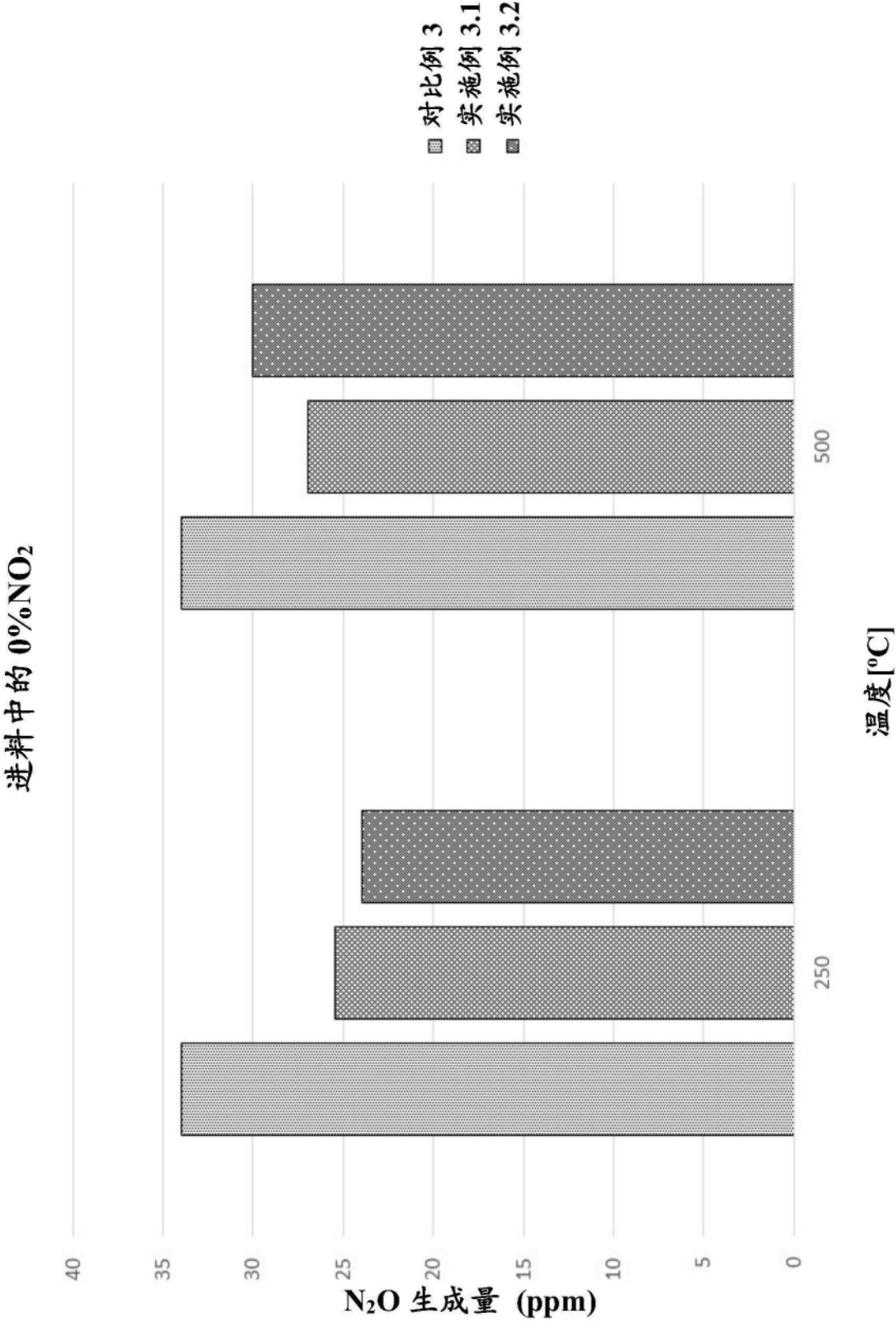


图7