

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
28. August 2008 (28.08.2008)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 2008/101585 A1

(51) Internationale Patentklassifikation:

F01N 3/035 (2006.01) F01N 3/20 (2006.01)
F01N 3/08 (2006.01)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2008/000631

(22) Internationales Anmeldedatum:
28. Januar 2008 (28.01.2008)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:
EP07003720 23. Februar 2007 (23.02.2007) EP

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): UMICORE AG & CO. KG [DE/DE]; Rodenbacher Chaussee 4, 63457 Hanau-Wolfgang (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): PFEIFER, Marcus [DE/DE]; Wittküller Strasse 154a, 42719 Solingen (DE). KOEGEL, Markus [DE/DE]; Wormser Landstrasse 4, 67346 Speyer (DE). SCHNEIDER, Wolfgang [DE/DE]; Eichenweg 1, 63517 Rodenbach (DE). SOEGER, Nicola [DE/DE]; Ringelstrasse 16, 60385 Frankfurt am Main (DE). ADELMANN, Katja [DE/DE]; Inder Gartel 20,

63517 Rodenbach (DE). JESKE, Gerald [DE/DE]; Goethestrasse 41, 63543 Neuberg (DE). KREUZER, Thomas [DE/DE]; Philipp-Reis-Strasse 13, 61184 Karben (DE).

(74) Anwalt: WITTROCK, Meike; Umicore AG & Co. KG, Patente, Postfach 13 51, 63403 Hanau (DE).

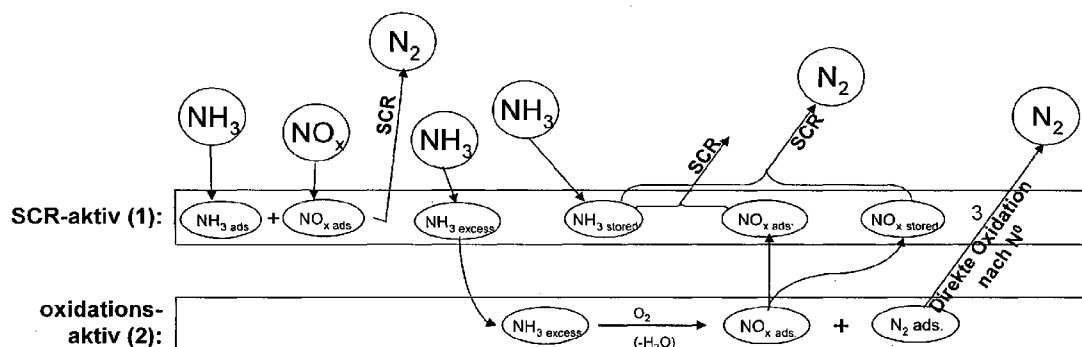
(81) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK,

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: CATALYTIC ACTIVATED DIESEL PARTICLE FILTER WITH AMMONIA TRAP EFFECT

(54) Bezeichnung: KATALYTISCH AKTIVIERTES DIESELPARTIKELFILTER MIT AMMONIAK-SPERRWIRKUNG



- 1 SCR active
- 2 Oxidation active
- 3 direct oxidation to No

(57) Abstract: A catalytic activated diesel particle filter with ammonia trap effect is disclosed, comprising a coating (1) catalytically active in the SCR reaction in addition to an oxidation active coating (2). Said diesel particle filter permits a significantly simpler and more economical design of exhaust gas treatment units for removing nitrogen oxides and particles from the exhaust gas of lean-burn engines.

(57) Zusammenfassung: Es wird ein katalytisch aktiviertes Dieselpartikelfilter mit Ammoniak-Sperrwirkung vorgestellt, das zusätzlich zu einer oxidationsaktiven Beschichtung (2) eine in der SCR-Reaktion katalytisch aktive Beschichtung (1) enthält. Mit Hilfe dieses erfindungsgemäßen Dieselpartikelfilters ist es möglich, Abgasreinigungsanlagen zur Entfernung von Stickoxiden und Partikeln aus dem Abgas von Magermotoren erheblich einfacher und kostengünstiger zu gestalten.

WO 2008/101585 A1



EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV,
MC, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF,
BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN,
TD, TG).

Erklärungen gemäß Regel 4.17:

— *hinsichtlich der Identität des Erfinders (Regel 4.17 Ziffer i)*

— *hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, ein Patent zu beantragen und zu erhalten (Regel 4.17 Ziffer ii)*

Veröffentlicht:

— *mit internationalem Recherchenbericht*
— *vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen eintreffen*

Katalytisch aktiviertes Dieselpartikelfilter mit Ammoniak-Sperrwirkung

Beschreibung

Die Erfindung betrifft ein katalytisch aktiviertes Dieselpartikelfilter, das zusätzlich zu den für einen Dieselpartikelfilter typischen Eigenschaften eine Ammoniak-Sperrwirkung aufweist. Die Erfindung betrifft weiterhin Abgasreinigungsanlagen zur Entfernung von Stickoxiden und Partikeln aus dem Abgas von überwiegend mager betriebenen Verbrennungsmotoren unter Verwendung des erfindungsgemäßen katalytisch aktivierten Dieselpartikelfilters in verschiedenen Ausgestaltungen.

Die im Abgas eines Kraftfahrzeugs enthaltenen Emissionen können in zwei Gruppen unterschieden werden. So bezeichnet der Begriff Primäremission Schadgase, die durch den Verbrennungsprozeß des Kraftstoffes im Motor direkt entstehen und bereits vor dem Passieren von Abgasreinigungseinrichtungen in der sogenannten Rohemission vorhanden sind. Als Sekundäremission werden solche Schadgase bezeichnet, die als Nebenprodukte in der Abgasreinigungsanlage entstehen können.

Das Abgas von Magermotoren enthält neben den üblichen Primäremissionen Kohlenmonoxid CO, Kohlenwasserstoffe HC und Stickoxide NOx einen relativ hohen Sauerstoffgehalt von bis zu 15 Vol.-%. Im Falle von Dieselmotoren kommt zu den gasförmigen Primäremissionen noch eine Partikelemission hinzu, die überwiegend aus Rußrückständen und gegebenenfalls organischen Agglomeraten besteht und aus einer partiell unvollständigen Kraftstoffverbrennung im Zylinder herrührt.

Die Einhaltung der Abgasgrenzwerte, die durch die zukünftig gültigen Abgasgesetzgebungen in Europa, Nordamerika und Japan vorgeschrieben sind, erfordert insbesondere im Falle von Dieselfahrzeugen neben einer Stickoxidentfernung aus dem Abgas („Entstickung“) auch dessen Reinigung von Partikeln. Die Schadgase Kohlenmonoxid und Kohlenwasserstoffe können aus dem mageren Abgas durch Oxidation an einem geeigneten Oxidationskatalysator leicht unschädlich gemacht werden. Die Reduktion der Stickoxide zu Stickstoff ist wegen des hohen Sauerstoffgehaltes wesentlich schwieriger. Für die Entfernung der Partikelemissionen ist der Einsatz spezieller Dieselpartikelfilter unumgänglich.

Bekanntes Verfahren zur Entfernung von Stickoxiden aus Abgasen sind zum einen Verfahren unter Verwendung von Stickoxid-Speicherkatalysatoren (NO_x Storage Catalyst NSC) und zum anderen Verfahren zur selektiven katalytischen Reduktion (Selective Catalytic Reduktion SCR) mittels Ammoniak an einem geeigneten Katalysator, kurz SCR-Katalysator.

Die Reinigungswirkung von Stickoxid-Speicherkatalysatoren beruht darauf, daß in einer mageren Betriebsphase des Motors die Stickoxide vom Speicher material des Speicherkatalysators vorwiegend in Form von Nitraten gespeichert werden. Ist die Speicherkapazität des NSC erschöpft, so muß der Katalysator in einer darauffolgenden fetten Betriebsphase des Motors regeneriert werden. Dies bedeutet, daß die zuvor gebildeten Nitrate zersetzt und die wieder freiwerdenden Stickoxide mit den reduzierenden Abgasanteilen am Speicherkatalysator zu Stickstoff, Kohlendioxid und Wasser umgesetzt werden. Die Arbeitsweise von Stickoxid-Speicherkatalysatoren wird ausführlich in der SAE-Schrift SAE 950809 beschrieben.

Da die Realisierung einer fetten Betriebsphase bei Dieselmotoren nicht ohne weiteres möglich ist und die Einstellung der zur Regeneration des NSC benötigten fetten Abgasbedingungen häufig Hilfsmaßnahmen wie eine Kraftstoffnacheinspritzung in den Abgasstrang erfordert, wird zur Entstickung von Dieselfahrzeugabgasen bevorzugt das SCR-Verfahren eingesetzt.

Dabei wird, je nach Motorenkonzeption und Aufbau der Abgasanlage, zwischen „aktiven“ und „passiven“ SCR-Verfahren unterschieden, wobei bei „passiven“ SCR-Verfahren in der Abgasanlage gezielt generierte Ammoniak-Sekundäremissionen als Reduktionsmittel zur Entstickung genutzt werden.

Beispielsweise beschreibt die US 6,345,496 B1 ein Verfahren zur Reinigung von Motorenabgasen, worin wiederholt alternierend magere und fette Luft/Kraftstoff-Verhältnisse eingestellt werden und das so erzeugte Abgas durch eine Abgasanlage geleitet wird, die anströmseitig einen Katalysator enthält, der nur unter fetten Abgasbedingungen NO_x zu NH₃ umsetzt, während abströmseitig ein weiterer Katalysator angeordnet ist, der im mageren Abgas NO_x adsorbiert oder einspeichert, dieses im fetten freisetzt, so daß es mit vom anströmseitigen Katalysator erzeugten NH₃

zu Stickstoff reagieren kann. Als Alternative kann gemäß der US 6,345,496 B1 abströmseitig ein NH_3 -Adsorptions- und Oxidationskatalysator angeordnet sein, der im fetten NH_3 einspeichert, dieses im Mageren desorbiert und mit Sauerstoff zu Stickstoff und Wasser oxidiert. Weitere Offenbarungen solcher Verfahren sind bekannt.

- 5 Wie bereits der Einsatz der Stickoxid-Speicher-katalysatoren haben solche „passiven“ SCR-Verfahren den Nachteil, daß einer ihrer wesentlichen Bestandteile die Bereitstellung fetter Abgasbedingungen ist, die in der Regel zur in-situ-Erzeugung von Ammoniak als Reduktionsmittel benötigt werden.

Demgegenüber wird in „aktiven“ SCR-Verfahren das Reduktionsmittel aus einem
10 mitgeführten Zusatztank mittels einer Einspritzdüse in den Abgasstrang eindosiert. Als solches kann außer Ammoniak auch eine leicht zu Ammoniak zersetzliche Verbindung wie zum Beispiel Harnstoff oder Ammoniumcarbamat verwendet werden. Ammoniak muß dem Abgas mindestens im stöchiometrischen Verhältnis zu den Stickoxiden
15 zugeführt werden. Die genaue Dosierung des Ammoniaks bereitet wegen der stark schwankenden Betriebsbedingungen der Kraftfahrzeuge große Schwierigkeiten. Dies führt teilweise zu erheblichen Ammoniak-Durchbrüchen nach SCR-Katalysator. Zur Vermeidung der Ammoniak-Sekundäremission wird gewöhnlich hinter dem SCR-Katalysator ein Oxidationskatalysator angeordnet, der durchbrechendes Ammoniak zu Stickstoff oxidieren soll. Ein solcher Katalysator wird im folgenden als Ammoniak-
20 Sperrkatalysator bezeichnet.

Ammoniak-Sperrkatalysatoren, die zur Oxidation von durchbrechendem Ammoniak hinter einem SCR-Katalysator angeordnet sind, sind in verschiedenen Ausführungs-
formen bekannt. So beschreibt die DE 3929297 C2 (US 5120695) eine solche Katalysatoranordnung. Demnach ist der Oxidationskatalysator als Beschichtung auf
25 einem abströmseitigen Abschnitt des einstückigen als Vollextrudat in Wabenform ausgeführten Reduktionskatalysators aufgebracht, wobei der mit dem Oxidationskatalysator beschichtete Bereich 20 bis 50% des gesamten Katalysatorvolumens ausmacht. Der Oxidationskatalysator enthält als katalytisch aktive Komponenten wenigstens eines der Platingruppenmetalle Platin, Palladium und Rhodium, die auf Ceroxid,
30 Zirkonoxid und Aluminiumoxid als Trägermaterialien abgeschieden sind.

Gemäß der EP 1 399 246 B1 können die Platingruppenmetalle auch direkt auf den Komponenten des Reduktionskatalysators als Trägermaterialien durch Imprägnieren mit löslichen Vorstufen der Platingruppenmetalle aufgebracht werden.

Gemäß JP 2005-238199 kann die Edelmetall-haltige Schicht eines Ammoniak-
5 Oxidationskatalysators auch unter einer Beschichtung aus Titanoxid, Zirkonoxid, Siliziumoxid oder Aluminiumoxid und einem Übergangsmetall oder einem Selten-Erd-Metall eingebracht werden.

Zur Entfernung von Partikelemissionen aus dem Abgas von Dieselfahrzeugen werden spezielle Dieselpartikelfilter eingesetzt, die zur Verbesserung ihrer Eigenschaften mit
10 einer Oxidationskatalysator-haltigen Beschichtung versehen sein können. Eine solche Beschichtung dient, wie in der SAE-Schrift SAE 2005-01-1756 ausführlich beschrieben, der Erniedrigung der Aktivierungsenergie für den sauerstoffbasierten Partikelabbrand (Rußverbrennung) und somit der Absenkung der Rußzündtemperatur auf dem Filter, der Verbesserung des passiven Regenerationsverhaltens durch Oxidation von im
15 Abgas enthaltenen Stickstoffmonoxid zu Stickstoffdioxid und der Unterdrückung von Durchbrüchen von Kohlenwasserstoff- und Kohlenmonoxidemissionen.

Ein besonderes Problem bei der Beschichtung von Filtersubstraten stellt die Erhöhung des Abgasgedruckes durch die aufgebraute Beschichtung dar. Der Abgasgedruck erhöht sich schon durch die Rußablagerungen auf dem Filter während des
20 Betriebes kontinuierlich und vermindert damit die Leistung des Motors. Das Filter muß daher von Zeit zu Zeit durch Abbrennen des Rußes regeneriert werden. Handelt es sich um ein beschichtetes Filtersubstrat, wird der Rußabbrand zwar in der Regel erleichtert, doch ist bereits der Abgasgedruck des unbelegten, beschichteten Filters oft bereits höher als der eines nicht beschichteten Filters. Es ist daher nicht ohne weiteres möglich,
25 die katalytische Funktionalität eines Partikelfilters durch Veränderungen der Beschichtung, beispielsweise durch Einbringen zusätzlicher katalytisch aktiver Komponenten, zu verändern.

Ist nun mit dem Ziel der Erfüllung gesetzlich vorgeschriebener Abgasgrenzwerte sowohl die Entstickung als auch die Entfernung von Partikeln aus dem Abgas von
30 Dieselfahrzeugen erforderlich, so werden die beschriebenen Maßnahmen zur Entfer-

nung einzelner Schadgase in einer entsprechenden konventionellen Abgasanlage durch Hintereinanderschaltung kombiniert. Beispielsweise beschreibt die WO 99/39809 ein Abgasreinigungssystem, in dem ein Oxidationskatalysator zur Oxidation von NO in NO_x zu NO₂, ein Partikelfilter, eine Dosiereinrichtung für ein Reduktionsmittel und ein SCR-Katalysator aufeinander folgen. Zur Vermeidung von Ammoniak-Durchbrüchen ist nach dem SCR-Katalysator in der Regel noch ein zusätzlicher Ammoniak-Sperrkatalysator erforderlich, der die Reihe der Katalysatoren abströmseitig zum SCR-Katalysator fortsetzt.

DE 20 2005 008 146 U1 offenbart eine Abgasanlage für ein Kraftfahrzeug umfassend wenigstens einen regenerierbaren Partikelfilter und einen dem Partikelfilter nachgeschalteten SCR-Katalysator mit Ammoniak-Speicherfähigkeit, wobei der nachgeschaltete SCR-Katalysator, den Angaben in dieser Schrift zufolge, dazu dient, speziell die während der Regeneration des Partikelfilters auftretenden NH₃-Spitzen im Abgas abzufangen, weshalb der SCR-Katalysator dem Partikelfilter nachgeschaltet ist.

Solche konventionellen Systeme sind wegen der Vielzahl der benötigten Katalysatoren, teuer. Die Hintereinanderschaltung der Katalysatoren führt darüber hinaus zu einem hohen Bedarf an Bauraum in der Abgasanlage. Ihre Unterbringung gestaltet sich insbesondere in kleineren Fahrzeugen oft schwierig. Darüber hinaus führt die Hintereinanderschaltung von Katalysatoren, von denen jeder einen eigenen Staudruck auf das zu reinigende Abgas ausübt, zu ungünstigen Werten des Abgasgegendruckes über die gesamte Abgasanlage und vermindert somit die Leistung des Motors.

In einer bevorzugte Ausführungsform des in der DE 20 205 008 146 U1 beschriebenen Systems bilden der Partikelfilter und der SCR-Katalysator eine gemeinsame, kombinierte Einheit mit einem gemeinsamen Einsatzkörper, der üblicherweise ein monolithisches Keramiksubstrat ist. Der SCR-Katalysator wird hier nur durch eine entsprechende Beschichtung des Keramiksubstrates auf der Abströmseite gebildet.

Es ist Aufgabe der vorliegenden Erfindung, durch Verbesserung bestehender Partikelfiltertechnologien Bauteile zur Verfügung zu stellen, durch deren Einsatz Abgasreinigungsanlagen zur gleichzeitigen Entstickung und Entfernung von Partikeln aus dem Abgas von Magermotoren unter Einsparung von Abgasreinigungsaggregaten

vereinfacht werden können. Zugleich ist es Aufgabe der vorliegenden Erfindung, einen Beitrag zur Minimierung des Abgasgedruckes solcher Anlagen zu leisten und dabei Potential zur Kostenersparnis aufzuzeigen.

Diese Aufgabe wird durch ein katalytisch aktiviertes Dieselpartikelfilter gelöst, das
5 einen Filterkörper und eine oxidationsaktive, katalytische Beschichtung sowie eine weitere, in der SCR-Reaktion katalytisch aktive Beschichtung enthält. Die in der SCR-Reaktion katalytisch aktive Beschichtung zeichnet sich dadurch aus, daß darin ein Ammoniak-Speichermaterial enthalten ist. Das Dieselpartikelfilter ist dadurch gekennzeichnet, daß eine Anordnung der Schichten eingehalten wird, so daß das zu reinigende
10 Abgas zuerst die in der SCR-Reaktion katalytisch aktive Beschichtung und danach die oxidationsaktive, katalytische Beschichtung passiert.

Die Aufgabe wird weiterhin durch eine Abgasreinigungsanlage zur Entfernung von Stickoxiden und Partikeln aus dem Abgas von überwiegend mager betriebenen Verbrennungsmotoren gelöst, die neben einem zur Entfernung von Stickoxiden
15 geeigneten Katalysator ein erfindungsgemäßes katalytisch aktiviertes Dieselpartikelfilter enthält.

Durch die Kombination der in konventionellen Partikelfiltern bereits gegebenenfalls enthaltenenen oxidationsaktiven Beschichtung mit einer in der SCR-Reaktion katalytisch aktiven Beschichtung („SCR-Beschichtung“; „SCR-aktive Schicht“) enthält
20 das Dieselpartikelfilter eine zusätzliche Ammoniak-Sperrwirkung. Die Kombination der Beschichtungen befähigt das Partikelfilter, zusätzlich zu den ohnehin vorhandenen Funktionen (Partikelfilterung / Partikelabbrand mit abgesenkter Rußzündtemperatur; verbessertes passives Regenerationsverhalten, NO-Oxidation, Unterdrückung von Durchbrüchen von CO- und HC-Emissionen), einerseits Stickoxide zu Stickstoff zu
25 reduzieren und andererseits Ammoniak zu Stickstoff zu oxidieren. Passiert das zu reinigende Abgas zunächst die SCR-aktive Schicht und dann die oxidationsaktive Beschichtung, so beruht die Multifunktionalität hinsichtlich des Umsatzes der Stickstoff-haltigen Schadgase vermutlich auf folgendem, in Figur 1 schematisch dargestelltem Reaktionsablauf:

- 1) Stickoxide und Ammoniak aus dem Abgas werden auf der SCR-aktiven Schicht (1) absorbiert und reagieren in einer selektiven katalytischen Reaktion zu Wasser und Stickstoff, die nach Reaktionsabschluß desorbieren. Dabei ist Ammoniak in überstöchiometrischer Menge vorhanden, liegt also im Überschuß vor.
5
- 2) Überschüssiger Ammoniak diffundiert in die SCR-aktive Schicht (1). Ammoniak wird dort teilweise eingespeichert.
- 3) Nicht gespeicherter Ammoniak gelangt durch die SCR-aktive Schicht (1) hindurch zur oxidationsaktiven Beschichtung (2). Hier werden Stickstoff und Stickoxide erzeugt. Der entstandene Stickstoff diffundiert unverändert durch die SCR-aktive Schicht (1) hindurch und gelangt in die Atmosphäre.
10
- 4) Bevor die in der oxidationsaktiven Schicht (2) gebildeten Stickoxide das System verlassen, passieren sie erneut die SCR-aktive Beschichtung (1). Hier werden sie mit zuvor eingespeichertem Ammoniak $\text{NH}_3_{\text{stored}}$ in einer SCR-Reaktion zu N_2 umgesetzt.
15

Damit der beschriebene Reaktionsablauf zu möglichst hohen Umsetzungen der Stickstoff-haltigen Schadgase führt, ist es vorteilhaft, wenn die SCR-aktive Beschichtung über eine hinreichende Ammoniak-Speicherfähigkeit verfügt. Um dies sicherzustellen, enthält die SCR-aktive Schicht im erfindungsgemäßen Dieselpartikelfilter ein Ammoniak-Speichermaterial. Ammoniak-Speichermaterialien im Sinne dieser Schrift sind Verbindungen, die acide Zentren enthalten, an denen Ammoniak gebunden werden kann. Der Fachmann unterscheidet diese in Lewis-saure Zentren zur Physisorption von Ammoniak und Brönstedt-saure Zentren zur Chemiesorption von Ammoniak. Ein Ammoniak-Speichermaterial in einem erfindungsgemäßen Dieselpartikelfilter muß einen signifikanten Anteil Brönstedt-saurer Zentren und gegebenenfalls Lewis-saurer Zentren enthalten, um eine ausreichende Ammoniak-Speicherfähigkeit zu gewährleisten.
20
25

Wie hoch die Ammoniak-Speicherfähigkeit eines katalytischen Materials ist, kann mit Hilfe der temperaturprogrammierten Desorption ermittelt werden. Bei dieser Standardmethode zur Charakterisierung heterogener Katalysatoren wird das zu charakterisierende Material nach Ausheizen von gegebenenfalls adsorbierten Komponenten wie
30

beispielsweise Wasser mit einer definierten Menge Ammoniak-Gas beladen. Dies erfolgt bei Raumtemperatur. Dann wird die Probe unter Inertgas mit einer konstanten Heizrate aufgeheizt, so daß zuvor von der Probe aufgenommenes Ammoniak-Gas desorbiert wird und mit einer geeigneten Analytik quantitativ erfasst werden kann. Als
5 Kenngröße für die Ammoniak-Speicherfähigkeit des Materials wird eine Ammoniakmenge in Milliliter pro Gramm Katalysatormaterial erhalten, wobei der Begriff „Katalysatormaterial“ immer das zur Charakterisierung eingesetzte Material bezeichnet. Diese Kenngröße ist abhängig von der gewählten Aufheizrate. In dieser Schrift angegebene Werte beziehen sich immer auf Messungen mit einer Aufheizrate von 4
10 Kelvin pro Minute.

Die Ammoniak-Speicherkapazität der in der SCR-Reaktion katalytisch aktiven Beschichtung im erfindungsgemäßen Dieselpartikelfilter beträgt vorzugsweise mindestens 20 Milliliter Ammoniak pro Gramm Katalysatormaterial, besonders bevorzugt bis zu 70 Milliliter pro Gramm Katalysatormaterial. Besonders gut geeignet
15 sich SCR-aktive Schichten mit einer Ammoniak-Speicherkapazität von 25 bis 40 Milliliter Ammoniak pro Gramm Katalysatormaterial.

SCR-aktive Beschichtungen mit den beschriebenen Ammoniak-Speichereigenschaften enthalten bevorzugt Zeolithe, die mit Wasserstoffkationen („H-Zeolithe“) oder Übergangsmetallkationen ausgetauscht wurden. Gut geeignet sind mit Eisen oder
20 Kupfer oder Eisen und Kupfer ausgetauschte Zeolithe, wobei es sich vorzugsweise um beta-Zeolith oder Y-Zeolith oder Faujasit oder Mordenit oder ZSM-5 oder Kombinationen davon handelt.

In besonders gut geeigneten Ausgestaltungen der Erfindung ist die SCR-aktive Beschichtung im erfindungsgemäßen Dieselpartikelfilter frei von Edelmetallen.
25 Dadurch wird sichergestellt, daß die Selektivität in der SCR-Reaktion möglichst hoch ist. Zur weiteren Verbesserung der SCR-Aktivität können außerdem Zusätze ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Ceroxid, Titanoxid, Zirkoniumoxid, Vanadiumoxid, Molybdänoxid, Wolframoxid, Siliziumdioxid, sowie Mischungen und /oder Mischoxide davon enthalten sein.

Viele konventionelle Dieselpartikelfilter enthalten eine oxidationsaktive Beschichtung. Im erfindungsgemäßen Dieselpartikelfilter ist diese bevorzugt frei von Zeolithen. In besonders gut geeigneten Ausgestaltungen der Erfindung enthält die oxidationsaktive, katalytische Beschichtung Platin oder Palladium oder Mischungen davon auf einem
5 Trägermaterial ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus hochoberflächigem, aktivem Aluminiumoxid, Ceroxid, Zirkonoxid, Titanoxid, Siliziumoxid und Mischungen oder Mischoxiden davon.

Die oxidationsaktive, katalytische Beschichtung und die in der SCR-Reaktion katalytisch aktive Beschichtung werden in definierter Weise auf einen zur Abscheidung von
10 Dieselpartikeln geeigneten Filterkörper aufgebracht. Geeignet sind Filterkörper ausgewählt aus der Gruppe der keramischen Wandflußfiltersubstrate, der Sintermetallfilterkörper oder der keramischen oder metallischen Schaumstrukturen. Bevorzugt eingesetzt werden keramische Wandflußfiltersubstrate, die Wände mit einer offeneren Struktur mit einer Porosität von 40 bis 80 % und einem mittleren Porendurchmesser von 9 bis 30 Micrometern aufweisen. Besonders bevorzugt werden
15 keramische Wandflußfiltersubstrate mit einer Porosität von 45 bis 65 % und einem mittleren Porendurchmesser von 9 bis 22 Micrometern eingesetzt.

Bei der Aufbringung der Beschichtungen auf den Filterkörper ist einerseits darauf zu achten, daß die für den beschriebenen Reaktionsmechanismus erforderliche Anordnung
20 der Schichten eingehalten wird, so daß das zu reinigende Abgas zuerst die in der SCR-Reaktion katalytisch aktive Beschichtung und danach die oxidationsaktive, katalytische Beschichtung passiert. Weiterhin muß die Möglichkeit der Rückdiffusion des Abgases aus der oxidationsaktiven Beschichtung durch die SCR-aktive Beschichtung in den Gasraum gegeben sein. Andererseits ist dafür Sorge zu tragen, daß die Staudruck-
25 eigenschaften des resultierenden katalytisch aktivierten Dieselpartikelfilters nicht wesentlich verschlechtert werden. Diese Summe der Anforderungen stellt eine Herausforderung bei der Herstellung des erfindungsgemäßen katalytisch aktivierten Dieselpartikelfilters dar.

Ungeachtet der Art des eingesetzten Filterkörpers wird zunächst die oxidationsaktive, katalytische Beschichtung (2) auf den als Tragkörper dienenden Filterkörper (3)
30 aufgebracht, wobei sie die gesamte Länge des Bauteils einnimmt. Das resultierende

oxidationskatalytisch beschichtete Filter stellt dann den Tragkörper für die in der SCR-Reaktion katalytisch aktive Beschichtung (1) dar. Somit wird die SCR-aktive Beschichtung auf die oxidationsaktive Beschichtung aufgebracht. In der bevorzugten Ausführungsform nimmt die SCR-aktive Beschichtung nur einen Teil der Länge des Bauteils ein und ist auf der Anströmseite angeordnet, wie in Figur 2 dargestellt. Die Strömungsrichtung des Abgases ist mit einem Pfeil angegeben. Durch diese Anordnung kommt das zu reinigende Abgas entsprechend den Erfordernissen aus dem angenommenen Reaktionsmechanismus zunächst mit der SCR-aktiven Beschichtung in Kontakt, bevor es an der oxidationsaktiven Beschichtung umgesetzt werden kann. Auch die Rückdiffusion des Abgases durch die SCR-aktive Beschichtung in den Gasraum, für die ein enger Kontakt der beiden Schichten Voraussetzung ist, ist gesichert. Darüber hinaus wird durch die Reduzierung der SCR-aktiven Beschichtung auf einen Teil der Bauteillänge

- a) die Minimierung des Staudruckes des Bauteils sichergestellt und
- b) gewährleistet, daß die für einen katalytisch beschichteten Dieselpartikelfilter vorteilhaften Eigenschaften wie der Partikelabbrand bei abgesenkter Rußzündtemperatur, das verbesserte passive Regenerationsverhalten und die Unterdrückung von Durchbrüchen von CO- und HC-Emissionen erhalten bleiben.

Die Frage, welchen Anteil der Länge des Bauteils die SCR-aktive Beschichtung einnehmen soll, ist abhängig vom Stoffmengenstrom des zu reinigenden Abgases und der Konzentration der darin enthaltenen Stickstoff-haltigen Schadgase. Sie ist so zu bemessen, daß auftretende Ammoniak-Durchbrüche vollständig zu Stickstoff umgesetzt werden können. Bevorzugt nimmt die in der SCR-Reaktion aktive katalytische Beschichtung 5 bis 50 % der Länge des Bauteils ein, besonders bevorzugt 10 bis 30 %.

In den bevorzugten Ausgestaltungen der Erfindung wird ein Wandflußfiltersubstrat verwendet. Zur Minimierung des Staudrucks des erfindungsgemäßen katalytisch aktivierten Dieselpartikelfilters wird die oxidationsaktive, katalytische Beschichtung über die gesamte Länge des Bauteils in die Poren der Wände des keramischen Wandflußfiltersubstrates eingebracht, so daß sie homogen in der jeweiligen Wand des

Wandflußfiltersubstrates verteilt ist. Wie diese Beschichtung durchzuführen ist, ist beispielsweise in der DE 10 2004 040 548 A1 der Anmelderin beschrieben.

Die Figuren 3 und 4 zeigen besonders bevorzugte Beschichtungsanordnungen in katalytisch aktivierten Wandflußfiltersubstraten als Ausschnitte aus der Struktur mit jeweils einen Anströmkanal (4) und einen Abströmkanal (5). Die Strömungsrichtung des Abgases ist durch Pfeile angegeben. An- und Abströmkanal sind durch eine für das Abgas durchlässige Wand (3a) mit offenporiger Struktur voneinander getrennt und zur Ab- bzw. Anströmseite durch einen gasdichten Kanalabschluß (3b) verschlossen.

Die in Figur 3 dargestellte Ausführungsform des erfindungsgemäßen katalytisch aktivierten Dieselpartikelfilters wird bevorzugt dann gewählt, wenn ein herkömmliches, eine oxidationsaktive Beschichtung enthaltendes Wandflußfiltersubstrat ohne Verlust seiner bisherigen Eigenschaften um eine Ammoniak-Sperrfunktion erweitert werden soll. Solche herkömmlichen, katalytisch aktivierten Wandflußfiltersubstrate weisen nicht selten eine in der Wand homogen verteilte, oxidationsaktive Beschichtung über die gesamte Länge des Bauteils auf, die die Poren bis zur anströmseitigen Oberfläche ausfüllt. Zur Erzeugung der Ammoniak-Sperrfunktion wird auf ein solches Partikelfilter auf der Anströmseite eine in der SCR-Reaktion katalytisch aktive Beschichtung über einen Teil der Länge des Bauteils aufgebracht. Bevorzugt ist die SCR-aktive Schicht auf der anströmseitigen Oberfläche der Wand angeordnet und nimmt 5 bis 50 % der Länge des Bauteils ein, besonders bevorzugt 10 bis 30 %.

Die in Figur 4 dargestellte Ausführungsform wird besonders bevorzugt, wenn das erfindungsgemäße katalytisch aktivierte Dieselpartikelfilter in einer Abgasreinigungsanlage eingesetzt wird, die einerseits über eine anströmseitig vorgeschaltete hochaktive Oxidationsfunktion zur Eliminierung von CO- und HC-Durchbrüchen verfügt, in der andererseits verstärkter Bedarf zur Entstickung des Abgases besteht, sofern das erfindungsgemäße Dieselpartikelfilter darin in der Regel mit Abgastemperaturen im Bereich von 100 bis 250°C ausgesetzt ist. In dieser Ausführungsform sind sowohl die oxidationsaktive Beschichtung als auch die SCR-aktive Beschichtung über die gesamte Länge des Bauteils homogen in der Wand verteilt, wobei die SCR-aktive Beschichtung die Poren bis zur anströmseitigen Oberfläche der Wand füllt, während die oxidationsaktive Beschichtung die Poren bis zur abströmseitigen Oberfläche der Wand

hin füllt. Diese Anordnung erfüllt ebenfalls alle durch den angenommenen Reaktionsmechanismus und die geforderten Staudruckeigenschaften bestehenden Erfordernisse. Durch die Anordnung der SCR-aktiven Beschichtung über die gesamte Länge des Bauteils zeigt das in dieser Weise katalytisch aktivierte Dieselpartikelfilter
5 nicht nur eine Ammoniak-Sperrfunktion, sondern darüberhinaus eine vollwertige Tieftemperatur-SCR-Aktivität.

Durch den Einsatz des erfindungsgemäßen katalytisch aktivierten Dieselpartikelfilters können herkömmliche Abgasreinigungsanlagen zur Entfernung von Stickoxiden und Partikeln aus dem Abgas von überwiegend mager betriebenen Verbrennungsmotoren
10 erheblich vereinfacht werden. Figur 5 zeigt beispielhaft eine Abgasanlage nach dem Stand der Technik, wie sie in der WO 99/39809 beschrieben ist, in der Ausführung als zweiflutige Anlage. Darin schließt sich an jede Zylinderbank des Motors (0) ein Abgasanlagenteil an, der einen Dieseloxidationskatalysator (6; 6') enthält. Nach der Zusammenführung der Abgasstränge wird in Strömungsrichtung nacheinander ein
15 gegebenenfalls katalytisch aktiviertes Dieselpartikelfilter (7), eine Dosiereinrichtung für das in der SCR-Reaktion benötigte Reduktionsmittel (8) wie beispielsweise Harnstoff und ein SCR-Katalysator (9) angeordnet. Zur Vermeidung von Ammoniak-Durchbrüchen ist ein nachgeschalteter Ammoniak-Sperrkatalysator (10) erforderlich.

Durch die Verwendung des erfindungsgemäßen Bauteils können die wesentlichen
20 Bestandteile der solchen Abgasreinigungsanlage reduziert werden. Zur Entfernung von Stickoxiden und Partikeln aus dem Abgas von überwiegend mager betriebenen Verbrennungsmotoren genügt es nun, wenn eine entsprechende Anlage einen zur Entfernung von Stickoxiden geeigneten Katalysator und ein erfindungsgemäßes katalytisch
25 aktiviertes Dieselpartikelfilter enthält. Bei dem zur Entfernung von Stickoxiden geeigneten Katalysator kann es sich um einen auf der Anströmseite des erfindungsgemäßen Dieselpartikelfilters (11) angeordneten Stickoxid-Speicherkatalysator (12, 12') handeln. Eine solche Ausführungsform ist für den Fall einer zweiflutigen Ausgestaltung der Anlage in Figur 6 schematisch dargestellt.

In einer bevorzugten Form der erfindungsgemäßen Abgasanlage wird als zur
30 Entstickung geeignetem Katalysator ein SCR-Katalysator (9) mit einer Einrichtung zur Dosierung von Ammoniak oder einer zu Ammoniak zersetzlichen Verbindung (8)

eingesetzt, der sich ebenfalls auf der Anströmseite des erfindungsgemäßen Dieselpartikelfilters (11) befindet. Eine solche Ausführungsform ist für den Fall einer zweiflutigen Ausgestaltung der Anlage schematisch in Figur 7 dargestellt. Dabei kann es für die Anwendung in einigen Fahrzeugtypen von Vorteil sein, wenn in der

5 Abgasreinigungsanlage zwischen dem überwiegend mager betriebenen Verbrennungsmotor (0) und der Einrichtung zur Dosierung von Ammoniak oder einer zu Ammoniak zersetzlichen Verbindung (8) ein Dieseloxydationskatalysator (6, 6') oder ein Dreiwegekatalysator (13, 13') oder ein Stickoxidspeicherkatalysator (12,12') oder Kombinationen davon angeordnet sind.

10 Die nachfolgenden Figuren und Beispiele sollen die Erfindung näher erläutern.

Figur 1: Funktionsprinzip des erfindungsgemäßen Dieselpartikelfilters bei der Umsetzung Stickstoff-haltiger Schadgase.

Figur 2: Anordnung der SCR-aktiven Beschichtung (1) und der oxidationsaktiven Beschichtung (2) auf einem als Tragkörper dienenden Filterkörper (3) in

15 einem erfindungsgemäßen, katalytisch aktivierten Dieselpartikelfilter.

Figur 3: Bevorzugte Anordnung der SCR-aktiven Beschichtung (1) in einem erfindungsgemäßen, katalytisch aktivierten Dieselpartikelfilter, wobei die oxidationsaktive, katalytische Beschichtung (2) homogen in der Wand (3a) des Wandflußfiltersubstrates verteilt ist und mit dem Anströmkanal (4) in

20 direktem Kontakt steht; (5) bezeichnet den Abströmkanal, (3b) die jeweils gasdichten Kanalabschlüsse.

Figur 4: Bevorzugte Anordnung der Beschichtungen in einem erfindungsgemäßen katalytisch aktivierten Wandflußfiltersubstrat, in dem beide Beschichtungen homogen in der Wand (3a) verteilt sind, wobei die SCR-aktive Beschichtung

25 (1) die Wand (3a) zum Anströmkanal (4) hin ausfüllt, während die oxidationsaktive Beschichtung (2) die Wand (3a) zum Abströmkanal (5) hin ausfüllt; (3b) bezeichnet die jeweils gasdichten Kanalabschlüsse.

Figur 5: Abgasreinigungsanlage zur Entfernung von Stickoxiden und Partikeln aus dem Abgas von überwiegend mager betriebenen Verbrennungsmotoren (0)

nach dem Stand der Technik in zweiflutiger Ausführung, die einen Dieseloxidationskatalysator (6, 6'), ein gegebenenfalls katalytisch aktiviertes Dieselpartikelfilter (7), eine Dosiereinrichtung für das in der SCR-Reaktion benötigte Reduktionsmittel (8) wie beispielsweise Harnstoff, einen SCR-Katalysator (9) und einen nachgeschalteter Ammoniak-Sperrkatalysator (10) enthält.

Figur 6: Erfindungsgemäße Abgasreinigungsanlage zur Entfernung von Stickoxiden und Partikeln aus dem Abgas von überwiegend mager betriebenen Verbrennungsmotoren (0) in zweiflutiger Ausführung, die ein erfindungsgemäßes katalytisch aktiviertes Dieselpartikelfilter (11) und anströmseitig einen Stickoxid-Speicherkatalysator (12, 12') enthält.

Figur 7: Erfindungsgemäße Abgasreinigungsanlage zur Entfernung von Stickoxiden und Partikeln aus dem Abgas von überwiegend mager betriebenen Verbrennungsmotoren (0) in zweiflutiger Ausführung, die ein erfindungsgemäßes katalytisch aktiviertes Dieselpartikelfilter (11) und anströmseitig einen SCR-Katalysator (9) mit einer Einrichtung zur Dosierung von Ammoniak oder einer zu Ammoniak zersetzlichen Verbindung (8) enthält. Optional können zwischen Motor (0) und Dosiereinrichtung (8) ein Dieseloxidationskatalysator (6, 6') oder/und ein Stickoxid-Speicherkatalysator (12, 12') oder/und ein Dreiwegekatalysator (13, 13') angeordnet sein.

Figur 8: Aktivität in der Ammoniakoxidation, gemessen an einem mit einer oxidationsaktiven Beschichtung versehenen Wandflußfiltersubstrat nach dem Stand der Technik ([#0]; ◇), und an zwei erfindungsgemäßen katalytisch aktivierten Dieselpartikelfilter mit einer oxidationsaktiven und einer SCR-aktiven Beschichtung. Das erfindungsgemäße Dieselpartikelfilter [#1] (●) enthält in der SCR-aktiven Beschichtung einen mit Eisen ausgetauschten Zeolithen, das erfindungsgemäße Dieselpartikelfilter [#2] (▲) einen mit Kupfer ausgetauschten Zeolithen.

Figur 9: Selektivität zu Stickstoff in der Ammoniakoxidation, gemessen an einem mit einer oxidationsaktiven Beschichtung versehenen Wandflußfiltersubstrat nach dem Stand der Technik ([#0]; \diamond), und an zwei erfindungsgemäßen katalytisch aktivierten Dieselpartikelfilter mit einer oxidationsaktiven und einer SCR-aktiven Beschichtung. Das erfindungsgemäße Dieselpartikelfilter [#1] (\bullet) enthält in der SCR-aktiven Beschichtung einen mit Eisen ausgetauschten Zeolithen, das erfindungsgemäße Dieselpartikelfilter [#2] (\blacktriangle) einen mit Kupfer ausgetauschten Zeolithen.

In den nachstehend beschriebenen Beispielen wurden verschiedene Ausführungsformen der erfindungsgemäßen katalytisch aktivierten Dieselpartikelfilter hergestellt. Ihre Reaktivität und Selektivität in der Ammoniakoxidation wurde im Vergleich zu dem im Vergleichsbeispiel hergestellten herkömmlichen Dieselpartikelfilter an einer Modellgasanlage untersucht. Dabei wurden folgende Testbedingungen gewählt:

<i>Zusammensetzung des Modellgases</i>	
NH_3 [Vol.-ppm]:	450
O_2 [Vol.-%]:	5
H_2O [Vol.-%]	1,3
N_2 :	Rest
<i>Allgemeine Testbedingungen</i>	
Raumgeschwindigkeit [h^{-1}]:	60.000
Temperatur [$^{\circ}C$]:	550, 500; 450; 400; 350; 300; 250; 200; 175
Konditionierung vor Meßbeginn:	Modellgas-Atmosphäre; 600 $^{\circ}C$; einige Minuten

Mit Hilfe einer geeigneten Gasanalytik wurden die Konzentrationen von Ammoniak, Distickstoffmonoxid, Stickstoffmonoxid und Stickstoffdioxid nach Katalysator erfaßt. Unter der begründeten Annahme, daß außer diesen Stickstoff-haltigen Gasen und molekularem Stickstoff keine weiteren Stickstoff-haltigen Reaktionsprodukte aus der Ammoniak-Oxidation entstehen, kann aus der folgenden Bilanzgleichung die Konzentration des Reaktionszielproduktes N₂ ermittelt werden:

$$C_{N_2} = 1/2 \cdot (C_{NH_3, Eingang} - C_{NH_3, Ausgang} - 2 \cdot C_{N_2O} - C_{NO} - C_{NO_2})$$

Aus der so erhaltenen Stickstoffkonzentration und der dosierten Ammoniak-Konzentration berechnet sich die Selektivität zu Stickstoff wie folgt:

$$S_{N_{2x}} [\%] = \frac{C_{N_2}}{0,5 \cdot C_{NH_3, Eingang}} \cdot 100$$

Zur Beurteilung der Meßergebnisse wurden die Konzentration des Ammoniaks nach Katalysator und die Selektivität zu Stickstoff als Funktion der Temperatur aufgetragen. Die Ergebnisse sind in den Figuren 8 und 9 dargestellt.

Vergleichsbeispiel:

Ein Wandflußfiltersubstrat aus Siliciumcarbid wurde mit einer herkömmlichen oxidationsaktiven Beschichtung versehen, die mit Hilfe der in der DE 10 2004 040 548 A1 beschriebenen Arbeitsweise in die Wand eingebracht wurde.

Das Filtersubstrat hatte einen Durchmesser von 14,4 Zentimetern, eine Länge von 7,62 Zentimetern und wies 47 Zellen pro Quadratzentimeter mit einer Wandstärke von 0,3 Millimetern auf. Die Wände des Filtersubstrats wiesen Poren mit einem mittleren Durchmesser von 20 Micrometern auf, die Porosität der Wände betrug 60 %.

Die oxidationsaktive Beschichtung enthielt im wesentlichen Platin, das auf einem mit Lanthanoxid dotierten, hochoberflächigen Aluminiumoxid geträgert war. Die aufgebrauchte Beschichtungsmenge wurde so gewählt, daß das fertige Dieselpartikelfilter 0,7 g/L Edelmetall, bezogen auf das Volumen des beschichteten Filtersubstrats, enthielt.

Aus dem fertigen Dieselpartikelfilter wurden drei Bohrkerne mit einem Durchmesser von 2,54 Zentimetern entnommen. An einem dieser Bohrkerne [#0] wurde in einer Modellgasanlage das charakteristische Ammoniak-Oxidationsverhalten nach oben beschriebenem Verfahren untersucht.

5 **Beispiel 1:**

Auf einen zweiten Bohrkern, der dem Dieselpartikelfilter aus dem Vergleichsbeispiel entnommen worden war, wurde auf der Anströmseite eine in der SCR-Reaktion aktive Beschichtung, die überwiegend mit Eisen ausgetauschte Zeolithe enthielt, aufgebracht. Die Länge der beschichteten Zone betrug 2,54 Zentimeter, also 33 % der Länge des
10 Gesamtbauteils. Es wurden 50 g/L des SCR-aktiven Materials, bezogen auf das Volumen des Filtersubstrates, aufgebracht.

Das charakteristische Ammoniak-Oxidationsverhalten des so erhaltenen erfindungsgemäßen katalytisch aktivierten Dieselpartikelfilters [#1] wurde in der Modellgasanlage nach dem oben beschriebenem Verfahren untersucht.

15 **Beispiel 2:**

Auf den dritten Bohrkern, der dem Dieselpartikelfilter aus dem Vergleichsbeispiel entnommen worden war, wurde auf der Anströmseite eine in der SCR-Reaktion aktive Beschichtung, die überwiegend mit Kupfer ausgetauschte Zeolithe enthielt, aufgebracht. Die Länge der beschichteten Zone betrug 2,54 Zentimeter, also 33 % der Länge des
20 Gesamtbauteils. Es wurden 50 g/L des SCR-aktiven Materials, bezogen auf das Volumen des Filtersubstrates, aufgebracht.

Auch das charakteristische Ammoniak-Oxidationsverhalten dieses erfindungsgemäßen katalytisch aktivierten Dieselpartikelfilters [#2] wurde in der Modellgasanlage nach dem oben beschriebenem Verfahren untersucht.

25 Die Figuren 8 und 9 zeigen das Ergebnis der Untersuchungen im Modellgas.

In Figur 8 ist die Ammoniak-Konzentration nach Katalysator als Funktion der Reaktionstemperatur aufgetragen. Diese Angabe dient als Maß für die generelle Aktivität der untersuchten Dieselpartikelfilter in der Ammoniak-Oxidation. Es ist offensichtlich, daß

sich die erfindungsgemäßen Dieselpartikelfilter in ihrer generellen Ammoniak-Oxidationsaktivität nicht wesentlich vom herkömmlichen Dieselpartikelfilter unterscheiden: Oberhalb von 250°C wird Ammoniak restlos aufoxidiert.

Der wesentliche Vorteil der erfindungsgemäßen katalytisch aktivierten Dieselpartikelfilter zeigt sich in der Selektivität der Ammoniak-Oxidation zu Stickstoff. Während diese beim herkömmlichen Dieselpartikelfilter (\diamond) oberhalb von 300°C verloren geht, da Ammoniak vollständig zu Stickoxiden (überwiegend NO_2) überoxidiert wird, zeigen die erfindungsgemäßen Dieselpartikelfilter über den gesamten Temperaturbereich hervorragende Selektivitätsdaten. Die besten Ergebnisse mit Selektivitätswerten von über 70 % werden für das Dieselpartikelfilter [#2] (\blacktriangle) mit der Kupfer-haltigen, SCR-aktiven Beschichtung beobachtet, doch zeigt auch das erfindungsgemäße Dieselpartikelfilter [#1] (\bullet) mit der Eisen-haltigen SCR-aktiven Beschichtung im Temperaturbereich 250 bis 550°C gute Selektivitätswerte mit über 30 %.

Somit eignen sich die erfindungsgemäßen katalytisch aktivierten Dieselpartikelfilter mit Ammoniak-Sperrwirkung hervorragend für den Einsatz in Abgasanlagen, die der gleichzeitigen Entfernung von Stickstoff-haltigen Schadgasen und Partikeln dienen, und die nun in der beschriebenen Weise erfindungsgemäß vereinfacht werden können.

Patentansprüche

1. Katalytisch aktiviertes Dieselpartikelfilter enthaltend einen Filterkörper und eine oxidationsaktive, katalytische Beschichtung und eine weitere, in der SCR-Reaktion katalytisch aktive Beschichtung enthält, in der ein Ammoniak-Speichermaterial enthalten ist,
5 dadurch gekennzeichnet,
 dass eine Anordnung der Schichten eingehalten wird, so daß das zu reinigende Abgas zuerst die in der SCR-Reaktion katalytisch aktive Beschichtung und danach die oxidationsaktive, katalytische Beschichtung passiert.
- 10 2. Katalytisch aktiviertes Dieselpartikelfilter nach Anspruch 1,
 dadurch gekennzeichnet,
 dass die Ammoniak-Speicherkapazität der in der SCR-Reaktion katalytisch aktiven Beschichtung mindestens 20 Milliliter pro Gramm Katalysatormaterial beträgt.
- 15 3. Katalytisch aktiviertes Dieselpartikelfilter nach Anspruch 2,
 dadurch gekennzeichnet,
 dass die in der SCR-Reaktion katalytisch aktive Beschichtung einen oder mehrere mit Wasserstoffkationen oder Übergangsmetallkationen ausgetauschte Zeolithe enthält.
- 20 4. Katalytisch aktiviertes Dieselpartikelfilter nach Anspruch 3,
 dadurch gekennzeichnet,
 dass die in der SCR-Reaktion katalytisch aktive Beschichtung einen oder mehrere mit Eisen oder Kupfer oder Eisen und Kupfer ausgetauschte Zeolithe enthält.
- 25 5. Katalytisch aktiviertes Dieselpartikelfilter nach Anspruch 3,
 dadurch gekennzeichnet,
 dass die in der SCR-Reaktion katalytisch aktive Beschichtung beta-Zeolith oder Y-Zeolith oder Faujasit oder Mordenit oder ZSM-5 oder Kombinationen davon davon enthält.

6. Katalytisch aktiviertes Dieselpartikelfilter nach Anspruch 3,
dadurch gekennzeichnet,
dass die in der SCR-Reaktion katalytisch aktive Beschichtung frei ist von Edelmetallen.
- 5 7. Katalytisch aktiviertes Dieselpartikelfilter nach Anspruch 1,
dadurch gekennzeichnet,
dass die oxidationsaktive, katalytische Beschichtung frei ist von Zeolithen.
8. Katalytisch aktives Dieselpartikelfilter nach Anspruch 7,
dadurch gekennzeichnet,
10 dass die oxidationsaktive, katalytische Beschichtung Platin oder Palladium oder Mischungen davon auf einem Trägermaterial ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus hochoberflächigem, aktivem Aluminiumoxid, Ceroxid, Zirkonoxid, Titanoxid, Siliziumoxid und Mischungen oder Mischoxiden davon enthält.
9. Katalytisch aktiviertes Dieselpartikelfilter nach Anspruch 1,
15 dadurch gekennzeichnet,
dass der Filterkörper ausgewählt ist aus der Gruppe der keramischen Wandflußfiltersubstrate, der Sintermetallfilterkörper oder der keramischen oder metallischen Schaumstrukturen.
10. Katalytisch aktiviertes Dieselpartikelfilter nach Anspruch 9,
20 dadurch gekennzeichnet,
dass der Filterkörper ausgewählt ist aus der Gruppe der keramischen Wandflußfiltersubstrate und Wände mit einer offenporigen Struktur mit einer Porosität von 40 bis 80 % und einem mittleren Porendurchmesser von 9 bis 30 Micrometern aufweist.
- 25 11. Katalytisch aktiviertes Dieselpartikelfilter nach Anspruch 1,
dadurch gekennzeichnet,
dass der Filterkörper als Tragkörper für die oxidationsaktive, katalytische Beschichtung dient, wobei sie die gesamte Länge des Bauteils einnimmt,
und dadurch gekennzeichnet,

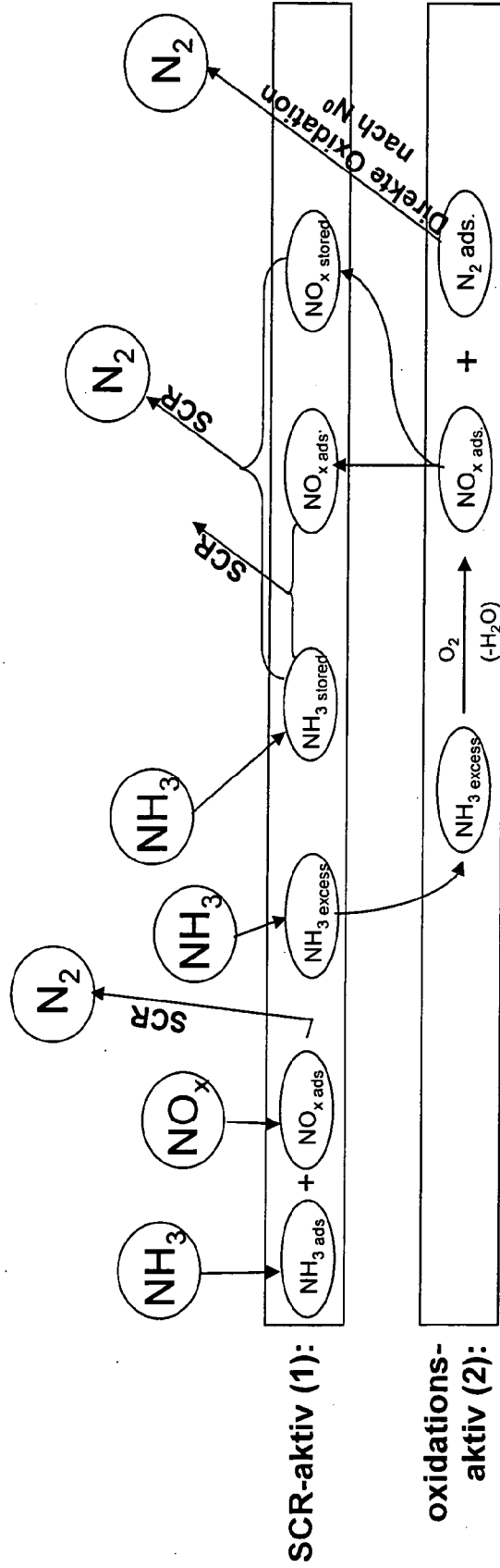
daß das mit der oxidationsaktiven, katalytischen Beschichtung versehene Filtersubstrat als Tragkörper für in der SCR-Reaktion katalytisch aktive Beschichtung dient.

12. Katalytisch aktiviertes Dieselpartikelfilter nach Anspruch 11,
5 dadurch gekennzeichnet,
dass die in der SCR-Reaktion katalytisch aktive Beschichtung 5 bis 50 % der Länge des Bauteils einnimmt und auf der Anströmseite des Bauteils angeordnet ist.
13. Katalytisch aktiviertes Dieselpartikelfilter nach Anspruch 10,
10 dadurch gekennzeichnet,
dass die oxidationsaktive, katalytische Beschichtung über die gesamte Länge des Bauteils in die Poren der Wände des keramischen Wandflußfiltersubstrats eingebracht und homogen in der jeweiligen Wand des Wandflußfiltersubstrats verteilt ist.
- 15 14. Katalytisch aktiviertes Dieselpartikelfilter nach Anspruch 13,
dadurch gekennzeichnet,
dass die oxidationsaktive, katalytische Beschichtung die Poren in den Wänden des keramischen Wandflußfiltersubstrates bis zur anströmseitigen Oberfläche der jeweiligen Wand ausfüllt, und die in der SCR-Reaktion katalytisch aktive
20 Beschichtung auf dieser Oberfläche aufgebracht ist.
15. Katalytisch aktiviertes Dieselpartikelfilter nach Anspruch 14,
dadurch gekennzeichnet,
dass die in der SCR-Reaktion aktive, katalytische Beschichtung 5 bis 50 % der Länge des Bauteils einnimmt und auf der Anströmseite des Gesamtbauteils
25 angeordnet ist.
16. Katalytisch aktiviertes Dieselpartikelfilter nach Anspruch 13,
dadurch gekennzeichnet,
dass die oxidationsaktive, katalytische Beschichtung die Poren in den Wänden des keramischen Wandflußfiltersubstrates bis zur abströmseitigen Oberfläche der

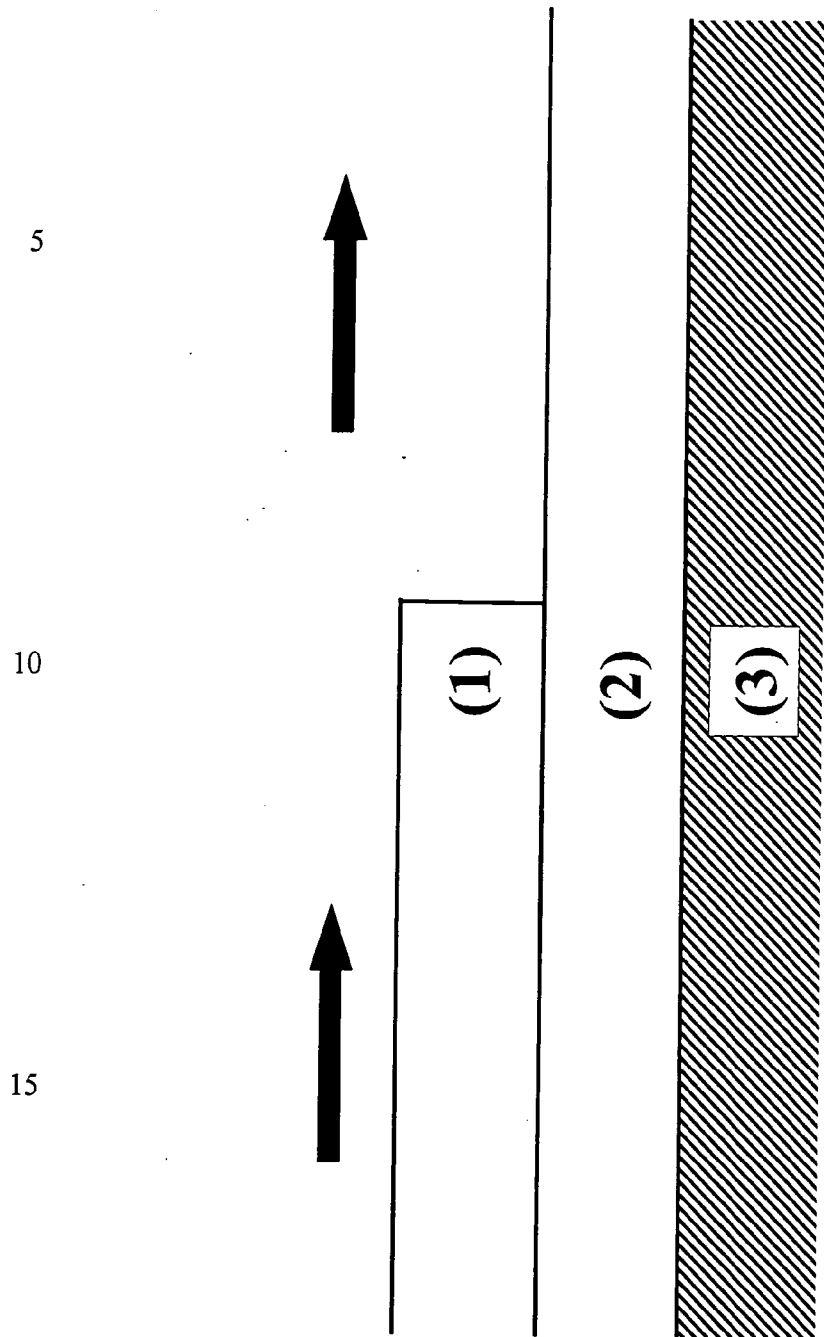
jeweiligen Wand füllt, und die in der SCR-Reaktion katalytisch aktive Beschichtung ebenfalls in die Poren der Wände eingebracht und homogen in der jeweiligen Wand verteilt ist, jedoch die Poren bis zur anströmseitigen Oberfläche der jeweiligen Wand füllt.

- 5 17. Abgasreinigungsanlage zur Entfernung von Stickoxiden und Partikeln aus dem Abgas von überwiegend mager betriebenen Verbrennungsmotoren, dadurch gekennzeichnet, dass die Abgasreinigungsanlage einen zur Entfernung von Stickoxiden geeigneten Katalysator und ein katalytisch aktiviertes Dieselpartikelfilter nach einem der
- 10 Ansprüche 1 bis 16 enthält.
18. Abgasreinigungsanlage nach Anspruch 17, dadurch gekennzeichnet, dass die Abgasreinigungsanlage auf der Anströmseite des katalytisch aktivierten Dieselpartikelfilters eine Einrichtung zur Dosierung von Ammoniak oder einer zu
- 15 Ammoniak zersetzlichen Verbindung und einen SCR-Katalysator enthält.
19. Abgasreinigungsanlage nach Anspruch 18, dadurch gekennzeichnet, dass zwischen dem überwiegend mager betriebenen Verbrennungsmotor und der Einrichtung zur Dosierung von Ammoniak oder einer zu Ammoniak zersetzlichen
- 20 Verbindung ein Dieseloxidationskatalysator oder ein Dreiwegekatalysator oder ein Stickoxidspeicherkatalysator oder Kombinationen davon angeordnet sind.
20. Abgasreinigungsanlage nach Anspruch 17, dadurch gekennzeichnet, dass die Abgasreinigungsanlage auf der Anströmseite des katalytisch aktivierten Dieselpartikelfilters einen Stickoxidspeicherkatalysator enthält.
- 25

5
10
15
20

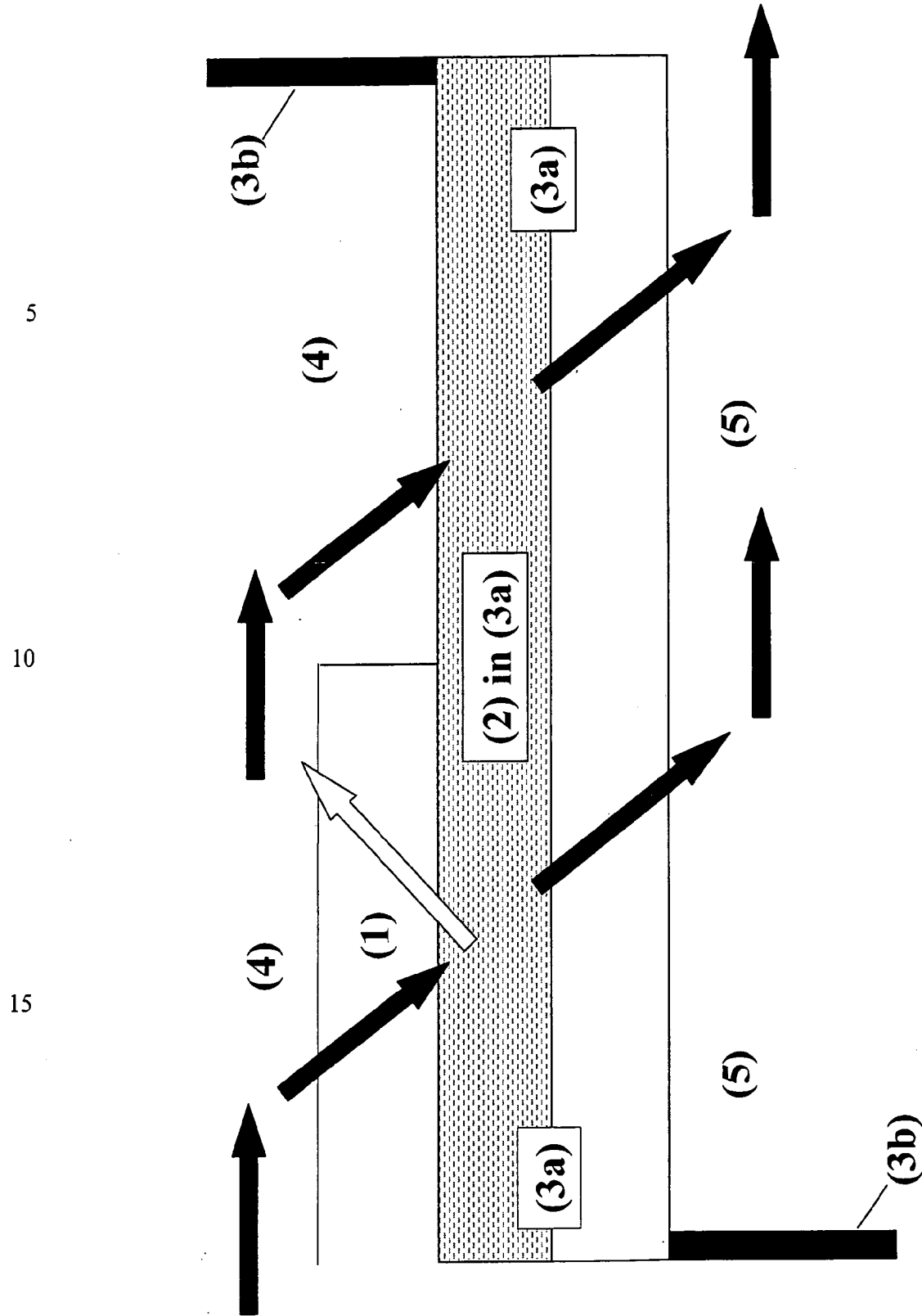


Figur 1



20

Figur 2



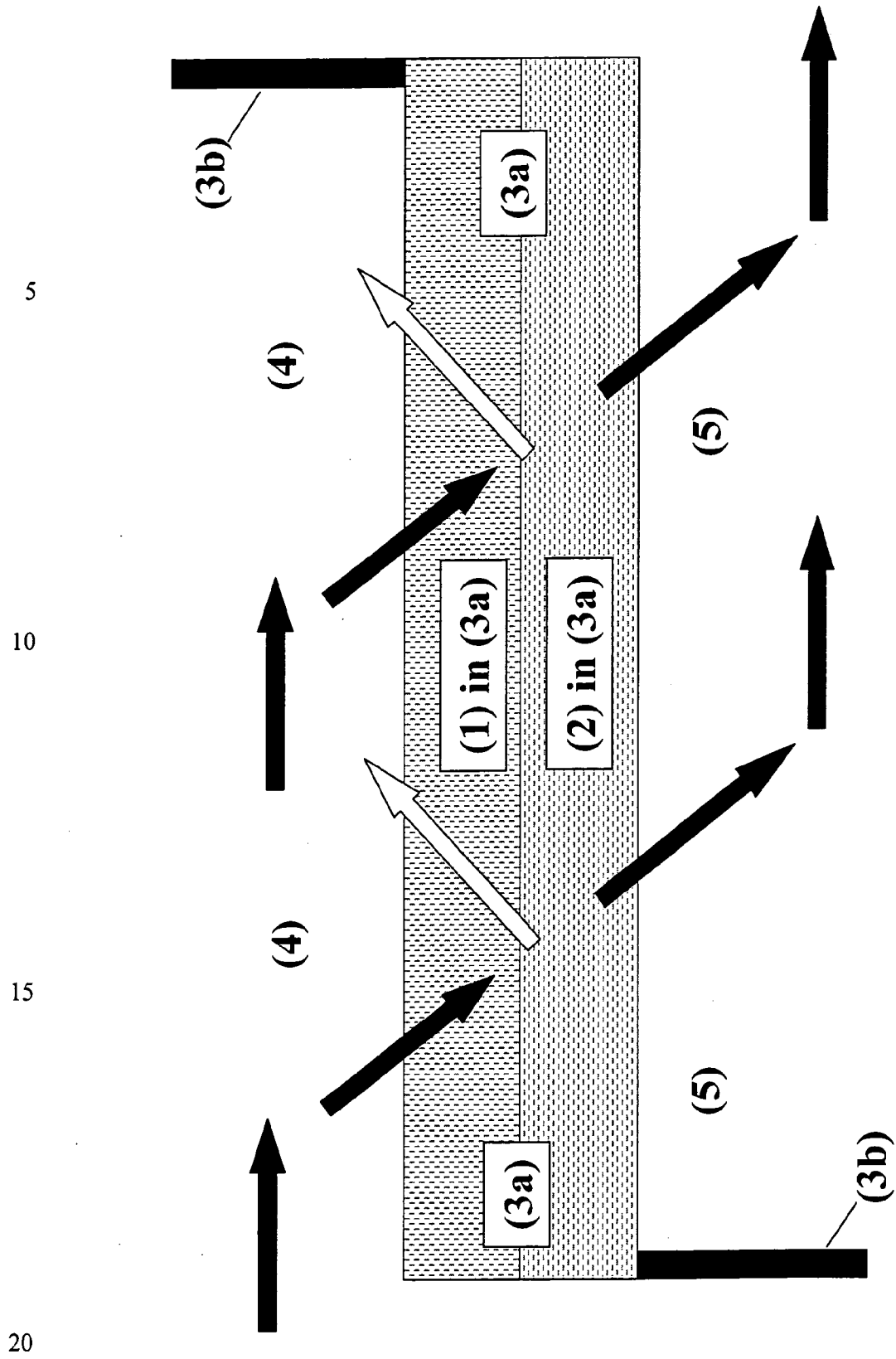
5

10

15

20

Figur 3



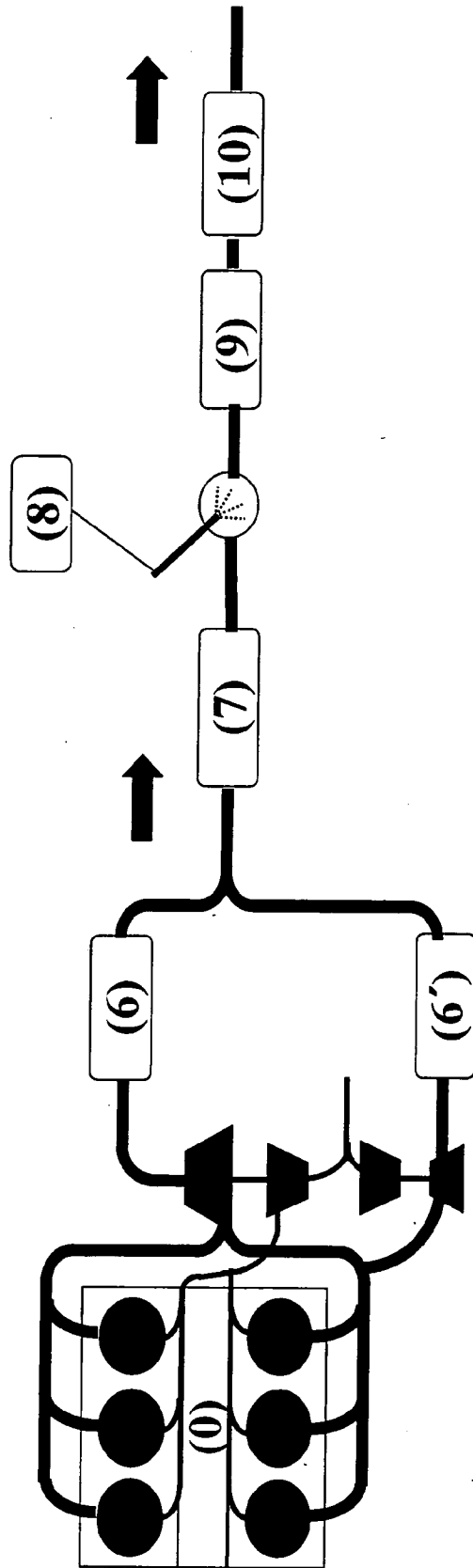
Figur 4

5

10

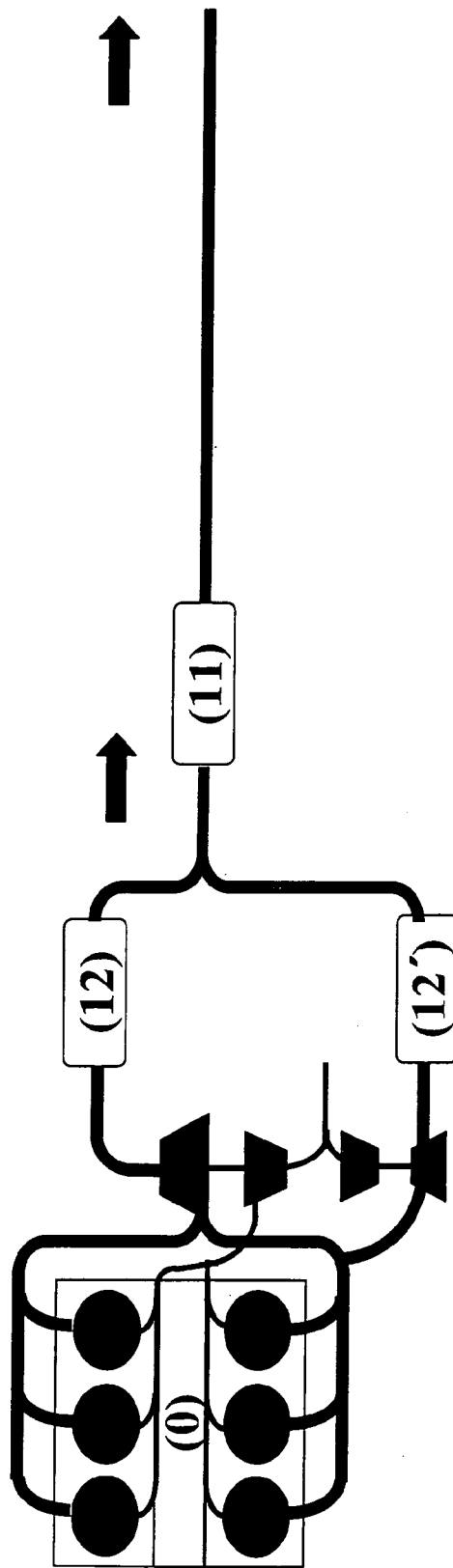
15

20

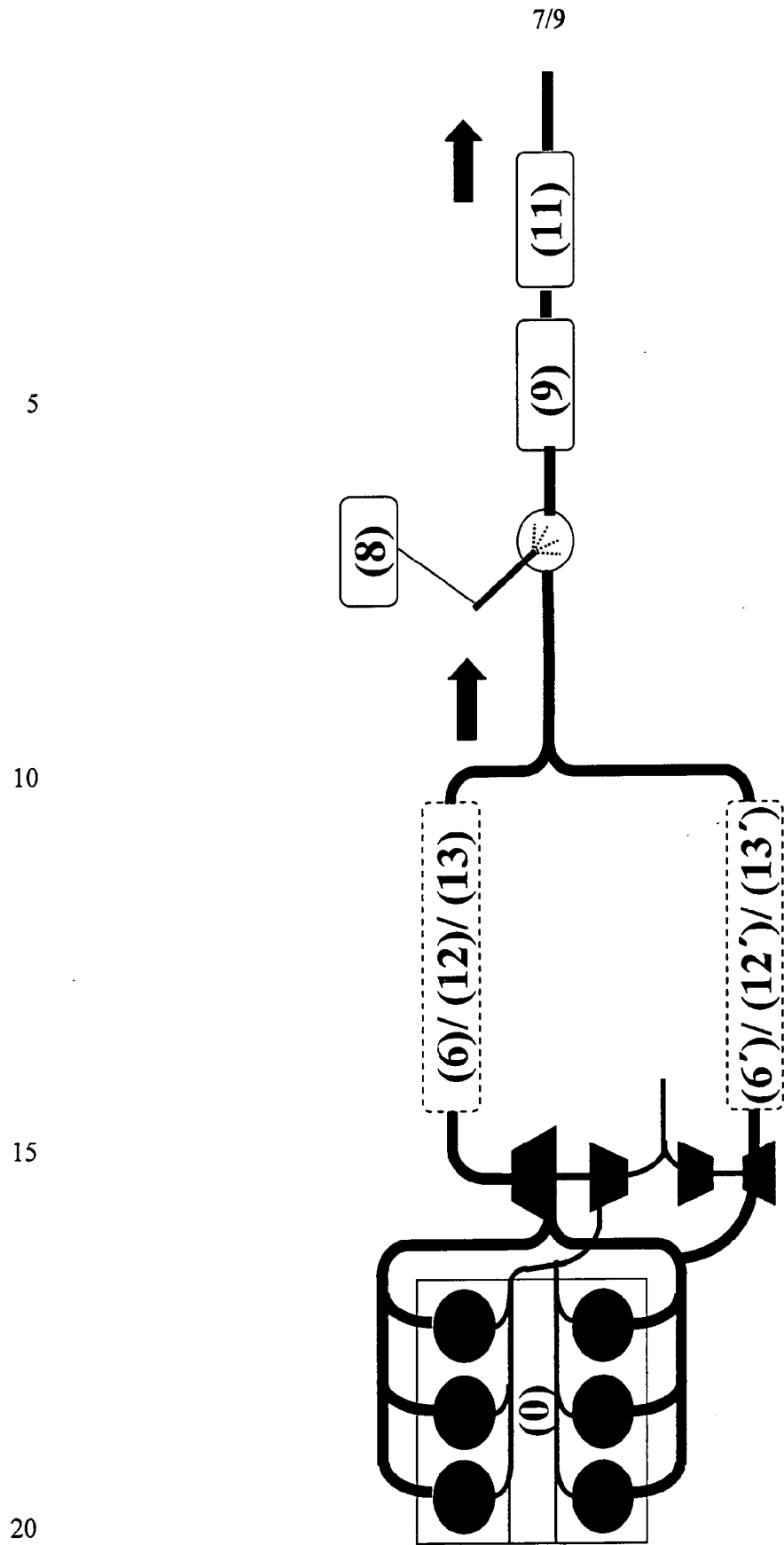


Figur 5

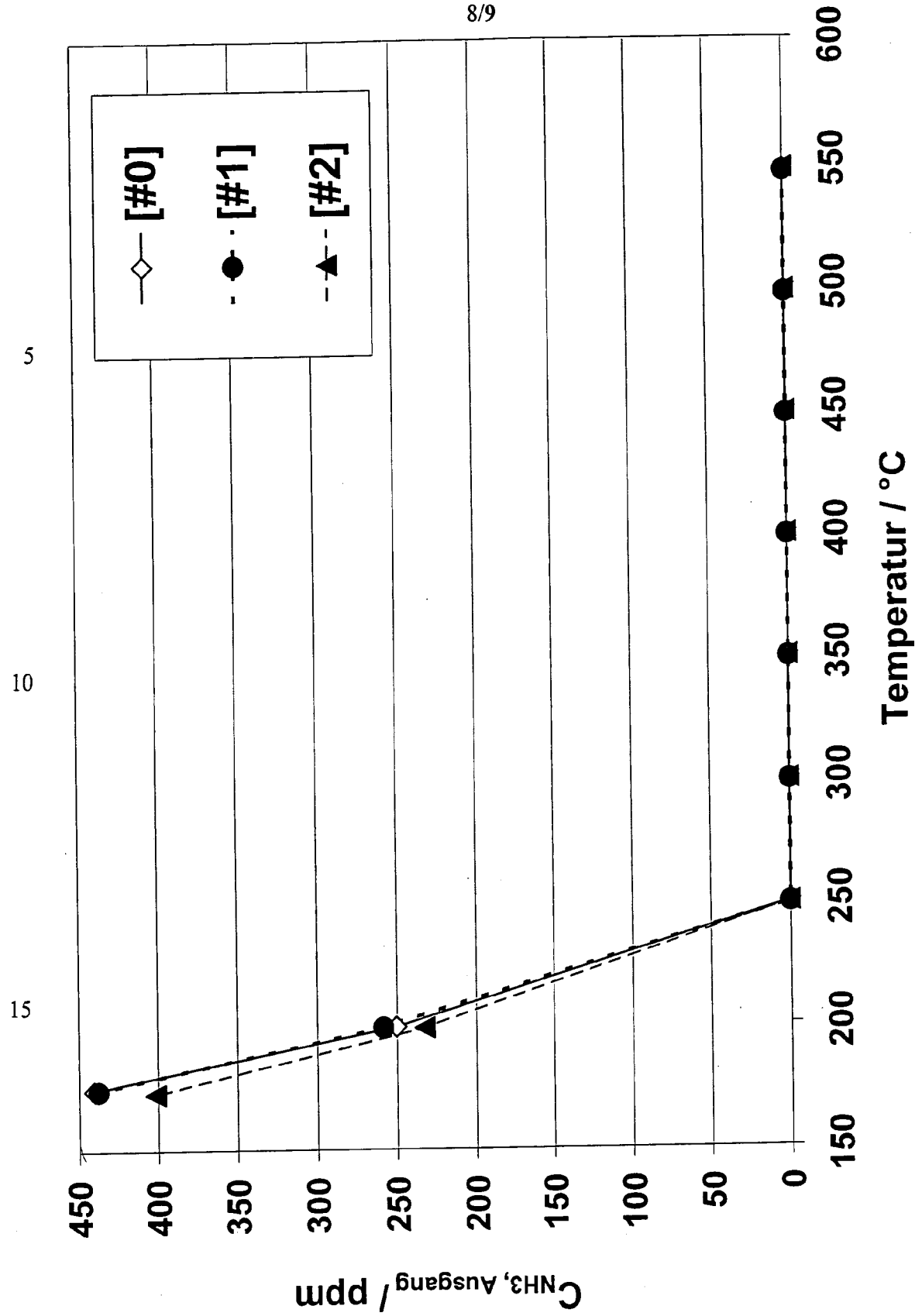
5
10
15
20



Figur 6

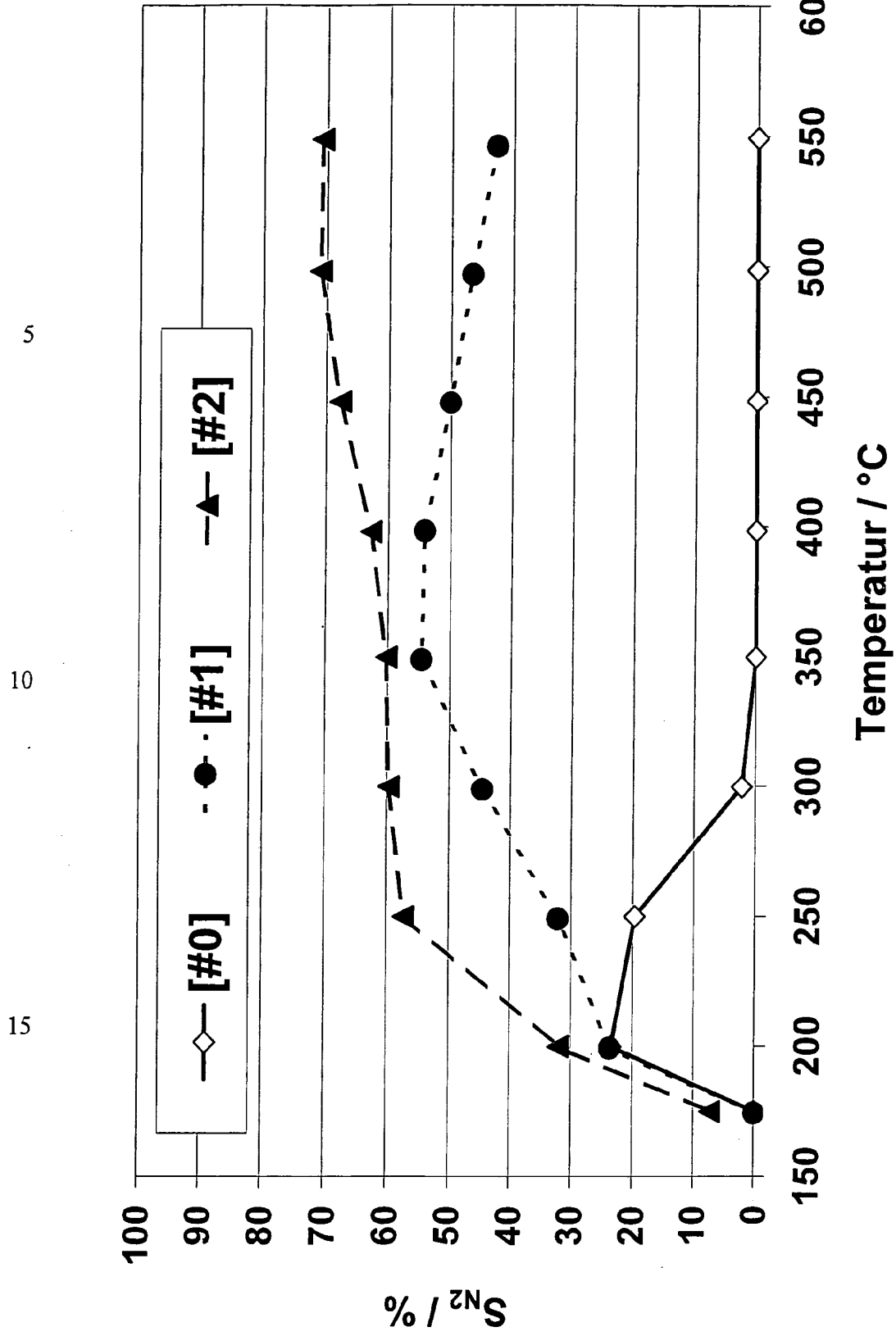


Figur 7



20

Figur 8



20

Figur 9

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2008/000631

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
INV. F01N3/035 F01N3/08 F01N3/20

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
F01N

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	DE 20 2005 008146 U1 (ARVINMERITOR EMISSIONS TECHNOL [DE]) 28 July 2005 (2005-07-28) cited in the application paragraph [0011] - paragraph [0028]; figures	1
A	US 6 732 507 B1 (STANGLMAIER RUDOLF H [US] ET AL) 11 May 2004 (2004-05-11) column 4, line 13 - line 57; figure	20
A	US 6 345 496 B1 (FUWA NAOHIDE [JP] ET AL) 12 February 2002 (2002-02-12) cited in the application abstract	1,17
	----- -/--	

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

* Special categories of cited documents :

- *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- *&* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

22 Juli 2008

Date of mailing of the international search report

30/07/2008

Name and mailing address of the ISA/
European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Torle, Erik

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2008/000631

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	DE 39 29 297 A1 (DEGUSSA [DE]) 31 January 1991 (1991-01-31) cited in the application abstract	1, 17
A	WO 2005/064130 A (UMICORE AG & CO KG [DE]; PFEIFER MARCUS [DE]; SOEGER NICOLA [DE]; SPUR) 14 July 2005 (2005-07-14) abstract; claims 1,3; figures	1, 17

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2008/000631

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
DE 202005008146 U1	28-07-2005	WO 2006125525 A1	30-11-2006
US 6732507 B1	11-05-2004	AU 2003303965 A1 EP 1435437 A1 JP 2004211679 A KR 20040060716 A WO 2004097197 A2	23-11-2004 07-07-2004 29-07-2004 06-07-2004 11-11-2004
US 6345496 B1	12-02-2002	NONE	
DE 3929297 A1	31-01-1991	DD 296617 A5	12-12-1991
WO 2005064130 A	14-07-2005	DE 10360955 A1	21-07-2005

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2008/000631

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
 INV. F01N3/035 F01N3/08 F01N3/20

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
 F01N

Recherchierte, aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	DE 20 2005 008146 U1 (ARVINMERITOR EMISSIONS TECHNOL [DE]) 28. Juli 2005 (2005-07-28) in der Anmeldung erwähnt Absatz [0011] - Absatz [0028]; Abbildungen	1
A	US 6 732 507 B1 (STANGLMAIER RUDOLF H [US] ET AL) 11. Mai 2004 (2004-05-11) Spalte 4, Zeile 13 - Zeile 57; Abbildung	20
A	US 6 345 496 B1 (FUWA NAOHIDE [JP] ET AL) 12. Februar 2002 (2002-02-12) in der Anmeldung erwähnt Zusammenfassung	1,17
	----- -/--	

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen Siehe Anhang Patentfamilie

- * Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen
- *A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
- *E* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
- *L* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
- *O* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
- *P* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist
- *T* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
- *X* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden
- *Y* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
- *Z* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche	Absenddatum des internationalen Recherchenberichts
22. Juli 2008	30/07/2008

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Bevollmächtigter Bediensteter Torle, Erik
---	--

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2008/000631

C. (Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	DE 39 29 297 A1 (DEGUSSA [DE]) 31. Januar 1991 (1991-01-31) in der Anmeldung erwähnt Zusammenfassung -----	1, 17
A	WO 2005/064130 A (UMICORE AG & CO KG [DE]; PFEIFER MARCUS [DE]; SOEGER NICOLA [DE]; SPUR) 14. Juli 2005 (2005-07-14) Zusammenfassung; Ansprüche 1,3; Abbildungen -----	1, 17

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2008/000631

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
DE 202005008146 U1	28-07-2005	WO 2006125525 A1	30-11-2006
US 6732507 B1	11-05-2004	AU 2003303965 A1	23-11-2004
		EP 1435437 A1	07-07-2004
		JP 2004211679 A	29-07-2004
		KR 20040060716 A	06-07-2004
		WO 2004097197 A2	11-11-2004
US 6345496 B1	12-02-2002	KEINE	
DE 3929297 A1	31-01-1991	DD 296617 A5	12-12-1991
WO 2005064130 A	14-07-2005	DE 10360955 A1	21-07-2005