



(10) DE 10 2016 111 151 A1 2016.12.22

(12)

## Offenlegungsschrift

(21) Aktenzeichen: 10 2016 111 151.1

(51) Int Cl.: **B01D 53/86 (2006.01)**

(22) Anmeldetag: 17.06.2016

**B01D 53/94 (2006.01)**

(43) Offenlegungstag: 22.12.2016

**F01N 3/10 (2006.01)**

(30) Unionspriorität:

62/181,303

18.06.2015 US

(74) Vertreter:

**Dr. Schön, Neymeyr & Partner mbB, 80336 München, DE**

(71) Anmelder:

**Johnson Matthey Public Limited Company,  
London, GB**

(72) Erfinder:

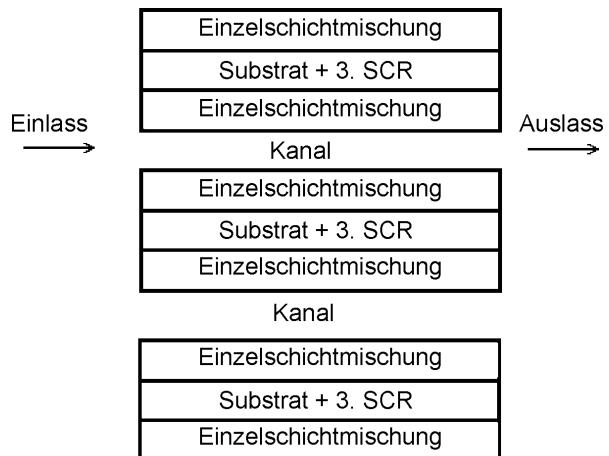
**Larsson, Mikael, Gothenburg, SE; Micallef, David, Royston, GB; Lu, Jing, Wayne, Pa., US**

Prüfungsantrag gemäß § 44 PatG ist gestellt.

**Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen**

(54) Bezeichnung: **EINZEL- ODER DOPPELSCHEI-CHT-AMMONIAKSPERRKATALYSATOR**

(57) Zusammenfassung: Beschrieben wird ein Katalysatorartikel, der einen extrudierten Träger mit einer Mehrzahl von Kanälen, durch die Abgas während des Betriebs eines Motors strömt, und eine Einzelschichtbeschichtung oder eine Doppelschichtbeschichtung auf dem Träger aufweist, wobei der extrudierte Träger einen dritten SCR-Katalysator enthält, die Einzelschichtbeschichtung und die Doppelschichtbeschichtung Platin auf einem Träger mit geringer Ammoniakspeicherung und einen ersten SCR-Katalysator enthalten. Die katalytischen Artikel sind für eine selektive katalytische Reduktion (SCR) von NO<sub>x</sub> in Abgasen und zur Verringerung der Menge des Ammoniakschlups geeignet. Verfahren zur Herstellung solcher Artikel werden beschrieben. Verfahren zur Verwendung der katalytischen Artikel in einem SCR-Verfahren, bei dem die Menge des Ammoniakschlups verringert ist, werden ebenfalls beschrieben.



**Beschreibung****GEBIET DER ERFINDUNG:**

**[0001]** Die vorliegende Erfindung betrifft Ammoniak-Sperrkatalysatoren (ASC), Artikel, die Ammoniak-Sperrkatalysatoren enthalten, und Verfahren zur Herstellung und Verwendung solcher Artikel zur Verringerung des Ammoniakschlupfs.

**HINTERGRUND DER ERFINDUNG**

**[0002]** Die Verbrennung von Kohlenwasserstoffen in Dieselmotoren, stationären Gasturbinen und anderen Systemen erzeugt Abgas, das zur Entfernung von Stickstoffoxiden ( $\text{NO}_x$ ), die NO (Stickstoffmonoxid) und  $\text{NO}_2$  (Stickstoffdioxid) umfassen, behandelt werden muss, wobei NO den Hauptteil des gebildeten  $\text{NO}_x$  ausmacht. Es ist bekannt, dass  $\text{NO}_x$  eine Reihe von Gesundheitsproblemen bei Menschen verursacht und des Weiteren eine Reihe von schädlichen Auswirkungen auf die Umwelt zur Folge hat, einschließlich der Bildung von Smog und saurem Regen. Zur Milderung der Auswirkungen von  $\text{NO}_x$  im Abgas sowohl auf Menschen als auch auf die Umwelt ist es wünschenswert, diese unerwünschten Komponenten vorzugsweise durch ein Verfahren, das keine weiteren schädlichen oder toxischen Substanzen erzeugt, zu entfernen.

**[0003]** Abgas, das in Magermotoren und Dieselmotoren erzeugt wird, ist allgemein oxidativ.  $\text{NO}_x$  muss selektiv reduziert werden mit einem Katalysator und einem Reduktionsmittel in einem als selektive katalytische Reduktion (SCR) bekannten Verfahren, das  $\text{NO}_x$  zu elementarem Stickstoff ( $\text{N}_2$ ) und Wasser umwandelt. Bei einem SCR-Verfahren wird ein gasförmiges Reduktionsmittel, typischerweise wasserfreies Ammoniak, wässriges Ammoniak oder Harnstoff zu einem Abgasstrom zugegeben, bevor das Abgas mit dem Katalysator in Kontakt gelangt. Das Reduktionsmittel wird auf dem Katalysator absorbiert und das  $\text{NO}_x$  wird reduziert, während die Gase durch oder über das katalysierte Substrat strömen. Zur Maximierung der Umwandlung von  $\text{NO}_x$  ist es häufig erforderlich, mehr als eine stöchiometrische Menge an Ammoniak zu dem Gasstrom zuzugeben. Die Freisetzung des überschüssigen Ammoniaks in die Atmosphäre wäre jedoch schädlich für die Gesundheit der Menschen und für die Umwelt. Darüber hinaus ist Ammoniak basisch, insbesondere in seiner wässrigen Form. Eine Kondensation von Ammoniak und Wasser in Bereichen der Abgasleitung stromab der Abgaskatalysatoren kann zu einem korrosiven Gemisch führen, das das Abgassystem beschädigen kann. Daher sollte die Freisetzung von Ammoniak im Abgas verhindert werden. Bei zahlreichen herkömmlichen Abgassystemen ist ein Ammoniak-Oxidationskatalysator (auch bekannt als Ammoniak-Slip-Katalysator bzw. Ammoniak-Sperrkatalysator oder "ASC") stromab des SCR-Katalysators eingebaut, um Ammoniak aus dem Abgas durch dessen Umwandlung zu Stickstoff zu entfernen. Die Verwendung von Ammoniak-Sperrkatalysatoren kann  $\text{NO}_x$ -Umwandlungen von mehr als 90 % über einen typischen Dieselfahrzyklus hinweg ermöglichen.

**[0004]** Es wäre wünschenswert, über einen Katalysator zu verfügen, der sowohl für eine Entfernung von  $\text{NO}_x$  mittels SCR als auch für eine selektive Ammoniumumwandlung zu Stickstoff sorgt, wobei die Ammoniumumwandlung über einen breiten Bereich von Temperaturen in einem Fahrzyklus eines Fahrzeugs erfolgt und minimale Stickstoffoxid- und Distickstoffoxid-Nebenprodukte gebildet werden.

**ZUSAMMENFASSUNG DER ERFINDUNG**

**[0005]** In einem ersten Aspekt betrifft die Erfindung einen Katalysatorartikel, der Folgendes umfasst: (a) einen extrudierten Träger mit einem Einlass, einem Auslass und einer Mehrzahl von Kanälen, durch die Abgas während des Betriebs eines Motors strömt, und (b) eine Einzelschichtbeschichtung oder eine Doppelschichtbeschichtung auf dem Träger, wobei der extrudierte Träger einen dritten SCR-Katalysator umfasst, die Einzelschichtbeschichtung eine Mischung von Platin auf einem Träger mit geringer Ammoniakspeicherung mit einem ersten SCR-Katalysator umfasst und die Doppelschichtbeschichtung eine untere Schicht und eine obere Schicht umfasst, wobei die untere Schicht zwischen der oberen Schicht und dem extrudierten Träger angeordnet ist, die untere Schicht eine Mischung von Platin auf einem Träger mit geringer Ammoniakspeicherung mit einem ersten SCR-Katalysator umfasst und die obere Schicht einen zweiten SCR-Katalysator umfasst.

**[0006]** In einem weiteren Aspekt betrifft die Erfindung ein Abgassystem, das einen Katalysator des ersten Aspekts der Erfindung und ein Mittel zur Bildung von  $\text{NH}_3$  in dem Abgas umfasst.

**[0007]** In einem noch weiteren Aspekt betrifft die Erfindung ein Fahrzeug, das ein Abgassystem umfasst, das einen Katalysator des ersten Aspekts der Erfindung und ein Mittel zur Bildung von  $\text{NH}_3$  in dem Abgas umfasst.

**[0008]** In einem noch weiteren Aspekt betrifft die Erfindung ein Verfahren zum Verbessern der  $\text{N}_2$ -Ausbeute aus Ammoniak in einem Abgas bei einer Temperatur von etwa 250 °C bis etwa 350 °C durch Inkontakt-bringen eines Ammoniak umfassenden Abgases mit einem Katalysatorartikel des ersten Aspekts der Erfindung.

**[0009]** In einem weiteren Aspekt betrifft die Erfindung ein Verfahren zur Verringerung der  $\text{N}_2\text{O}$ -Bildung aus  $\text{NH}_3$  in einem Abgas, wobei das Verfahren

ein In-Kontakt-bringen eines Ammoniak umfassenden Abgases mit einem Katalysatorartikel des ersten Aspekts der Erfindung umfasst.

#### KURZE BESCHREIBUNG DER ZEICHNUNGEN

**[0010]** Fig. 1 ist eine graphische Darstellung einer Konfiguration, in der eine Einzelschichtmischung eines Ammoniak-Sperrkatalysators auf jeder Seite eines Substrats, das einen dritten SCR-Katalysator enthält, angeordnet ist.

**[0011]** Fig. 2 ist eine graphische Darstellung einer Konfiguration, in der eine Doppelschichtbeschichtung mit einer unteren Schicht, die ein Gemisch von Platin auf einem Träger mit geringer Ammoniakspeicherung und einem ersten SCR-Katalysator umfasst, und mit einer oberen Schicht, die einen zweiten SCR-Katalysator umfasst, auf jeder Seite eines einen dritten Katalysator umfassenden Substrats angeordnet ist.

#### DETAILLIERTE BESCHREIBUNG DER ERFINDUNG

**[0012]** Wie in der vorliegenden Beschreibung und den beigefügten Patentansprüchen verwendet, umfassen die Singularformen "ein", "eine", "einer" und "der", "die" bzw. "das" die entsprechenden Mehrzahlformen, wenn der Zusammenhang nicht klar etwas anderes angibt. Somit umfasst beispielsweise eine Bezugnahme auf "einen Katalysator" ein Gemisch von zwei oder mehr Katalysatoren und dgl.

**[0013]** Wie hier verwendet, bedeutet der Begriff "Ammoniakschlupf" die Menge an nicht umgesetztem Ammoniak, die durch den SCR-Katalysator hindurchtritt.

**[0014]** Der Begriff "Träger" bedeutet das Material, an das Katalysator fixiert ist.

**[0015]** Der Begriff "ein Träger mit einer geringen Ammoniakspeicherung" bedeutet einen Träger, der weniger als 0,001 mmol NH<sub>3</sub> pro m<sup>3</sup> des Trägers speichert. Der Träger mit geringer Ammoniakspeicherung ist vorzugsweise ein Molekularsieb oder Zeolith mit einem Gerüsttyp, der aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus AEI, ANA, ATS, BEA, CDO, CFI, CHA, CON, DDR, ERI, FAU, FER, GON, IFR, IFW, IFY, IHW, IMF, IRN, IRY, ISV, ITE, ITG, ITN, ITR, ITW, IWR, IWS, IWV, IWW, JOZ, LTA, LTF, MEL, MEP, MFI, MRE, MSE, MTF, MTN, MTT, MTW, MVY, MWW, NON, NSI, RRO, RSN, RTE, RTH, RUT, RWR, SEW, SFE, SFF, SFG, SFH, SFN, SFS, SFV, SGT, SOD, SSF, SSO, SSY, STF, STO, STT, SVR, SVV, TON, TUN, UOS, UOV, UTL, UWY, VET, VNI besteht. Stärker bevorzugt weist das Molekularsieb oder der Zeolith einen Gerüsttyp auf, der aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus BEA, CDO, CON, FAU, MEL, MFI und MWW besteht, noch stärker bevorzugt ist der Gerüst-

typ aus der Gruppe ausgewählt, die aus BEA und MFI besteht.

**[0016]** Der Begriff "calcinieren" oder "Calcinierung" bedeutet ein Erhitzen des Materials in Luft oder Sauerstoff. Diese Definition stimmt mit der IUPAC-Definition einer Calcinierung überein. (IUPAC. Compendium of Chemical Terminology, 2. Ausgabe ("Gold Book"). Erstellt von A. D. McNaught und A. Wilkinson. Blackwell Scientific Publications, Oxford (1997). Korrigierte XML-Onlineversion: <http://goldbook.iupac.org> (2006-), erzeugt von M. Nic, J. Jirat, B. Kosata; die Updates wurden erzeugt von A. Jenkins. ISBN 0-9678550-9-8. Doi:10.1351/goldbook.) Die Calcinierung wird durchgeführt, um ein Metallsalz zu zersetzen und den Austausch von Metallionen in dem Katalysator zu fördern und auch um den Katalysator an ein Substrat anzuheften. Die bei der Calcinierung verwendeten Temperaturen hängen von den Komponenten in dem zu calcinierenden Material ab und liegen im Allgemeinen zwischen etwa 400 °C bis etwa 900 °C während etwa 1 bis 8 Stunden. In einigen Fällen kann eine Calcinierung bis zu einer Temperatur von etwa 1200 °C durchgeführt werden. Bei Anwendungen, die die hier beschriebenen Verfahren umfassen, werden die Calcinierungen im Allgemeinen bei Temperaturen von etwa 400 °C bis etwa 700 °C während etwa 1 bis 8 Stunden, vorzugsweise bei Temperaturen von etwa 400 °C bis etwa 650 °C während etwa 1 bis 4 Stunden durchgeführt.

**[0017]** Der Begriff "etwa" bedeutet "näherungsweise" und bezieht sich auf einen Bereich, der optional ±25 %, vorzugsweise ±10 %, stärker bevorzugt ±5 % oder am stärksten bevorzugt ±1 % des Wertes ist, mit dem der Begriff verbunden ist.

**[0018]** Wenn ein Bereich oder Bereiche für verschiedene numerische Elemente bereitgestellt wird (werden), kann der Bereich bzw. können die Bereiche die Werte umfassen, wenn nicht anders angegeben.

**[0019]** Der Begriff "N<sub>2</sub>-Selektivität" bedeutet die prozentuale Umwandlung von Ammoniak zu Stickstoff.

**[0020]** In einem ersten Aspekt der Erfindung umfasst ein Katalysatorartikel: (a) einen extrudierten Träger mit einem Einlass, einem Auslass und einer Mehrzahl von Kanälen, durch die Abgas während des Betriebs eines Motors strömt, und (b) eine Einzelschichtbeschichtung oder eine Doppelschichtbeschichtung auf dem Träger, wobei der extrudierte Träger einen dritten Katalysator umfasst, die Einzelschichtbeschichtung eine Mischung von Platin auf einem Träger mit geringer Ammoniakspeicherung mit einem ersten SCR-Katalysator umfasst und die Doppelschichtbeschichtung eine untere Schicht und eine obere Schicht umfasst, wobei die untere Schicht zwischen der oberen Schicht und dem extrudierten Träger angeordnet ist, die untere Schicht eine Mischung von

Platin auf einem Träger mit geringer Ammoniakspeicherung mit einem ersten SCR-Katalysator umfasst und die obere Schicht einen zweiten SCR-Katalysator umfasst. Der Träger mit geringer Ammoniakspeicherung kann ein silicatischer Träger sein, wobei der silicatische Träger ein Siliciumdioxid oder einen Zeolith mit einem Siliciumdioxid-zu-Aluminiumoxid-Verhältnis von  $\geq 100$ , vorzugsweise  $\geq 200$ , stärker bevorzugt  $\geq 250$ , noch stärker bevorzugt  $\geq 300$ , insbesondere  $\geq 400$ , spezieller  $\geq 500$ , noch spezieller  $\geq 750$  und am stärksten bevorzugt  $\geq 1000$  umfassen kann. Der silicatische Träger umfasst vorzugsweise BEA, CDO, CON, FAU, MEL, MFI oder MWW. Der Katalysatorartikel kann eine Verbesserung der N<sub>2</sub>-Ausbeute aus Ammoniak bei einer Temperatur von etwa 250 °C bis etwa 300 °C im Vergleich zu einem Katalysator liefern, der eine vergleichbare Formulierung umfasst, in der der erste SCR-Katalysator in Form einer ersten Schicht vorhanden ist und das Platin auf einem silicatischen Träger in einer zweiten Schicht vorhanden ist und NH<sub>3</sub> umfassendes Gas durch die erste Schicht hindurchtritt, bevor es durch die zweite Schicht hindurchtritt. Der Katalysatorartikel kann das Platin vor einer oder mehreren, in dem Katalysator vorhandenen Substanzen schützen, die das Platin vergiften können, wie Vanadium. Der katalytische Artikel kann Platin vor weiteren Giften, wie Kalium, Natrium, Eisen und Wolfram, schützen. Wenn der erste SCR-Katalysator Vanadium umfasst, kann der Katalysatorartikel eine verringerte Deaktivierung im Vergleich zu einem Katalysator liefern, der eine vergleichbare Formulierung umfasst, in der der erste SCR-Katalysator in Form einer ersten Schicht vorhanden ist und das Platin auf einem silicatischen Träger in einer zweiten Schicht vorhanden ist und NH<sub>3</sub> umfassendes Gas durch die erste Schicht hindurchtritt, bevor es durch die zweite Schicht hindurchtritt.

**[0021]** Der Begriff "Beladung an aktiver Komponente" bzw. „Aktivkomponentenbeladung“ bezieht sich auf das Gewicht des Trägers von Platin + das Gewicht des Platins + das Gewicht des ersten SCR-Katalysators in der Mischung. Platin kann in dem Katalysator mit einer Aktivkomponentenbeladung von etwa 0,01 Gew.-% bis einschließlich etwa 0,3 Gew.-%, vorzugsweise von etwa 0,03 Gew.-% bis einschließlich 0,2 Gew.-%, stärker bevorzugt von 0,05 Gew.-% bis einschließlich 0,17 Gew.-%, am bevorzugtesten von etwa 0,07 Gew.-% bis einschließlich 0,15 Gew.-% vorhanden sein.

**[0022]** Zusätzliche Katalysatoren, wie Palladium (Pd), Gold (Au), Silber (Ag), Ruthenium (Ru) oder Rhodium (Rh) können mit Pt, vorzugsweise in der Mischung mit Pt, vorhanden sein.

#### SCR-Katalysatoren

**[0023]** In verschiedenen Ausführungsformen können die Zusammensetzungen einen, zwei oder drei

SCR-Katalysator(en) umfassen. Der erste SCR-Katalysator, der stets in den Zusammensetzungen vorhanden ist, kann vorhanden sein entweder (1) in einer Mischung mit Pt auf einem Träger mit geringer Ammoniakspeicherung oder (2) in einer oberen Schicht, wenn die Katalysatoren in einer Doppelschicht vorhanden sind und Pt in einer unteren Schicht vorhanden ist. Der erste SCR-Katalysator ist vorzugsweise ein Cu-SCR-Katalysator, ein Fe-SCR-Katalysator oder ein Mischoxid, stärker bevorzugt ein Cu-SCR-Katalysator oder ein Mischoxid, am stärksten bevorzugt ein Cu-SCR-Katalysator. Der Cu-SCR-Katalysator umfasst Kupfer und ein Molekularsieb. Der Fe-SCR-Katalysator umfasst Eisen und ein Molekularsieb. Die Molekularsiebe sind nachfolgend weiter beschrieben. Das Molekularsieb kann ein Alumosilikat, ein Aluminophosphat (AlPO), ein Silicoaluminophosphat (SAPO) oder Gemische hiervon sein. Das Kupfer oder Eisen kann sich in dem Gerüst des Molekularsiebs und/oder an (austauschbaren) extra-Gerüst-Stellen in dem Molekularsieb befinden.

**[0024]** Der zweite und der dritte SCR-Katalysator können gleich oder verschieden sein. Der zweite und dritte SCR-Katalysator können ein unedles Metall, ein Oxid eines unedlen Metalls, ein Edelmetall, ein Molekularsieb, ein metallausgetauschtes Molekularsieb oder ein Gemisch hiervon sein. Das unedle Metall kann aus der Gruppe ausgewählt sein, die aus Vanadium (V), Molybdän (Mo), Wolfram (W), Chrom (Cr), Cer (Ce), Mangan (Mn), Eisen (Fe), Cobalt (Co), Nickel (Ni) und Kupfer (Cu) und Gemischen hiervon besteht. SCR-Zusammensetzungen, die aus Vanadium, geträgert auf einem hitzebeständigen Metalloxid, wie Aluminiumoxid, Siliciumdioxid, Zirconiumoxid, Titanoxid, Cerioxid und Kombinationen hiervon bestehen, sind gut bekannt und werden weithin kommerziell in mobilen Anwendungen verwendet. Typische Zusammensetzungen sind in den US-Patenten Nr. 4 010 238 und 4 085 193 beschrieben, deren gesamter Inhalt hier durch Bezugnahme aufgenommen ist. Zusammensetzungen, die kommerziell – insbesondere in mobilen Anwendungen – verwendet werden, umfassen TiO<sub>2</sub>, auf das WO<sub>3</sub> und V<sub>2</sub>O<sub>5</sub> in Konzentrationen in einem Bereich von 5 bis 20 Gewichtsprozent (Gew.-%) bzw. 0,5 bis 6 Gew.-% verteilt wurden. Der zweite SCR-Katalysator kann ein unterstütztes bzw. gefördertes Ce-Zr oder ein unterstütztes bzw. gefördertes MnO<sub>2</sub> umfassen. Vorzugsweise umfasst der Promotor Nb. Das Edelmetall kann Platin (Pt), Palladium (Pd), Gold (Au), Silber (Ag), Ruthenium (Ru) oder Rhodium (Rh) oder ein Gemisch hiervon sein. Diese Katalysatoren können weitere anorganische Materialien, wie SiO<sub>2</sub> und ZrO<sub>2</sub> enthalten, die als Bindemittel und Promotoren wirken.

**[0025]** Wenn der SCR-Katalysator ein unedles Metall ist, kann der Katalysatorartikel des Weiteren mindestens einen Promotor des unedlen Metalls umfassen. Wie hier verwendet, ist ein "Promotor" so zu

verstehen, dass der Begriff eine Substanz bedeutet, die bei Hinzufügen in einen Katalysator die Aktivität des Katalysators erhöht. Der Promotor des unedlen Metalls kann in Form eines Metalls, eines Oxids des Metalls oder eines Gemisches hiervon vorliegen. Der mindestens eine Katalysatorpromotor des unedlen Metalls kann aus Neodym (Nd), Barium (Ba), Cer (Ce), Lanthan (La), Praseodym (Pr), Magnesium (Mg), Calcium (Ca), Mangan (Mn), Zink (Zn), Niob (Nb), Zirconium (Zr), Molybdän (Mo), Zinn (Sn), Tantal (Ta), Strontium (Sr) und Oxiden hiervon ausgewählt sein. Der mindestens eine Katalysatorpromotor des unedlen Metalls kann vorzugsweise  $Mn_2O_3$ ,  $Mn_2O_3$ ,  $Fe_2O_3$ ,  $SnO_2$ ,  $CuO$ ,  $CoO$ ,  $CeO_2$  und Gemische hiervon sein. Der mindestens eine Katalysatorpromotor des unedlen Metalls kann zu dem Katalysator in Form eines Salzes in einer wässrigen Lösung, wie als ein Nitrat oder ein Acetat, zugegeben werden. Der mindestens eine Katalysatorpromotor eines unedlen Metalls und der mindestens eine ein unedles Metall umfassende Katalysator, z.B. Kupfer, können aus einer wässrigen Lösung auf das bzw. die Oxidträgermaterial(ien) imprägniert werden, können in einen das bzw. die Oxidträgermaterial(ien) umfassenden Washcoat zugegeben werden oder können in einen Träger, der zuvor mit dem Washcoat beschichtet wurde, imprägniert werden.

**[0026]** Der SCR-Katalysator kann ein Molekularsieb oder ein metallausgetauschtes Molekularsieb umfassen. Wie hier verwendet, soll der Begriff "Molekularsieb" ein kleine Poren einer präzisen und gleichförmigen Größe enthaltendes metastabiles Material bedeuten, das als ein Adsorptionsmittel für Gase oder Flüssigkeiten verwendet werden kann. Die Moleküle, die klein genug sind, um durch die Poren hindurchzutreten, werden adsorbiert, wohingegen die größeren Moleküle nicht adsorbiert werden. Das Molekularsieb kann ein zeolithisches Molekularsieb, ein nicht-zeolithisches Molekularsieb oder ein Gemisch hiervon sein.

**[0027]** Ein zeolithisches Molekularsieb ist ein mikroporöses Alumosilicat, das eine beliebige der Gerüststrukturen aufweist, die in der von der Internationalen Zeolithvereinigung (IZA) veröffentlichten Datenbank von Zeolithstrukturen aufgelistet ist. Die Gerüststrukturen umfassen, ohne darauf beschränkt zu sein, diejenigen der CHA-, FAU-, BEA-, MFI-, MOR-Typen. Nicht einschränkende Beispiele von Zeolithen mit diesen Strukturen umfassen Chabasit, Faujasit, Zeolith Y, ultrastabilen Zeolith Y, Beta-Zeolith, Mordenit, Silicalit, Zeolith X und ZSM-5. Alumosilicat-Zeolithe können ein Siliciumdioxid/Aluminiumoxid-Molverhältnis (SAR) (definiert als  $SiO_2/Al_2O_3$ ) von mindestens etwa 5, vorzugsweise mindestens etwa 20, mit geeigneten Bereichen von etwa 10 bis 200, aufweisen.

**[0028]** Beliebige der SCR-Katalysatoren können ein kleinporiges, ein mittelporiges oder großporiges Mo-

lekularsieb oder ein Gemisch hiervon umfassen. Ein "kleinporiges Molekularsieb" ist ein Molekularsieb, das eine maximale Ringgröße von 8 tetraedrischen Atomen enthält. Ein "mittelporiges Molekularsieb" ist ein Molekularsieb, das eine maximale Ringgröße von 10 tetraedrischen Atomen enthält. Ein "großporiges Molekularsieb" ist ein Molekularsieb, das eine maximale Ringgröße von 12 tetraedrischen Atomen aufweist. Die zweiten und/oder dritten SCR-Katalysatoren können ein kleinporiges Molekularsieb umfassen, das aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus Alumosilicat-Molekularsieben, metallsubstituierten Alumosilicat-Molekularsieben, Aluminophosphat(AlPO)-Molekularsieben, metallsubstituierten Aluminophosphat(MeAlPO)-Molekularsieben, Silicoaluminophosphat(SAPO)-Molekularsieben und metallsubstituierten Silicoaluminophosphat(MeAPSO)-Molekularsieben und Gemischen hiervon besteht.

**[0029]** Beliebige der SCR-Katalysatoren können ein kleinporiges Molekularsieb umfassen, das aus der Gruppe der Gerüsttypen ausgewählt ist, die aus ACO, AEI, AEN, AFN, AFT, AFX, ANA, APC, APD, ATT, CDO, CHA, DDR, DFT, EAB, EDI, EPI, ERI, GIS, GOO, IHW, ITE, ITW, LEV, KFI, MER, MON, NSI, OWE, PAU, PHI, RHO, RTH, SAT, SAV, SIV, THO, TSC, UEI, UFI, VNI, YUG und ZON und Gemischen und/oder Verwachsungen hiervon besteht. Vorzugsweise ist das kleinporige Molekularsieb aus der Gruppe von Gerüsttypen ausgewählt, die aus CHA, LEV, AEI, AFX, ERI, SFW, KFI, DDR und ITE besteht.

**[0030]** Beliebige der SCR-Katalysatoren können ein mittelporiges Molekularsieb umfassen, das aus der Gruppe der Gerüsttypen ausgewählt ist, die aus AEL, AFO, AHT, BOF, BOZ, CGF, CGS, CHI, DAC, EUO, FER, HEU, IMF, ITH, ITR, JRY, JSR, JST, LAU, LOV, MEL, MFI, MFS, MRE, MTT, MVY, MWW, NAB, NAT, NES, OBW, PAR, PCR, PON, PUN, RRO, RSN, SFF, SFG, STF, STI, STT, STW, SVR, SZR, TER, TON, TUN, UOS, VSV, WEI und WEN sowie Gemischen und/oder Verwachsungen hiervon besteht. Vorzugsweise ist das mittelporige Molekularsieb aus der Gruppe von Gerüsttypen ausgewählt, die aus MFI, FER und STT besteht.

**[0031]** Beliebige der SCR-Katalysatoren können ein großporiges Molekularsieb umfassen, das aus der Gruppe der Gerüsttypen ausgewählt ist, die aus AFI, AFR, AFS, AFY, ASV, ATO, ATS, BEA, BEC, BOG, BPH, BSV, CAN, CON, CZP, DFO, EMT, EON, EZT, FAU, GME, GON, IFR, ISV, ITG, IWR, IWS, IWV, IWW, JSR, LTF, LTL, MAZ, MEI, MOR, MOZ, MSE, MTW, NPO, OFF, OKO, OSI, RON, RWY, SAF, SAO, SBE, SBS, SBT, SEW, SFE, SFO, SFS, SFV, SOF, SOS, STO, SSF, SSY, USI, UWY und VET und Gemischen und/oder Verwachsungen hiervon besteht. Vorzugsweise ist das großporige Molekularsieb aus

der Gruppe von Gerüsttypen ausgewählt, die aus MOR, OFF und BEA besteht.

**[0032]** Die Molekularsiebe in den Cu-SCR- und Fe-SCR-Katalysatoren sind vorzugsweise aus der Gruppe ausgewählt, die aus ACO, AEI, AEN, AFN, AFT, AFX, ANA, APC, APD, ATT, CDO, CHA, DDR, DFT, EAB, EDI, EPI, ERI, GIS, GOO, IHW, ITE, ITW, LEV, KFI, MER, MON, NSI, OWE, PAU, PHI, RHO, RTH, SAT, SAV, SIV, THO, TSC, UEI, UFI, VNI, YUG, ZON, BEA, MFI und FER und Mischungen und/oder Verwachsungen hiervon besteht. Stärker bevorzugt sind die Molekularsiebe in dem Cu-SCR und Fe-SCR aus der Gruppe ausgewählt, die aus AEI, AFX, BEA, CHA, DDR, ERI, FER, ITE, KFI, LEV, MFI und SFW und Gemischen und/oder Verwachsungen hiervon besteht.

**[0033]** Ein metallausgetauschtes Molekularsieb kann mindestens ein Metall aus einer der Gruppen VB, VIB, VIIB, VIIIB, IB oder IIB des Periodensystems aufweisen, das auf extra-Gerüst-Stellen auf der äußeren Oberfläche oder innerhalb der Kanäle, Hohlräume oder Käfige der Molekularsiebe deponiert ist. Die Metalle können in einer von mehreren Formen vorliegen, einschließlich, ohne darauf beschränkt zu sein, als nullwertige Metallatome oder Cluster, isolierte Kationen, mononukleäre oder polynukleäre Oxykationen oder als erweiterte (extended) Metalloxide. Vorzugsweise können die Metalle Eisen, Kupfer und Gemische oder Kombinationen hiervon sein.

**[0034]** Das Metall kann mit dem Zeolith unter Verwendung eines Gemisches oder einer Lösung des Metallvorläufers in einem geeigneten Lösemittel kombiniert werden. Der Begriff "Metallvorläufer" bedeutet eine beliebige Verbindung oder einen beliebigen Komplex, der auf dem Zeolith zum Erhalten einer katalytisch aktiven Metallkomponente verteilt bzw. dispergiert werden kann. Vorzugsweise ist das Lösemittel Wasser aufgrund sowohl ökonomischer als auch umweltbedingter Aspekte bei der Verwendung anderer Lösemittel. Wenn Kupfer, ein bevorzugtes Metall, verwendet wird, umfassen geeignete Komplexe oder Verbindungen, ohne darauf beschränkt zu sein, wasserfreies und hydratisiertes Kupfersulfat, Kupfernitrat, Kupferacetat, Kupferacetylacetonat, Kupferoxid, Kupferhydroxid und Salze von Kupferammonium (z.B.  $[Cu(NH_3)_4]^{2+}$ ). Die vorliegende Erfindung ist nicht auf Metallvorläufer eines speziellen Typs, einer speziellen Zusammensetzung oder Reinheit beschränkt. Das Molekularsieb kann zu der Lösung der Metallkomponente unter Bildung einer Suspension zugegeben werden, die anschließend reagieren gelassen wird, so dass die Metallkomponente auf dem Zeolith verteilt wird. Das Metall kann in den Porenkanälen sowie auf der äußeren Oberfläche des Molekularsiebs verteilt sein. Das Metall kann in ionischer Form oder in Form eines Metalloxids verteilt sein. Beispielsweise kann Kupfer als Kupfer(II)-ionen, Kupfer(I)-ionen

oder als Kupferoxid verteilt sein. Das das Metall enthaltende Molekularsieb kann von der flüssigen Phase der Suspension getrennt, gewaschen und getrocknet werden. Das erhaltene Metallenthaltende Molekularsieb kann daraufhin calciniert werden, um das Metall in dem Molekularsieb zu fixieren. Vorzugsweise umfassen der zweite und der dritte Katalysator einen Kupfer und ein Molekularsieb umfassenden Cu-SCR-Katalysator, einen Eisen und ein Molekularsieb umfassenden Fe-SCR, einen Katalysator auf Basis von Vanadium, ein unterstütztes (bzw. gefördertes) Ce-Zr oder ein unterstütztes (bzw. gefördertes) MnO<sub>2</sub>.

**[0035]** Ein metallausgetauschtes Molekularsieb kann in dem Bereich von etwa 0,10 Gew.-% bis etwa 10 Gew.-% ein Metall der Gruppe VB, VIB, VIIB, VIIIB, IB oder IIB enthalten, das sich auf extra-Gerüst-Stellen auf der äußeren Oberfläche oder in den Kanälen, Hohlräumen oder Käfigen des Molekularsiebs befindet. Vorzugsweise kann das extra-Gerüst-Metall in einer Menge in dem Bereich von etwa 0,2 Gew.-% bis etwa 5 Gew.-% vorhanden sein.

**[0036]** Das metallausgetauschte Molekularsieb kann ein kleinporiges Molekularsieb mit geträgertem Kupfer (Cu) oder Eisen (Fe) sein, das etwa 0,1 bis etwa 20,0 Gew.-% Kupfer oder Eisen des Gesamtgewichts des Katalysators aufweist. Stärker bevorzugt ist Kupfer oder Eisen von etwa 0,5 Gew.-% bis etwa 15 Gew.-% des Gesamtgewichts des Katalysators vorhanden. Am stärksten bevorzugt ist Kupfer oder Eisen von etwa 1 Gew.-% bis etwa 9 Gew.-% des Gesamtgewichts des Katalysators vorhanden.

**[0037]** Der erste SCR-Katalysator kann ein Cu-SCR-Katalysator sein, der Kupfer und ein kleinporiges Molekularsieb umfasst, oder ein Fe-SCR-Katalysator, der Eisen und ein kleinporiges Molekularsieb umfasst. Das kleinporige Molekularsieb kann ein Aluminosilikat, ein Aluminophosphat (AlPO), ein Silicoaluminophosphat (SAPO) oder Gemische hiervon sein. Das kleinporige Molekularsieb kann aus der Gruppe von Gerüsttypen ausgewählt sein, die aus ACO, AEI, AEN, AFN, AFT, AFX, ANA, APC, APD, ATT, CDO, CHA, DDR, DFT, EAB, EDI, EPI, ERI, GIS, GOO, IHW, ITE, ITW, LEV, KFI, MER, MON, NSI, OWE, PAU, PHI, RHO, RTH, SAT, SAV, SIV, THO, TSC, UEI, UFI, VNI, YUG und ZON und Gemischen und/oder Verwachsungen hiervon besteht. Vorzugsweise kann das kleinporige Molekularsieb aus der Gruppe von Gerüsttypen ausgewählt sein, die aus CHA, LEV, AEI, AFX, ERI, SFW, KFI, DDR und ITE besteht. Das Verhältnis der Menge des ersten SCR-Katalysators zu der Menge von Platin auf dem Träger mit geringer Ammoniakspeicherung kann in mindestens einem der folgenden Bereiche liegen: (a) 0:1 bis einschließlich 300:1, (b) 3:1 bis einschließlich 300:1, (c) 7:1 bis einschließlich 100:1 und (d) 10:1 bis einschließlich 50:1, bezogen auf das Gewicht dieser Komponenten. Platin kann in mindestens einem der

folgenden Bereiche vorhanden sein: (a) 0,01 Gew.-% bis einschließlich 0,3 Gew.-%, (b) 0,03 Gew.-% bis einschließlich 0,2 Gew.-%, (c) 0,05 Gew.-% bis einschließlich 0,17 Gew.-% und (d) 0,07 Gew.-% bis einschließlich 0,15 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht des Trägers von Platin + das Gewicht an Platin + das Gewicht des ersten SCR-Katalysators in der Mischung.

**[0038]** Der zweite SCR Katalysator und der dritte Katalysator können unabhängig voneinander ein unedles Metall, ein Oxid eines unedlen Metalls, ein Molekularsieb, ein metallausgetauschtes Molekularsieb oder ein Gemisch hiervon sein. Das unedle Metall kann aus der Gruppe ausgewählt sein, die aus Vanadium (V), Molybdän (Mo), Wolfram (W), Chrom (Cr), Cer (Ce), Mangan (Mn), Eisen (Fe), Cobalt (Co), Nickel (Ni) und Kupfer (Cu) und Gemischen hiervon besteht. Der Katalysatorartikel kann des Weiteren mindestens einen Promotor eines unedlen Metalls umfassen. Das Molekularsieb oder das metallausgetauschte Molekularsieb kann kleinporig, mittelporig, großporig oder ein Gemisch hiervon sein. Der zweite und/oder dritte SCR-Katalysator können ein kleinporiges Molekularsieb umfassen, das aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus Alumosilicat-Molekularsieben, metallsubstituierten Alumosilicat-Molekularsieben, Aluminophosphat(AlPO)-Molekularsieben, metallsubstituierten Aluminophosphat(MeAlPO)-Molekularsieben, Silicoaluminophosphat(SAPO)-Molekularsieben und metallsubstituierten Silicoaluminophosphat(MeAPSO)-Molekularsieben und Gemischen hiervon besteht. Der zweite und/oder dritte SCR-Katalysator kann ein kleinporiges Molekularsieb umfassen, das aus der Gruppe der Gerüsttypen ausgewählt ist, die aus ACO, AEI, AEN, AFN, AFT, AFX, ANA, APC, APD, ATT, CDO, CHA, DDR, DFT, EAB, EDI, EPI, ERI, GIS, GOO, IHW, ITE, ITW, LEV, KFI, MER, MON, NSI, OWE, PAU, PHI, RHO, RTH, SAT, SAV, SIV, THO, TSC, UEI, UFI, VNI, YUG und ZON und Gemischen und/oder Verwachsungen hiervon besteht. Der zweite und/oder dritte SCR-Katalysator kann vorzugsweise ein kleinporiges Molekularsieb umfassen, das aus der Gruppe von Gerüsttypen ausgewählt ist, die aus CHA, LEV, AEI, AFX, ERI, SFW, KFI, DDR und ITE besteht. Der zweite und/oder dritte SCR-Katalysator kann ein mittelporiges Molekularsieb umfassen, das aus der Gruppe der Gerüsttypen ausgewählt ist, die aus AEL, AFO, AHT, BOF, BOZ, CGF, CGS, CHI, DAC, EUO, FER, HEU, IMF, ITH, ITR, JRY, JSR, JST, LAU, LOV, MEL, MFI, MFS, MRE, MTT, MVY, MWW, NAB, NAT, NES, OBW, PAR, PCR, PON, PUN, RRO, RSN, SFF, SFG, STF, STI, STT, STW, SVR, SZR, TER, TON, TUN, UOS, VSV, WEI und WEN sowie Gemischen und/oder Verwachsungen hiervon besteht. Der zweite und/oder dritte SCR-Katalysator kann vorzugsweise ein großporiges Molekularsieb umfassen, das aus der Gruppe der Gerüsttypen ausgewählt ist, die aus AFI, AFR, AFS, AFY, ASV, ATO, ATS, BEA, BEC,

BOG, BPH, BSV, CAN, CON, CZP, DFO, EMT, EON, EZT, FAU, GME, GON, IFR, ISV, ITG, IWR, IWS, IWV, IWW, JSR, LTF, LTL, MAZ, MEI, MOR, MOZ, MSE, MTW, NPO, OFF, OKO, OSI, RON, RWY, SAF, SAO, SBE, SBS, SBT, SEW, SFE, SFO, SFS, SFV, SOF, SOS, STO, SSF, SSY, USI, UWY und VET sowie Gemischen und/oder Verwachsungen hiervon besteht. Der dritte SCR-Katalysator umfasst vorzugsweise Vanadium, einen Fe-Zeolith, einen Cu-Zeolith oder einen auf Ce-Zr basierenden Katalysator, der mit Fe, W oder Nb dotiert ist.

**[0039]** Die hier beschriebenen Katalysatoren können bei der SCR-Behandlung von Abgasen aus verschiedenen Motoren verwendet werden. Die Motoren können in einem Fahrzeug, einem stationären Motor, einem Motor in einem Kraftwerk oder in einer Gasturbine vorhanden sein. Eine der Eigenschaften eines Katalysators, der eine Mischung von Platin auf einem silicatischen Träger mit einem ersten SCR-Katalysator umfasst, wobei der erste SCR-Katalysator ein Cu-SCR- oder ein Fe-SCR-Katalysator ist, besteht darin, dass er eine Verbesserung der N<sub>2</sub>-Ausbeute aus Ammoniak bei einer Temperatur von etwa 250 °C bis etwa 350 °C im Vergleich zu einem Katalysator liefern kann, der eine vergleichbare Formulierung umfasst, in der der erste SCR-Katalysator in Form einer ersten Schicht vorhanden ist und Platin, geträgt auf einer Schicht, die Ammoniak speichert, in einer zweiten Schicht vorhanden ist, und wobei NH<sub>3</sub> umfassendes Gas durch die erste Schicht hindurchtritt, bevor es durch die zweite Schicht hindurchtritt. Eine weitere Eigenschaft eines Katalysators, der eine Mischung von Platin auf einem Träger mit geringer Ammoniakspeicherung mit einem ersten SCR-Katalysator umfasst, wobei der erste SCR-Katalysator ein Cu-SCR-Katalysator oder ein Fe-SCR-Katalysator ist, besteht darin, dass er eine verringerte Bildung von N<sub>2</sub>O aus NH<sub>3</sub> im Vergleich zu einem Katalysator liefern kann, der eine vergleichbare Formulierung umfasst, in der der erste SCR-Katalysator in Form einer ersten Schicht vorhanden ist und Platin, geträgt auf einem Träger, der Ammoniak speichert, in einer zweiten Schicht vorhanden ist, und wobei NH<sub>3</sub> umfassendes Gas durch die erste Schicht hindurchtritt, bevor es durch die zweite Schicht hindurchtritt.

**[0040]** Das Substrat für den Katalysator kann ein beliebiges Material sein, das typischerweise zur Herstellung von Automobilkatalysatoren verwendet wird, das eine Durchfluss- oder Filterstruktur umfasst, wie eine Wabenstruktur, ein extrudierter Körper, ein metallisches Substrat oder ein SCRF. Vorzugsweise weist das Substrat eine Mehrzahl von feinen, parallelen Gasflussdurchgängen auf, die sich von einer Einlass- zu einer Auslassseite des Substrats erstrecken, so dass Durchgänge für die Strömung des Fluidums offen sind. Solche monolithischen Träger können bis zu etwa 700 oder mehr Strömungsdurchgän-

ge (oder "Zellen") pro Quadratzoll des Durchmessers enthalten, obwohl weit weniger verwendet werden können. Beispielsweise kann der Träger etwa 7 bis 600, stärker üblich etwa 100 bis 400 Zellen pro Quadratzoll ("cpsi") aufweisen. Die Durchgänge, die im Wesentlichen gerade Wege von ihrem Fluidumeinlass zu ihrem Fluidumauslass sind, sind durch Wände definiert, auf die der SCR-Katalysator in Form eines "Washcoats" aufgetragen ist, so dass die durch die Durchgänge strömenden Gase mit dem katalytischen Material in Kontakt gelangen. Die Strömungsdurchgänge des Monolithsubstrats sind dünnwandige Kanäle, die eine beliebige geeignete Querschnittsform, wie trapezoid, rechteckig, quadratisch, dreieckig, sinusförmig, sechseckig, oval, rund usw., aufweisen können. Die Erfindung ist nicht auf einen speziellen Typ, ein spezielles Material oder eine spezielle Geometrie eines Substrats beschränkt.

**[0041]** Keramische Substrate können aus einem beliebigen geeigneten hitzebeständigen Material, wie Cordierit, Cordierit- $\alpha$ -Aluminiumoxid,  $\alpha$ -Aluminimumoxid, Siliciumcarbid, Siliciumnitrid, Zirconiumoxid, Mullit, Spodumen, Aluminiumoxid-Siliciumdioxid-Magnesiumoxid, Zirconiumsilicat, Sillimanit, Magnesiumsilicaten, Zircon, Petalit, Alumosilicaten und Gemischen hiervon hergestellt sein.

**[0042]** Wandstromsubstrate können ferner aus keramischen Faserverbundmaterialien gebildet sein, wie solchen, die aus Cordierit und Siliciumcarbid gebildet sind. Solche Materialien sind in der Lage, den Umgebungsbedingungen, insbesondere den hohen Temperaturen, zu widerstehen, die bei einer Behandlung der Abgasströme vorgefunden werden.

**[0043]** Die Substrate können hochporöse Substrate sein. Der Begriff "hochporöses Substrat" bezieht sich auf ein Substrat, das eine Porosität von zwischen etwa 40 % und etwa 80 % aufweist. Das hochporöse Substrat kann eine Porosität vorzugsweise von mindestens etwa 45 %, stärker bevorzugt von mindestens etwa 50 % aufweisen. Das hochporöse Substrat kann eine Porosität vorzugsweise von weniger als etwa 75 %, stärker bevorzugt von weniger als etwa 70 % aufweisen. Der Begriff "Porosität", wie hier verwendet, bezieht sich auf die Gesamtporosität, vorzugsweise gemäß Messung mit Quecksilberporosimetrie.

**[0044]** Vorzugsweise kann das Substrat Cordierit, ein hochporöser Cordierit, ein metallisches Substrat, ein extrudierter SCR, ein Filter oder ein SCRF sein.

**[0045]** Ein Washcoat, der eine Mischung von Platin auf einem silicatischen Träger und einen ersten SCR-Katalysator umfasst, wobei der erste SCR-Katalysator vorzugsweise ein Cu-SCR-Katalysator oder ein Fe-SCR-Katalysator ist, kann auf die Einlassseite des Substrats unter Verwendung eines auf dem einschlägigen Fachgebiet bekannten Verfahrens ap-

pliziert werden. Nach der Applikation des Washcoats kann die Zusammensetzung getrocknet und calciniert werden. Wenn die Zusammensetzung einen zweiten SCR umfasst, kann der zweite SCR in einem gesonderten Washcoat auf einen calcinierten Artikel, der die untere Schicht aufweist, gemäß obiger Beschreibung appliziert werden. Nach Applikation des zweiten Washcoats kann dieser getrocknet und calciniert werden, wie dies bei der ersten Schicht durchgeführt wurde.

**[0046]** Das Substrat mit der Platin enthaltenden Schicht kann getrocknet und bei einer Temperatur in dem Bereich von 300 °C bis 1200 °C, vorzugsweise 400 °C bis 700 °C und stärker bevorzugt 450 °C bis 650 °C calciniert werden. Die Calcinierung wird vorzugsweise unter trockenen Bedingungen durchgeführt, sie kann jedoch auch hydrothermal, d.h. in Gegenwart eines gewissen Feuchtigkeitsgehalts, durchgeführt werden. Die Calcinierung kann während eines Zeitraums von zwischen etwa 30 Minuten und etwa 4 Stunden, vorzugsweise zwischen etwa 30 Minuten und etwa 2 Stunden, stärker bevorzugt zwischen etwa 30 Minuten und etwa 1 Stunde durchgeführt werden.

**[0047]** Ein Abgassystem kann einen Katalysator des ersten Aspekts der Erfindung und ein Mittel zur Bildung von NH<sub>3</sub> in dem Abgas umfassen. Ein Abgasystem kann des Weiteren einen zweiten Katalysator umfassen, der aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus einem Dieseloxidationskatalysator (DOC), einem exothermen Dieselkatalysator (DEC), einer selektiven katalytischen Reduktion auf Filter (SCRF) oder einem katalysierten Rußfilter (CSF) besteht, wobei der zweite Katalysator stromab des Katalysators des ersten Aspekts der Erfindung angeordnet ist. Ein Abgassystem kann des Weiteren einen zweiten Katalysator umfassen, der aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus einem SCR-Katalysator, einer selektiven katalytischen Reduktion auf Filter (SCRF), einem Dieseloxidationskatalysator (DOC), einem exothermen Dieselkatalysator (DEC), einem NO<sub>x</sub>-Adsorber-Katalysator (NAC) (wie einer Mager-NO<sub>x</sub>-Falle (LNT)), einem NAC, einem passiven NO<sub>x</sub>-Adsorber (PNA), einem katalysierten Rußfilter (CSF) oder einem Kaltstartkonzept(CSC)-Katalysator besteht, wobei der zweite Katalysator stromauf des Katalysators des ersten Aspekts der Erfindung angeordnet ist.

**[0048]** Ein Abgassystem kann einen Katalysator des ersten Aspekts der Erfindung, einen SCR-Katalysator und einen DOC-Katalysator umfassen, wobei der SCR-Katalysator zwischen dem Katalysator des ersten Aspekts der Erfindung und dem DOC-Katalysator angeordnet ist. Das Abgassystem kann ein Platingruppenmetall vor einem SCR-Katalysator umfassen, falls die Menge des Platingruppenmetalls zur Erzeugung einer Exotherme ausreichend ist. Das Abgassystem kann des Weiteren ein unterstütztes bzw.

gefördertes Ce-Zr oder ein unterstütztes bzw. gefördertes MnO<sub>2</sub> umfassen, das stromab des Katalysators des ersten Aspekts der Erfindung angeordnet ist.

**[0049]** Ein Motor kann ein Abgassystem gemäß obiger Beschreibung umfassen. Der Motor kann ein Motor in einem Fahrzeug, ein stationärer Motor, ein Motor in einem Kraftwerk oder eine Gasturbine sein.

**[0050]** Ein Fahrzeug kann ein Abgassystem umfassen, das einen Katalysator des ersten Aspekts der Erfindung und ein Mittel zur Bildung von NH<sub>3</sub> in dem Abgas umfasst. Das Fahrzeug kann ein Auto, ein Leichtlastkraftwagen und ein Schwerlastkraftwagen oder ein Schiff sein.

**[0051]** Ein Verfahren zur Verbesserung der N<sub>2</sub>-Ausbeute aus Ammoniak in einem Abgas bei einer Temperatur von etwa 250 °C bis etwa 300 °C umfasst ein In-Kontakt-bringen eines Ammoniak umfassenden Abgases mit einem Katalysator des ersten Aspekts der Erfindung. Die Verbesserung der Ausbeute kann etwa 10 % bis etwa 20 % im Vergleich zu einem Katalysator betragen, der eine vergleichbare Formulierung umfasst, in der der erste SCR-Katalysator in Form einer ersten Schicht vorhanden ist und das Platin auf einem silicatischen Träger in einer zweiten Schicht vorhanden ist und NH<sub>3</sub> umfassendes Gas durch die erste Schicht hindurchtritt, bevor es durch die zweite Schicht hindurchtritt.

**[0052]** Ein Verfahren zum Verringern der N<sub>2</sub>O-Bildung aus NH<sub>3</sub> in einem Abgas umfasst ein In-Kontakt-bringen eines Ammoniak umfassenden Abgases mit einem Katalysator des ersten Aspekts der Erfindung. Die Verringerung der N<sub>2</sub>O-Bildung kann etwa 20 % bis etwa 40 % im Vergleich zu einem Katalysator betragen, der eine vergleichbare Formulierung umfasst, in der der erste SCR-Katalysator in Form einer ersten Schicht vorhanden ist und das Platin auf einem silicatischen Träger in einer zweiten Schicht vorhanden ist und NH<sub>3</sub> umfassendes Gas durch die erste Schicht hindurchtritt, bevor es durch die zweite Schicht hindurchtritt.

**[0053]** Die nachfolgenden Beispiele dienen lediglich der Veranschaulichung der Erfindung; ein Fachmann auf dem einschlägigen Fachgebiet erkennt zahlreiche Abwandlungen, die unter den Geist der Erfindung und den Umfang der Patentansprüche fallen.

## BEISPIELE

Beispiel 1: Ein selektiver ASC auf einem extrudierten SCR-Katalysator

**[0054]** Ein extrudierter SCR-Katalysator, der Vanadium enthält, wird von der Auslassseite mit einem Washcoat beschichtet, der eine Mischung von Platin

auf einem Träger mit geringer Ammoniakspeicherung mit Cu-CHA umfasst.

Beispiel 2: Ein selektiver ASC auf einem extrudierten SCR-Katalysator

**[0055]** Ein extrudierter SCR-Katalysator, der einen Fe-Zeolith enthält, wird von der Auslassseite mit einem Washcoat beschichtet, der eine Mischung von Platin auf einem Träger mit geringer Ammoniakspeicherung mit Cu-CHA umfasst.

**[0056]** Verglichen mit einem herkömmlichen Einzelschicht-ASC, worin die Einzelschichtbeschichtung Platin auf einem Träger, wie einem Aluminiumoxid, ohne jeglichen SCR-Katalysator in der Beschichtung umfasst, liefert der hier beschriebene ASC eine verringerte Selektivität für sowohl N<sub>2</sub>O als auch NO<sub>x</sub>. Dies führt zu einer erhöhten Selektivität gegenüber N<sub>2</sub> über den gesamten Temperaturbereich hinweg.

Beispiel 3: Ein selektiver ASC auf einem extrudierten SCR-Katalysator

**[0057]** Ein extrudierter SCR-Katalysator, der Vanadium enthält, wird von der Auslassseite mit einem Washcoat beschichtet, der Platin auf einem Träger mit geringer Ammoniakspeicherung umfasst, um eine untere Schicht auszubilden. Ein zweiter Washcoat, der Cu-CHA umfasst, wird über die untere Schicht platziert, wobei eine obere Schicht ausgebildet wird.

Beispiel 4: Ein selektiver ASC auf einem extrudierten SCR-Katalysator

**[0058]** Ein extrudierter SCR-Katalysator, der ein Fe-Zeolith enthält, wird von der Auslassseite mit einem Washcoat beschichtet, der Platin auf einem Träger mit geringer Ammoniakspeicherung enthält, um eine untere Schicht auszubilden. Ein zweiter Washcoat, der Cu-CHA umfasst, wird über die untere Schicht platziert, wobei eine obere Schicht ausgebildet wird.

**[0059]** Verglichen mit einem herkömmlichen Doppelschicht-ASC, worin die untere Beschichtung Platin auf z.B. Aluminiumoxid umfasst und die obere Beschichtung einen SR-Katalysator umfasst, liefert der hier beschriebene ASC eine verringerte Selektivität für sowohl N<sub>2</sub>O als auch NO<sub>x</sub>. Dies führt zu einer erhöhten Selektivität gegenüber N<sub>2</sub> über den gesamten Temperaturbereich hinweg. Zusätzlich wird der Rückdruck aufgrund einer insgesamt dünneren Beschichtungsschicht verringert.

**[0060]** In den obigen Beispielen befindet sich Platin auf einem Träger mit geringer Ammoniakspeicherung. Die Verwendung des Trägers mit geringer Ammoniakspeicherung trägt dazu bei, dass Platin vor einem Einwirken von Materialien, wie Vanadium, zu

schützen, die das Platin vergiften oder in negativer Weise beeinflussen können.

Beispiel 5: SCRF mit ASC

**[0061]** Ein SCRF-Filter wird auf der Auslassseite des Filters mit einem Washcoat beschichtet, der Platin auf einem Träger mit geringer Ammoniakspeicherung umfasst, um eine untere Schicht auszubilden. Ein zweiter Washcoat, der Cu-CHA umfasst, wird über der unteren Schicht platziert, um eine obere Schicht auszubilden.

Beispiel 6: SCRF mit ASC

**[0062]** Ein SCRF-Filter wird auf der Auslassseite des Filters mit einem Washcoat beschichtet, der eine Mischung von Platin auf einem Träger mit geringer Ammoniakspeicherung und Cu-CHA umfasst.

**[0063]** Der SCRF mit dem ASC der Beispiele 5 und 6 lieferte die gleichen Ergebnisse und Vorteile, wie sie für die Beispiele 1 bis 4 beschrieben sind.

**[0064]** Die vorhergehenden Beispiele sollen lediglich der Veranschaulichung dienen; die nachfolgenden Ansprüche definieren den Schutzmfang der Erfindung.

**ZITATE ENTHALTEN IN DER BESCHREIBUNG**

*Diese Liste der vom Anmelder aufgeführten Dokumente wurde automatisiert erzeugt und ist ausschließlich zur besseren Information des Lesers aufgenommen. Die Liste ist nicht Bestandteil der deutschen Patent- bzw. Gebrauchsmusteranmeldung. Das DPMA übernimmt keinerlei Haftung für etwaige Fehler oder Auslassungen.*

**Zitierte Patentliteratur**

- US 4010238 [0024]
- US 4085193 [0024]

**Zitierte Nicht-Patentliteratur**

- IUPAC. Compendium of Chemical Terminology, 2. Ausgabe ("Gold Book"). Erstellt von A. D. McNaught und A. Wilkinson. Blackwell Scientific Publications, Oxford (1997). Korrigierte XML-Onlineversion: <http://goldbook.iupac.org> (2006-), erzeugt von M. Nic, J. Jirat, B. Kosata; die Updates wurden erzeugt von A. Jenkins. ISBN 0-9678550-9-8. Doi:10.1351/gold-book. [0016]

## Patentansprüche

1. Katalysatorartikel umfassend: (a) einen extrudierten Träger mit einem Einlass, einem Auslass und einer Mehrzahl von Kanälen, durch die Abgas während des Betriebs eines Motors strömt, und (b) eine Einzelschichtbeschichtung oder eine Doppelschichtbeschichtung auf dem Träger, wobei die Einzelschichtbeschichtung eine Mischung von Platin auf einem Träger mit geringer Ammoniakspeicherung mit einem ersten SCR-Katalysator umfasst und die Doppelschichtbeschichtung eine untere Schicht und eine obere Schicht umfasst, wobei die untere Schicht zwischen der oberen Schicht und dem extrudierten Träger angeordnet ist, die untere Schicht eine Mischung von Platin auf einem Träger mit geringer Ammoniakspeicherung mit einem ersten SCR-Katalysator umfasst, die obere Schicht einen zweiten SCR-Katalysator umfasst und der extrudierte Träger einen dritten SCR-Katalysator umfasst.

2. Katalysator nach Anspruch 1, wobei der Träger mit geringer Ammoniakspeicherung ein silicatischer Träger ist.

3. Katalysator nach Anspruch 1, wobei das Verhältnis der Menge des ersten SCR-Katalysators zu der Menge von Platin auf dem Träger mit geringer Ammoniakspeicherung in dem Bereich von mindestens einem der folgenden liegt: (a) 0:1 bis einschließlich 300:1, (b) 3:1 bis einschließlich 300:1, (c) 7:1 bis einschließlich 100:1 und (d) 10:1 bis einschließlich 50:1, bezogen auf das Gewicht dieser Komponenten.

4. Katalysator nach Anspruch 1, wobei der erste SCR-Katalysator ein Cu-SCR-Katalysator, der Kupfer und ein kleinporiges Molekularsieb umfasst, ein Fe-SCR-Katalysator, der Eisen und ein kleinporiges Molekularsieb umfasst, oder ein Mischoxid ist.

5. Katalysator nach Anspruch 1, wobei der zweite SCR-Katalysator und der dritte SCR-Katalysator unabhängig voneinander ein unedles Metall, ein Oxid eines unedlen Metalls, ein Molekularsieb, ein metallausgetauschtes Molekularsieb oder ein Gemisch hiervon sind.

6. Katalysatorartikel nach Anspruch 5, wobei das Molekularsieb oder das metallausgetauschte Molekularsieb kleinporig, mittelporig, großporig oder ein Gemisch hiervon ist.

7. Katalysatorartikel nach Anspruch 1, wobei der Katalysator eine Verbesserung der N<sub>2</sub>-Ausbeute aus Ammoniak bei einer Temperatur von etwa 250 °C bis etwa 300 °C im Vergleich zu einem Katalysator liefert, der eine vergleichbare Formulierung umfasst, in der der erste SCR-Katalysator in Form einer ersten Schicht vorhanden ist und das Platin auf einem silicatischen Träger in einer zweiten Schicht vorhanden ist

und NH<sub>3</sub> umfassendes Gas durch die erste Schicht hindurchtritt, bevor es durch die zweite Schicht hindurchtritt.

8. Katalysatorartikel nach Anspruch 1, wobei, wenn der erste SCR-Katalysator Vanadium umfasst, der Katalysatorartikel eine verringerte Deaktivierung im Vergleich zu einem Katalysator liefert, der eine vergleichbare Formulierung umfasst, in der der erste SCR-Katalysator in Form einer ersten Schicht vorhanden ist und das Platin auf einem silicatischen Träger in einer zweiten Schicht vorhanden ist und NH<sub>3</sub> umfassendes Gas durch die erste Schicht hindurchtritt, bevor es durch die zweite Schicht hindurchtritt.

9. Abgassystem, das den Katalysatorartikel nach Anspruch 1 und ein Mittel zur Bildung von NH<sub>3</sub> in dem Abgas umfasst.

10. Abgassystem, das den Katalysator nach Anspruch 1, einen SCR-Katalysator und einen DOC-Katalysator umfasst, wobei der SCR-Katalysator zwischen dem Katalysator nach Anspruch 1 und dem DOC-Katalysator angeordnet ist.

11. Abgassystem nach Anspruch 9, wobei das Abgassystem ein Platingruppenmetall vor einem SCR-Katalysator umfasst und die Menge des Platingruppenmetalls zur Erzeugung einer Exotherme ausreichend ist.

12. Verfahren zur Verbesserung der N<sub>2</sub>-Ausbeute aus Ammoniak in einem Abgas bei einer Temperatur von etwa 250 °C bis etwa 300 °C, wobei das Verfahren ein In-Kontakt-bringen eines Ammoniak umfassenden Abgases mit einem Katalysator nach Anspruch 1 umfasst.

13. Verfahren nach Anspruch 12, wobei die Verbesserung der Ausbeute etwa 10 % bis etwa 20 % im Vergleich zu einem Katalysator beträgt, der eine vergleichbare Formulierung umfasst, in der der erste SCR-Katalysator in Form einer ersten Schicht vorhanden ist und das Platin auf einem silicatischen Träger in einer zweiten Schicht vorhanden ist und NH<sub>3</sub> umfassendes Gas durch die erste Schicht hindurchtritt, bevor es durch die zweite Schicht hindurchtritt.

14. Verfahren zur Verringerung der N<sub>2</sub>O-Bildung aus NH<sub>3</sub> in einem Abgas, wobei das Verfahren ein In-Kontakt-bringen eines Ammoniak umfassenden Abgases mit einem Katalysator nach Anspruch 1 umfasst.

15. Verfahren nach Anspruch 14, wobei die Verringerung der N<sub>2</sub>O-Bildung etwa 20 % bis etwa 40 % im Vergleich zu einem Katalysator beträgt, der eine vergleichbare Formulierung umfasst, in der der erste SCR-Katalysator in Form einer ersten Schicht vorhanden ist und das Platin auf einem silicatischen Träger

ger in einer zweiten Schicht vorhanden ist und NH<sub>3</sub> umfassendes Gas durch die erste Schicht hindurchtritt, bevor es durch die zweite Schicht hindurchtritt.

Es folgt eine Seite Zeichnungen

**Anhängende Zeichnungen**

Fig. 1

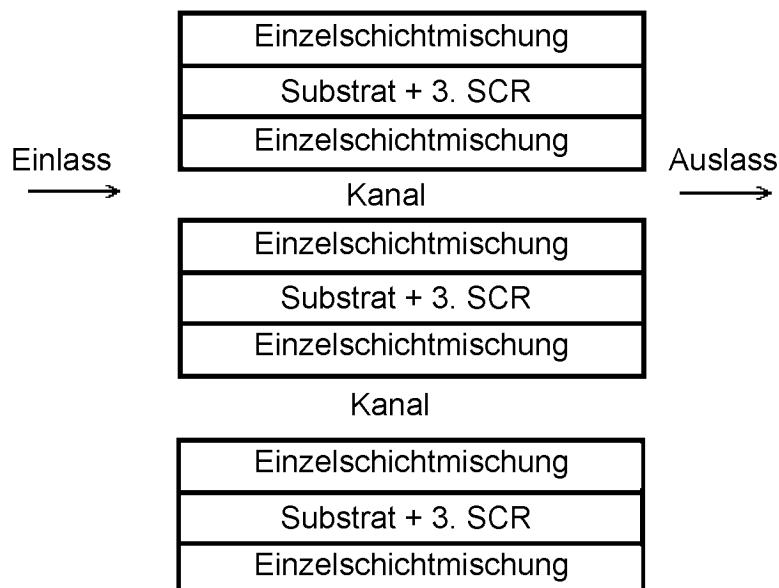
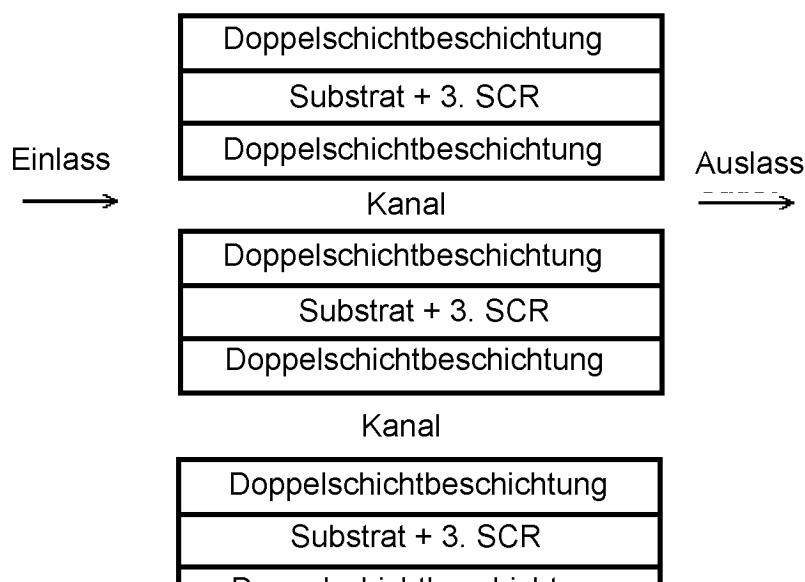


Fig. 2



wobei

$$\text{Doppelschichtbeschichtung} = \begin{array}{|c|}\hline 2. \text{ SCR} \\ \hline \text{Pt auf Träger} + 1. \text{ SCR} \\ \hline \end{array}$$

und Pt auf Träger = Platin auf Träger mit geringer Ammoniakspeicherung