



(10) **DE 10 2010 056 223 A1** 2011.07.28

(12) **Offenlegungsschrift**

(21) Aktenzeichen: **10 2010 056 223.8**

(22) Anmeldetag: **24.12.2010**

(43) Offenlegungstag: **28.07.2011**

(51) Int Cl.: **F01N 3/02 (2006.01)**

(30) Unionspriorität:

<b>0922612.7</b>	<b>24.12.2009</b>	<b>GB</b>
<b>1003244.9</b>	<b>26.02.2010</b>	<b>GB</b>
<b>1014027.5</b>	<b>23.08.2010</b>	<b>GB</b>

(74) Vertreter:

**Kroher, Strobel Rechts- und Patentanwälte,  
80336, München, DE**

(71) Anmelder:

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

(72) Erfinder:

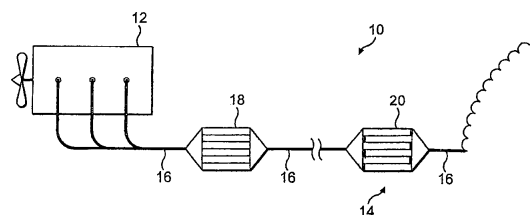
**Arnold, Louise Clare, Hertfordshire, GB; Brisley,  
Robert James, Cambridgeshire, GB; Collins,  
Neil Robert, Hertfordshire, GB; Greenwell,  
David Robert, Cambridgeshire, GB; Morgan,  
Christopher Gough, Hertfordshire, GB**

Prüfungsantrag gemäß § 44 PatG ist gestellt.

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

(54) Bezeichnung: **Abgassystem für einen Fahrzeugverbrennungsmotor mit Fremdzündung**

(57) Zusammenfassung: Ein Abgassystem 10 für einen Fahrzeugverbrennungsmotor mit Fremdzündung 12 umfasst ein Filter zum Filtern von Feinstaub aus einem von dem Motor emittierten Abgas, wobei das Filter ein poröses Substrat umfasst, das Einlassoberflächen und Auslassoberflächen aufweist, wobei die Einlassoberflächen von den Auslassoberflächen durch eine poröse Struktur getrennt sind, die Poren einer ersten mittleren Porengröße enthält, wobei das poröse Substrat mit einem Drei-Wege-Katalysator-Washcoat beschichtet ist, der eine Vielzahl von festen Teilchen umfasst, wobei die poröse Struktur des washcoatbeschichteten porösen Substrats Poren einer zweiten mittleren Porengröße enthält und wobei die zweite mittlere Porengröße kleiner als die erste mittlere Porengröße ist und ein Drei-Wege-Katalysator-Washcoat auf einem separaten Substratmonolith 18 angeordnet ist, der stromauf des Filters angeordnet ist, wobei die Masse des Drei-Wege-Katalysator-Washcoats auf dem stromaufseitigen Substratmonolith  $\leq 75\%$  der Gesamtmasse des Drei-Wege-Katalysator-Washcoats in dem Abgassystem ist.



## Beschreibung

**[0001]** Die vorliegende Erfindung bezieht sich auf ein Abgassystem zur Behandlung von Feinstaub (PM) in Abgasen eines Fahrzeugverbrennungsmotors mit Fremdzündung, insbesondere für einen stöchiometrisch betriebenen Verbrennungsmotor mit Fremdzündung, das jedoch auch für einen mager verbrennenden Verbrennungsmotor mit Fremdzündung geeignet ist, wobei das System ein Filter zur Verwendung bei der Behandlung von Feinstaub umfasst. Verbrennungsmotoren mit Fremdzündung bewirken eine Verbrennung eines Kohlenwasserstoff- und Luftgemisches durch Verwendung von Funkenzündung. Demgegenüber bewirken Verbrennungsmotoren mit Selbstzündung eine Verbrennung von Kohlenwasserstoff durch Injektion des Kohlenwasserstoffs in komprimierte Luft. Verbrennungsmotoren mit Fremdzündung können mit Benzinkraftstoff, Benzinkraftstoff im Gemisch mit Sauerstoffverbindungen einschließlich Methanol und/oder Ethanol, verflüssigtem Erdölgas oder komprimiertem Erdgas betankt werden.

**[0002]** Ein Drei-Wege-Katalysator (TWC) enthält typischerweise ein oder mehrere Platingruppenmetalle, insbesondere solche, die ausgewählt sind aus der Gruppe die aus Platin, Palladium und Rhodium besteht.

**[0003]** TWCs sind vorgesehen, um drei simultane Reaktionen zu katalysieren: (i) Oxidation von Kohlenstoffmonoxid zu Kohlendioxid, (ii) Oxidation von unverbrannten Kohlenwasserstoffen zu Kohlendioxid und Wasser, und (iii) Reduktion von Stickstoffoxiden zu Stickstoff und Sauerstoff. Sie sind nicht ausgebildet, um  $\text{NO}_x$  aus einem mageren Abgas zu adsorbieren. Die Reaktionen (i) bis einschließlich (iii) laufen am effizientesten ab, wenn der TWC Abgas von einem Motor erhält, der am oder um den stöchiometrischen Punkt läuft. Wie aus dem Stand der Technik bekannt, wird die Menge an Kohlenstoffmonoxid (CO), unverbrannten Kohlenwasserstoffen (HC) und Stickstoffoxiden ( $\text{NO}_x$ ), die emittiert werden, wenn Benzin in einem fremdgezündeten (z. B. funkengezündeten) Verbrennungsmotor verbrannt wird, vorwiegend durch das Luft/Kraftstoffverhältnis in dem Verbrennungszylinder beeinflusst. Ein Abgas, das eine stöchiometrisch ausgeglichene Zusammensetzung hat, ist eines, in dem die Konzentrationen der oxidierenden Gase ( $\text{NO}_x$  und  $\text{O}_2$ ) und der reduzierenden Gase (HC und CO) im Wesentlichen ausgeglichen sind. Das Luft/Kraftstoffverhältnis, das diese stöchiometrisch ausgeglichene Abgaszusammensetzung produziert, ist typischerweise mit 14,7:1 gegeben.

**[0004]** Theoretisch sollte es möglich sein, eine komplette Umwandlung von  $\text{O}_2$ ,  $\text{NO}_x$ , CO und HC in einer stöchiometrisch ausgeglichenen Abgaszusammensetzung zu  $\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{N}_2$  (sowie einem Rest  $\text{O}_2$ ) zu erreichen, und dies ist die Aufgabe des TWC. Idealerweise sollte der Motor auf eine solche Weise betrieben werden, dass das Luft/Kraftstoffverhältnis der Verbrennungsmischung die stöchiometrisch ausgeglichene Abgaszusammensetzung liefert.

**[0005]** Eine Möglichkeit ein Zusammensetzungsgleichgewicht zwischen den oxidierenden Gasen und den reduzierenden Gasen des Abgases zu definieren, ist der Lambda ( $\lambda$ )-Wert des Abgases, der gemäß Gleichung (1) wie folgt definiert werden kann:

Tatsächliches Luft/Kraftstoffverhältnis im Motor/stöchiometrisches Luft/Kraftstoffverhältnis im Motor (1), wobei ein Lambda-Wert von 1 eine stöchiometrisch ausgeglichene (oder stöchiometrische) Abgaszusammensetzung darstellt, wobei ein Lambda-Wert von  $> 1$  einen Überschuss von  $\text{O}_2$  und  $\text{NO}_x$  darstellt und die Zusammensetzung als "mager" beschrieben wird und wobei ein Lambda-Wert von  $< 1$  einen Überschuss von HC und CO darstellt und die Zusammensetzung als fett beschrieben wird. Es ist auch auf dem einschlägigen Fachgebiet üblich, das Luft/Kraftstoffverhältnis, bei dem der Motor betrieben wird, abhängig von der Abgaszusammensetzung, welche das Luft/Kraftstoffverhältnis erzeugt, als "stöchiometrisch", "mager" oder "fett" zu bezeichnen: somit stöchiometrisch betriebener Benzinmotor oder mager verbrennender Benzinmotor.

**[0006]** Es sollte anerkannt werden, dass die Reduktion von  $\text{NO}_x$  zu  $\text{N}_2$  unter Verwendung eines TWC weniger effizient ist, wenn die Abgaszusammensetzung mager hinsichtlich des stöchiometrischen Werts ist. Gleichermaßen ist der TWC weniger in der Lage CO und HC zu oxidieren, wenn die Abgaszusammensetzung fett ist. Die Herausforderung ist daher, die Zusammensetzung des Abgases, das in den TWC fließt, so dicht wie möglich an der stöchiometrischen Zusammensetzung zu halten.

**[0007]** Selbstverständlich ist es relativ einfach sicherzustellen, dass das Luft/Kraftstoffverhältnis stöchiometrisch ist, wenn der Motor in einem stationären Zustand ist. Wenn jedoch der Motor verwendet wird, um ein Fahrzeug anzutreiben, ändert sich die Menge des Kraftstoffs, die benötigt wird, vorübergehend in Abhängigkeit von der Lastanforderung, die von dem Fahrer an den Motor gestellt wird. Dies macht die Steuerung des Luft/Kraftstoffverhältnisses, so dass ein stöchiometrisches Abgas erzeugt wird, bei einer Dreiwege-Umwandlung besonders schwierig. In der Praxis wird das Luft/Kraftstoffverhältnis durch eine Motorkontrolleinheit gesteuert, die Informationen über die Abgaszusammensetzung von einem Abgas-Sauerstoff (EGO) (oder Lambda)

-Sensor, einem so genannten geschlossenen rückgekoppelten Regelsystem, empfängt. Ein Merkmal eines solchen Systems ist, dass das Luft/Kraftstoffverhältnis zwischen leicht fett hinsichtlich des stöchiometrischen (oder Kontroll Soll-) Wertes und leicht mager oszilliert (oder perturbiert), da eine Zeitverschiebung in Verbindung mit dem Einstellen des Luft/Kraftstoffverhältnisses vorliegt. Diese Perturbation ist durch die Amplitude des Luft/Kraftstoffverhältnisses und die Ansprechfrequenz (Hz) gekennzeichnet.

**[0008]** Die aktiven Komponenten in einem typischen TWC umfassen Platin und/oder Palladium in Kombination mit Rhodium, oder auch nur Palladium (kein Rhodium), die auf ein Oxid mit hoher spezifischer Oberfläche aufgetragen sind, und eine sauerstoffspeichernde Komponente.

**[0009]** Wenn die Abgaszusammensetzung leicht fett hinsichtlich des Sollwerts ist, wird eine kleine Menge Sauerstoff benötigt, um das nicht umgesetzte CO und HC zu verbrauchen, d. h. um die Reaktion mehr stöchiometrisch zu machen. Umgekehrt, wenn das Abgas leicht mager wird, ist es erforderlich, dass der Sauerstoffüberschuss verbraucht wird. Dies wurde durch die Entwicklung einer Sauerstoffspeicherkomponente erreicht, die Sauerstoff während der Perturbationen freisetzt oder absorbiert. Die am häufigsten verwendete Sauerstoffspeicherkomponente (OSC) in modernen TWCs ist Ceroxid ( $\text{CeO}_2$ ) oder ein Mischoxid, das Cerium enthält z. B. ein Ce/Zr-Mischoxid.

**[0010]** Umgebungsfeinstaub wird von den meisten Autoren in die folgenden Kategorien eingeteilt, die auf dem aerodynamischen Durchmessern desselben basieren (der aerodynamische Durchmesser ist als der Durchmesser einer Kugel mit einer Dichte von  $1 \text{ g/cm}^3$  mit der gleichen Absetzgeschwindigkeit in der Luft wie der des gemessenen Teilchens definiert):

- (i) PM-10-Teilchen mit einem aerodynamischen Durchmesser von weniger als  $10 \mu\text{m}$ ;
- (ii) Feine Teilchen mit einem Durchmesser unter  $2,5 \mu\text{m}$  (PM-2,5);
- (iii) Ultrafeine Teilchen mit einem Durchmesser unter  $0,1 \mu\text{m}$  (oder  $100 \text{ nm}$ ); und
- (iv) Nanoteilchen, gekennzeichnet durch einen Durchmesser von weniger als  $50 \text{ nm}$ .

**[0011]** Seit Mitte der 90er Jahre haben Teilchengrößenverteilungen von Teilchen, die von Verbrennungsmotoren ausgestoßen werden, aufgrund möglicher gesundheitsschädigender Wirkungen von feinen und ultrafeinen Teilchen zunehmend Aufmerksamkeit erhalten. Die Konzentrationen von PM-10-Teilchen in der Umgebungsluft werden in den USA durch Gesetze geregelt. Ein neuer zusätzlicher Umgebungsluft-Qualitätsstandard für PM-2,5 wurde 1997 in den USA als Ergebnis von Gesundheitsstudien eingeführt, die einen starken Zusammenhang zwischen humaner Sterblichkeit und der Konzentration von feinen Teilchen unter  $2,5 \mu\text{m}$  zeigten.

**[0012]** Das Interesse hat sich nun in Richtung der Nanoteilchen verschoben, die durch Diesel- und Benzinmotoren erzeugt werden, da davon ausgegangen wird, dass sie tiefer in die menschliche Lunge eindringen als Teilchen einer größeren Größe, wobei folglich aufgrund einer Extrapolation der Ergebnisse von Studien über Teilchen in dem Bereich von  $2,5\text{--}10 \mu\text{m}$  vermutet wird, dass sie gesundheitsgefährdender als größere Teilchen sind.

**[0013]** Größenverteilungen von Dieselpartikeln haben einen gut ermittelten bimodalen Charakter, der den Teilchenkernbildungs- und Teilchenagglomerationsmechanismen entspricht, wobei die entsprechenden Teilchentypen als Kernmodus bzw. Akkumulationsmodus bezeichnet werden (siehe [Fig. 1](#)). Wie in der [Fig. 1](#) zu sehen ist, besteht Diesel-PM im Kernmodus aus zahlreichen kleinen Teilchen mit einer sehr geringen Masse. Nahezu alle Dieselpartikelchen haben Größen von bedeutend weniger als  $1 \mu\text{m}$ , d. h. sie umfassen eine Mischung von feinen, ultrafeinen und Nanoteilchen, d. h. sie fallen unter das 1997er US-Gesetz.

**[0014]** Es wird angenommen, dass Kernmodusteilchen hauptsächlich aus flüchtigen Kondensaten (Kohlenwasserstoffen, Schwefelsäure, Salpetersäure usw.) bestehen und wenig festes Material wie Asche und Kohlenstoff enthalten. Akkumulationsmodusteilchen sollen Feststoffe (Kohlenstoff, Metallasche usw.) im Gemisch mit Kondensaten und adsorbiertem Material (schwere Kohlenwasserstoffe, Schwefelspezies, Stickoxidderivate usw.) umfassen. Es wird nicht davon ausgegangen, dass Grobmodusteilchen während des Dieselverbrennungsprozesses erzeugt werden und durch Mechanismen, wie zum Beispiel Ablagerung und anschließendes Wiedermitreißen von Teilchenmaterial von den Wänden eines Motorzylinders, Abgassystems oder des Teilchensammelsystems gebildet werden können. Die Beziehung zwischen diesen Modi ist in [Fig. 1](#) dargestellt.

**[0015]** Die Zusammensetzung von Kernteilchen kann sich mit Motorbetriebsbedingungen, Umweltbedingungen (insbesondere Temperatur und Luftfeuchtigkeit), Verdünnungs- und Probenahmesystembedingungen ändern. Laborarbeit und Theorie haben gezeigt, dass der Großteil der Kernmodus-Bildung und des Kernmodus-Wachstums in einem niedrigen Verdünnungsverhältnisbereich auftritt. In diesem Bereich führt die Gas-

zu-Teilchen-Umwandlung von flüchtigen Teilchen-Vorläufern, wie schweren Kohlenwasserstoffen und Schwefelsäure, zu einer gleichzeitigen Kernbildung und einem Wachstum des Kernmodus und einer Adsorption an existierende Teilchen im Akkumulationsmodus. Labortests (siehe z. B. SAE 980525 und SAE 2001-01-0201) haben gezeigt, dass eine Kernmodus-Bildung stark zunimmt, wenn die Luftverdünnungstemperatur abnimmt, jedoch gibt es widersprüchliche Hinweise, ob die Luftfeuchtigkeit einen Einfluss hat.

**[0016]** Generell begünstigen eine geringe Temperatur, niedrige Verdünnungsverhältnisse, hohe Luftfeuchtigkeit und lange Verweilzeiten eine Nanoteilchen-Bildung und ein Nanoteilchen-Wachstum. Studien haben gezeigt, dass Nanoteilchen hauptsächlich aus flüchtigem Material bestehen, wie schweren Kohlenwasserstoffen und Schwefelsäure, bestehen, wobei eine feste Fraktion nur bei sehr hohen Belastungen nachgewiesen wird.

**[0017]** Dagegen zeigen die Größenverteilungen von Benzinteilchen beim Austritt aus dem Motor bei Betrieb in einem stationären Zustand eine unimodale Verteilung mit einem Peak bei ungefähr 60–80 nm (siehe z. B. [Fig. 4](#) bei SAE 199-01-3530). Im Vergleich mit einer Dieselgrößenverteilung ist Benzin-PM vorwiegend ultrafein mit unerheblichem Akkumulations- und Grobmodus.

**[0018]** Eine Teilchenansammlung von Dieselpartikeln in einem Dieselpartikelfilter basiert auf dem Prinzip des Abtrennens von gasgetragenen Teilchen aus der Gasphase durch Verwendung einer porösen Barriere. Dieselfilter können definiert werden als Tiefenfilter und/oder Oberflächenfilter. In Tiefenfiltern ist die mittlere Porengröße des Filtermediums größer als der mittlere Durchmesser der gesammelten Teilchen. Die Teilchen werden durch eine Kombination von Tiefenfiltrationsmechanismen einschließlich Diffusionsablagerung (Brownsche Molekularbewegung), Trägheitsablagerung (Aufprall) und Strömungslinienabfängen (Brownsche Molekularbewegung oder Trägheit) auf dem Medium abgeschieden.

**[0019]** Bei Oberflächenfiltern ist der Porendurchmesser des Filtermediums geringer als der Durchmesser des PM, so dass PM durch Sieben abgetrennt wird. Das Abtrennen erfolgt durch eine Anhäufung von gesammeltem Diesel-PM an sich, wobei die Anhäufung im Allgemeinen als "Filterkuchen" und das Verfahren als "Kuchenfiltration" bezeichnet werden.

**[0020]** Es ist selbstverständlich, dass Dieselpartikelfilter, wie zum Beispiel keramische Wandstrommonolithen, durch eine Kombination von Tiefenfiltration und Oberflächenfiltration arbeiten können: ein Filterkuchen entwickelt sich bei höheren Rußbelastungen, wenn die Tiefenfiltrationskapazität gesättigt ist und eine teilchenförmige Schicht beginnt, die Filtrationsoberfläche zu bedecken. Die Tiefenfiltration ist durch eine etwas geringere Filtrationseffizienz und einen geringeren Druckabfall als bei der Kuchenfiltration gekennzeichnet.

**[0021]** WO 03/011437 A offenbart einen Benzinmotor mit einem Abgassystem, das Mittel zum Einfangen von PM aus dem Abgas, sowie einem Katalysator zum Katalysieren der Oxidation von PM durch Kohlendioxid und/oder Wasser in dem Abgas umfasst, wobei der Katalysator ein geträgertes Alkalimetall umfasst. Das Mittel zum Einfangen des PM ist geeignet zum Einfangen von PM mit einem Teilchenbereich von 10–100 nm und kann ein Wandstromfilter aus keramischem Material mit geeigneter Porengröße, wie zum Beispiel Cordierit, das mit dem Katalysator beschichtet ist, ein Metalloxidschaum, der den Katalysator trägt, ein Drahtgitter, ein Diesel-Wandstromfilter, das für Dieselanwendungen ausgestaltet ist, eine elektrophoretische Falle oder eine thermophoretische Falle (siehe z. B. GB 2350804 A) sein.

**[0022]** WO 2008/136232 A1 offenbart ein Dieselpartikelfilter mit einem Wabenfilter, das eine Zellwand, die aus porösem Zellwandbasismaterial besteht und eine Oberflächenschicht hat, die nur an der Einströmseite oder an der Einström- und Ausströmseite angeordnet ist und die die folgenden Anforderungen (1) bis (5) erfüllt: (1) der Peakporendurchmesser der Oberflächenschicht ist identisch mit oder kleiner als der mittlere Porendurchmesser des Zellwandbasismaterials und die Porosität der Oberflächenschicht ist größer als die des Zellwandbasismaterials; (2) bezüglich der Oberflächenschicht beträgt der Peakdurchmesser 0,3 bis weniger als 20 µm und die Porosität 60 bis weniger als 95% (gemessen mit der Quecksilber-Penetrationsmethode); (3) die Dicke (L1) der Oberflächenschicht beträgt 0,5 bis weniger als 30% der Dicke (L2) der Zellwand; (4) die Masse der Oberflächenschicht pro Filtrationsbereich beträgt 0,01 bis weniger als 6 mg/cm<sup>2</sup>; und (5) bezüglich des Zellwandbasismaterials beträgt der mittlere Porendurchmesser 10 bis weniger als 60 µm und die Porosität 40 bis weniger als 65% (siehe auch SAE-Papier Nr.: 2009-01-0292).

**[0023]** Andere im Stand der Technik vorgeschlagene Techniken zum Abtrennen von Benzin-PM aus der Gasphase umfassen eine Wirbelrückgewinnung.

**[0024]** Die Emmissionsgesetzgebung in Europa vom 1. September 2014 (Euro 6) erfordert eine Kontrolle der Teilchenanzahl, die sowohl von Diesel- als auch von Benzin(fremdgezündet)-Passagierfahrzeugen emittiert werden. Für Benzin-EU-Leichtlastfahrzeuge sind die erlaubten Grenzen die folgenden: 1000 mg/km Kohlenmonoxid; 60 mg/km Stickoxide (NO<sub>x</sub>); 100 mg/km gesamte Kohlenwasserstoffe (von denen ≤ 68 mg/km Nichtmethankohlenwasserstoffe sind); und 4,5 mg/km Feinstaub ((PM) nur für Direkteinspritzmotoren). Obwohl die Behörden den PM-Anzahlstandard für Euro 6 noch nicht festgesetzt haben, wird weithin davon ausgegangen, dass er auf  $6,0 \times 10^{11}$  pro km festgesetzt wird. Die gegenwärtige Spezifikation basiert auf der Annahme, dass diese Zahl zu gegebener Zeit angenommen wird.

**[0025]** In den Vereinigten Staaten wurden keine ähnlichen Emissionsstandards festgesetzt. Jedoch hat das Air Resources Board des Staates von Kalifornien (CARS) kürzlich ein Papier veröffentlicht mit dem Titel "Preliminary Discussion Paper – Amendments to California's Low-Emission Vehicle (LEV) Regulations for Criteria Pollutants – LEV III" (Vorläufiges Diskussionspapier – Änderungen zu den kalifornischen Niedrig-Emissions-Fahrzeug(LEV)-Regelungen für kritische Schadstoffe – LEV III) (Freigabedatum: 8. Februar 2010), in dem ein neuer PM-Standard von zwischen 2 und 4 mg PM/Meile (1,25–2,5 mg PM/km (derzeit 10 mg PM/Meile (6,25 mg PM/km))) vorgeschlagen ist. Das Papier kommentiert das wie folgt: "Mitarbeiter haben Eingaben von einer Reihe von Herstellern erhalten, die vorschlagen, dass ein Standard von 3 mg PM/Meile (1,88 mg PM/km) von Benzin-Direkteinspritzmotoren erfüllt werden kann, ohne dass die Verwendung von Teilchenfiltern erforderlich ist." Zusätzlich führt das Papier an, da es scheinbar eine Korrelation zwischen der emittierten PM-Masse und und der emittierten PM-Anzahl gibt: "Obwohl ein zwingender Anzahlstandard derzeit nicht in Betracht gezogen wird, wird ein optionaler PM-Anzahlstandard von ungefähr  $10^{12}$  Teilchen/Meile ( $6,25^{11}$  Teilchen/km) in Betracht gezogen (der durch die Hersteller anstelle des PM-Massenstandards gewählt werden kann)". Da jedoch, da weder der PM-Standard noch der PM-Anzahlstandard bis jetzt durch das CARB festgesetzt worden ist, ist es zu früh, um zu sagen, ob eine Teilchenfiltration für den kalifornischen Fahrzeugmarkt oder den US-Fahrzeugmarkt im Allgemeinen erforderlich ist. Trotzdem ist es möglich, dass bestimmte Fahrzeughersteller Filter wählen werden, um einen Sicherheitsspielraum bei beliebigen Entwicklungsoptionen bei fremdgezündeten Verbrennungsmotoren bieten zu können, die so gewählt sind, dass sie jedweden Standard, der letztendlich festgesetzt wird, erfüllen.

**[0026]** Der neue EURO 6-Emissionsstandard stellt eine Anzahl von herausfordernden Entwicklungsproblemen dar, um die Benzin-Emissionsstandards zu erfüllen. Vor allem, wie ein Filter oder ein Abgassystem mit einem Filter entwickelt werden kann, das die Anzahl der PM-Benzin (Fremdgezündung)-Emissionen reduziert und noch dazu gleichzeitig die Emissionsstandards für Nicht-PM-Schadstoffe, wie z. B. ein oder mehrere Stickstoffoxide (NO<sub>x</sub>), Kohlenmonoxid (CO) und unverbrannten Kohlenwasserstoff (HCI), alle bei einem akzeptablen Gegendruck, beispielsweise gemäß Messung des maximalen Gegendrucks im Zyklus bei dem EU-Fahrzyklus, erfüllt.

**[0027]** Es ist angedacht, dass das Minimum der Teilchenreduktion für einen Drei-Wege-katalysierten Teilchenfilter, um den Euro 6 PM-Anzahlstandard zu erfüllen, in Relation zu einem äquivalenten Durchflusskatalysator  $\geq 50\%$  ist. Zusätzlich sollte gemäß unseren Erfahrungen der Peakgegendruck über den MVEG-B-Fahrzyklus (Mittelwert über drei Tests von "frisch") für die Mehrzahl von Passagierfahrzeugen auf  $< 200$  mbar, wie  $< 180$  mbar,  $< 150$  mbar und vorzugsweise  $< 120$  mbar, z. B.  $< 100$  mbar begrenzt sein, da eine gewisse Erhöhung des Gegendrucks für einen Drei-Wege-katalysierten Wandstromfilter in Relation zu einem äquivalenten Durchflusskatalysator unvermeidlich ist.

**[0028]** Wie bereits erwähnt, weist PM, erzeugt durch fremdgezündete Verbrennungsmotoren, einen signifikant höheren Anteil an ultrafeinen Teilchen, bei vernachlässigbarem Akkumulations- und Grobmodus auf, verglichen mit dem durch Diesel(selbstgezündete)-Motoren erzeugten PM und dies stellt Herausforderungen dar, PM aus Abgas von fremdgezündeten Verbrennungsmotoren zu entfernen, um seine Emission in die Atmosphäre zu verhindern. Da insbesondere ein Großteil des PM aus einem Verbrennungsmotor mit Fremdzündung relativ klein ist im Vergleich zu der Größenverteilung für Diesel-PM, ist es praktisch nicht möglich, ein Filtersubstrat zu verwenden, das eine oberflächenartige Kuchenfiltration von PM aus fremdgezündeten Motoren fördert, da die relativ kleine mittlere Porengröße des Filtersubstrats, die erforderlich wäre, einen unpraktisch hohen Gegendruck im System erzeugen würde.

**[0029]** Weiterhin ist es generell nicht möglich, ein konventionelles Wandstromfilter, das für das Einfangen von Dieselfeinstaub entwickelt wurde, zum Fördern einer Oberflächenfiltration von PM aus einem fremdgezündeten Verbrennungsmotor zu verwenden, um die relevanten Emissionsstandards zu erfüllen, da generell weniger Feinstaub in fremdgezündeten Verbrennungsmotoren ist, so dass eine Bildung eines Rußkuchens weniger wahrscheinlich ist. Ferner sind die Temperaturen von Abgasen fremdgezündeter Verbrennungsmotoren gene-

rell höher, was zu einer schnelleren Entfernung von PM durch Oxidation führen kann, wodurch eine erhöhte PM-Entfernung durch Kuchenfiltration verhindert wird. Eine Tiefenfiltration von fremdgezündetem PM in einem konventionellen Diesel-Wandstromfilter ist auch schwierig, da der PM signifikant kleiner ist als die Porengröße des Filtermediums. Somit wird bei Normalbetrieb ein unbeschichtetes konventionelles Dieselwandstromfilter eine geringere Filtrationseffizienz haben, wenn es bei einem fremdgezündeten Verbrennungsmotor statt bei einem selbstzündenden Verbrennungsmotor verwendet wird.

**[0030]** Eine weitere Schwierigkeit ist das Kombinieren von Filtrationseffizienz mit einer Washcoat-Beladung, z. B. eines Katalysators zum Erfüllen von Emissionsstandards für Nicht-PM-Schadstoffe, bei akzeptablem Gegendruck. Dieselwandstrompartikelfilter in kommerziell verfügbaren Fahrzeugen haben derzeit eine mittlere Porengröße von ungefähr 13  $\mu\text{m}$ . Allerdings haben wir festgestellt, dass das Beschichten eines Filters dieses Typs mit einem Washcoat bei einer ausreichenden Katalysatorbeladung, wie sie zum Beispiel in US 2006/01333969 beschreiben ist, um die geforderten Benzin(Fremdzündung)-Emissionsstandards zu erreichen, zu einen inakzeptablen Gegendruck führen kann.

**[0031]** Es ist möglich, die Länge des Substrats zu reduzieren, um den Filteregendruck zu reduzieren. Allerdings gibt es ein endliches Niveau, unter dem der Gegendruck ansteigt, wenn die Filterlänge reduziert wird. Geeignete Filterlängen für Filter gemäß der vorliegenden Erfindung sind von 2–12 Zoll lang; vorzugsweise 3–6 Zoll lang. Querschnitte können rund sein. Bei unserer Entwicklungsarbeit haben wir Filter mit einem Durchmesser von 4,66 und 5,66 Zoll verwendet. Jedoch kann der Querschnitt auch durch den Raum im Fahrzeug vorgegeben sein, in den das Filter passen soll. Für Filter, die in der sogenannten direkt gekoppelten Position, z. B. innerhalb von 50 cm von dem Motorabgaskrümmen entfernt, angeordnet sind, wo der Raum begrenzt ist, können elliptische oder ovale Filterquerschnitte in Erwägung gezogen werden. Wie man annehmen würde, nimmt der Gegendruck auch mit der Washcoat-Beladung und Ruß-Beladung zu.

**[0032]** Es hat eine Anzahl von jüngsten Bemühungen zur Kombination von TWCs mit Filtern gegeben, um die Euro 6 Emissionsstandards zu erfüllen.

**[0033]** US 2009/0193796 offenbart ein Emissions-Behandlungssystem stromabwärts von einem Benzin-Direkteinspritzmotor zur Behandlung eines Abgases, das Kohlenwasserstoffe, Kohlenmonoxid, Stickstoffoxide und Teilchen umfasst, wobei das Emissions-Behandlungssystem einen katalytischen Teilchenabscheider umfasst, der einen Drei-Wege-Umwandlungs(TWC)-Katalysator umfasst, der auf den oder in einem Teilchenabscheider aufgetragen ist. Die allgemeine Beschreibung besagt, dass ein TWC-beschichteter Teilchenabscheider stromabwärts von einem ersten TWC-Katalysator angeordnet sein kann, wobei der erste TWC-Katalysator aufgrund der für den Teilchenabscheider aufgetragenen TWC-Funktionalität kleiner sein kann als es sonst erforderlich ist. Kein konkretes Beispiel eines Abgassystems ist angegeben, das sowohl einen ersten TWC als auch einen stromabwärts gelegenen TWC-beschichteten Teilchenabscheider umfasst.

**[0034]** WO 2009/043390 offenbart ein katalytisch aktives Teilchenfilter, das ein Filterelement und eine aus zwei Schichten bestehende katalytisch aktive Beschichtung umfasst. Die erste Schicht ist in Kontakt mit dem einströmenden Abgas, während die zweite Schicht in Kontakt mit dem ausströmenden Abgas ist. Beide Schichten enthalten Aluminiumoxid. Die erste Schicht enthält Palladium, die zweite Schicht enthält ein sauerstoffspeicherndes Cer/Zirkonium-Mischoxid zusätzlich zu Rhodium. In Beispielen ist ein Wandstromfiltersubstrat mit einer nicht spezifizierten mittleren Porengröße mit einer ersten Schicht bei einer Beladung von ungefähr 31 g/l und einer zweiten Schicht bei einer Beladung von ungefähr 30 g/l beschichtet. Das heißt, die Washcoat-Beladung beträgt rund  $1,00 \text{ gin}^{-3}$ . Für eine Mehrheit von Fahrzeuganwendungen ist es unwahrscheinlich, dass dieses beschichtete Filter fähig ist, die geforderten Emissionsstandards allein zu erfüllen. Die Beschreibung offenbart auch ein Emissionskontrollsystem für die Reinigung von Abgasen eines Verbrennungsmotors, der mit einem vorwiegend stöchiometrischen Luft/Kraftstoffgemisch betrieben wird, enthaltend einen katalytisch aktiven Teilchenfilter gemäß der Offenbarung. Es gibt keine Lehre oder Vorschlag in der WO'390, dass das Emissionskontrollsystem in Verbindung mit einem separaten TWC, der auf einem Durchflusssubstratmonolith angeordnet ist und stromauf des katalytisch aktiven Teilchenfilters angesiedelt ist, verwendet werden kann.

**[0035]** Unsere GB 2468210 offenbart ein Filter zum Filtern von Feinstaub (PM) aus Abgas, ausgestoßen von einem fremdgezündeten Verbrennungsmotor, wobei das Filter ein poröses Substrat mit Einlassoberflächen und Auslassoberflächen umfasst, wobei die Einlassoberflächen von den Auslassoberflächen durch eine poröse Struktur getrennt sind, die Poren mit einer ersten mittleren Porengröße enthalten, wobei das poröse Substrat mit einem Washcoat beschichtet ist, der eine Vielzahl von festen Teilchen umfasst, wobei die poröse Struktur des washcoatbeschichteten porösen Substrats Poren einer zweiten mittleren Porengröße enthält und wobei die

zweite mittlere Porengröße kleiner als die erste mittlere Porengröße ist. In Ausführungsformen ist der Washcoat katalysiert und in einer besonderen Ausführungsform ist der Katalysator ein TWC.

**[0036]** Eine praktische Schwierigkeit mit Filtern zur Filterung von Feinstaub aus fremdgezündeten Verbrennungsmotoren besteht darin, dass der Raum in einem Passagierfahrzeug limitiert sein kann und das Filter in einer kühleren so genannten "Unterboden"-Anordnung in geschlungener Form unter dem Fahrzeugunterkörper angeordnet sein müsste. Oftmals gibt es nicht ausreichend Raum in einem Fahrzeug, um ein Filter an einem wärmeren Ort etwas näher an dem Motorkrümmen (die sogenannte direkt gekoppelte Anordnung) anzuordnen, und auf jeden Fall kann die relativ hohe thermische Masse des Filters verhindern, dass der Katalysator ausreichend rasch nach einem Kaltstart des Motors anspringt. Dies ist wichtig, da die Gesetzgebung Fahrzeugemissionen über einen definierten Fahrzyklus bestimmt. Die meisten Schadstoffemissionen eines Fahrzeugs mit fremdgezündetem Verbrennungsmotor entstehen bei dem Testzyklus in den ersten zehn Sekunden nach dem Kaltstart. Ist ein TWC nicht schnell genug nach einem Kaltstart aktiv, kann dies den Unterschied zwischen Bestehen und Durchfallen bei dem relevanten Emissionsstandard über einen Fahrzyklus als Ganzes bedeuten.

**[0037]** Anspringen kann definiert werden als die Temperatur, bei der ein Katalysator eine Reaktion mit einer gewünschten Umwandlungsaktivität katalysiert. Zum Beispiel ist „CO T<sub>50</sub>“ eine Temperatur, bei der ein bestimmter Katalysator die Umwandlung von Kohlenmonoxid in einem Zufuhrgas mit einer Effizienz von mindestens 50% beispielsweise in CO<sub>2</sub> bewirkt. In ähnlicher Weise ist „HC T<sub>80</sub>“ die Temperatur, bei der Kohlenwasserstoff, zum Beispiel ein bestimmter Kohlenwasserstoff wie Oktan oder Propen, mit einer Effizienz von 80% oder mehr z. B. in Wasserdampf und CO<sub>2</sub> umgewandelt wird.

**[0038]** In der Praxis enthalten daher Abgassysteme für Fahrzeugverbrennungsmotoren mit Fremdzündung, die derzeit auf dem Markt sind, einen TWC mit einer relativ geringen thermische Masse, der ein Durchflussmonolithsubstrat umfasst, das in einer direkt gekoppelten Position angeordnet ist.

**[0039]** Wir haben jedoch festgestellt, dass, wenn ein mit einem TWC katalysiertes Filter an einem Fahrzeugunterboden und stromab zu einem kommerziell erhältlichen direkt gekoppelten (Durchfluss-)TWC angeordnet ist, die Temperatur in dem Filter unzureichend zuverlässig ist, um Feinstaub in Testzyklen oder bei realen Fahrbedingungen zu verbrennen. Erste Hinweise lassen vermuten, dass Fremdzündungs-PM in Sauerstoff bei geringeren Temperaturen als Diesel-PM zu verbrennt. Nun haben wir jedoch festgestellt, dass Filtertemperaturen von > 500°C erforderlich sind, um Feinstaub von fremdgezündeten Verbrennungsmotoren zu verbrennen. Es ist möglich, intermittierend zusätzlichen Kohlenwasserstoff in das Abgas zu injizieren, entweder über ein Motormanagement von im Zylinder befindlichen Kraftstoffinjektoren oder direkt in das Abgas, um die Temperatur in dem Filter zu erhöhen oder um andere Mittel, wie einen elektrisch beheizten Katalysator in dem Filter zu verwenden. Jedoch sind solche Lösungen teuer, technisch kompliziert und führen letztlich zu einer Kraftstoffeinbuße für den Fahrer, d. h. zu einem erhöhten Kraftstoffverbrauch.

**[0040]** Wir haben nun sehr überraschend festgestellt, dass es möglich ist, ein Abgassystem für einen Fahrzeugverbrennungsmotor mit Fremdzündung zu entwickeln, bei dem die Filtertemperatur Temperaturen erreicht, die ausreichen, um Feinstaub passiv während wenigstens eines Teils eines gesetzgeberischen Fahrzyklus zu verbrennen oder um wenigstens die Frequenz von aktiven Interventionen zur Erhöhung der Filtertemperatur, z. B. durch Injizieren von zusätzlichem Kohlenwasserstoff, signifikant zu reduzieren.

**[0041]** Gemäß einem Aspekt liefert die Erfindung ein Abgassystem für einen Fahrzeugverbrennungsmotor mit Fremdzündung, das ein Filter zum Filtern von Feinstaub aus von dem Motor emittierten Abgas, wobei das Filter ein poröses Substrat enthält, das Einlassoberflächen und Auslassoberflächen aufweist, wobei die Einlassoberflächen von den Auslassoberflächen durch eine poröse Struktur getrennt sind, die Poren einer ersten mittleren Porengröße enthält, wobei das poröse Substrat mit einem Drei-Wege-Katalysator-Washcoat beschichtet ist, der eine Vielzahl von festen Partikeln umfasst, wobei die poröse Struktur des washcoatbeschichteten porösen Substrats Poren einer zweiten mittleren Porengröße enthält und wobei die zweite mittlere Porengröße kleiner als die erste mittlere Porengröße ist, und einen Drei-Wege-Katalysator-Washcoat, der auf einem separaten Substratmonolithen stromauf des Filters angeordnet ist, umfasst, wobei eine Masse des Drei-Wege-Katalysator-Washcoats auf dem stromaufseitigen Substratmonolithen  $\leq 75\%$  der Gesamtmasse des Drei-Wege-Katalysator-Washcoats in dem System ist.

**[0042]** Die drei Wege, auf denen die Erfindung in die Praxis umgesetzt werden kann, umfassen erstens die Verwendung eines Substratmonolithen mit einem kleineren Volumen als das, das normalerweise für einen stromaufseitigen Substratmonolithen in einem Abgassystem für einen Fahrzeugverbrennungsmotor mit Funkenzündung benutzt wird, wobei die gleiche TWC-Washcoat-Beladung verwendet wird, die normalerweise ver-



wendet wird, d. h. größer als insgesamt ungefähr  $3 \text{ g in}^{-3}$ , entweder in einer Ausgestaltung als einzelne Schicht oder als mehrere Schichten. Gegenwärtig weisen die verwendeten stromaufseitigen Substratmonolithen etwa 60–100% des Motorhubraums oder mehr auf, so dass Substratmonolithen von  $< 60\%$  des Motorhubraums, wie z. B.  $< 55\%$ ,  $50\%$  oder  $45\%$  des Motorhubraums, die mit einer Washcoat-Beladung von mehr als etwa  $3 \text{ g in}^{-3}$  beschichtet sind, anschauliche Beispiele für katalysierte stromaufseitige Substratmonolithen sind, die in der vorliegenden Erfindung Anwendung finden. Es ist ebenfalls möglich, dass der stromaufseitige Substratmonolith zwei Teile umfasst, einen stromaufseitigen Teil und einen stromabseitigen Teil, wobei jeder Teil eine unterschiedliche Washcoat-Beladung, Edelmetallbeladung und/oder Volumen aufweist. Das letztere Zwei-Teile-Konzept fällt ebenfalls unter den Umfang der vorliegenden Erfindung.

**[0043]** In einer ersten Anordnung kann die axiale Länge des stromaufseitigen Substratmonolithen kürzer sein als bei kommerziell erhältlichen direkt gekoppelten Substratmonolithen (manchmal im Stand der Technik als „Slice“ bezeichnet) in Kombination mit einer relativ hohen Washcoat-Beladung auf dem Drei-Wege-Katalysator-Filtersubstrat.

**[0044]** Zweitens kann der stromaufseitige Substratmonolith die gleiche Größe oder eine ähnliche Größe bezogen auf eine Größe des stromaufseitigen Substratmonolithen, die normalerweise in einem Abgassystem für einen Fahrzeugmotor mit Funkenzündung verwendet wird, aufweisen, d. h. etwa 60–100% des Motorhubraumes oder mehr ausmachen, jedoch ist die verwendete Washcoat-Beladung geringer als die, die in einem normalen stromaufseitigen Substratmonolithen verwendet wird, d. h. insgesamt  $< 3 \text{ g in}^{-3}$ , beispielsweise  $< 2, 75 \text{ g in}^{-3}$ ,  $< 2,5 \text{ g in}^{-3}$  oder  $< 2 \text{ g in}^{-3}$ , entweder in einer Konfiguration in Form einer einzelnen Schicht oder in Konfiguration mehrerer Schichten.

**[0045]** Drittens kann der TWC zur Verwendung in dem stromaufseitigen Substratmonolithen ein inhärent weniger aktiver Washcoat als der typischerweise in einem Abgassystem für einen Fahrzeugmotor mit Funkenzündung verwendete sein, z. B. eine geringere Gesamt-Platingruppenmetallbeladung aufweisen oder, wenn zwei oder mehr Platingruppenmetalle verwendet werden, kann das Gewichtsverhältnis des einen oder der mehreren der vorhandenen Platingruppenmetalle niedriger sein relativ zu dem einen oder den mehreren anderen vorhandenen Platingruppenmetallen und/oder die Zusammensetzung kann eine geringere sauerstoffspeichernde Aktivität, beispielsweise eine geringere Beladung an Mischoxid auf der Basis von Cer und Zirkonium aufweisen.

**[0046]** Selbstverständlich ist die Verwendung einiger Variationen von zwei oder mehr der obigen drei Optionen möglich.

**[0047]** In Ausführungsformen ist die Masse des TWC-Washcoats auf dem stromaufseitigen Substratmonolithen  $\leq 70\%$ , wie z. B.  $\leq 65\%$ ,  $\leq 60\%$  oder  $\leq 55\%$  der Gesamtmasse des TWC-Washcoats in dem System.

**[0048]** Die Erfindung basiert auf der Feststellung, dass durch Herstellung eines weniger effizienten stromaufseitigen TWC genügend Schadstoffe ( $\text{CO}$ , unverbrannte Kohlenwasserstoffe,  $\text{NO}_x$  etc.) durchschlüpfen können, um mit dem Drei-Wege-katalysierten Filter in Kontakt zu gelangen. Die katalytische Umwandlung der verbleibenden Schadstoffe auf dem Drei-Wege-katalysierten Filter erzeugen eine Wärme, die die Filtertemperatur erhöht, wodurch die Filtertemperatur ausreichend erhöht wird, so dass Feinstaub auf oder in dem Filter verbrennt. Es wird aus der vorhergehenden Diskussion deutlich, dass eine derartige Anordnung industriellen Normen in diesem technischen Gebiet intuitiv widerspricht, da ein direkt gekoppelter TWC dafür vorgesehen ist, Schadstoffe nach einem Kaltstart so schnell und effektiv wie möglich zu behandeln. Die Wirksamkeit dieses Prinzips kann durch Computermodelle veranschaulicht werden (siehe Beispiel 8).

**[0049]** Die Erfindung kann auch funktionell definiert werden, wie durch Definieren des stromaufseitigen Substratmonolithen dahingehend, dass er so ausgestaltet ist, dass ausreichend Reaktionsteilnehmergas durchschlüpfen kann, dass das Drei-Wege-katalysierte Filter, das stromabseitig angeordnet ist, die Filtertemperatur um z. B.  $> 50^\circ\text{C}$  bei einer Filtereinlassgastemperatur von  $400^\circ\text{C}$ , relativ zu einem normal ausgebildeten direkt gekoppelten TWC erhöht; oder wobei der TWC auf dem stromaufseitigen Substratmonolithen so ausgebildet ist, dass Schadstoffe mit einer Effizienz von  $< 80\%$ , beispielsweise  $< 75\%$ ,  $< 70\%$ ,  $< 65\%$  oder  $< 60\%$  umgewandelt werden. Es ist davon auszugehen, dass eine oder alle der obigen alternativen Definitionen die beanspruchte Definition ergänzen können, um eine explizitere Unterscheidung zum Stand der Technik zu liefern.

**[0050]** Es wird davon ausgegangen, dass der separate, stromauf des Filters angeordnete Substratmonolith vorzugsweise ein Durchflusssubstratmonolith ist, z. B. eines keramischen oder metallischen Aufbaus. Jedoch können, wenn gewünscht, auch andere Substratmonolithen als Durchflussmonolithen verwendet werden, z. B. partielle Filter (siehe z. B. WO 01/080978 oder EP 1057519), Metallschaumsubstrate usw.



**[0051]** Es wird davon ausgegangen, dass die Masse des TWC-Washcoats auf dem stromaufseitigen Substratmonolith relativ zu der Gesamtmasse des TWC-Washcoats in dem System definiert ist. Dies ist beabsichtigt, um Anordnungen zu umfassen, bei denen mehr als ein Substratmonolith zusätzlich zu dem Filter einen TWC-Washcoat trägt.. Allerdings ist in bevorzugten Ausführungsformen die Masse des TWC-Washcoats auf dem stromaufseitigen Substratmonolith bezogen auf die Gesamtmasse des TWC-Washcoats in dem Filter plus dem stromaufseitigen Substratmonolith definiert.

**[0052]** Fremdgezündete Verbrennungsmotoren zur Verwendung gemäß diesem Aspekt der Erfindung können mit Benzin, Benzin im Gemisch mit Sauerstoffverbindungen einschließlich Methanol und/oder Ethanol, flüssigem Erdgas oder verdichtetem Erdgas betankt werden.

**[0053]** Frühe Hinweise sind, dass die vorliegende Erfindung fähig ist, die Teilchenzahlemissionen von fremdgezündeten Verbrennungsmotoren um > 30%, beispielsweise > 50%, z. B. > 80% oder auch > 90% bei einem akzeptablen Gegendruck zu reduzieren.

**[0054]** Die mittlere Porengröße kann mittels Quecksilber- porosimetrie bestimmt werden.

**[0055]** Es wird davon ausgegangen, dass der Nutzen von Filtern zur Verwendung in der Erfindung im Wesentlichen unabhängig von der Porosität des Substrates ist. Die Porosität ist ein Maß des Prozentsatzes des Hohlraums in einem porösen Substrat und steht in Verbindung mit dem Gegendruck in einem Abgassystem. Generell gilt, je geringer die Porosität ist, desto höher ist der Gegendruck. Dennoch ist die Porosität der Filter zur Verwendung in der vorliegenden Erfindung typischerweise > 40% oder > 50% und Porositäten von 45–75%, beispielsweise 50–65% oder 55–60%, können mit Vorteilen verwendet werden. Die mittlere Porengröße des washcoatbeschichteten porösen Substrates ist für die Filtration wichtig. So ist es möglich, ein poröses Substrat mit einer relativ hohen Porosität zu haben, das ein schlechtes Filter ist, da die mittlere Porengröße ebenfalls relativ groß ist.

**[0056]** Das poröse Substrat kann ein Metall sein, wie zum Beispiel ein gesintertes Metall, oder eine Keramik, z. B. Siliciumcarbid, Cordierit, Aluminiumnitrid, Siliciumnitrid, Aluminiumtitanat, Aluminiumoxid, Mullit, zum Beispiel nadelförmiges Mullit (siehe z. B. WO 01/16050), Pollucit, ein Thermit wie  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Fe}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}$  oder  $\text{B}_4\text{C}/\text{Fe}$ , oder Verbundwerkstoffe, die Segmente von zwei beliebigen oder mehreren davon umfassen. In einer bevorzugten Ausführungsform ist das Filter ein Wandstromfilter, das ein keramisches poröses Filtersubstrat umfasst, das eine Vielzahl von Einlasskanälen und eine Vielzahl von Auslasskanälen aufweist, wobei jeder Einlasskanal und jeder Auslasskanal zum Teil durch eine keramische Wand von poröser Struktur definiert ist, wobei jeder Einlasskanal von einem Auslasskanal durch eine keramische Wand einer porösen Struktur getrennt ist. Diese Filteranordnung ist auch in SAE 810114 offenbart und es kann für weitere Details auf dieses Dokument Bezug genommen werden. Alternativ kann das Filter ein Schaum oder ein so genanntes partielles Filter, wie die in der EP 1057519 oder WO 01/080978 offenbarten sein.

**[0057]** Gründe, die zum Beschichten eines Wandstromfilters für eine Dieselanwendung anregen, sind typischerweise unterschiedlich von denen der vorliegenden Erfindung. Bei Dieselanwendungen ist ein Washcoat verwendet, um katalytische Komponenten in das Filtersubstrat einzuführen, z. B. Katalysatoren für ein Oxidieren von NO in  $\text{NO}_2$ , wobei ein signifikantes Problem auch darin besteht, Gegendruck zu vermeiden, wenn Ruß akkumuliert. Folglich wird ein Ausgleich zwischen der gewünschten katalytischen Aktivität und einem akzeptablen Gegendruck gehalten. Dagegen besteht ein hauptsächlicher Motivationsfaktor für das Beschichten eines porösen Substrats mit einem Washcoat zur Verwendung in der vorliegenden Erfindung darin, sowohl eine gewünschte Filtrationseffizienz als auch eine katalytische Aktivität zu erreichen.

**[0058]** In einer Ausführungsform beträgt eine erste mittlere Porengröße beispielsweise der Oberflächenporen der porösen Struktur des porösen Filtersubstrats 8 bis 45  $\mu\text{m}$ , zum Beispiel 8 bis 25  $\mu\text{m}$ , 10 bis 20  $\mu\text{m}$  oder 10 bis 15  $\mu\text{m}$ . In besonderen Ausführungsformen ist die erste mittlere Porengröße > 18  $\mu\text{m}$ , wie z. B. von 15 bis 45  $\mu\text{m}$ , 20 bis 45  $\mu\text{m}$ , z. B. 20 bis 30  $\mu\text{m}$  oder 25 bis 45  $\mu\text{m}$ .

**[0059]** In Ausführungsformen hat das Filter eine Washcoat-Beladung von > 0,25  $\text{g in}^{-3}$ , beispielsweise > 0,5  $\text{g in}^{-3}$  oder  $\geq 0,80 \text{ g in}^{-3}$ , z. B. 0,80 bis 3,00  $\text{g in}^{-3}$ . In bevorzugten Ausführungsformen ist die Washcoat-Beladung > 1,00  $\text{g in}^{-3}$ , beispielsweise  $\geq 1,2 \text{ g in}^{-3}$ , > 1,5  $\text{g in}^{-3}$ , > 1,6  $\text{g in}^{-3}$  oder > 2,00  $\text{g in}^{-3}$ , oder zum Beispiel 1,6 bis 2,4  $\text{g in}^{-3}$ . In speziellen Kombinationen von mittlerer Filterporengröße und Washcoat-Beladungen kombiniert das Filter ein wünschenswertes Niveau an Teilchenfiltration und katalytischer Aktivität bei akzeptablem Gegendruck.

**[0060]** In einer ersten bevorzugten Ausführungsform umfasst das Filter einen Oberflächen-Washcoat, wobei eine Washcoat-Schicht die Oberflächenporen der porösen Struktur im Wesentlichen bedeckt und die Poren des washcoatbeschichteten porösen Substrats teilweise durch Räume zwischen den Teilchen (interpartikuläre Poren) in dem Washcoat definiert sind. Das heißt, im Wesentlichen kein Washcoat dringt in die poröse Struktur des porösen Substrats ein. Verfahren zur Herstellung von oberflächenbeschichteten porösen Filtersubstraten umfassen ein Einführen eines Polymers, z. B. von Polyvinylalkohol (PVA), in die poröse Struktur, ein Applizieren eines Washcoats auf das poröse Filtersubstrat einschließlich des Polymers und ein Trocknen, anschließendes Kalzinieren des beschichteten Substrats, um das Polymer auszubrennen. Eine schematische Darstellung der ersten Ausführungsform ist in der [Fig. 2A](#) dargestellt.

**[0061]** Verfahren zum Beschichten von porösen Filtersubstraten sind einem Fachmann bekannt und schließen ohne Einschränkung das in der WO 99/47260 offenbarte Verfahren ein, d. h. ein Verfahren zum Beschichten eines monolithischen Trägers, umfassend die Schritte (a) Anordnen eines Behältermittels auf der Oberseite eines Trägers, (b) Dosieren einer vorgegebenen Menge einer flüssigen Komponente in das Behältermittel entweder in der Reihenfolge (a) dann (b) oder (b) dann (a), und (c) Ziehen der flüssigen Komponente in wenigstens einen Bereich des Trägers unter Anwendung von Druck oder Vakuum und Zurückhalten von im Wesentlichen der gesamten Menge in dem Träger. Diese Verfahrensschritte können von einem anderen Ende des monolithischen Trägers wiederholt werden, gefolgt von einem Trocknen der ersten Beschichtung mit optionalem Brennen/Kalzinieren.

**[0062]** In dieser ersten Ausführungsform beträgt eine mittlere interpartikuläre Porengröße des porösen Washcoats 5,0 nm bis 5,0 µm, wie z. B. 0,1–1,0 µm.

**[0063]** Ein D90 von festen Washcoat-Teilchen in dieser ersten Oberflächenbeschichtungsausführungsform kann größer sein als die mittlere Porengröße des porösen Filtersubstrats und kann in einem Bereich von 10 bis 40 µm, beispielsweise 15 bis 30 µm oder 12 bis 25 µm liegen. "D90", wie hier verwendet, definiert eine Teilchengrößenverteilung in einem Washcoat, wobei 90% der vorhandenen Teilchen einen Durchmesser in dem angegebenen Bereich haben. Alternativ liegt in Ausführungsformen die mittlere Größe der festen Washcoat-Teilchen in einem Bereich von 1 bis 20 µm. Es wird davon ausgegangen, dass je breiter der Bereich der Teilchengrößen in dem Washcoat ist, es umso wahrscheinlicher ist, dass der Washcoat in die poröse Struktur des porösen Substrats eindringen kann. Der Begriff "im Wesentlichen dringt kein Washcoat in die poröse Struktur des Substrats ein" sollte daher demgemäß interpretiert werden.

**[0064]** Gemäß einer zweiten Ausführungsform kann der Washcoat auf die Einlassoberflächen und/oder die Auslassoberflächen und auch innerhalb der porösen Struktur des porösen Substrats aufgetragen sein. Wir glauben, dass eine Oberflächenbeschichtung um eine Porenöffnung bei Einlass- und/oder Auslassoberflächen, wodurch z. B. die Oberflächenporengröße eines blanken Filtersubstrates verengt wird, die Interaktion mit der Feinstaub umfassenden Gasphase fördert, ohne dass das Porenvolumen wesentlich verringert wird, so dass der Gegendruck nicht signifikant erhöht wird. Das heißt, dass die Poren an einer Oberfläche der porösen Struktur eine Porenöffnung umfassen und der Washcoat eine Verengung von im Wesentlichen allen Porenöffnungen bewirkt. Eine schematische Darstellung der zweiten Ausführungsform ist in der [Fig. 2B](#) gezeigt.

**[0065]** Verfahren zur Herstellung eines Filters gemäß der zweiten Ausführungsform können eine geeignete Formulierung des Washcoats umfassen, der einem Fachmann bekannt ist, einschließlich einem Einstellen der Viskosität und der Oberflächenbenetzungseigenschaften und einem Anlegen eines geeigneten Vakuums nach einem Beschichten des porösen Substrats (siehe auch WO 99/47260).

**[0066]** In den ersten und zweiten Ausführungsformen, wobei wenigstens ein Teil des Washcoats auf die Einlass- und/oder Auslassoberflächen des porösen Substrats aufgetragen ist, kann der Washcoat auf die Einlassoberflächen, die Auslassoberflächen oder sowohl auf die Einlass- als auch auf die Auslassoberflächen aufgetragen werden. Zusätzlich kann entweder eines oder sowohl die Einlass- als auch die Auslassoberflächen eine Vielzahl von Washcoat-Schichten umfassen, wobei jede Washcoat-Schicht innerhalb der Vielzahl der Schichten gleich oder unterschiedlich sein kann, z. B. kann die mittlere Porengröße in einer ersten Schicht unterschiedlich zu der einer zweiten Schicht sein. In Ausführungsformen ist der Washcoat, der für die Beschichtung der Auslassoberflächen vorgesehen ist, nicht unbedingt der gleiche wie der für die Einlassoberflächen.

**[0067]** Wenn sowohl Einlass- als auch Auslassoberflächen beschichtet werden, können die Washcoatformulierungen gleich oder verschieden sein. Wenn sowohl die Einlass- als auch die Auslassoberflächen mit Washcoat beschichtet sind, kann die mittlere Porengröße des Washcoats auf den Einlassoberflächen von der mittleren Porengröße des Washcoats auf den Auslassoberflächen verschieden sein. Zum Beispiel kann die

mittlere Porengröße des Washcoats auf den Einlassoberflächen kleiner sein als die mittlere Porengröße des Washcoats auf den Auslassoberflächen. Im letzteren Fall kann die mittlere Porengröße des Washcoats auf den Auslassoberflächen größer sein als die mittlere Porengröße des porösen Substrats.

**[0068]** Obwohl es möglich ist, dass die mittlere Porengröße eines auf die Einlassoberflächen aufgetragenen Washcoats größer ist als die mittlere Porengröße des porösen Substrats, ist es vorteilhaft, einen Washcoat zu haben, der kleinere Poren als das poröse Substrat im Washcoat auf Einlassoberflächen aufweist, um jegliche Verbrennungsgasche oder jeden Schmutz, der in das poröse Substrat eindringt, zu verhindern oder zu reduzieren.

**[0069]** Gemäß einer dritten Ausführungsform sitzt der Washcoat im Wesentlichen im Inneren der porösen Struktur des porösen Substrats, d. h. er durchdringt die poröse Struktur des porösen Substrats. Eine schematische Darstellung dieser dritten Ausführungsform ist in der [Fig. 2C](#) gezeigt. Verfahren zur Herstellung eines Filters gemäß der dritten Ausführungsform umfassen die geeignete Formulierung des Washcoats, die einem Fachmann bekannt ist, einschließlich der Einstellung der Viskosität, der Auswahl niedriger Benetzungseigenschaften und der Anlegung eines geeigneten Vakuums nach einem Beschichten des porösen Substrats (siehe auch WO 99/47260). Alternativ kann das poröse Substrat in einer geeigneten Salzlösung getränkt werden und das resultierende Produkt wird getrocknet und kalziniert.

**[0070]** In der zweiten und dritten Ausführungsform, wobei wenigstens ein Teil des Washcoats sich in der porösen Struktur befindet, kann die Größe, z. B. die mittlere Größe, der festen Washcoat-Teilchen kleiner sein als die mittlere Porengröße des porösen Filtersubstrats, zum Beispiel im Bereich von 0,1 bis 20 µm, z. B. von 1 bis 18 µm, 1 bis 16 µm, 2 bis 15 µm oder 3 bis 12 µm liegen. In besonderen Ausführungsformen ist die oben genannte Größe der festen Washcoat-Teilchen eine D90 anstelle einer mittleren Größe.

**[0071]** In weiteren besonderen Ausführungsformen ist die Oberflächenporosität des Washcoats durch Einschließen von Hohlräumen darin erhöht. Abgaskatalysatoren, die solche Merkmale aufweisen, sind z. B. in unserer WO 2006/040842 und WO 2007/116881 offenbart.

**[0072]** Unter Hohlräumen in der Washcoat-Schicht wird hier verstanden, dass ein Raum in der Schicht existiert, der durch festes Washcoat-Material definiert ist. Hohlräume können beliebige freie Stellen, feine Poren, Tunnelarten (Zylinder, prismatische Säulen), Schlitze etc. umfassen und können durch Einarbeiten eines Materials in eine Washcoat-Zusammensetzung zum Beschichten eines Filtersubstrates, das während des Kalzinierens eines beschichteten Filtersubstrats verbrannt wird, z. B. zerkleinerte Baumwolle oder Materialien, die Poren hervorrufen, die durch Bildung von Gas durch Zersetzung oder Verbrennung hergestellt werden, eingeführt werden. Dort wo Hohlräume vorhanden sind, können die Hohlräume von der mittleren interpartikulären Porengröße der porösen Washcoats verschieden sein, und sollten daher bei der Bestimmung der mittleren interpartikulären Porengröße des porösen Washcoats nicht mitgezählt werden.

**[0073]** Das mittlere Hohlraumverhältnis des Washcoats kann 5–80% betragen, wohingegen der mittlere Durchmesser der Hohlräume 0,2 bis 500 µm, wie z. B. 10 bis 250 µm betragen kann.

**[0074]** Der Washcoat zur Verwendung in dem Filter der Erfindung ist ein Drei-Wege-katalytischer Washcoat, der in Kombination mit anderen katalytischen Washcoats verwendet werden kann, die aus der Gruppe ausgewählt sind, die aus einer Kohlenwasserstofffalle, einem NO<sub>x</sub>-Absorber, einem Oxidationskatalysator, einem selektiven katalytischen Reduktions(SCR)-Katalysator, einem mageren NO<sub>x</sub>-Katalysator und Kombinationen von beliebigen zwei oder mehr davon bestehen. Zum Beispiel sind in bevorzugten Ausführungsformen Einlassoberflächen mit einem TWC-Washcoat beschichtet und die Auslassoberflächen sind mit einem SCR-Washcoat beschichtet. In dieser Anordnung kann ein intermittierendes fettes Laufen des Motors Ammoniak in situ auf dem TWC zur Verwendung bei der Reduzierung von NO<sub>x</sub> auf dem SCR-Katalysator, der auf den Auslassoberflächen angeordnet ist, erzeugen. Ähnlich kann ein Oxidationskatalysator eine Kohlenwasserstofffallen-Funktionalität umfassen.

**[0075]** Der katalytische Washcoat, beispielsweise der NO<sub>x</sub>-Absorber, Oxidationskatalysator, die Kohlenwasserstofffalle und der magere NO<sub>x</sub>-Katalysator, kann einen oder mehrere Platingruppenmetalle enthalten, insbesondere solche, die aus der Gruppe ausgewählt sind, die aus Platin, Palladium und Rhodium besteht.

**[0076]** NO<sub>x</sub>-Absorber-Katalysatoren (NACs) sind bekannt, z. B. aus dem US-Patent Nr. 5,473,887 und sind so ausgestaltet, dass sie Stickstoffoxide (NO<sub>x</sub>) aus magerem Abgas (Lambda > 1) adsorbieren und NO<sub>x</sub> desorbieren, wenn die Sauerstoffkonzentration in dem Abgas abnimmt. Zu diesem Zweck umfassen NACs eine

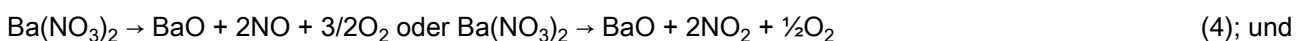
relativ hohe Beladung an Erdalkalimetallen und/oder Alkalimetallen, z. B. in der Größenordnung von 800 gft<sup>-3</sup>. Im Gegensatz dazu sind TWCs nicht so ausgestaltet, dass sie NO<sub>x</sub> adsorbieren, dennoch können sie Erdalkalimetalle und/oder Alkalimetalle als Katalysatorpromotoren enthalten, z. B. Barium und/oder Strontium. Gesamtmengen von Erdalkalimetallen und/oder Alkalimetallen zur Verwendung als Promotoren in TWCs sind typischerweise < 300 gft<sup>-3</sup>, wie z. B. < 250 gft<sup>-3</sup>, < 150 gft<sup>-3</sup>, < 100 gft<sup>-3</sup> oder gar < 50 gft<sup>-3</sup>. Desorbiertes NO<sub>x</sub> kann mit einem passenden Reduktionsmittel, z. B. Benzin, unterstützt durch eine katalytische Komponente, wie z. B. Rhodium, des NAC selbst oder in einer stromabseitigen Anordnung von dem NAC zu N<sub>2</sub> reduziert werden. In der Praxis kann die Kontrolle der Sauerstoffkonzentration intermittierend in Reaktion auf eine berechnete, restliche NO<sub>x</sub>-Absorptionskapazität des NAC auf eine gewünschte Redoxzusammensetzung eingestellt werden, z. B. fetter als bei einem normalen Motorenbetrieb (jedoch immer noch mager hinsichtlich stöchiometrischer oder Lambda = 1 – Zusammensetzung), stöchiometrisch oder fett hinsichtlich stöchiometrisch (Lambda < 1). Die Sauerstoffkonzentration kann durch eine Anzahl von Maßnahmen, z. B. Drosselung, Injektion von zusätzlichem Kohlenwasserstoffkraftstoff in den Motorzylinder wie z. B. während des Auslasshubs oder Injektion von Kohlenwasserstoffkraftstoff direkt in das Abgas stromabseitig des Motorkrümmers, eingestellt werden.

**[0077]** Eine typische NAC-Formulierung umfasst eine katalytische Oxidationskomponente, wie z. B. Platin, eine signifikante Menge, d. h. wesentlich mehr als zur Verwendung als Promotor, beispielsweise als Promotor in einem TWC benötigt wird, einer NO<sub>x</sub>-Speicherkomponente, wie z. B. Barium, und einen Reduktionskatalysator, z. B. Rhodium. Ein Mechanismus, der allgemein für eine NO<sub>x</sub>-Speicherung aus einem mageren Abgas für diese Formulierung angegeben ist, ist:



wobei in Reaktion (2) das Stickoxid mit dem Sauerstoff auf den aktiven Oxidationsstellen auf dem Platin reagiert, um NO<sub>2</sub> zu bilden. Reaktion (3) umfasst eine Adsorption des NO<sub>2</sub> durch Speichermaterial in Form eines anorganischen Nitrats.

**[0078]** Bei geringeren Sauerstoffkonzentrationen und/oder bei erhöhten Temperaturen werden die Nitratspezies thermodynamisch instabil und zerfallen, wobei NO oder NO<sub>2</sub> gemäß der unten aufgeführten Reaktion (4) gebildet wird. In Gegenwart eines passenden Reduktionsmittels werden diese Stickstoffoxide nachfolgend reduziert durch Kohlenmonoxid, Wasserstoff und Kohlenwasserstoffe zu N<sub>2</sub> reduziert, was auf dem Reduktionskatalysator stattfinden kann (siehe Reaktion (5)).



(Andere Reaktionen umfassen  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2 + 8\text{H}_2 \rightarrow \text{BaO} + 2\text{NH}_3 + 5\text{H}_2\text{O}$  gefolgt von  $\text{NH}_3 + \text{NO}_x \rightarrow \text{N}_2 + y\text{H}_2\text{O}$  oder  $2\text{NH}_3 + 2\text{O}_2 + \text{CO} \rightarrow \text{N}_2 + 3\text{H}_2\text{O} + \text{CO}_2$  etc.)

**[0079]** In den Reaktionen (2)–(5) oben ist die reaktive Bariumspezies als Oxid gegeben. Dennoch kann davon ausgegangen werden, dass in Gegenwart von Luft das meiste des Bariums in der Form des Carbonats oder möglicherweise des Hydroxids vorliegt. Der Fachmann kann die obigen Reaktionsschemata für die von dem Oxid verschiedenen Bariumspezies entsprechend anpassen.

**[0080]** Oxidationskatalysatoren fördern die Oxidation von Kohlenmonoxid zu Kohlendioxid und von unverbrannten Kohlenwasserstoffen zu Kohlendioxid und Wasser. Typische Oxidationskatalysatoren umfassen Platin und/oder Palladium auf einem Trägermaterial mit einer hohen spezifischen Oberfläche.

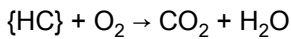
**[0081]** Kohlenwasserstofffallen umfassen typischerweise Molekularsiebe und können auch katalysiert sein, z. B. mit einem Platingruppenmetall, wie z. B. Platin oder einer Kombination aus sowohl Platin als auch Palladium.

**[0082]** SCR-Katalysatoren können aus einer Gruppe ausgewählt sein, die aus wenigstens einem von Cu, Hf, La, Au, In, V, Lanthaniden und Gruppe-VIII-Übergangsmetallen, wie Fe, aufgetragen auf ein feuerfestes Oxid oder Molekularsieb, besteht. Passende feuerfeste Oxide umfassen Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, TiO<sub>2</sub>, CeO<sub>2</sub>, SiO<sub>2</sub>, ZrO<sub>2</sub> und Mischoxide, die zwei oder mehrere davon enthalten. Der nicht-zeolithische Katalysator kann auch Wolframoxid umfassen, z. B. V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/WO<sub>3</sub>/TiO<sub>2</sub>.

**[0083]** Magere NO<sub>x</sub>-Katalysatoren, die manchmal auch als Kohlenwasserstoff-SCR-Katalysatoren bezeichnet werden, DeNO<sub>x</sub>-Katalysatoren oder gar nicht selektiv katalytische Reduktionskatalysatoren umfassen Pt/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Cu-, Pt-, Fe-, Co- oder Ir-ausgetauschtes ZSM-5, protonierte Zeolite wie z. B. H-ZSM-5 oder H-Y Zeolite, Perovskite und Ag/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. In selektiven katalytischen Reduktionen (SCR) durch Kohlenwasserstoffe (HC) reagiert der HC mit NO<sub>x</sub> statt mit O<sub>2</sub>, um gemäß Gleichung (6) Stickstoff, CO<sub>2</sub> und Wasser zu bilden:



**[0084]** Die konkurrierende, nicht-selektive Reaktion mit Sauerstoff ist durch Gleichung (7) gegeben:



**[0085]** Daher sind gute HC-SCR-Katalysatoren selektiver für Reaktion (6) als für Reaktion (7). In besonderen Ausführungsformen enthalten die SCR-, Kohlenwasserstofffallen- und mageren NO<sub>x</sub>-Katalysator-Washcoats wenigstens ein Molekularsieb, wie einen Alumosilikat-Zeolit oder ein SAPO, zum Einfangen von Fremdzündungs-PM. Das wenigstens eine Molekularsieb kann beispielsweise ein klein-, mittel- oder großporiges Molekularsieb sein. Unter einem "kleinporigen Molekularsieb" meinen wir hier Molekularsiebe, die eine maximale Ringgröße von 8 enthalten, wie z. B. CHA; unter einem "mittelporigen Molekularsieb" meinen wir hier ein Molekularsieb, das eine maximale Ringgröße von 10 enthält, wie z. B. ZSM-5; und unter einem "großporigen Molekularsieb" meinen wir hier ein Molekularsieb, das eine maximale Ringgröße von 12 enthält, wie z. B. Beta. Kleinporige Molekularsiebe sind möglicherweise vorteilhaft zur Verwendung in SCR-Katalysatoren – siehe z. B. WO 2008/132452.

**[0086]** Besondere Molekularsiebe mit Anwendung in der vorliegenden Erfindung sind aus einer Gruppe ausgewählt, die aus AEI, ZSM-5, ZSM-20, ERI einschließlich ZSM-34, Mordenit, Ferrierit, BEA einschließlich Beta, Y, CHA, LEV einschließlich Nu-3, MCM-22 und EU-1 besteht.

**[0087]** In Ausführungsformen können die Molekularsiebe unmetallisiert oder mit wenigstens einem Metall, ausgewählt aus einer Gruppe bestehend aus den Gruppen IB, IIB, IIIA, IIIB, VB, VIB, VIB und VIII des Periodensystems, metallisiert sein. Wenn metallisiert, kann das Metall aus der Gruppe ausgewählt sein, die aus Cr, Co, Cu, Fe, Hf, La, Ce, In, V, Mn, Ni, Zn, Ga und den Edelmetallen Ag, Au, Pt, Pd und Rh besteht. Solche metallisierten Molekularsiebe können in einem Prozess zum selektiven Katalysieren der Reduktion von Stickstoffoxiden in Fremdzündungsabgasen unter Verwendung eines Reduktionsmittels verwendet werden. Unter „metallisiert“ meinen wir hier, dass Molekularsiebe umfasst sind, die ein oder mehrere Metalle umfassen, die in das Gerüst des Molekularsiebs eingearbeitet sind, z. B. Fe in das Gerüst Beta und Cu in das Gerüst CHA. Wie oben angegeben, wird der Prozess manchmal, wenn das Reduktionsmittel ein Kohlenwasserstoff ist, als "Kohlenwasserstoff-selektive katalytische Reduktion" (HC-SCR), "magere NO<sub>x</sub>-Katalyse" oder "DeNO<sub>x</sub>-Katalyse" bezeichnet und spezielle Metalle für diese Anwendung umfassen Cu, Pt, Mn, Fe, Co, Ni, Zn, Ag, Ce, Ga. Kohlenwasserstoff-Reduktionsmittel können auf einem von 2 Wegen in das Abgas über Motormanagement-techniken eingeführt werden, z. B. durch späte Nachinjektion oder durch frühe Nachinjektion (so genannte „Nach-Injektion“).

**[0088]** Ist das Reduktionsmittel ein stickstoffhaltiges Reduktionsmittel (ein so genanntes "NH<sub>3</sub>-SCR"), sind Metalle von besonderem Interesse aus einer Gruppe ausgewählt, die aus Ce, Fe und Cu besteht. Passende stickstoffhaltige Reduktionsmittel umfassen Ammoniak. Ammoniak kann in situ beispielsweise während der fetten Regeneration eines stromaufseitig zu einem Filter angeordneten NAC oder durch Kontaktieren eines TWC mit aus dem Motor stammendem fettem Abgas (siehe die Alternativen zu den Reaktionen (4) und (5) oben) erzeugt werden. Alternativ kann das stickstoffhaltige Reduktionsmittel oder ein Vorläufer davon direkt in das Abgas injiziert werden. Passende Vorläufer umfassen Ammoniumformiat, Harnstoff und Ammoniumcarbammat. Ein Zerfallen des Vorläufers zu Ammoniak und anderen Nebenprodukten kann durch hydrothermale oder katalytische Hydrolyse erfolgen.

**[0089]** Die Zelldichte von Diesel-Wandstromfiltern bei der praktischen Verwendung kann sich von der der Wandstromfilter zur Verwendung in der vorliegenden Erfindung dahingehend unterscheiden, dass die Zelldichte eines Diesel-Wandstromfilters im Allgemeinen 300 Zellen pro Quadratzoll (cps) oder weniger, z. B. 100 oder 200 cps beträgt, so dass die relativ größeren Diesel-PM-Komponenten in die Einlasskanäle des Filters eindringen können ohne dass sie auf dem festen Frontbereich des Diesel-Teilchenfilters aufprallen, wobei sie zusammenbacken und den Zugang zu den offenen Kanäleverschmutzen, während Wandstromfilter zur Verwendung in der vorliegenden Erfindung bis zu 300 cps oder mehr, wie z. B. 350 cps, 400 cps, 600 cps, 900 cps oder gar 1200 cps aufweisen können

**[0090]** Ein Vorteil der Verwendung von höheren Zelldichten ist, dass das Filter einen reduzierten Querschnitt, z. B. Durchmesser, als das Dieselpartikelfilter haben kann, was ein hilfreicher, praktischer Vorteil ist, der die Entwicklungsoptionen für die Anordnung von Abgassystemen im Fahrzeug erhöht.

**[0091]** Gemäß einem anderen Aspekt liefert die Erfindung einen Verbrennungsmotor mit Fremdzündung mit einem Abgassystem gemäß der Erfindung und ein Fahrzeug, das einen solchen fremdgezündeten Verbrennungsmotor umfasst. In einer bevorzugten Ausführungsform ist der fremdgezündete Verbrennungsmotor ein fremdgezündeter Verbrennungsmotor mit Direkteinspritzung.

**[0092]** In einem weiteren Aspekt liefert die Erfindung ein Verfahren zum Einfangen und Verbrennen von Feinstaub (PM) aus Abgas, das aus einem Verbrennungsmotor mit Fremdzündung emittiert wird, durch Tiefenfiltration, wobei das Verfahren ein Lenken des PM enthaltenden Abgases in ein Abgassystem, ein Kontaktieren des PM enthaltenden Abgases mit einem Drei-Wege-Katalysator-Washcoat, der auf einem Substratmonolith angeordnet ist, in dem Abgassystem, ein Kontaktieren des PM enthaltenden Abgases mit einem Filter in dem Abgassystem stromabseitig des Drei-Wege-Katalysator-Substratmonolithen, wobei das Filter ein poröses Substrat umfasst, das Einlass- und Auslassoberflächen aufweist, wobei die Einlassoberflächen von den Auslassoberflächen durch eine poröse Struktur getrennt sind, die Poren einer ersten mittleren Porengröße aufweist, wobei das poröse Substrat mit einem Drei-Wege-Katalysator-Washcoat beschichtet ist, der eine Vielzahl von festen Teilchen umfasst, wobei die poröse Struktur des washcoatbeschichteten porösen Substrats Poren einer zweiten mittleren Porengröße enthält und wobei die zweite mittlere Porengröße kleiner ist als die erste mittlere Porengröße, wobei die Masse des Drei-Wege-Katalysator-Washcoats auf dem Substratmonolithen  $\leq 75\%$  der Gesamtmasse des Drei-Wege-Katalysator-Washcoats in dem Abgassystem ist.

**[0093]** Zum besseren Verständnis der Erfindung wird auf die beigefügten Zeichnungen verwiesen, worin zeigen:

**[0094]** [Fig. 1](#) ein Diagramm, das die Größenverteilungen von PM in dem Abgas eines Dieselmotors zeigt. Zum Vergleich ist eine Benzingrößenverteilung in der [Fig. 4](#) von SAE 1999-01-3530 gezeigt;

**[0095]** [Fig. 2A–C](#) schematische Zeichnungen von drei Ausführungsformen von washcoatbeschichteten porösen Filtersubstraten gemäß der Erfindung;

**[0096]** [Fig. 3](#) ein schematisches Diagramm einer Quecksilber- porosimetrie bezüglich der Porengrößenverteilung eines porösen Filtersubstrates, einer porösen Washcoat-Schicht und eines porösen Filtersubstrats, das eine poröse Oberflächen-Washcoat-Schicht umfasst;

**[0097]** [Fig. 4](#) eine Tabelle, die eine Matrix Wandstromfiltersubstrat-Porengröße gegen Washcoat-Beladung zeigt, wodurch die Eignung des beschichteten Wandstromfilters zur Verwendung in einem Fahrzeug-Benzinabgasnachbehandlungssystem angegeben wird;

**[0098]** [Fig. 5](#) eine schematische Zeichnung eines Abgassystems gemäß der Erfindung.

**[0099]** Die [Fig. 2A–C](#) zeigen einen Querschnitt durch ein poröses Filtersubstrat **10**, das eine Oberflächenpore **12** enthält. [Fig. 2A](#) zeigt eine erste Ausführungsform, die eine poröse Oberflächen-Washcoat-Schicht **14** darstellt, bestehend aus festen Washcoat-Teilchen, wobei die Räume zwischen den Teilchen Poren (interpartikuläre Poren) definieren. Es ist zu sehen, dass die Washcoat-Schicht **14** im Wesentlichen die Pore **12** der porösen Struktur abdeckt und dass eine mittlere Porengröße der interpartikulären Poren **16** geringer ist als die mittlere Porengröße **12** des porösen Filtersubstrats **10**.

**[0100]** [Fig. 2B](#) zeigt eine zweite Ausführungsform, die einen Washcoat umfasst, der auf die Einlassoberfläche **16** und zusätzlich in der Porenstruktur **12** des porösen Substrats **10** aufgetragen ist. Es ist ersichtlich, dass die Washcoat-Schicht **14** eine Verengung einer Porenöffnung der Oberflächenpore **12** bewirkt, so dass eine mittlere Porengröße **18** des beschichteten porösen Substrats geringer ist als die mittlere Porengröße **12** des porösen Filtersubstrats **10**.

**[0101]** [Fig. 2C](#) zeigt eine dritte Ausführungsform, worin der Washcoat **14** im Wesentlichen innerhalb der porösen Struktur **12** des porösen Substrats **10** sitzt, d. h. sie durchdringt.

**[0102]** [Fig. 3](#) zeigt eine Abbildung eines Diagramms, bei dem für ein poröses Filtersubstrat **20**, für eine poröse Washcoat-Schicht **22** und für ein poröses Dieselfiltersubstrat, das eine Oberflächen-Washcoat-Schicht



**24** umfasst, die Porengröße gegen die Porenanzahl aufgetragen ist. Es ist zu sehen, dass das Filtersubstrat eine mittlere Porengröße in der Größenordnung von etwa 15  $\mu\text{m}$  hat. Die Washcoat-Schicht hat eine bimodale Verteilung, die aus interpartikulären Poren **22A** (an dem Nanometerende des Bereichs) und interpartikulären Poren **22B** in Richtung auf das Mikrometerende der Skala besteht. Es kann auch gesehen werden, dass durch Beschichten eines porösen Filtersubstrats mit einem Washcoat gemäß der Erfindung die Porenverteilung des blanken Filtersubstrats in Richtung der interpartikulären Washcoat-Porengröße verschoben wird (siehe Pfeil).

**[0103]** **Fig. 5** zeigt eine Vorrichtung **10** gemäß der Erfindung mit einem Fahrzeugverbrennungsmotor mit Fremdzündung **12** und einem Abgassystem **14** hierfür. Das Abgassystem **14** umfasst ein Rohr **16**, das die katalytischen Nachbehandlungskomponenten verbindet, nämlich einen TWC auf Pd-Rh-Basis, der auf einen inerten metallischen Durchflusssubstratmonolithen **18** aufgetragen ist, der nah an dem Abgaskrümmers des Motors angeordnet ist (die sogenannte "direkt gekoppelte" Position). Stromabseitig des direkt gekoppelten Katalysators **18** wiederum befindet sich ein TWC auf Pd-Rh-Basis, aufgetragen in einer Menge von  $1,6 \text{ g in}^{-3}$  auf einen keramischen Wandstromfilter **20**, der eine mittlere Porengröße von 20  $\mu\text{m}$  hat, geschlungen unter das Fahrzeug in der so genannten Unterboden-Anordnung.

**[0104]** Bei der Verwendung profitiert das System von der Niedrig-Temperatur-Anspring-Aktivität des direkt gekoppelten TWC **18**, der in einer Position angeordnet ist, bei der er rasch nach dem „key-on“ aktive Temperaturen erreichen kann. Jedoch anstatt eine Umwandlung von unverbranntem Kohlenwasserstoff, Kohlenmonoxid und Oxiden von Stickstoff in einem zum Erfüllen des relevanten Euro V-Emissionsstandards notwendigen Ausmaß ist der TWC **18** so konfiguriert, dass er ausreichend verbrennbare Emissionskomponenten, wie z. B. Kohlenmonoxid und unverbrannten Kohlenwasserstoff durchschlüpfen lässt, so dass eine nachfolgende Umwandlung der durchgeschlüpfen verbrennbaren Komponenten auf dem Drei-Wege-katalysierten Wandstromfilter **20** ausreichend Wärme erzeugt, um Feinstaub, der in dem Filter festgehalten wurde, entweder kontinuierlich oder wenigstens einmal während eines Fahrzyklus, wie dem Europäischen MVEG-B-Fahrzyklus, zu verbrennen. In dieser Ausführungsform ist der TWC **18** unter Verwendung eines die volle Größe aufweisenden direkt gekoppelten Substratmonolithen-Volumens (100% des Motorhubraumes), konfiguriert, das mit dem gleichen vollständig formulierten TWC beschichtet ist, wie er für den nachgeschalteten TWC-beschichteten Wandstromfilter **20** verwendet wurde, jedoch mit einer niedrigeren Washcoat-Beladung als sie generell für einen direkt gekoppelten TWC verwendet wird, z. B.  $2,0 \text{ g in}^{-3}$ .

**[0105]** **Fig. 4** liefert eine Matrix, die die vorläufigen Ergebnisse für eine Washcoat-Beladungs-Studie für einen TWC-Washcoat auf drei Wandstromfiltern, die verschiedene mittlere Porengrößen haben, zeigt. Im Ergebnis gibt es ein Band an akzeptablem Gegendruck und Filtration, beginnend mit einer Kombination eines Wandstromfilters mit 13  $\mu\text{m}$  mittlerer Porengröße und einer relativ geringen Washcoat-Beladung von  $0,4 \text{ g in}^{-3}$  über Substrate mit Porengrößen von 20  $\mu\text{m}$  und 13  $\mu\text{m}$  mit  $0,8 \text{ g in}^{-3}$  bis zu den  $1,6$  und  $2,4 \text{ g in}^{-3}$  Beladungen auf den Substraten mit mittleren Porengrößen von 38  $\mu\text{m}$  und 20  $\mu\text{m}$ .

**[0106]** Ein Übertragen dieser Matrix auf eine TWC-Verwendung bedeutet jedoch, dass Washcoat-Beladungen von  $\geq 1,6 \text{ g in}^{-3}$  für eine akzeptable TWC-Aktivität in einem Einzelprodukt bevorzugt sind. Die Erfindung ermöglicht das Erreichen einer Kombination einer ausreichenden TWC-Aktivität und PM-Filtration ohne eine signifikante Erhöhung des Gegendrucks. Höhere Washcoat-Beladungen auf Wandstromfiltersubstraten mit kleineren mittleren Porengrößen können nur bei Anwendungen verwendet werden, die einen erhöhten Gegendruck tolerieren. Während unter Bezugnahme auf **Fig. 4** in bestimmten Anwendungen, in denen ein Ansteigen des Gegendrucks toleriert werden kann, ein Wandstromfiltersubstrat mit einer mittleren Porengröße von 13  $\mu\text{m}$  in Kombination mit  $\geq 1,6 \text{ g in}^{-3}$  Washcoat-Beladung verwendet werden kann, bevorzugen wir gegenwärtig die Verwendung einer mittleren Porengröße von  $\geq 20 \mu\text{m}$  für  $\geq 1,6 \text{ g in}^{-3}$  Beladungen, um einen erwünschten Ausgleich zwischen der Katalysator-Aktivität, Filtration und Gegendruck zu erreichen. Ein Vorteil dieser Erfindung ist, dass ein aus dem Stand der Technik bekannter TWC, der ein Durchflussmonolithsubstrat umfasst, der typischerweise an einem Fahrzeug entweder in der Unterboden- oder direkt gekoppelten Anordnung angeordnet ist, durch ein Filter gemäß der vorliegenden Erfindung ersetzt werden kann, um eine ausreichende Drei-Wege-Aktivität bereitzustellen, um die gesetzgeberischen Erfordernissen für gasförmige HC-, CO- und  $\text{NO}_x$ -Emissionen zu erfüllen, während auch die Partikel-Anzahl-Standards, die beispielsweise durch Euro 6 Standards gefordert sind, erfüllt werden.

**[0107]** Das Filter gemäß der Erfindung kann in naheliegender Weise in Kombination mit anderen Abgassystem-Nachbehandlungskomponenten verwendet werden, um eine Gesamt-Abgassystem-Nachbehandlungsvorrichtung bereitzustellen, z. B. einem eine geringe thermische Masse aufweisenden TWC stromauf des Filters und/oder stromab gelegenen katalytischen Elementen, z. B. einem Substratmonolithen, der eine  $\text{NO}_x$ -Falle oder einen SCR-Katalysator enthält, gemäß speziellen Erfordernissen. Daher ziehen wir bei Anwendungen



eines Fahrzeugverbrennungsmotors mit Fremdzündung, der relativ kalte on-drive-Zyklus-Abgastemperaturen produziert, die Verwendung eines eine geringe thermische Masse aufweisenden TWC, der stromauf des Filters gemäß der Erfindung angeordnet ist, in Betracht. Für Anwendungen von mager verbrennenden Fahrzeugverbrennungsmotoren mit Fremdzündung können wir uns vorstellen, ein Filter gemäß der Erfindung zu verwenden, das stromauf oder stromab von einem Substratmonolith, der eine NO<sub>x</sub>-Falle umfasst, angeordnet ist.

**[0108]** Eine zusätzliche neue Anforderung an einen TWC ist das Erfordernis, eine Diagnosefunktion bzgl. seiner Nutzungsdauer, eine sogenannte „bordeigene Diagnose“ oder OBD, bereitzustellen. Ein Problem mit OBD entsteht, wenn eine unzureichende Sauerstoffspeicherkapazität in dem TWC vorhanden ist, da OBD-Prozesse für TWCs die verbleibende Sauerstoffspeicherkapazität verwenden, um die verbleibende Katalysatorfunktion zu ermitteln. Wenn jedoch das Filter mit nicht ausreichendem Washcoat beladen ist, wie in den speziellen Beispielen, die in der US 2009/0193796 und WO 2009/043390 offenbart sind, kann nicht genügend OSC vorhanden sein, um ein akkurates OSC-„Delta“ für OSB-Zwecke bereitzustellen. Da die vorliegende Erfindung Washcoat-Beladungen ermöglicht, die sich den gegenwärtigen TWCs des Standes der Technik annähern, können die Filter zur Verwendung in der vorliegenden Erfindung mit Vorteil bei laufenden OBD-Prozessen verwendet werden.

**[0109]** Damit die Erfindung besser verstanden werden kann, sind die nachfolgenden Beispiele zur Veranschaulichung beigefügt. Die Washcoat-Beladungen, die in den Beispielen angegeben sind, wurden durch Verwendung des in der oben beschriebenen WO 99/47260 offenbarten Verfahrens durch Auftragen des halben Washcoats von dem einen Ende und der verbleibenden Hälfte des Washcoats von dem anderen Ende, d. h. der gesamte Washcoat wurde nicht nur auf die Einlass- oder Auslasskanäle des Filters, sondern sowohl auf die Einlass- als auch auf die Auslasskanäle des Filters aufgetragen, erreicht.

#### Beispiel 1

**[0110]** Zwei TWC-Beschichtungen mit einer Washcoat-Beladung von 2,4 g/in<sup>3</sup> und einer Edelmetallbeladung von 85 g/ft<sup>3</sup> (Pd:Rh 16:1) wurden hergestellt; Eine wurde zu einer kleinen Teilchengröße (D<sub>90</sub> < 5 µm) vermahlen, bei der erwartet wurde, dass sie in die Porenstruktur eines Wandstromfilters („in-wall“) eindringen kann, wohingegen die andere weniger stark gemahlen wurde (D<sub>90</sub> < 17 µm), so dass erwartet wurde, dass sie bevorzugt mehr an der Oberfläche des Wandstromfilters („on-wall“) anordnet. Die Beschichtungen wurden auf 4, 66 × 4,5 Zoll große, 300 Zellen pro Quadratzoll aufweisende Cordierit-Wandstromfiltersubstrate aufgetragen, die eine Wanddicke von einem 12-tausendstel eines Zolls („300/12“) mit einer nominalen mittleren Porengröße von 20 Mikrometer (im folgenden µm) (62% Porosität) aufweisen. Jedes der Filter wurde hydrothermal im Ofen bei 980°C für 4 Stunden gealtert und in einer direkt gekoppelten Position in einem Euro 5 Passagierauto mit einem 1,4 l Benzinmotor mit Direkteinspritzung installiert. Jedes Filter wurde über ein Minimum von drei MVEG-B-Fahrzyklen bewertet, wobei die Reduzierung der Teilchenzahlemissionen relativ zu einem Referenzkatalysator gemessen wurde, wobei das Filter gegen einen auf einen Durchflusssubstratmonolith mit den gleichen Washcoat- und Edelmetallbeladungen aufgetragenen TWC ausgetauscht wurde – und der Gegendruckunterschied wurde zwischen Sensoren bestimmt, die stromauf und stromab des Filters (oder Referenzkatalysators) montiert waren.

**[0111]** Seit dem Jahr 2000 (Euro 3 Emissionsstandard) werden in Europa Emissionen über den neuen europäischen Fahrzyklus (NEDC) getestet. Dieser besteht aus 4 Wiederholungen des vorherigen ECE 15 Fahrzyklus plus einem außerstädtischen Fahrzyklus (EUDC) ohne eine 40-Sekunden-Aufwärmperiode, bevor mit der Emissionssammlung begonnen wird. Dieser modifizierte Kaltstarttest wird auch als „MVEG-B“-Fahrzyklus bezeichnet. Alle Emissionen sind in g/km ausgedrückt.

**[0112]** Die Euro 5/6 Umsetzungsgesetzgebung führt eine neue PM-Massen-Emissions-Messungsmethode ein, die durch die UN/ECE Feinstaubmessprogramme (PMP) entwickelt wurde, die die PM-Massen-Emissionsgrenzen anpasst, um die Unterschiede in den Ergebnissen durch Verwendung der alten und der neuen Methoden zu berücksichtigen. Die Euro 5/6-Gesetzgebung führt auch eine Teilchenanzahlemissionsgrenze (PMP Methode) ein, zusätzlich zu den massebasierten Grenzen.

**[0113]** Die Ergebnisse in der Tabelle 1 demonstrieren, dass die mit dem größere-Teilchengröße-„on-wall“-Washcoat hergestellten Filter eine signifikant verbesserte Teilchenanzahl-Reduktion als die Filter, die mit dem kleinere-Teilchengröße-„in-wall“-Washcoat hergestellt wurden, mit einer kleinen, aber akzeptablen Erhöhung des Peakgedrucks zeigen.

Probenfiltereigenschaften	Washcoat-Typ	% PN-Reduktion vs. Durchflussreferenz	Mittlerer Gegendruck (mbar) bei 70 km/h-Fahrt des MVEG-B-Fahrzyklus	Peakgendruck (mbar) während irgendeines MVEG-B-Fahrzyklusses
20 µm, 62%	„In-wall“	75	14,3	73,5
20 µm, 62%	„On-wall“	83	16,2	104,2

Tabelle 1. Effekte der Washcoat-Anordnung innerhalb des Filters auf die Teilchenanzahlreduktion und den Gegendruck (BP)

#### Beispiel 2

**[0114]** 5,66 × 3 Zoll große Cordierit-Wandstromfiltersubstrate mit einer Zelldichte von 300 Zellen pro Quadrat-zoll und einer Wanddicke von 12-tausendstel eines Zolls (ungefähr 0,3 mm) wurden mit einer TWC-Beschichtung bei einer Washcoat-Beladung von 0,8 g/in<sup>3</sup> und einer Palladium-Beladung von 80 g/ft<sup>3</sup> beschichtet. Drei Porenstrukturen wurden verglichen: eine nominale mittlere Porengröße von 38 µm bei 65% Porosität, eine nominale mittlere Porengröße von 20 µm bei 62% Porosität und eine nominale mittlere Porengröße von 15 µm bei 52% Porosität. Jedes Filter wurde hydrothermisch im Ofen bei 980°C 4 Stunden gealtert und in der Unterbodenposition in einem Euro 4-Passagierauto mit 1,4 l Benzinmotor mit Direkteinspritzung installiert, wobei ein vollständig vollformulierter TWC auf einen Durchflusssubstratmonolithen aufgetragen ist, der in einer direkt gekoppelten Position angeordnet ist, d. h. stromaufseitig des Filters. Jedes Filter wurde über ein Minimum von drei MVEG-B Fahrzyklen bewertet, wobei die Reduktion der Teilchenanzahlemissionen relativ zu einem Referenzsystem gemessen wurde, wobei das Unterbodenfilter ausgetauscht wurde gegen einen TWC, der auf einen Durchflusssubstratmonolithen bei identischen Washcoat- und Palladium-Beladungen aufgetragen war, wobei die Gegendruckdifferenzen zwischen Sensoren ermittelt wurden, die stromauf des direkt gekoppelten TWC und stromab des Filters (oder Referenzkatalysators) montiert waren. Die in Tabelle 2 angegebenen Peakgendruckergebnisse sind die Gegendrücke, die bei der dritten Wiederholung des MVEG-B-Zyklus abgelesen wurden.

**[0115]** Die Ergebnisse in Tabelle 2 demonstrieren, dass das 38 µm Filter signifikant geringere Niveaus der Teilchenanzahlentfernung (unzureichend für die Fahrzeuganwendung), obgleich bei dem geringsten Gegendruck aufwies. Das 20 µm Filter lieferte akzeptable Niveaus bei der Teilchenanzahlreduktion bei einem moderat erhöhten Gegendruck. Das 15 µm Filter war am effektivsten bei der Reduzierung der Teilchenanzahlemissionen, wies aber einen signifikant höheren Gegendruck als die Ausführungsform mit dem 20 µm Filter auf.

Probenfiltereigenschaften	% PN-Reduktion vs. Durchflussreferenz	Mittlerer Gegendruck (mbar) bei 70 km/h-Fahrt des dritten MVEG-B-Fahrzyklus	Peakgendruck (mbar) während des dritten MVEG-B-Fahrzyklusses
38 µm, 65%	18	7,5	52,5
20 µm, 62%	85	12,1	68,9
15 µm, 52%	92	18,8	97,5

Tabelle 2. Vergleich der Teilchenanzahlreduktion und des Gegendrucks (BP) für Filter mit unterschiedlicher Porengröße

#### Beispiel 3

**[0116]** 4,66 × 4,5 Zoll große 300/12 Cordierit-Wandstromfiltersubstrate mit einer nominalen mittleren Porengröße von 20 µm und einer Porosität von 62% wurden mit einer TWC-Beschichtung mit Washcoat-Beladungen von 0,8, 1,6 bzw. 2,4 g/in<sup>3</sup> beschichtet. Jede Probe hatte eine Edelmetallbeladung von 85 g/ft<sup>3</sup> (Pd:Rh 16:1). Jedes Filter wurde hydrothermal im Ofen bei 980°C 4 Stunden gealtert und in der direkt gekoppelten Position in einem Euro 4-Passagierauto mit 1,4 l Benzinmotor mit Direktinjektion installiert. Jedes Filter wurde über ein Minimum von drei MVEG-B-Fahrzyklen bewertet, wobei die Reduktion der Teilchenanzahlemissionen relativ zu einem Referenzkatalysator gemessen wurde, wobei das direkt gekoppelte Filter gegen einen auf einen Durchflusssubstratmonolith bei einer identischen Washcoat- und Edelmetallbeladung aufgetragenen

TWC ausgetauscht wurde, wobei die Gegendruckdifferenz und die Umwandlungseffizienz für die gasförmigen HC-, CO- und NO<sub>x</sub>-Emissionen zwischen Sensoren bestimmt wurden, die stromauf und stromab des Filters (oder Referenzkatalysators) montiert waren. Eine Umwandlung lediglich der Nichtmethan-Kohlenwasserstoffe (NMHC) ist in der Tabelle 3 angegeben (der NMHC für EURO 6 beträgt 68 mg/km innerhalb einer Gesamtkohlenwasserstoffemissionengrenze von 100 mg/km).

**[0117]** Die Ergebnisse in der Tabelle 3 demonstrieren, dass das mit einer Washcoat-Beladung von 0,8 g/in<sup>3</sup> hergestellte Filter signifikant geringere Niveaus der Teilchenanzahlentfernung und die geringste NMHC-Umwandlungseffizienz aufweist. Eine derartige TWC-Leistung wäre nicht ausreichend, um die Euro 6 Gasemissionsgrenzen für ein typisches Passagierfahrzeug zu erfüllen. Ein Erhöhen der Washcoat-Beladung auf 1,6 und 2,4 g/in<sup>3</sup> lieferte größere Reduktionen der Teilchenanzahlemissionen, wenn auch bei steigendem, aber akzeptablem Gegendruck. Die TWC-Aktivität (gemäß Darstellung in Tabelle 3 durch die NMHC-Leistung) war ebenfalls signifikant verbessert mit einer höheren Washcoat-Beladung.

Proben-Washcoat-Beladung	% PN-Reduktion vs. Durchflussreferenz	Mittlerer Gegendruck (mbar) bei 70 km/h-Fahrt des MVEG-BFahrzyklus	Peakgendruck (mbar) während irgendeines MVEG-BFahrzyklusses	% des Euro 6 NMHC-Konstruktionsziel *
0,8	53	7,7	51	110
1,6	63	10,1	65	88
2,4	67	18,7	100	81

Tabelle 3. Vergleich von Teilchenanzahlreduktion, Gegendruck (BP) und TWC-Aktivität bei unterschiedlichen Washcoat-Beladungen.

\* Das "Konstruktionsziel" wird oftmals von den Fahrzeugherstellern verwendet und stellt den Prozentsatz von gesetzlich geregelten Emissionen dar. Für die Zwecke dieser Beispiele haben wir ein Konstruktionsziel von 80% verwendet. Da der Euro 6-NMHC-Standards bei 68 mg/km liegt, beträgt das Konstruktionsziel 54 mg/km. Der kalkulierte Prozentsatz dieser Zahl wird verwendet, um die Reduktion der NMHC-Ergebnisse, die über den MVEG-B Fahrzyklus erreicht werden, zu bewerten, Dies ergibt Werte über und unter 100%, die gut mit den akzeptablen TWC-Aktivitäten in Beziehung stehen.

#### Beispiel 4

**[0118]** 4,66 × 4,5 Zoll große 300/12 Cordierit-Wandstromfiltersubstrate mit einer Zelldichte von 300 Zellen pro Quadratzoll und einer Wanddicke von ungefähr 0,3 mm wurden mit einer TWC-Beschichtung bei einer Washcoat-Beladung von 1,6 g/in<sup>3</sup> und einer Edelmetallbeladung von 85 g/ft<sup>3</sup> (Pd:Rh 16:1) beschichtet. Zwei Porenstrukturen wurden verglichen: eine nominale mittlere Porengröße von 38 µm bei 65% Porosität und eine nominale mittlere Porengröße von 20 µm bei 62% Porosität. Eine Probe mit kleineren Poren wurde nicht bewertet, da aus den aus Beispiel 2 erhaltenen Ergebnissen angenommen wurde, dass der Gegendruck zu groß für das Euro 4 Passagierfahrzeug in diesem Test sein würde. Jedes Filter wurde hydrothermal im Ofen bei 980°C 4 Stunden gealtert und in einer direkt gekoppelten Position in einem Euro 4 Passagier-Fahrzeug mit einem 1,4 l Verbrennungsmotor mit Direkteinspritzung installiert. Jedes Filter wurde über ein Minimum von drei MVEG-B-Fahrzyklen bewertet, wobei die Reduktion der Teilchenanzahlemissionen relativ zu einem Referenzkatalysator gemessen wurde, wobei das direkt gekoppelte Filter gegen einen auf einen Durchflusssubstratmonolithen mit einer identischen Washcoat- und Edelmetallbeladung aufgetragenen TWC ausgetauscht wurde, wobei die Gegendruckunterschiede und die Umwandlungseffizienz von gasförmigen HC-, CO- und NO<sub>x</sub>-Emissionen zwischen Sensoren bestimmt wurden, die stromauf und stromab des Filters (oder Referenzkatalysators) montiert waren. Lediglich die Umwandlung der Nichtmethan-Kohlenwasserstoffe (NMHC) ist in der Tabelle 4 dargelegt.

**[0119]** Die Ergebnisse in Tabelle 4 demonstrieren, dass das 38 µm Filter signifikant geringere Niveaus der Teilchenanzahlentfernung (unzureichend für diese Fahrzeuganwendung) und einen geringeren Gegendruck, was in anderen Fahrzeuganwendungen akzeptabel sein könnte, aufwies. Das 20 µm Filter lieferte gute Niveaus der Teilchenanzahlreduktion bei einer moderaten Erhöhung des Gegendrucks. Beide Proben wiese eine gute TWC-Aktivität bei einer Washcoat-Beladung von 1,6 g/in<sup>3</sup> auf.

Probenfiltereigenschaften	% PN-Reduktion vs. Durchflussreferenz	Mittlerer Gegen- druck (mbar) bei 70 km/h-Fahrt des MVEG-BFahrzy- klus	Peakgegendruck (mbar) während ir- gendeines MVEG- BFahrzyklus	% des Euro 6 NMHCKonstruktions- ziel *
38 µm, 65%	34	5,9	43,4	88
20 µm, 62%	63	10,1	65	88

Tabelle 4. Vergleich der Teilchenanzahlreduktion, Gegendruck (BP) und TWC-Aktivität bei Filtern mit unterschiedlichen Washcoat-Beladungen.

\* Siehe Fußnote zu Tabelle 3

#### Beispiel 5

**[0120]** 4,66 × 4,5 Zoll große 300/12 Cordierit-Wandstromfiltersubstrate mit einer Zelldichte von 300 Zellen pro Quadratzoll und einer Wanddicke von ungefähr 0,3 mm wurden mit einer TWC-Beschichtung bei einer Washcoat-Beladung von 2,4 g/in<sup>3</sup> und einer Edelmetallbeladung von 85 g/ft<sup>3</sup> (Pd:Rh 16:1) beschichtet. Zwei Porenstrukturen wurden verglichen: eine nominale mittlere Porengröße von 38 µm bei 65 Porosität und eine nominale mittlere Porengröße von 20 µm bei 62% Porosität. Eine Probe mit kleineren Poren wurde nicht bewertet, da aus den aus Beispiel 2 erhaltenen Ergebnissen angenommen wurde, dass der Gegendruck zu groß für das Euro 5-Passagierfahrzeug in diesem Test sein würde. Jedes Filter wurde hydrothermal im Ofen bei 980°C 4 Stunden gealtert und in einer direkt gekoppelten Position in einem Euro 5 Passagier-Fahrzeug mit einem 1,4 l Verbrennungsmotor mit Direkteinspritzung installiert.

**[0121]** Die Filter wurden über ein Minimum von drei MVEG-B-Fahrzyklen bewertet, wobei die Reduktion der Teilchenanzahlmissionen relativ zu einem Referenzkatalysator gemessen wurde, wobei das direkt gekoppelte Filter gegen einen auf einen Durchflusssubstratmonolithen mit einer identischen Washcoat- und Edelmetallbeladung aufgetragenen TWC ausgetauscht wurde, wobei die Gegendruckunterschiede und die Umwandlungseffizienz für gasförmige HC-, CO- und NO<sub>x</sub>-Emissionen zwischen Sensoren bestimmt wurde, die stromauf und stromab vom Filter (oder Referenzkatalysator) montiert waren. Lediglich die Umwandlung von Nichtmethan-Kohlenwasserstoffen (NMHC) ist in der Tabelle 5 dargelegt.

**[0122]** Die Ergebnisse in Tabelle 5 demonstrieren, dass das 38 µm-Filter signifikant niedrigere Niveaus der Teilchenanzahlentfernung (Grenze für diese Fahrzeuganwendung) und einen geringeren Gegendruck als die 20 µm Filter-Ausführungsform aufwies. Das 20 µm-Filter lieferte gute Niveaus der Teilchenanzahlreduktion bei einer moderaten Erhöhung des Gegendrucks. Beide Proben hatten eine gute TWC-Aktivität bei einer Washcoat-Beladung von 2,4 g/in<sup>3</sup>. Beide Proben zeigten eine bessere Teilchenanzahlreduktion und einen erhöhten Gegendruck im Vergleich zu den in Beispiel 4 beschriebenen 1,6 g/in<sup>3</sup>-Probe.

Probenfiltereigenschaften	% PN-Reduktion vs. Durchflussreferenz	Mittlerer Gegen- druck (mbar) bei 70 km/h-Fahrt des MVEG-B Fahrzyklus	Peakgegen- druck (mbar) während irgend eines MVEG-B Fahrzyklus	% des Euro 6 NMHC Konstruktions- ziel *
38 µm, 65%	50	7,4	44,1	44
20 µm, 62%	75	14,3	73,5	53

Tabelle 5. Vergleich der Teilchenanzahlreduktion, des Gegendrucks (BP) und der TWC-Aktivität bei Filtern unterschiedlicher Porengröße.

\* Siehe Fußnote zu Tabelle 3

## Beispiel 6

**[0123]** 118 × 60 mm große 360 Zellen pro Quadratzoll aufweisende Cordierit-Wandstromfiltersubstrate mit einer Zellwanddicke von 5-tausendstel Zoll (360/5) mit einer nominalen mittleren Porengröße von 13 µm und einer Porosität von 48% wurden mit einer TWC-Beschichtung bei einer Washcoat-Beladung von 0,4 und 0,8 g/in<sup>3</sup> beschichtet. Jede Probe wies eine Edelmetallbeladung von 85 g/ft<sup>3</sup> (Pd:Rh 16:1) auf. Höhere Washcoat-Beladungen wurden nicht bewertet, da erwartet wurde, dass der resultierende Gegendruck für ein Euro 4 Passagier-Fahrzeug in diesem Test zu hoch war. Ein frisches (d. h. ein nicht gealtertes) Filter wurde in einer direkt gekoppelten Position in einem Euro 4 Passagierfahrzeug mit einem 1,4 l Benzin-Verbrennungsmotor mit Direkteinspritzung installiert. Jedes Filter wurde über ein Minimum von drei MVEG-B-Fahrzyklen bewertet, wobei die Reduktion der Teilchenanzahlmissionen relativ zu einem Referenzkatalysator gemessen wurde, wobei das direkt gekoppelte Filter gegen einen auf einen Durchflusssubstratmonolithen mit einer identischen Washcoat- und Edelmetallbeladung aufgetragenen TWC ausgetauscht wurde und die Gegendruckunterschiede und die Umwandlungseffizienz für gasförmige HC, CO- und NO<sub>x</sub>-Emissionen zwischen Sensoren bestimmt wurden, die stromauf und stromab des Filters (oder Referenzkatalysators) montiert waren. Lediglich die Umwandlung von Nichtmethan-Kohlenwasserstoffen (NMHC) ist in der Tabelle 6 dargelegt.

**[0124]** Die Ergebnisse in Tabelle 6 demonstrieren, dass das 13 µm-Filter, hergestellt mit einer Washcoat-Beladung von 0,8 g/in<sup>3</sup> hergestellt wurde, mäßige Niveaus für Teilchenanzahlreduktion (Grenze für diese Fahrzeuganwendung), jedoch einen extrem hohen Gegendruck aufwies. Ein Reduzieren der Washcoat-Beladung auf 0,4 g/in<sup>3</sup> lieferte einen akzeptableren Gegendruck, jedoch eine geringere Reduktion der Teilchenanzahlmissionen. Man würde nicht erwarten, dass solche geringen Washcoat-Niveaus eine ausreichende TWC-Aktivität liefern, um die Euro 6-Emissionsstandards zu erfüllen.

Proben-	% PN-Reduktion	Mittlerer Gegen	Peakgegen
Washcoat	vs. Durchfluss	druck (mbar) bei	druck (mbar)
Beladung	referenz	70 km/h-Fahrt	während irgend
		des MVEG-B	eines
		Fahrzyklus	MVEG-B-
			Fahrzyklus
0,4	50	11,3	78,4
0,8	54	45,2	211,8

Tabelle 6. Vergleich der Teilchenanzahlreduktion und des Gegendrucks (BP) für unterschiedliche Washcoat-Beladungen.

## Beispiel 7

**[0125]** Ein Euro 5 Passagierfahrzeug mit einem 2,0 l Benzinverbrennungsmotor mit Direkteinspritzung mit einem vollständig formulierten TWC, der auf einen Durchflusssubstratmonolithen aufgetragen ist, in der direkt gekoppelten Position wurde über den MVEG-B-Fahrzyklus und FTP(Federal Test Procedure)-75-Fahrzyklus getestet. Die Anzahl der über den MVEG-B-Fahrzyklus emittierten Teilchen wurde gemäß der PMP-Methodik gemessen. Die Masse des Feinstaubes, die während des FTP-75-Fahrzyklus emittiert wurde, wurde gemäß Standard-Protokollen gemessen. Ein 125 × 120 mm großer 300/12 Cordierit-Wandstromfilter mit einer nominalen mittleren Porengröße von 12 µm und einer Porosität von 55%, der mit einer TWC-Beschichtung bei einer Washcoat-Beladung von 0,8 g/in<sup>3</sup> und einer Edelmetallbeladung von 20 g/ft<sup>3</sup> (Pd:Rh 3:1) beschichtet war, wurde dann in die Unterbodenposition eingepasst, d. h. stromab des Durchflusssubstratmonoliths. Messungen der emittierten Teilchenmasse und -anzahl wurden wiederholt.

**[0126]** Die Ergebnisse in der Tabelle 7 demonstrieren, dass der Verbau von zusätzlichem beschichtetem Filter die Teilchenanzahlmissionen über den MVEG-B-Zyklus um ~99% reduzierte und die Teilchenmasse, die über den FTP-75-Zyklus ermittelt wird, relativ zu dem Durchfluss-nur TWX-System um ~75% reduzierte. Abhängig davon, was für ein CARS PM Emissionsstandard angewandt wird, kann die Zahl von 2,7 mg PM/Meile den Standard nicht erfüllen.

Katalysatorsystem	PN-Emissionen über MVEG-B-Fahrzyklus (#/km)	PM-Emissionen über FTP 75 Fahrzyklus (mg/Meile)
nur Durchfluss-TWC	$4,42 \times 10^{12}$	2,7
Durchfluss-TWC + beschichtetes Filter	$4,69 \times 10^{10}$	0,6

Tabelle 7. Wirkung des Filterverbaus auf Teilchenanzahl- und Teilchenmassenemissionen

## Beispiel 8

**[0127]** Die Erfindung wurde unter Verwendung eines geschützten kinetischen Drei-Wege-Katalysators und von Filtermodellen dargelegt. Die Modelle verwenden kinetische Reaktionskoeffizienten, Substrat- und Washcoat-Spezifikationen und empirisch gemessene Motorausstrittabgastemperaturen und Abgaskomponentenkonzentrationen aus dem europäischen MVEG-B-Emissions-Testzyklus, um Katalysatortemperaturen und Auspuffemissionen eines Fahrzeugs vorherzusagen. Für dieses Experiment wurden Motorausstrittmissionen und Temperaturen aus einem Euro 5-konformen 1,4 l Benzinfahrzeug mit Direkteinspritzung als Eingabedaten verwendet, um Modelle für Alterungssysteme zu schaffen, die einen direkt gekoppelten Durchfluss-Drei-Wege-Katalysator, gefolgt von einem im Unterboden befindlichen, mit Drei-Wege-Katalysator beschichteten Benzinfilter (keramischer Wandstromfilter mit 300 Zellen pro Quadratzoll, 20 µm mittlerer Porendurchmesser, 64% Porosität; runder Querschnitt, 118,4 mm Durchmesser und 114,3 mm Länge;  $2,4 \text{ g in}^{-3}$  Washcoat-Beladung; 16 Pd:Rh bei  $85 \text{ g/ft}^3$ ) umfassen. Ein System, das einen kommerziell erhältlichen 1,25 l (400 Zellen pro Quadratzoll, runder Querschnitt mit einem Durchmesser von 118,4 mm und einer axialen Länge von 114,3 mm) direkt gekoppelten Drei-Wege-Katalysator (90% Motorhubraum; auch 19Pd:Rh bei  $60 \text{ g/ft}^3$ ;  $3,5 \text{ g in}^{-3}$  Washcoat-Beladung) umfasst, wurde mit einem 0,625 l Katalysator (45% Motorhubraum) mit der gleichen Platinguppenmetall-Zusammensetzung und -Beladung und Substratzellendichte und Durchmesser, jedoch lediglich der halben Länge (57,15 mm) des 1,25 l Katalysators verglichen (im Wesentlichen wurde der 1,25 l direkt gekoppelte Drei-Wege-Katalysator auf die Hälfte seiner axialen Länge abgeschnitten).

**[0128]** Während des außerstädtischen Abschnitts des europäischen Fahrzyklus (EUDC, ab 1000 Sekunden aufwärts) lässt der halbvolumige TWC mehr als 5-mal mehr Kohlenwasserstoffe durchschlüpfen als der kommerziell erhältliche TWC (siehe Tabelle 8). Das Model sagte voraus, dass die zusätzlichen Kohlenwasserstoffe, die aus dem halbvolumigen TWC durchschlüpfen eine größere Wärme erzeugen würden, wenn sie im stromabseitigen Filter umgewandelt werden, wobei die Peakbetttemperaturen von  $515^\circ\text{C}$  (für den kommerziell erhältlichen 1,25 l direkt gekoppelten TWC) auf  $540^\circ\text{C}$  (siehe Tabelle 8) ansteigen. Die Erfinder schlossen daraus, dass diese Temperaturerhöhung einen geeigneten Vorteil bei der passiven Regeneration von in dem Filter gesammelten Ruß unter sauerstoffreichen Bedingungen liefern würde, beispielsweise eine Kraftstoffkürzung.

**[0129]** Der kommerziell erhältliche direkt gekoppelte TWC (1,25 l) umfasste 59% der Gesamtmasse des TWC-Washcoats in dem Abgassystem, d. h. lag innerhalb des beanspruchten Bereichs, während die Washcoat-Masse des halbvolumigen direkt gekoppelten TWC 42% der Gesamtmasse des TWC-Washcoats in dem Abgassystem umfasste. Es kann dem Trend der angegebenen Peak-Unterboden-Temperatur für diese beiden Filter (siehe Tabelle 8) entnommen werden, dass die Erhöhung der Masse des TWC-Washcoats in dem direkt gekoppelten TWC relativ zu der Gesamt-TWC-Washcoat-Masse in dem Abgassystem die Peak-Unterboden-Filtertemperatur reduziert. Diese Daten lassen stark vermuten, dass, wenn die Masse des Drei-Wege-Katalysator-Washcoats auf dem stromaufseitigen Substratmonolith  $> 75\%$  der Gesamtmasse des Drei-Wege-Katalysator-Washcoats in dem Abgassystem ist, die Peak-Unterboden-Filtertemperatur noch geringer sein würde als für den kommerziellen 1,25 l TWC.

Volumen des direkt gekoppelten TWC	Gesamt-Kohlenwasserstoff(THC) -Durchschlupf nach dem direkt gekoppelten TWC	Peak-Unterboden-Benzin-Rußfilter-Temperatur bei 120 km/h (EUDC-Anteil des MVEG-B Emissionszyklus)
1,25 Liter	0,363 mg/s	$515^\circ\text{C}$
0,625 Liter	1,886 mg/s	$540^\circ\text{C}$

Tabelle 8. Wirkung der Reduzierung des Volumens des direkt gekoppelten TWC-Katalysators auf die Peak-Unterboden-Benzin-Rußfiltertemperatur.

**[0130]** Zur Vermeidung jeden Zweifels wird der gesamte Inhalt der Dokumente des Standes der Technik, die hierin benannt sind, durch Bezugnahme hier aufgenommen.



**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**

- WO 03/011437 A [[0021](#)]
- GB 2350804 A [[0021](#)]
- WO 2008/136232 A1 [[0022](#)]
- US 2006/01333969 [[0030](#)]
- US 2009/0193796 [[0033](#), [0108](#)]
- WO 2009/043390 [[0034](#), [0108](#)]
- GB 2468210 [[0035](#)]
- WO 01/080978 [[0050](#), [0056](#)]
- EP 1057519 [[0050](#), [0056](#)]
- WO 01/16050 [[0056](#)]
- WO 99/47260 [[0061](#), [0065](#), [0069](#), [0109](#)]
- WO 2006/040842 [[0071](#)]
- WO 2007/116881 [[0071](#)]
- US 5473887 [[0076](#)]
- WO 2008/132452 [[0085](#)]

**Zitierte Nicht-Patentliteratur**

- SAE 980525 [[0015](#)]
- SAE 2001-01-0201 [[0015](#)]
- SAE 199-01-3530 [[0017](#)]
- SAE-Papier Nr.: 2009-01-0292 [[0022](#)]
- SAE 810114 [[0056](#)]
- SAE 1999-01-3530 [[0094](#)]
- ECE 15 [[0111](#)]

**Patentansprüche**

1. Abgassystem für einen Fahrzeugverbrennungsmotor mit Fremdzündung, umfassend ein Filter zum Filtern von Feinstaub aus von dem Motor emittierten Abgas, wobei das Filter ein poröses Substrat umfasst, das Einlassoberflächen und Auslassoberflächen aufweist, wobei die Einlassoberflächen von den Auslassoberflächen durch eine poröse Struktur getrennt sind, die Poren einer ersten mittleren Porengröße enthält, wobei das poröse Substrat mit einem Drei-Wege-Katalysator-Washcoat beschichtet ist, der eine Vielzahl von festen Teilchen umfasst, wobei die poröse Struktur des washcoatbeschichteten porösen Substrats Poren einer zweiten mittleren Porengröße enthält und wobei die zweite mittlere Porengröße kleiner als die erste mittlere Porengröße ist und ein Drei-Wege-Katalysator-Washcoat auf einem separaten Substratmonolithen angeordnet ist, der stromauf des Filters angeordnet ist, wobei eine Masse des Drei-Wege-Katalysator-Washcoats auf dem stromaufseitigen Substratmonolith  $\leq 75\%$  der Gesamtmasse des Drei-Wege-Katalysator-Washcoats in dem Abgassystem ist.
2. Abgassystem gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Masse des Drei-Wege-Katalysator (TWC)-Washcoats auf dem stromaufseitigen Substratmonolith  $\leq 70\%$  der Gesamtmasse des TWC-Washcoats in dem System ist.
3. Abgassystem gemäß Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass der separate Substratmonolith, der stromauf des Filters angeordnet ist, ein Durchfluss-Substratmonolith ist.
4. Abgassystem gemäß Anspruch 1, 2 oder 3, dadurch gekennzeichnet, dass eine erste mittlere Porengröße der porösen Struktur des porösen Substrats 8 bis 45  $\mu\text{m}$  beträgt.
5. Abgassystem gemäß Anspruch 1, 2, 3 oder 4, dadurch gekennzeichnet, dass die Washcoat-Beladung auf dem Filter  $> 0,50 \text{ gin}^{-3}$  beträgt.
6. Abgassystem gemäß einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass es einen Oberflächen-Washcoat umfasst, wobei eine Washcoat-Schicht die Oberflächenporen der porösen Struktur im Wesentlichen bedeckt und die Poren des washcoatbeschichteten porösen Substrats teilweise durch Räume zwischen den Teilchen (interpartikuläre Poren) in dem Washcoat definiert sind.
7. Abgassystem gemäß Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, dass eine mittlere interpartikuläre Porengröße des porösen Washcoats 5,0 nm bis 5,0  $\mu\text{m}$  beträgt.
8. Abgassystem gemäß einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass eine mittlere Größe der festen Washcoat-Teilchen größer ist als die erste mittlere Porengröße.
9. Abgassystem gemäß Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, dass die mittlere Größe der festen Washcoat-Teilchen in einem Bereich von 1 bis 40  $\mu\text{m}$  liegt.
10. Abgassystem gemäß einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass die Poren an einer Oberfläche der porösen Struktur eine Porenöffnung aufweisen und der Washcoat eine Verengung von im wesentlichen allen Oberflächenporenöffnungen bewirkt.
11. Abgassystem gemäß einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass der Washcoat im Wesentlichen in der Porenstruktur des porösen Substrates sitzt.
12. Abgassystem gemäß Anspruch 10 oder 11, dadurch gekennzeichnet, dass eine mittlere Größe der festen Washcoat-Teilchen kleiner ist als eine mittlere Porengröße des porösen Substrats.
13. Abgassystem gemäß einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass der Washcoat auf die Einlassoberflächen, die Auslassoberflächen oder sowohl die Einlass- als auch die Auslassoberflächen aufgetragen ist.
14. Abgassystem gemäß einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass das poröse Substrat ein keramischer Wandstromfilter, ein Metallfilter oder ein Keramikschaum ist.
15. Verbrennungsmotor mit Fremdzündung, der ein Abgassystem gemäß einem der vorhergehenden Ansprüche umfasst.

16. Stöchiometrisch betriebener Verbrennungsmotor mit Fremdzündung gemäß Anspruch 15.

17. Verfahren zum Einfangen und Verbrennen von Feinstaub (PM) aus einem Abgas, das aus einem Verbrennungsmotor mit Fremdzündung emittiert wird, durch Tiefenfiltration, wobei das Verfahren ein Lenken des PM enthaltenden Abgases in das Abgassystem, ein Kontaktieren des PM enthaltenden Abgases mit einem Drei-Wege-Katalysator-Washcoat, der auf einem Substratmonolith angeordnet ist, in dem Abgassystem, ein Kontaktieren des PM enthaltenden Abgases mit einem Filter in dem Abgassystem, das sich stromab des Drei-Wege-Katalysator-Substratmonoliths befindet, wobei das Filter ein poröses Substrat umfasst, das Einlass- und Auslassoberflächen aufweist, wobei die Einlassoberflächen von den Auslassoberflächen durch eine poröse Struktur getrennt sind, die Poren einer ersten mittleren Porengröße aufweist, wobei das poröse Substrat mit einem Drei-Wege-Katalysator-Washcoat beschichtet ist, der eine Vielzahl von festen Teilchen umfasst, wobei die poröse Struktur des washcoatbeschichteten porösen Substrats Poren einer zweiten mittleren Porengröße enthält und wobei die zweite mittlere Porengröße kleiner als die erste mittlere Porengröße ist, wobei die Masse des Drei-Wege-Katalysator-Washcoats auf dem Substratmonolithen  $\leq 75\%$  der Gesamtmasse des Drei-Wege-Katalysator-Washcoats in dem Abgassystem ist.

Es folgen 5 Blatt Zeichnungen

Anhängende Zeichnungen

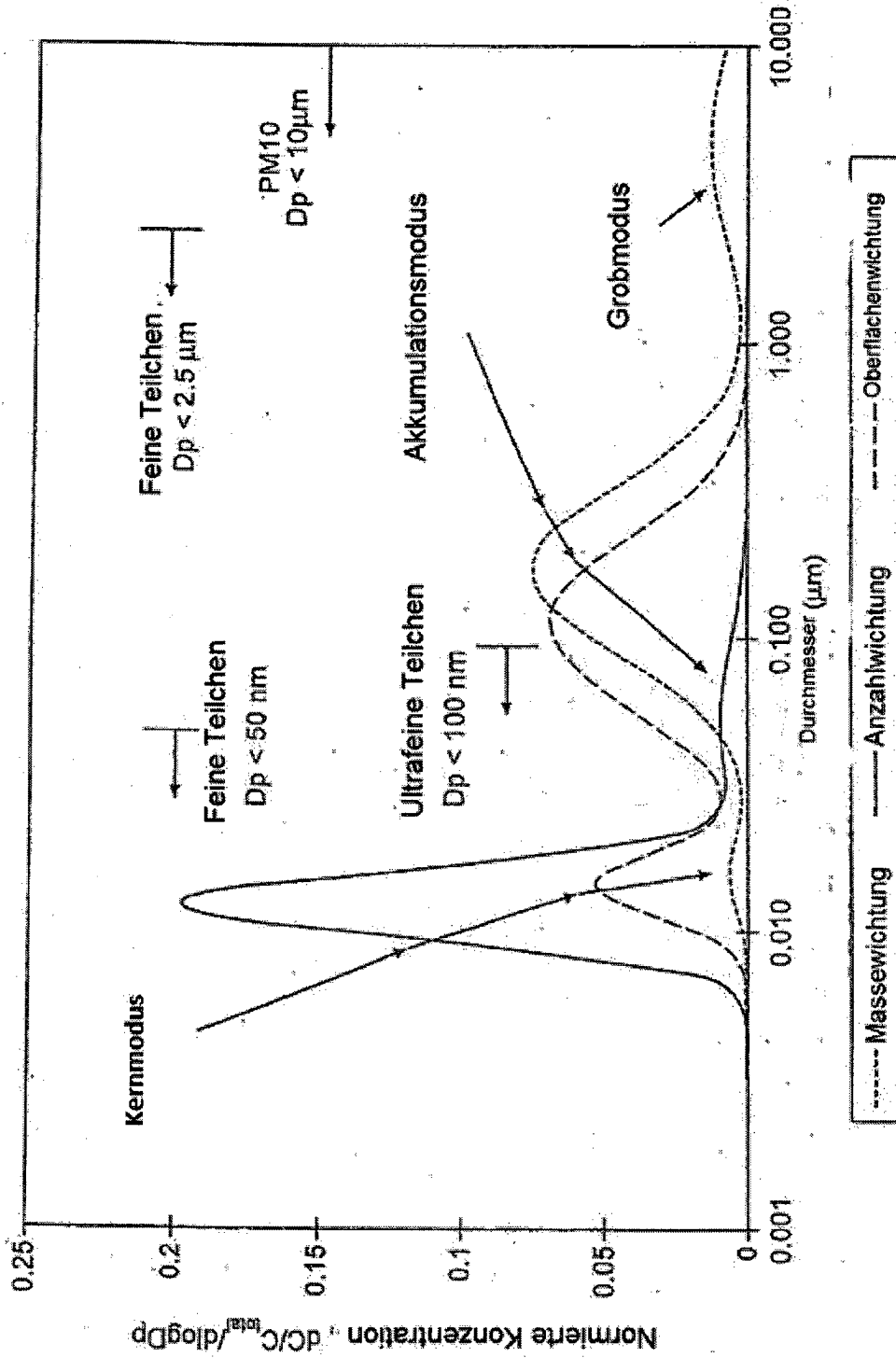


FIG. 1

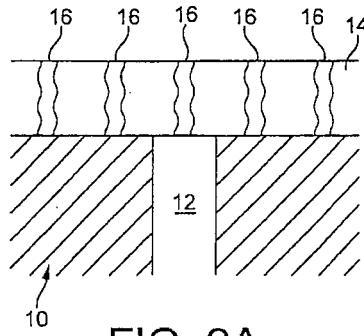


FIG. 2A

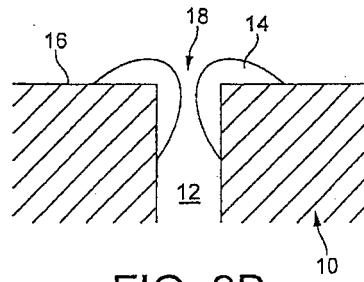


FIG. 2B

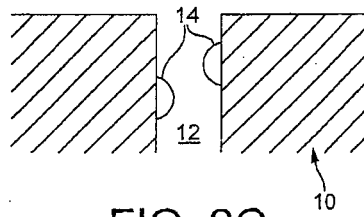


FIG. 2C

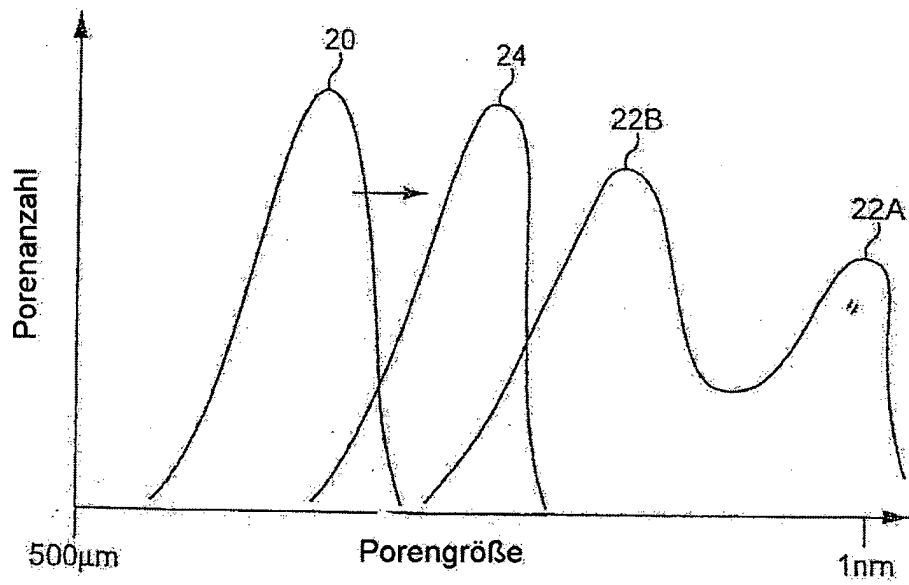


FIG. 3

Tabelle 1- Matrix, die eine Eignung von beschichteten Wandstromfiltern , die durch die mittlere Porengröße des Filtersubstrats und die Drei-Wege-Katalysator-Washcoat-Beladung definiert sind, zeigt

Mittlere Porengröße des Substrats ( $\mu\text{m}$ )	Drei-Wege-Katalysator-Washcoat-Beladung ( $\text{g in}^{-3}$ )		
	0,4	0,8	1,6
38	Unzureichende Filtration und Aktivität	Unzureichende Filtration und Aktivität	Grenze Filtration und gute Aktivität
20	Unzureichende Filtration und Aktivität	Grenze Filtration und unzureichende Filtration	Gute Aktivität und Filtration
13	Unzureichende Aktivität, jedoch gute Filtration	Grenze Gegendruck und unzureichende Aktivität	Erhöhter Gegendruck, jedoch gute Aktivität
			2,4
			Gute Aktivität und Filtration
			Gute Aktivität und Filtration
			Erhöhter Gegendruck, jedoch gute Aktivität

FIG.4



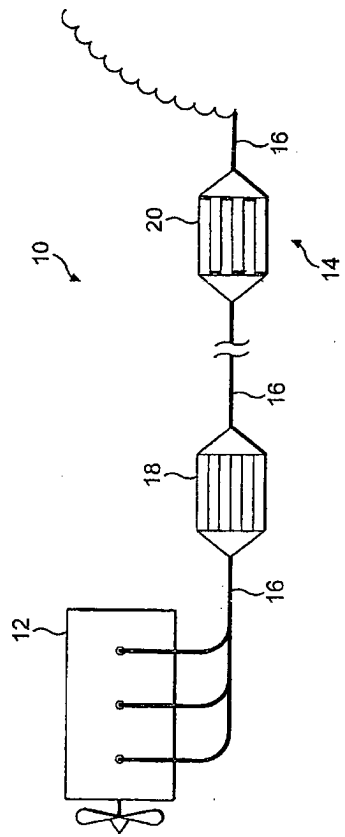


FIG. 5