



ФЕДЕРАЛЬНАЯ СЛУЖБА
ПО ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНОЙ СОБСТВЕННОСТИ,
ПАТЕНТАМ И ТОВАРНЫМ ЗНАКАМ

(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ПАТЕНТУ

(21), (22) Заявка: 2002121783/15, 09.01.2001

(24) Дата начала действия патента: 09.01.2001

(30) Приоритет: 14.01.2000 (пп.1-17) DE 10001539.5

(43) Дата публикации заявки: 27.03.2004

(45) Опубликовано: 27.11.2005 Бюл. № 33

(56) Список документов, цитированных в отчете о поиске: US 4571329 A, 18.02.1986. RU 2108140 C1, 10.04.1998. RU 2075336 C1, 20.03.1997. FR 2773144 A1, 02.07.1999. EP 0756891 A1, 05.02.1997. US 3053613 A, 11.09.1962. WO 9710042 A1, 20.03.1997.

(85) Дата перевода заявки РСТ на национальную фазу: 14.08.2002

(86) Заявка РСТ:
EP 01/00156 (09.01.2001)

(87) Публикация РСТ:
WO 01/51181 (19.07.2001)

Адрес для переписки:
129010, Москва, ул. Б.Спасская, 25, стр.3,
ООО "Юридическая фирма Городисский и
Партнеры", пат.пов. Е.Е.Назиной

(72) Автор(ы):

ШВЕФЕР Майнхард (DE),
ШОНН Эрих (DE),
ТУРЕК Томас (DE)

(73) Патентообладатель(ли):

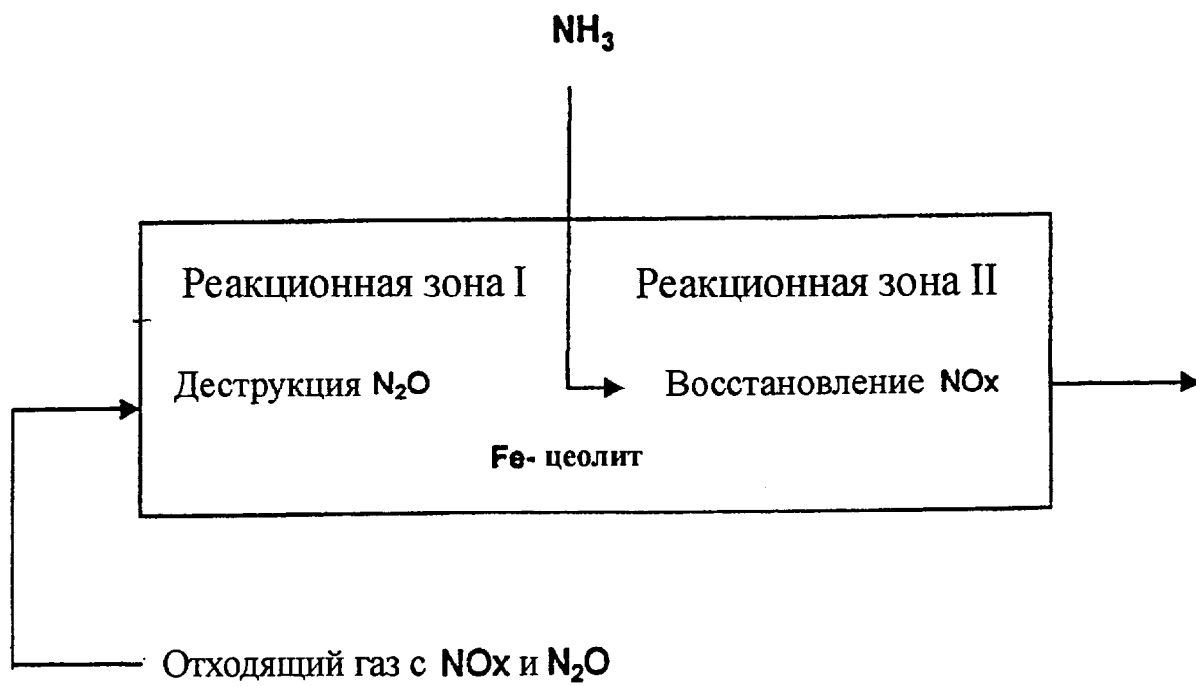
УДЕ ГМБХ (DE)

(54) СПОСОБ УДАЛЕНИЯ NO_x и N₂O И УСТРОЙСТВО ДЛЯ ЕГО ОСУЩЕСТВЛЕНИЯ

(57) Реферат:

Изобретение относится к области снижения содержания NO_x и N₂O в технологических и отходящих газах. Устройство включает, по меньшей мере, один распределенный на две реакционные зоны слой катализатора, содержащий один катализатор, который содержит один или несколько загруженных железом цеолитов, причем первая реакционная зона служит для деструкции N₂O, а во второй реакционной зоне восстанавливается NO_x, и между первой и второй зонами находится устройство для введения NH₃-газа. Способ осуществляют в присутствии катализатора, содержащего по существу один или

несколько загруженных железом цеолитов, где на первой стадии в первой реакционной зоне пропускают газ, содержащий N₂O и NO_x, через катализатор при температуре от 350 до 500°C для удаления N₂O, и полученный газовый поток пропускают дополнительно через катализатор из железосодержащего цеолита на второй стадии во второй реакционной зоне, причем к газовому потоку перед его вводом во вторую реакционную зону добавляют NH₃ в количестве, достаточном для восстановления NO_x. Изобретение позволяет достичь высокие скорости конверсии N₂O и NO_x при простоте аппаратуры и низкой стоимости процесса. 2 н. и 15 з.п. ф-лы, 2 ил., 1 табл.



Фиг. 1



FEDERAL SERVICE
FOR INTELLECTUAL PROPERTY,
PATENTS AND TRADEMARKS

(12) ABSTRACT OF INVENTION

(21), (22) Application: 2002121783/15, 09.01.2001

(24) Effective date for property rights: 09.01.2001

(30) Priority: 14.01.2000 (cl.1-17) DE 10001539.5

(43) Application published: 27.03.2004

(45) Date of publication: 27.11.2005 Bull. 33

(85) Commencement of national phase: 14.08.2002

(86) PCT application:
EP 01/00156 (09.01.2001)(87) PCT publication:
WO 01/51181 (19.07.2001)

Mail address:

129010, Moskva, ul. B.Spasskaja, 25, str.3,
OOO "Juridicheskaja firma Gorodisskij i
Partnery", pat.pov. E.E.Nazinoj

(72) Inventor(s):

ShVEFER Majnhard (DE),
ShONN Ehrikh (DE),
TUREK Tomas (DE)

(73) Proprietor(s):

UDE GMBKh (DE)

(54) PROCESS OF REMOVING NO_x AND N₂O AND APPARATUS FOR IMPLEMENTATION THEREOF

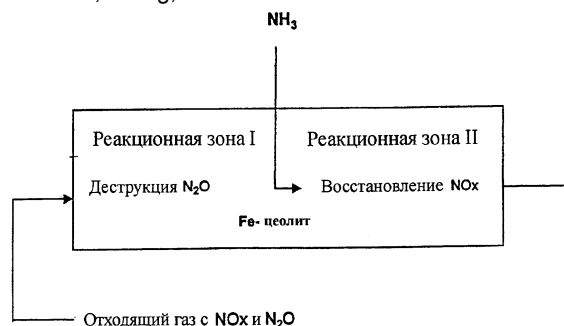
(57) Abstract:

FIELD: gas treatment.

SUBSTANCE: invention relates to reducing content of NO_x and N₂O in process and emission gases. Apparatus comprises at least one catalyst bed divided into two reaction zones. Catalyst consists of one or several iron-loaded zeolites. First reaction zone is used to destroy NO_x and the second one to reduce N₂O. Between the two zones, there is a means to introduce NH₃ gas. N₂O and NO_x-containing gas is passed through first reaction zone at 350-500°C to remove N₂O and then, after addition of NH₃, through second reaction zone. Amount of NH₃ added should be sufficient to reduce NO_x.

EFFECT: accelerated impurities conversion and reduced process cost.

17 cl, 2 dwg, 1 tbl



Фиг. 1

При многих процессах, таких как, например, процессы горения, или при промышленном получении азотной кислоты образуется насыщенный монооксидом азота NO, диоксидом азота NO₂ (вместе называемыми NO_x), а также веселящим газом отходящий газ. В то время как NO и NO₂ с давних пор известны как соединения с экотоксической
 5 релевантностью (кислый дождь, образование смога (тумана с дымом над промышленным городом) и установлены охватывающие весь мир пределы для их максимальных допустимых выбросов, передвигается в последние годы во все увеличивающейся степени также и веселящий газ в фокус защиты окружающей среды, так как он способствует не в несущественной степени распаду стратосферного озона и парниковому эффекту. Поэтому
 10 вследствие причин защиты окружающей среды существует настоятельная потребность в технических решениях для устранения выбросов веселящего газа вместе с выбросами NO_x.

Для отдельного удаления N₂O, с одной стороны, и NO_x, с другой стороны, уже существуют многочисленные возможности.

15 При восстановлении NO_x следует отметить избирательное каталитическое восстановление (SCR) NO_x при помощи аммиака в присутствии содержащих ванадий TiO₂-катализаторов (сравн., например, G.Erti, H.Knozinger, J.Weitkamp: Handbook of Heterogeneous Catalysis, Vol.4, Seiten 1633-1668, VCH Weinheim (1997)). Оно может в зависимости от катализатора протекать при температурах от приблизительно 150°C до
 20 приблизительно 450°C и позволяет разрушать NO_x более чем на 90%. Оно является наиболее используемым вариантом снижения NO_x из отходящих газов промышленных процессов.

Также на цеолитовых катализаторах основаны способы восстановления NO_x, которые протекают с применением различных восстановителей. Наряду с Cu-обмениваемыми
 25 цеолитами (ср., например, EP-A-0914866), для практического применения, по-видимому, прежде всего представляют интерес железосодержащие цеолиты.

Так, патент США US-A-4571329 заявляет способ восстановления NO_x в газе, который по меньшей мере на 50% состоит из NO₂, с использованием аммиака в присутствии Fe-цеолита. Соотношение NH₃ к NO₂ составляет по меньшей мере 1,3. Согласно описанному
 30 здесь способу, NO_x-содержащие газы должны восстанавливаться аммиаком без образования N₂O в качестве побочного продукта.

Патент США US 5451387 описывает способ избирательного каталитического восстановления NO_x при помощи NH₃ посредством обменивающего железо цеолита, который работает при температурах около 400°C.

35 В отличие от снижения NO_x в отходящих газах, которое с давних пор установилось в технике, для удаления N₂O существуют лишь немногие технические процессы, которые в большинстве случаев рассчитаны на термическую или каталитическую деструкцию N₂O. Обзор по катализаторам, которые обнаружили принципиальную пригодность для деструкции и для восстановления веселящего газа, дает Kapteijn et al. (Kapteijn et
 40 al., Appl. Cat. B: Environment 9 (1996) 25-64).

Особенно пригодными оказались все те же Fe- и Cu-цеолитовые катализаторы, которые либо обуславливают чистую деструкцию N₂O до N₂ и O₂ (US-A-5171553), либо также служат для каталитического восстановления N₂O при помощи NH₃ или углеводов до N₂ и H₂O или CO₂.

45 Так, в патенте Японии JP-A-07060126 описан способ восстановления N₂O при помощи NH₃ в присутствии железосодержащих цеолитов типа пентазила при температурах 450°C. Достижимая по этому способу деструкция N₂O составляет около 71%.

Mauvezin et al. дают в Catal. Lett. 62 (1999) 41-44 соответствующий обзор по пригодности различных, обменивающих железо цеолитов типа MOR, MFI, BETA, FER, FAU, MAZ и OFF. Согласно этому обзору более чем 90%-ное восстановление N₂O может быть
 50 достигнуто добавлением NH₃ при 500°C только в случае Fe-BEA.

По причинам простоты и рентабельности особенно желаемым является одностадийный способ, т.е. применение единственного катализатора для восстановления как NO_x, так

и N_2O .

Хотя восстановление NO_x аммиаком может протекать в присутствии Fe-цеолитов при температурах ниже $400^\circ C$, однако для восстановления N_2O , как упоминалось, требуются обычно температуры $>500^\circ C$.

5 Это является невыгодным не только потому, что нагревание отходящих газов до этих температур означает дополнительное потребление энергии, но также прежде всего потому, что применяемые цеолитовые катализаторы при этих условиях в присутствии водяного пара не являются стабильными к старению.

Поэтому в более поздних публикациях описывается восстановление N_2O и NO_x в
10 присутствии углеводородов с применением железосодержащих цеолитов в качестве катализатора, причем, хотя температура восстановления для N_2O может быть снижена до температур $<450^\circ C$, однако, для восстановления NO_x достигаются только умеренные превращения (максимально $<50\%$) (Kogel et al., J.Catal. 182 (1999)).

В одной из самых последних патентных заявок (JP-A-09000884) заявлено
15 одновременное применение аммиака и углеводородов. Углеводороды восстанавливают здесь избирательно содержащийся в отходящем газе N_2O , в то время как восстановление NO_x вызывается добавляемым аммиаком. Весь процесс может функционировать при температурах $<450^\circ C$. Правда, в результате реакции N_2O с углеводородом возникает не в
20 несущественных количествах ядовитый монооксид углерода, который делает необходимой дополнительную очистку отходящего газа. Чтобы избежать наиболее полным образом образования CO, предлагается применять вводимый после этого Pt/Pd-катализатор.

Дополнительное введение железосодержащего цеолитового катализатора с Pt известно из Kogel et al., Chemie Ingenieur Technik 70 (1998) 1164.

Более ранний патент WO-A-00/48715 описывает способ, при котором отходящий газ,
25 который содержит NO_x и N_2O , проводят при температурах между 200 и $600^\circ C$ через железосодержащий цеолитовый катализатор типа бета, причем этот отходящий газ, кроме того, содержит NH_3 в количественном соотношении между $0,7$ и $1,4$ в расчете на общее количество NO_x и N_2O , NH_3 служит здесь в качестве восстановителя как для NO_x , так и для N_2O . Хотя этот способ функционирует в качестве одностадийного способа при
30 температурах менее $500^\circ C$, он имеет, однако, как и вышеупомянутые способы, принципиальный недостаток, заключающийся в том, что удаление содержания N_2O требует примерно эквимольного количества восстановителя (в данном случае NH_3).

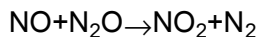
Задачей данного изобретения является обеспечение простого, но экономичного способа,
35 при котором по возможности применяется только один катализатор, который дает хорошие превращения как для деструкции NO_x , так и для деструкции N_2O , отличается минимальным потреблением восстановителя, и при котором не образуются никакие дополнительные экологически опасные побочные продукты.

Эта задача решается данным изобретением.

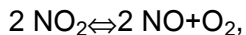
Предметом данного изобретения является способ снижения содержания NO_x и N_2O в
40 технологических газах и отходящих газах, причем этот способ проводят в присутствии катализатора, предпочтительно одного единственного катализатора, который по существу содержит один или несколько загруженных железом цеолитов и содержащий N_2O и NO_x газ для удаления N_2O в первой стадии в реакционной зоне I при температуре $<500^\circ C$
45 проводят через катализатор, и полученный газовый поток во второй стадии в реакционной зоне II дополнительно проводят через железосодержащий цеолитовый катализатор, причем к газовому потоку добавляют долю NH_3 , достаточную для восстановления NO_x (срав. фиг.1).

Достижение такой низкой температуры деструкции для N_2O обусловлено присутствием
50 NO_x . Было обнаружено, что NO_x в качестве активирующего реагента ускоряет деструкцию N_2O в присутствии железосодержащих цеолитов.

Для стехиометрических количеств N_2O и NO этот эффект описан Kapteijn F.; Mul, G.; Marban, G.; Rodriguez-Mirasol, J.; Moulijn, J.A., Studies in Surface Science and Catalysis 101 (1996) 641-650 и он объясняется превращением N_2O с NO согласно



Однако, поскольку теперь было обнаружено, что железосодержащие цеолиты катализируют также разложение образующегося NO_2 , согласно



5 количества, более низкие, чем стехиометрические, являются также достаточными для ускорения разложения N_2O . Эффект, который с увеличением температуры явно усиливается.

При применении других катализаторов не происходит никакого сокаталитического действия NO на разложение N_2O .

10 Способ данного изобретения позволяет проводить как деструкцию N_2O , так и восстановление NO_x при единой низкой рабочей температуре, что с описанными в существующем уровне техники способами до сих пор было невозможным.

Посредством применения железосодержащих цеолитов, предпочтительно цеолитов типа MFI, в частности, Fe-ZSM-5, деструкция N_2O происходит в соответствии с приведенными
15 выше уравнениями реакции в присутствии NO_x уже при таких температурах, при которых деструкция N_2O без NO_x вообще не происходила бы.

После прохождения первой реакционной зоны содержание N_2O согласно способу данного изобретения составляет от 0 до 200 млн.д., предпочтительно от 0 до 100
млн.д., в частности, от 0 до 50 млн.д.

20 В следующем варианте осуществления данное изобретение относится к устройству для снижения содержания NO_x и N_2O в технологических газах и отходящих газах, включающему в себя по меньшей мере один слой катализатора, содержащий один катализатор, который содержит по существу один или несколько загруженных железом цеолитов, и две
реакционные зоны, причем первая зона (реакционная зона I) служит для деструкции N_2O ,
25 а во второй зоне (реакционной зоне II) восстанавливается NO_x , и между первой и второй зоной находится устройство для введения NH_3 -газа (см. фиг.1 и 2).

Конструкция слоя катализатора в контексте данного изобретения является легко конструируемой. Она может быть, например, в форме трубчатого реактора или реактора с
радиальными корзинами. Пространственное разделение реакционных зон, как показано на
30 фиг.2, соответствует сущности данного изобретения.

Применяемые в соответствии с данным изобретением катализаторы содержат по существу предпочтительно >50 мас.%, в частности, >70 мас.% одного или нескольких
загруженных железом цеолитов. Так, может, например, содержаться, наряду с цеолитом Fe-ZSM-5, дополнительный железосодержащий цеолит, например железосодержащий
35 цеолит MFI- или MOR-типа, в котором может содержаться применяемый в соответствии с данным изобретением катализатор. Кроме того, применяемый в соответствии с данным изобретением катализатор может содержать дополнительные известные специалисту добавки, такие как, например, связующие агенты. Применяемые в соответствии с данным изобретением катализаторы основаны предпочтительно на цеолитах, в которые
40 посредством ионообмена в твердой фазе было введено железо. Обычно исходят для этого из коммерчески получаемых аммониевых цеолитов (например, NH_4 -ZSM-5) и соответствующих солей железа (например, $\text{FeSO}_4 \times 7\text{H}_2\text{O}$) и смешивают их механически интенсивно друг с другом в шаровой мельнице при комнатной температуре (Turek et al.;
Appl. Catal. 184 (1999) 249-256; EP-A-0955080). Полученные порошки катализатора сразу
45 же после этого кальцинируют в камерной печи в воздухе при температурах в области от 400 до 600°C. После кальцинирования железосодержащие цеолиты интенсивно промывают в дистиллированной воде и после отфильтровывания цеолита сушат. Сразу после этого полученные таким образом железосодержащие цеолиты соединяют и смешивают с
подходящими связующими агентами и, например, экструдировать с получением
50 цилиндрических частиц катализатора. В качестве связующих агентов пригодны все обычно применяемые связующие вещества, которые при этом наиболее часто являются алюмосиликатами, такими как, например, каолин.

В соответствии с данным изобретением, применимые цеолиты являются загруженными

железом. При этом содержание железа в расчете на массу цеолита составляет до 25%, но предпочтительно 0,1-10%. Предпочтительно, содержащийся в катализаторе загруженный железом цеолит (цеолиты) является цеолитом типа MFI, BETA, FER, MOR и/или MEL.

Точные данные относительно строения или структуры этих цеолитов даются в атласе
 5 Atlas of Zeolithe Structure Types, Elsevier, 4th revised Edition 1996, приведенном здесь в качестве ссылки. Предпочтительными в соответствии с данным изобретением цеолитами являются MFI (Pentasil)- или MOR (Mordenit)-тип. Особенно предпочтительными являются цеолиты типа Fe-ZSM-5.

Реакционная зона I и реакционная зона II могут быть как пространственно связаны
 10 друг с другом, как представлено на фиг.1, так что загруженный оксидами азота газ непрерывно проводится через катализатор, так и пространственно отделены друг от друга, как это вытекает из фиг.2.

При способе данного изобретения в реакционных зонах I и II используются содержащие
 15 железо цеолиты. При этом речь может идти о различных катализаторах в каждой отдельной зоне или предпочтительно об одном и том же катализаторе.

При пространственном разделении в случае реакционных зон температура второй зоны или входящего в нее газового потока устанавливается посредством теплоотвода или
 20 теплоподдачи таким образом, что она является более низкой или более высокой по сравнению с температурой первой зоны.

Температура первой реакционной зоны I, в которой разлагается веселящий газ, лежит
 согласно данному изобретению при $<500^{\circ}\text{C}$, предпочтительно в области от 350 до 500°C . Температура реакционной зоны II соответствует предпочтительно температуре
 реакционной зоны I.

Способ в соответствии с данным изобретением проводят обычно при давлении в
 25 области от 1 до 50 бар, предпочтительно 1-25 бар. Подача NH_3 -газа между реакционной зоной I и II, т.е. после реакционной зоны I и перед реакционной зоной II, происходит при помощи подходящего устройства, например, посредством соответствующего напорного клапана или соответствующим образом сконструированных форсунок.

Загруженный оксидами азота газ проводят обычно через катализатор с объемной
 30 скоростью $2\text{--}200000\text{ ч}^{-1}$, предпочтительно $5000\text{--}100000\text{ ч}^{-1}$ в расчете на добавляемый раствор катализатора обеих реакционных зон.

Содержание воды реакционных газов находится предпочтительно в области $<25\text{ об.}\%$, в частности, в области $<15\text{ об.}\%$. Обычно предпочтительным является низкое содержание
 35 воды.

Для восстановления NO_x во второй реакционной зоне II высокое содержание воды
 играет второстепенную роль, так как здесь уже при относительно низких температурах достигаются высокие скорости разложения NO_x .

В реакционной зоне I обычно предпочтительной является относительно низкая
 40 концентрация воды, так как очень высокое содержание воды делало бы необходимыми высокие рабочие температуры (например, $>500^{\circ}\text{C}$). Это могло бы в зависимости от применяемого типа цеолита и длительности процесса превысить гидротермические границы стабильности катализатора. Правда, здесь играет решающую роль
 NO_x -содержание, так как оно может повысить дезактивацию водой, как это описано в
 45 имеющей такой же приоритет заявке DE 10001540.9.

Также присутствие CO_2 , а также других дезактивирующих компонентов реакционного
 газа, которые известны специалисту, должны быть минимизированы, так как они влияли бы отрицательно на деструкцию N_2O .

Все эти факторы влияния, а также выбранную нагрузку на катализатор, т.е. объемную
 50 скорость, следует учитывать при выборе подходящей рабочей температуры реакционных зон. Специалисту известно влияние этих факторов на скорость деструкции N_2O , и он сможет учесть их в соответствии с его профессиональными знаниями.

Способ данного изобретения позволяет проводить деструкцию N_2O и NO_x при
 температурах $<500^{\circ}\text{C}$, предпочтительно при $<450^{\circ}\text{C}$ до Na , O_2 и H_2O , без образования

экологически опасных побочных продуктов, таких как, например, монооксид углерода, который, в свою очередь, должен был бы удаляться. Восстановитель NH_3 используют при этом для восстановления NO_x , а не для деструкции N_2O или лишь несущественно для деструкции N_2O .

5 Достигаемые с использованием данного способа превращения для N_2O и NO_x составляют >80%, предпочтительно >90%. Таким образом, этот способ в отношении его производительности, т.е. достигаемой степени превращения N_2O и NO_x , деструкции, а также в отношении производственных и инвестиционных затрат явно превосходит существующий уровень техники.

10 Данное изобретение объясняется при помощи следующего примера.

В качестве катализатора использовали загруженный железом цеолит типа Fe-ZSM-5. Получение катализатора Fe-ZSM-5 проводили при помощи ионообмена в твердой фазе с использованием коммерчески доступного цеолита в аммониевой форме (ALSI-PENTA, SM27) в качестве исходного продукта. Подробные данные для получения могут быть взяты
15 из: M.Rauscher, K.Kesore, R.Moninig, W.Schwieger, A.Tissler, T.Turek; Preparation of highly active Fe-ZSM-5 catalyst through solid state ion exchange for the catalytic decomposition of N_2O . in Appl. Catal. 184 (1999) 249-256.

Порошки катализатора кальцинировали в воздухе в течение 6 ч при 823K, промывали и сушили в течение ночи при 383K. После добавления соответствующих связующих веществ
20 проводили экструзию с получением цилиндрических частиц катализатора, которые разбивали до гранулята с величиной зерен 1-2 мм.

В качестве устройства для снижения содержаний NO_x и N_2O использовали два подключенных друг за другом трубчатых реактора, которые в каждом отдельном случае были заполнены таким количеством вышеописанного катализатора, что в расчете на
25 входящий газовый поток получали в каждом случае объемную скорость 10000 ч^{-1} . Между обеими реакционными зонами происходит добавление NH_3 -газа. Анализ входящего в устройство и выходящего из устройства газового потока проводили при помощи FTIR-газоанализаторов.

При входных концентрациях 1000 млн.д. N_2O , 1000 млн.д. NO_x , 2500 млн.д. H_2O и 2,5 об.% O_2 в N_2 и промежуточной подаче NH_3 при одинаковой рабочей температуре 400°C
30 получали приведенные в следующей таблице результаты превращения для N_2O , NO_x и NH_3 .

35

Таблица			
	Входная концентрация	Выходная концентрация	Превращение
N_2O	1000 млн.д.	3 9 млн.д.	96,1%
NO_x (x=1-2)	1000 млн.д.	7 8 млн.д.	92,2%
NH_3	1200 млн.д. *)	0 млн.д.	100%

*) добавляли между первой и второй реакционной зоной

40

Формула изобретения

1. Устройство для снижения содержания NO_x и N_2O в технологических газах и отходящих газах, включающее в себя по меньшей мере один распределенный на две реакционные зоны слой катализатора, содержащий один катализатор, который содержит
45 один или несколько загруженных железом цеолитов, причем первая реакционная зона служит для деструкции N_2O , а во второй реакционной зоне восстанавливается NO_x , и между первой и второй зонами находится устройство для введения NH_3 -газа.

2. Устройство по п.1, отличающееся тем, что в первой реакционной зоне и второй реакционной зоне применяют одинаковые катализаторы.

50 3. Устройство по п.1, отличающееся тем, что первая реакционная зона и вторая реакционная зона являются пространственно разделенными.

4. Устройство по п.1, отличающееся тем, что первая реакционная зона и вторая реакционная зона являются пространственно связанными одна с другой.

5. Устройство по любому из пп.1-4, отличающееся тем, что содержащийся или содержащиеся в катализаторе загруженные железом цеолиты являются цеолитами типа MFI, BETA, FER, MOR и/или MEL.

5 6. Устройство по любому из пп.1-5, отличающееся тем, что загруженный железом цеолит или загруженные железом цеолиты являются цеолитами типа MFI.

7. Устройство по любому из пп.1-6, отличающееся тем, что цеолит представляет собой Fe-ZSM-5.

8. Устройство по п.1, отличающееся тем, что катализатор включает загруженные железом цеолиты, в которых железо введено путем ионного обмена в твердой фазе.

10 9. Способ снижения содержания NO_x и N_2O в технологических и отходящих газах в присутствии катализатора, содержащего, по существу, один или несколько загруженных железом цеолитов, где на первой стадии в первой реакционной зоне пропускают газ, содержащий N_2O и NO_x , через катализатор при температуре от 350 до 500°C для удаления N_2O и полученный газовый поток пропускают дополнительно через катализатор из
15 железосодержащего цеолита на второй стадии во второй реакционной зоне, причем к газовому потоку перед его вводом во вторую реакционную зону добавляют NH_3 в количестве, достаточном для восстановления NO_x .

10. Способ по п.9, отличающийся тем, что в первой реакционной зоне и второй реакционной зоне применяют один и тот же катализатор.

20 11. Способ по п.9, отличающийся тем, что содержащийся или содержащиеся в катализаторе загруженные железом цеолиты являются цеолитами типа MFI, BETA, FER, MOR и/или MEL.

12. Способ по п.11, отличающийся тем, что загруженный железом цеолит является цеолитом типа MFI.

25 13. Способ по п.12, отличающийся тем, что цеолит представляет собой Fe-ZSM-5.

14. Способ по п.9, отличающийся тем, что катализатор включает загруженные железом цеолиты, в которых железо введено путем ионного обмена в твердой фазе.

15. Способ по любому из пп.9-14, отличающийся тем, что первая реакционная зона и вторая реакционная зона являются пространственно разделенными.

30 16. Способ по любому из пп.9-14, отличающийся тем, что первая и вторая реакционные зоны являются пространственно связанными одна с другой.

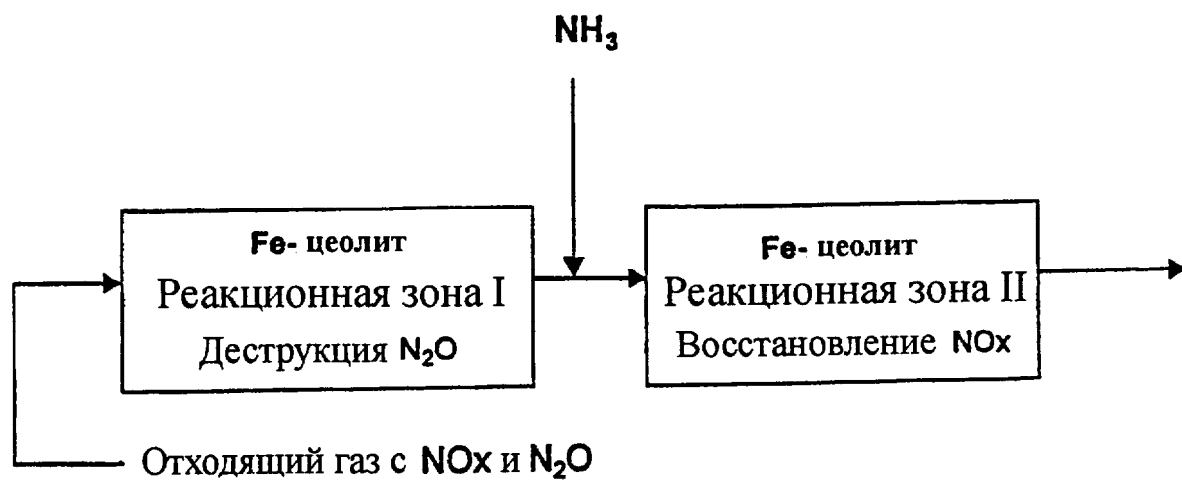
17. Способ по любому из пп.9-16, отличающийся тем, что этот способ проводят при давлении от 1 до 50 бар.

35

40

45

50



Фиг. 2