(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2009년08월06일
(11) 등록번호 10-0910932
(24) 등록일자 2009년07월30일

(51) Int. Cl.
B01D 53/56 (2006.01) *B01D 53/86* (2006.01)
(21) 출원번호 10-2004-7016069
(22) 출원일자 2003년03월21일
심사청구일자 2007년12월21일
(85) 번역문제출일자 2004년10월08일
(65) 공개번호 10-2004-0108710
(43) 공개일자 2004년12월24일
(86) 국제출원번호 PCT/EP2003/002958
(87) 국제공개번호 WO 2003/084646
국제공개일자 2003년10월16일
(30) 우선권주장
10215605.0 2002년04월09일 독일(DE)
(56) 선행기술조사문헌
JP평성09000884 A
WO199949954 A1
WO2002087733 A1
전체 청구항 수 : 총 9 항

(73) 특허권자
우데 게엠베하
독일 데-44141 도르트문트 프리드리히-우데-슈트라쎄 15
(72) 발명자
슈베퍼마인하르트
독일 59872 메쉐데 아우픔 우퍼 12
그로브스마이클
독일 45529 핫팅겐 이젠베르거 벡 12
(74) 대리인
이범래, 장훈

심사관 : 장성원

(54) 질소 산화물의 제거방법

(57) 요 약

본원에는 하나 이상의 질소 함유 환원제를 적어도 NO_x를 완전 환원시키는 데 필요한 양으로 NO_x- 및 N_2O-함유 가스에 첨가하는 단계(a),

탄화수소, 일산화탄소, 수소 또는 상기한 하나 이상의 가스의 혼합물을 NO_x- 및 N_2O-함유 가스에 첨가하여 N_2O를 환원시키는 단계(b) 및

가스 혼합물을 450℃ 이하의 온도에서, 하나 이상의 철 담지 제올라이트를 함유하는 하나 이상의 반응 영역에 도입하는 단계(c)를 포함하여, 가스, 특히 프로세스 가스 및 오프가스 중의 NO_x와 N_2O의 함량을 감소시키는 방법이 기재되어 있다.

본 발명의 방법은 발전소로부터의 오프가스 또는 가스 터빈에서 특히 질산을 생산하는 데 사용될 수 있다.

특허청구의 범위

청구항 1

하나 이상의 질소 함유 환원제를 NO_x를 완전 환원시키는 데 적어도 필요한 양으로 NO_x- 및 N_2O-함유 가스에 첨가하는 단계(a),

탄화수소 가스, 일산화탄소 가스, 수소 가스 또는 이들 가스 중의 하나 이상의 혼합물을 NO_x- 및 N_2O-함유 가스에 첨가하여 N_2O를 환원시키는 단계(b) 및

가스 혼합물을 450℃ 이하의 온도에서, 하나 이상의 철 담지 제올라이트를 함유하는 하나 이상의 반응 영역에 도입하는 단계(c)를 포함하여, 가스 중의 NO_x와 N_2O의 함량을 감소시키는 방법.

청구항 2

제1항에 있어서, 질소 함유 환원제가 암모니아임을 특징으로 하는, 가스 중의 NO_x와 N_2O의 함량을 감소시키는 방법.

청구항 3

제1항에 있어서, 반응 영역 또는 반응 영역들이 12개의 환으로 이루어진 채널을 갖는 철 담지 제올라이트를 함유함을 특징으로 하는, 가스 중의 NO_x와 N_2O의 함량을 감소시키는 방법.

청구항 4

제3항에 있어서, 철 담지 제올라이트의 모든 채널이 12개의 환으로 이루어짐을 특징으로 하는, 가스 중의 NO_x와 N_2O의 함량을 감소시키는 방법.

청구항 5

제4항에 있어서, 철 담지 제올라이트가 BEA 또는 FAU 유형의 제올라이트임을 특징으로 하는, 가스 중의 NO_x와 N_2O의 함량을 감소시키는 방법.

청구항 6

제1항에 있어서, 질소 함유 환원제가 암모니아이고, 에탄, 프로판, 부탄, 합성 가스 또는 LPG가 N_2O용 환원제로서 사용됨을 특징으로 하는, 가스 중의 NO_x와 N_2O의 함량을 감소시키는 방법.

청구항 7

제6항에 있어서, BEA 유형의 철 담지 제올라이트가 철 담지 제올라이트로서 사용됨을 특징으로 하는, 가스 중의 NO_x와 N_2O의 함량을 감소시키는 방법.

청구항 8

제1항에 있어서, NO_x와 N_2O의 함량이 감소되는 가스가 프로세스 가스 및 오프 가스(off gas)임을 특징으로 하는, 가스 중의 NO_x와 N_2O의 함량을 감소시키는 방법.

청구항 9

제6항에 있어서, 메탄이 N_2O용 환원제로서 사용됨을 특징으로 하는, 가스 중의 NO_x와 N_2O의 함량을 감소시키는 방법.

명 세 서

<1> 본 발명은 오프가스(offgas) 또는 프로세스 가스 중의 질소 산화물 함량을 감소시키는 방법에 관한 것이다.

<2> 여러 공정에서, 예를 들면, 연소 공정 또는 질산의 공업적 제조에서, 일산화질소 NO, 이산화질소 NO_2(이를 함께 NO_x라고 함) 및 아산화질소 N_2O가 적재된 오프가스가 형성된다. NO 및 NO_2가 생태독성적 관련성(산성비, 스모그 형성)이 있는 화합물로서 오래전부터 공지되어 세계적으로 이들의 최대 허용 방출치가 제한됨에 따라, 최근 아산화질소에 대해서도 점점 환경 보호에 초점을 두고 있는데, 그 이유는 아산화질소가 성층권 오존의 저하와 온실 효과에 상당히 기여하기 때문이다. 따라서, 환경 보호의 이유로, NO_x 방출과 함께 아산화질소 방출을 없앨 수 있는 기술적 해결책이 시급하게 요구되고 있다.

<3> N_2O와 NO_x를 별도로 제거하는 다수의 가능한 방법이 있으며, 이들은 2단계 공정으로 적절하게 조합할 수 있다.

<4> 유럽 공개특허공보 제393,917호에는, 암모니아 및 선택된 제올라이트 촉매에 의해 가스로부터 질소 산화물을 제거할 수 있다고 공지되어 있다. 그러나, 상기 문헌에는 암모니아에 의해 NO_x가 감소되는 것만 기재되어 있다. 제안된 제올라이트는 타입 USY, 베타 및 ZSM-20이며, 이들은 기공이 크고 특정 이산화규소:산화알루미늄 비를 갖는다.

<5> 문헌(참조; Chem. Commun. 2000, 745-6)에는, 과량의 산소와 베타 유형의 철 담지 제올라이트(BEA)의 존재하에서 메탄에 의해 촉매적으로 NO_2가 선택적으로 감소될 수 있는 것으로 공지되어 있다.

<6> 일본 공개특허공보 제09/000,884호에는 암모니아, 알콜 및/또는 탄화수소를 환원제로서 사용하고 펜타실 또는 모르데나이트 유형의 제올라이트를 촉매로서 사용하여 N_2O와 NO의 함량을 감소시키는 방법이 기재되어 있다.

<7> 이러한 선행 기술로부터 시작하여, 본 발명은 낮은 작동 온도에서 NO_x 제거 및 N_2O 제거 둘 다에 대해 탁월한 전환을 제공하는 간단하면서도 매우 경제적인 방법을 제공한다.

<8> 놀랍게도, NO_x-함유 가스로부터 N_2O를 감소시키는 데 있어서, NO_x는 N_2O의 제거에 대해 억제 효과를 가지며, NO_x가 완전히 감소될 경우에 N_2O의 저하도 향상되는 것으로 밝혀졌다.

<9> 본 발명은

<10> 하나 이상의 질소 함유 환원제, 특히 암모니아를 NO_x를 완전 환원시키는 데 적어도 필요한 양으로 NO_x- 및 N_2O-함유 가스에 첨가하는 단계(a),

<11> 탄화수소 가스, 일산화탄소 가스, 수소 가스 또는 이들 가스 중의 다수의 혼합물을 NO_x- 및 N_2O-함유 가스에 첨가하여 N_2O를 환원시키는 단계(b) 및

<12> 가스 혼합물을 450℃ 이하의 온도에서, 하나 이상의 철 담지 제올라이트, 바람직하게는 12개의 환으로 이루어진 채널을 함유하는 철 담지 제올라이트, 특히 모든 채널이 12개의 환으로 이루어진 철 담지 제올라이트, 매우 특히 바람직하게는 BEA 또는 FAU 유형의 철 담지 제올라이트를 함유하는 하나 이상의 반응 영역에 도입하는 단계(c)를 포함하여, 가스, 특히 프로세스 가스 및 오프가스 중의 NO_x와 N_2O의 함량을 감소시키는 방법을 제공한다.

<13> 본 발명의 방법을 수행하기 위해, 먼저 N_2O- 및 NO_x-함유 가스를 질소 함유 환원제 및 탄화수소 또는 일산화탄소 및/또는 수소와 혼합한 다음 450℃ 이하의 온도에서 철 담지 제올라이트(들)에 통과시켜, 각각의 경우에, 환원에 의해 N_2O 및 NO_x를 제거한다.

<14> 본 발명의 방법의 단계(a)에 따라, 질소 함유 환원제를 적어도 NO_x를 완전 환원시키는 데 필요한 양으로 가한다. 본 발명의 목적을 위해, NO_x를 완전 환원시키는 데 필요한 질소 함유 환원제의 양은 가스 혼합물 중의 NO_x의 비율을 10ppm 미만, 바람직하게는 5ppm 미만, 특히 1ppm 미만의 잔류량으로 되도록 감소시키는 데 필요한 질소 함유 환원제의 양이다.

<15> 질소 함유 환원제로서는, NO_x를 환원시킬 수 있는 어떠한 화합물이라도 사용 가능하다. 이러한 환원제의 예는 질소의 수소 화합물, 예를 들면, 아잔, 아잔의 하이드록실 유도체 및 아민, 옥심, 카바메이트, 우레아 또는 우레아 유도체이다.

<16> 아잔의 예는 하이드라진, 특히 암모니아이다.

<17> 아잔의 하이드록실 유도체의 예는 하이드록실아민이다.

<18> 아민의 예는 1급 지방족 아민, 예를 들면, 메틸아민이다.

<19> 카바메이트의 예는 암모늄 카바메이트이다.

<20> 우레아 유도체의 예는 N,N'-치환된 우레아, 예를 들면, N,N'-디메틸 우레아이다. 우레아 및 우레아 유도체는 수용액의 형태로 사용하는 것이 바람직하다.

<21> 본 발명의 방법의 단계(b)에 따라, 탄화수소, 일산화탄소 및/또는 수소를 가하여 N_2O를 환원시킨다. 이러한 환원제는 N_2O를 환원시키는 데 필요한 양으로 첨가한다. 본 발명의 목적을 위해, 이는 가스 혼합물 중의 N_2O를 완전히 환원시키거나 목적하는 최종 농도로 환원시키기 위해 필요한 환원제의 양을 의미한다.

<22> 일반적으로, 반응 영역의 온도는 200 내지 450℃, 바람직하게는 250 내지 450℃이다.

<23> NO_x와 N_2O의 함량을 감소시키는 것은, 필수적으로 하나 이상의 철 담지 제올라이트로 이루어진 단일 촉매의 존재하에서 수행하는 것이 바람직하다.

<24> 하나 이상의 상이한 제올라이트 촉매를 사용하는 경우, 이들을 서로 혼합하거나 직렬로 배열할 수 있다. 후자의 배열은 입구 근처의 제올라이트가 특히 질소 함유 환원제에 의한 NO_x 환원을 촉매하고/하거나 출구 근처의 제올라이트가 특히 N_2O 환원을 촉매하는 경우에 특히 유리하다.

<25> 이러한 방식으로, 제1 제올라이트 영역에서의 NO_x 함량을 특히 신속하고 완전하게 감소시킬 수 있어, 후속의 제올라이트가 N_2O를 환원시키는 기능을 충분히 완수할 수 있는데, 그 이유는 N_2O 환원에 불리한 영향을 미치는 NO_x가 제2 영역으로 도입되기 전에 완전히 제거되기 때문이다.

<26> NO_x를 위해 본 발명에 사용되는 환원제는 질소 함유 환원제, 특히 암모니아이며, N_2O에 사용되는 환원제는 탄화수소, 수소, 일산화탄소 또는 이의 혼합물, 예를 들면, 합성 가스이다.

<27> N_2O를 환원시키기 위해 첨가되는 환원제의 양은 필수적으로 목적하는 N_2O 제거도 및 사용되는 환원제의 유형에 따라 좌우된다. 메탄 또는 프로판과 같은 탄화수소가 사용되는 경우, 필요량은 환원시키고자 하는 N_2O 1몰당 탄화수소 약 0.2 내지 1몰이다. 환원시키고자 하는 N_2O 1몰당 탄화수소 0.2 내지 0.7몰, 특히 환원시키고자 하는 N_2O 1몰당 탄화수소 0.2 내지 0.5몰의 양이 바람직하다.

<28> 이러한 양은 문헌(참조; 일본 공개특허공보 제90/00,884호의 도 4)에 보고된 다른 값에 비해 매우 작다. 그럼에도 불구하고 높은 N_2O 제거도가 성취된다는 사실은, 본 발명에 따라 제공되는 바와 같이, NO_x의 완전 환원에 의해 설명될 수 있다. 이것이 본 발명의 방법의 두드러진 잇점인데, 그 이유는 특히 높은 N_2O 제거도에서 공정의 경제성은 첨가되는 환원제의 비용에 민감하기 때문이다.

<29> 물론, 사용되는 환원제의 양에 대해 언급한 것은 단지 제거하고자 하는 질소 산화물의 환원이 다른 제약, 예를 들면, 동적 제약(kinetic constraint)을 받지 않는 경우에만 적용된다. 이러한 제약은 당업자들에게 공지되어 있다. 따라서, 소정의 산화환원 반응은 항상 반응기 베드(reactor bed)에서 특정한 최소 온도 및 최소 체류 시간을 필요로 한다. 따라서, NH_3에 의한 NO_x의 환원이 매우 신속하게 진행되어, 200℃ 정도로 낮은 온도에서 높은 공간 속도(> $50,000h^{-1}$)에서도 반응의 동적 제약이 극복되는 반면에, 예를 들면, 메탄을 사용한 N_2O의 환원은 상당히 높은 온도(>300℃)와 낮은 공간 속도(약 $10,000h^{-1}$)에서만 완료된다.

<30> 그러나, 본 발명의 방법에서도 온도에 대한 상한이 있다. 따라서, 지나치게 높은 온도(>450℃)는 오프가스 중에 존재하는 산소에 의한 첨가된 환원제의 부분 산화에 영향을 미쳐, 환원제가 더 이상 NO_x와 N_2O를 환원시키는 데 이용될 수 없도록 한다. 이는 특히 첨가되는 질소 함유 환원제에 적용된다. 이에 따라, NO_x의 환원이 더 이상 완전하지 않아, N_2O 환원도 억제되는 결과가 초래된다.

<31> N_2O에 대해 특히 바람직한 환원제는 포화 탄화수소 또는 이의 혼합물, 예를 들면, 메탄, 에탄, 프로판, 부탄, 합성 가스 또는 LPG이다.

<32> 메탄이 매우 특히 바람직하다. 이는, 특히, BEA 유형의 철 담지 제올라이트와 함께 사용된다.

<33> 질소 함유 환원제의 첨가량은, NO_x를 완전 환원시키기에 충분하도록 선택해야 한다. 암모니아의 경우, NO_x의 완전 환원을 위한 화학양론적 필요량은 NO_x 1몰당 암모니아 1.33(8/6)몰이다. 압력이 증가하거나 반응 온도가 감소할 경우, NO_x의 완전 제거에 필요한 암모니아의 양은 상기한 1.33몰에서 0.9몰로 낮아지는 것으로 밝혀졌다. 또한, 더 적은 양의 암모니아가 N_2O 환원에 소모될 수 있어, 때때로 상응하게 많은 양(예를 들면, NO_x 1몰당 암모니아 1.5몰 이하)의 암모니아가 NO_x의 완전 환원에 사용되어져야 한다.

<34> 사용되는 촉매는 앞서 정의한 철 담지 제올라이트 또는 철 담지 제올라이트의 혼합물이다.

<35> 놀랍게도, NO_x가 완전히 환원된 경우에는 이러한 촉매에 의해 N_2O의 환원이 매우 효과적으로 수행될 수 있는 것으로 밝혀졌다.

<36> 상기한 공정 조건하에서, 질소 함유 환원제는 주로 NO_x용 환원제로서 작용하고, 탄화수소, 일산화탄소 및/또는 수소는 선택적으로 가스 중에 존재하는 N_2O를 감소시키는 역할을 한다.

<37> 반응 영역의 형태는 본 발명에 목적을 위해 자유롭게 선택할 수 있다. 이는, 예를 들면, 튜브형 반응기 또는 방사상 바스켓형 반응기에 위치할 수 있다. 기상 환원제가 처리하고자 하는 가스 스트림에 도입되는 방법도, 이것이 반응 영역의 상향 유동 방향으로 있는 한, 본 발명의 목적을 위해 자유롭게 선택할 수 있다. 이는, 예를 들면, 촉매 베드를 위한 용기의 상향 내부선에서 또는 베드 바로 앞에서 수행할 수 있다. 환원제는 가스의 형태 또는 처리하고자 하는 가스 스트림에서 증발하는 액체 또는 수용액의 형태로 도입될 수 있다.

<38> NO_x 및 N_2O를 위한 환원제의 첨가 순서는 자유롭게 선택할 수 있다. 따라서, 단계(a)와 단계(b)의 순서는 바뀔 수 있거나 두 가지 유형의 환원제를 1단계로 도입할 수 있다.

<39> 본 발명의 목적을 위해 사용되는 촉매는 당업자들에게 공지되어 있으며, 자체 공지된 첨가제, 예를 들면, 결합제를 함유할 수 있다.

<40> 하나 이상의 탄화수소, 바람직하게는 CH_4 또는 C_3H_8, 및 CO 및 H_2로 이루어진 그룹으로부터 반응하지 않은 물질 또는 부분 산화된 물질을 산화하기 위한 촉매 또는 촉매 성분을 촉매에 통합시키거나 이의 다운스트림에 위치시키거나 다른 방법으로 이에 결합시킬 수 있다.

<41> 본 발명에 따라 사용되는 촉매는 바람직하게는, 고체상 이온 교환에 의해 철이 도입되어 있는 제올라이트를 기본으로 한다. 이러한 목적을 위해, 시판 암모늄 제올라이트 및 적당한 철염(예를 들면, $FeSO_4 \times 7H_2O$)으로부터 시작하여 이들을 실온에서 볼 밀 속에서 기계적 수단에 의해 서로 철저히 혼합시키는 것이 통상적이다(문헌 참조; Turek et al., Appl. Catal. 184, (1999) 249-256; 유럽 공개특허공보 제0 955 080호). 상기한 공보들은 본원에 참고로 인용되어 있다. 이어서, 수득된 촉매 분말을 머플로에서 400 내지 600℃의 온도로 공기중 소성시킨다. 소성시킨 후, 철 함유 제올라이트를 증류수로 철저히 세척하여 여과하고 건조시킨다. 이러한 방법으로 수득된 철 함유 제올라이트를 최종적으로 적당한 결합제로 처리하여 혼합하고, 예를 들면, 압출시켜 실린더형 촉매체를 형성한다. 적당한 결합제는 통상적으로 사용되는 모든 결합제이며, 이들 중 가장 빈번하게 사용되는 것은 카올린과 같은 알루미늄 실리케이트이다.

<42> 본 발명에 따라, 사용될 수 있는 제올라이트에 철을 담지한다. 제올라이트의 질량을 기초로 한 철 함량은 25% 이하, 바람직하게는 0.1 내지 10%(철을 Fe_2O_3로서 계산함)이다.

<43> 이들 제올라이트의 구성 및 구조에 대한 정확한 세부 사항은 본원에 참고로 인용되어 있는 문헌(참조; the Atlas of Zeolite Structure Types, Elsevier, 4th revised Edition 1996)에 제시되어 있다.

<44> 본 발명에 따라 특히 바람직한 제올라이트는 FAU 유형의 제올라이트, 특히 BEA 유형의 제올라이트이다.

<45> 질소 산화물이 적재된 가스를, 촉매 용적을 기준으로 하여, 통상적으로 200 내지 200,000h^{-1}, 5,000 내지

100,000h^{-1}의 공간 속도에서 촉매에 통과시킨다.

<46> 여기서, 공간 속도는 시간당 가스 혼합물의 용적을 촉매의 용적으로 나눈 것이다. 따라서, 공간 속도는 가스의 유량 및/또는 촉매의 양을 통해 조절할 수 있다.

<47> 본 발명의 방법은 일반적으로 1 내지 50bar, 바람직하게는 1 내지 25bar의 압력에서 수행하며, 보다 높은 작동 압력을 사용하면 환원제 소모, 부산물 형성 및 누출을 줄일 수 있다.

<48> 처리하고자 하는 가스에 환원제를 도입하는 것은 적당한 장치에 의해, 예를 들면, 적당한 압력 밸브 또는 적당하게 성형된 노즐에 의해 수행한다.

<49> 반응 가스의 수분 함량은 바람직하게는 < 25용적%, 특히 < 15용적%이다.

<50> 일반적으로, 수분 농도가 비교적 낮은 것이 바람직한데, 그 이유는 수분 함량이 높을수록 필요한 작동 온도가 높아지기 때문이다. 이는 사용되는 제올라이트 유형 및 작동 시간에 따라 촉매의 열수 안정성 한계를 초과할 수 있으므로 각각의 경우에 부합되도록 선택해야 한다.

<51> 또한, 경우에 따라, CO_2의 존재 및 당업자들에게 공지된 반응 가스의 기타의 불활성 구성분의 존재를 최소화해야 하는데, 그 이유는 이들이 N_2O 및 NO_x를 제거하는 데 불리한 영향을 미치기 때문이다.

<52> 본 발명의 방법은 O_2의 존재하에서도 수행할 수 있는데, 그 이유는 본 발명에 따라 사용되는 촉매가 < 450℃의 온도에서 기상 환원제, 예를 들면, NH_3와 O_2와의 반응을 억제하는 적당한 선택성을 갖기 때문이다.

<53> 반응 영역의 적당한 작동 온도를 선택하는 데 있어서 상기한 영향 인자 및 촉매에 대해 선택된 공간 속도를 고려해야 한다.

<54> 낮은 작동 온도에서 본 발명의 방법을 사용하여 성취할 수 있는 N_2O 및 NO_x의 전환도는 NO_x의 경우 거의 100%이고, N_2O의 경우 바람직하게는 > 70%, 특히 > 80%이다. 따라서, 본 발명의 방법은 이의 성능, 즉 성취 가능한 N_2O 및 NO_x 전환도 측면에서 그리고 경영비 및 자본 비용과 관련하여 선행 기술보다 우수하다.

<55> 거의 완전한 NO_x 환원의 결과로, 특히 높은 N_2O 제거도가 달성되며 N_2O용 환원제의 소모도 놀랍도록 낮은 것이 본 발명의 잇점이다.

<56> 본 발명의 방법은 발전소로부터의 오프가스 또는 가스 터빈에서 특히 질산을 생산하는 데 사용할 수 있다. 질소 산화물을 함유하는 프로세스 가스 또는 오프가스는 이러한 공정에서 수득되며, 본원에 기재된 방법에 의해 이러한 가스로부터 질소 산화물을 저렴하게 제거할 수 있다.

<57> 본 발명의 방법의 한 가지 양태에서, CH_4와 NH_3의 혼합물을 질소 산화물을 포함하는 가스에 혼합하여 이들 둘을 BEA 유형의 철 담지 제올라이트를 함유하는 반응기에 함께 공급하여 질소 산화물을 제거한다. 정제된 오프가스는 대기로 방출한다. 메탄과 암모니아를 사전 혼합하는 대신, 가스를 반응기에 도입하기 전에 질소 산화물 함유 가스에 별도로 도입할 수도 있다.

<58> 실시예

<59> 후술하는 실험은 실험실 규모로 설정하여 수행하였으며, 본 발명을 예시하기 위한 것이다.

<60> 사용되는 촉매는 입자 크기가 0.7 내지 1.4mm인 과립으로서 사용되는 BEA 유형의 철 담지 제올라이트 촉매이다.

<61> 하기 실시예에서 N_2O 함량을 감소시키기 위한 장치로서, 유입되는 가스 스트림을 기초로 하여 공간 속도가 10,000h^{-1}로 되도록 하는 양으로 상기한 촉매가 충전되어 있는 튜브형 반응기를 사용하였다. 반응기 입구에서의 가스 온도는 가열에 의해 340℃로 설정하였다. 장치로 유입되는 가스 스트림과 유출되는 가스 스트림을 FTIR 가스 분석기를 사용하여 분석하였다.

<62> 처리하고자 하는 가스 혼합물의 조성은 다음과 같다:

<63> N_2O 1500ppm; NO_x 600ppm; O_2 2.5용적%, N_2 중의 H_2O 0.4%.

<64> 가스 스트림이 촉매 베드로 도입되기 전에, 암모니아와 메탄 또는 프로판을 첨가하였다.

<65> 첨가되는 환원제의 양에 따라, 하기 잔류 농도의 N_2O와 NO_x가 반응기 출구에서 수득되었다:

표 1

<66>

실시예	첨가되는 NH_3의 양	첨가되는 CH_4의 양	첨가되는 C_3H_8의 양	잔류 N_2O 농도	잔류 NO_x 농도
1	700ppm	450ppm	-	897ppm	16ppm
2	800ppm	450ppm	-	25ppm	0ppm
3	500ppm	-	500ppm	425ppm	26ppm
4	600ppm	-	500ppm	129ppm	2ppm

<67> 상기 표 1로부터 알 수 있는 바와 같이, 실시예 2와 4의 경우처럼 NH_3를 첨가하여 NO_x의 환원을 완료하는 경우에는 높은 N_2O 제거도가 성취되었다. 실시예 1과 3에 나타나 바와 같이, NO_x 잔류 농도가 낮다 하더라도 N_2O의 제거가 억제된다.

<68> 따라서, 본 발명의 방법은 낮은 온도에서 높은 N_2O와 NO_x 제거도를 성취한다. 이에 따라, 본 발명은 일본 공개특허공보 제90/00,884호에 기재된 바와 같은 선행 기술보다 상당히 우수하다. 상기 특허 문헌에는 450℃의 상당히 높은 온도에서 N_2O 제거도가 단지 약 60 내지 80%인 것으로 보고되어 있다.