

Близнюк О.Н., Клещев Н.Ф., Огурцов А.Н.

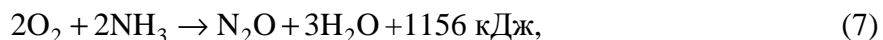
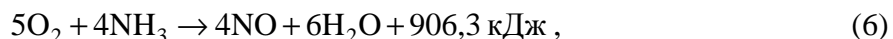
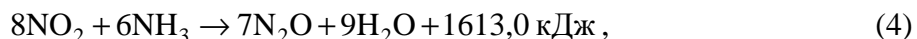
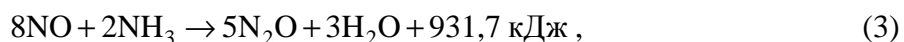
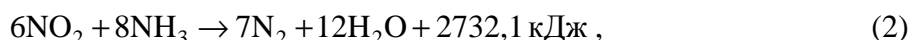
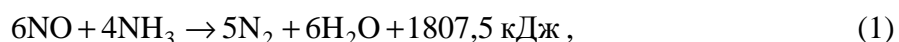
ОПТИМИЗАЦИЯ ПРОЦЕССА СЕЛЕКТИВНОГО НИЗКОТЕМПЕРАТУРНОГО ВОССТАНОВЛЕНИЯ N₂O АММИАКОМ. МОДИФИКАЦИЯ ОКСИДНОЙ КАТАЛИТИЧЕСКОЙ СИСТЕМЫ

Постановка и актуальность задачи. На долю химической промышленности приходится менее 5 % выбросов оксидов азота, но в силу сосредоточенности и непрерывности выбросов наносимый от них вред весьма велик. Из всех известных оксидов азота N₂O оказывает наиболее сильное воздействие на окружающую среду, вызывает парниковый эффект, является в 300 раз более сильным парниковым газом, разрушающе действующим на защитный озоновый слой, по сравнению с CO₂. Негативная роль N₂O в разрушении озонового слоя и создании парникового эффекта наряду с CO₂ и CH₄, инициировали дополнительные исследования в области разработок более эффективных катализаторов процесса селективного восстановления N₂O аммиаком с целью минимизации его содержания в выхлопных газах [1–3].

Наиболее предпочтительным является каталитический способ очистки от закиси азота, характеризующийся низкими энергетическими и материальными затратами.

Экономическая эффективность очистки от NO_x отходящих газов азотно-кислотных установок селективным восстановлением аммиаком определяется количеством газа-восстановителя, а также стоимостью применяемого катализатора. Согласно данным, полученным на агрегате УКЛ-7, содержание N₂O в неочищенном и в очищенном хвостовом газе после реактора низкотемпературной каталитической очистки, почти одинаково, иногда даже выше, чем до очистки, но уменьшается при прохождении газа через экономайзер, так как N₂O разлагается при высоких температурах. Из этого следует, что ни на одном применяемом низкотемпературном катализаторе разложения N₂O не происходит.

При низкотемпературном восстановлении NO_x аммиаком протекают реакции:



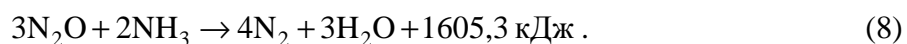
из которых реакции (5–7) протекают в присутствии кислорода.

Термодинамически наиболее вероятны реакции (1) и (2). Но с ростом температуры вероятность протекания реакций (3)–(7) возрастает, а реакций (1) и (2) – уменьшается. Значения изобарно-изотермических потенциалов для перечисленных реакций отрицательны и малы, что указывает на важную роль диффузионных и кинетических факторов в процессе очистки выхлопных газов. При температурах выше 750 °С процесс

протекает в диффузионной области, при низких температурах (до 350 °С) – в кинетической области, при 350–750 °С – в переходной области.

В настоящей работе систематизированы результаты разработки и исследования катализаторов, уменьшающих количество N₂O, после реактора селективной каталитической очистки (PCO).

Результаты и обсуждение. Процесс низкотемпературного восстановления N₂O аммиаком протекает по реакции



Согласно [8], для гетерогенных каталитических реакций с участием N₂ зависимость удельной каталитической активности от теплоты взаимодействия кислорода с катализатором q_s выражается характерной кривой с максимумом вблизи $\Delta H/2$, где ΔH – тепловой эффект катализируемой реакции. Условия оптимума: $(q_s)_{\text{опт.}} = \Delta H/2$. Подбор катализаторов селективного восстановления N₂O аммиаком осуществлялся исходя из предположения, что механизм реакции окисления NH₃ кислородом при низких температурах близок к механизму окисления NH₃ закисью азота. Энергетические характеристики O₂, N₂O, NO приведены в табл. 1.

Таблица 1 – Энергетические характеристики окислителей

Наименование окислителя	O ₂	NO	N ₂ O
Средний диаметр молекулы, Å	2,98	3,0	1,184
Средняя скорость молекулы, м/с	425,1	439,0	410
Средняя длина свободного пробега молекулы	647	570	520
Среднее число столкновений в секунду, с ⁻¹	6,57·10 ⁹	7,7·10 ⁹	54,5·10 ⁹
Энергия диссоциации, ккал/моль	117,3	121,8	59,0
Межатомное расстояние, Å	1,2076	1,1500	1,128
Энергия связи, кДж	490,78,2	627,6,0	689,5
Энергия ионизации, кДж/моль	1165,24	893,28	531,5

Величины энергии связи кислорода с поверхностью оксидных катализаторов в реакциях восстановления N₂O и NO аммиаком (окисления аммиака оксидами N₂O и NO) и окисления NH₃ кислородом при низких температурах имеют близкие значения. В результате расчета получены следующие значения: $q_s = 150,625$ кДж/моль NO – для реакции (1), $q_s = 267,55$ кДж/моль N₂O – для реакции (8). Следовательно, можно предположить, что оптимальными катализаторами для восстановления NO и N₂O аммиаком должны быть катализаторы с данными или близкими к ним значениями q_s . Полученная зависимость удельной активности катализатора от энергии связи кислорода с поверхностью оксидных катализаторов показана на рис. 1. Точки приведенных оксидов укладываются на вулканообразной кривой A– q_s , поэтому эти катализаторы можно считать однотипными катализаторами восстановления оксидов азота аммиаком.

С увеличением соотношения NH₃ : NO и NH₃ : N₂O (по реакциям (1) и (8)) уменьшается степень использования NH₃, что, в свою очередь, повышает стоимость очистки промышленных отходящих газов от NO и N₂O. При большом избытке NH₃ сверх стехиометрии создаются условия для образования N₂O по реакциям (3), (4) и (7).

В процессе восстановления NO_x аммиаком возможно образование определенно-

го количества N_2O по реакциям (3), (4) и (5), причем в среде, не содержащей O_2 , количество образующейся N_2O значительно меньше, чем в среде, содержащей O_2 . Это позволяет сделать предварительный вывод, что в отходящих газах основное количество N_2O в реакторе каталитической очистки образуется по реакции (7).

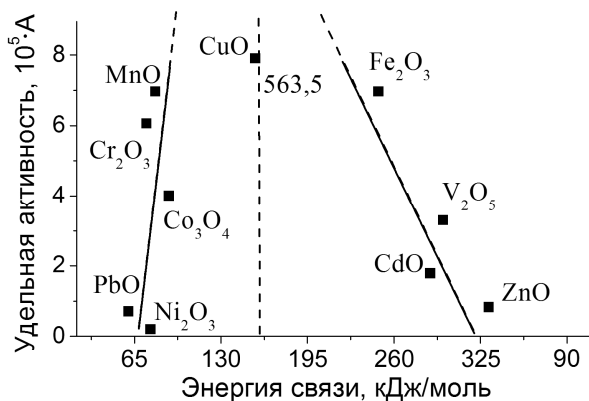


Рисунок 1 – Зависимость удельной каталитической активности A оксидных катализаторов от q_s – энергии связи кислорода с поверхностью [8]

На основе наших предположений о связи каталитической активности оксидов металлов с величинами q_s в реакции восстановления N_2O аммиаком и согласно принципу энергетического соответствия оптимальным катализатором реакции восстановления NO аммиаком является CuO ($q_s \sim 142,8$ кДж/моль), а для реакции восстановления N_2O – оксид железа Fe_2O_3 ($q_s \sim 268,1$ кДж/моль). Активность остальных катализаторов уменьшается с увеличением отклонения от оптимального значения q_s .

Исследования катализаторов проводились при объемной скорости газа $V = 10\,000$ час⁻¹, температуре 250–280 °С, $NH_3 : N_2O = 1,0-1,5$. В качестве катализаторов в процессе восстановления N_2O аммиаком в соответствии с реакцией (8) исследованы: Co_3O_4 , Fe_2O_3 , Cr_2O_3 , V_2O_5 , Ni_2O_3 , MgO , ZnO , CuO . Исследования проводились при $C(O_2) = 0,1 \div 3,0$ об. %, $C(N_2O) = 0,05 \div 0,06$ об. %, $C(NH_3) = 0,033 \div 0,04$ об. %, $V = 10\,000$ час⁻¹. Катализаторы на основе оксидов готовились осаждением смеси серно-кислых и азотнокислых солей аммиаком с последующим промыванием, высушиванием, прокаливанием и таблетированием при 250–300 °С. Таблетки дробились и просеивались через сито с диаметром отверстий 2 мм. В реактор дозировалось заданное количество N_2O и NH_3 . Газ-носитель азот, содержащий 0,1–0,5 или до 5 об. % O_2 . Дозировка определенного количества N_2O и O_2 производилась добавлением рассчитанного количества N_2O и воздуха в баллон с N_2 . Результаты исследований, приведенные в табл. 2, показывают, что самыми активными в реакции восстановления N_2O аммиаком являются оксиды Co , Fe , V , Mn , Cr и Mg .

Дальнейшие исследования по подбору катализатора восстановления N_2O аммиаком проводили на смешанных контактах, в которых за основу был взят Fe_2O_3 . Поскольку восстановление NO_x контролируется санитарными и природоохранными службами, предстояло установить допустимые интервалы варьирования технологических факторов, обеспечивающих предельно допустимую концентрацию NO_x в выбрасываемых газах, а затем в рамках полученных значений факторов исследовать их влияние на восстановление N_2O . Исследовалось влияние температуры, объемной скорости газа, количества подаваемого NH_3 на восстановление.

Таблиця 2 – Селективність оксидов металлов в реакції восстановления N_2O амміаком

Оксид	T, °C	β_{N_2O}	Оксид	T, °C	β_{N_2O}
Fe_2O_3	250	77,5	ZnO	220	35,0
V_2O_5	240	70,5	CaO	280	42,0
Cr_2O_3	300	64,0	Al_2O_3	250	38,0
MnO_2	180	55,0	TiO_2	250	35,0
Ni_2O_3	320	30,0	ZrO_2	320	35,0
CuO	220	45,0	WO_2	350	57,0
Co_3O_4	200	78,0	MgO	290	67,0

Первоначально был испытан оксидный катализатор состава Fe_2O_3 – 93 масс. %, Cr_2O_3 – 7,0 масс. %. Результаты исследований, приведенные в табл. 3, показывают, что селективность Fe-Cr-O катализатора в реакции восстановления N_2O амміаком в отсутствие O_2 относительно высокая и составляет ~ 85,0% при T = 523–573 K.

Таблиця 3 – Результаты исследования процесса восстановления оксида азота (I) амміаком на Fe-Cr-O катализаторе

T, K	V, час ⁻¹	β_{N_2O} , %	O_2 , об. %	T, K	V, час ⁻¹	β_{N_2O} , %	O_2 , об. %
470	10 000	84,9	–	470	20 000	82,0	0,5
520	10 000	85,5	–	520	20 000	82,5	0,5
570	10 000	85,0	–	570	20 000	82,5	0,5
620	10 000	84,8	–	620	20 000	80,5	0,5
470	10 000	84,0	0,1	470	30 000	70,0	3,0
520	10 000	85,0	0,1	520	30 000	70,5	3,0
570	10 000	83,7	0,1	570	30 000	70,0	3,0
620	10 000	83,8	0,1	520	30 000	68,5	3,3

С увеличением содержания O_2 в смеси от 0,1 до 3,0 об. % степень восстановления N_2O амміаком уменьшается от ~ 84,0% до ~ 70; оптимальный режим: объемная скорость 10 000 час⁻¹, 520 K, O_2 – 0,1 об. % [4]. Результаты исследований степени восстановления N_2O амміаком на Fe-Cr-O катализаторе в зависимости от содержания Cr_2O_3 при температурах 230, 250, 270°C и составе смеси, об. %: N_2O (0,06), NH_3 (0,04), приведенные на рис. 2(а), показывают, что на катализаторе Fe-Cr-O степень восстановления β_{N_2O} максимальна при содержании 3,5–4,0 масс. % Cr_2O_3 . Поэтому дальнейшие исследования процесса восстановления N_2O амміаком проводили на катализаторе, содержащем Cr_2O_3 3,5 масс. %. С целью дальнейшего повышения селективности Fe-Cr-O в реакции восстановления N_2O амміаком были проведены исследования на системе Fe-Cr-Mg-O.

Катализатор готовили осаждением сернокислого железа $FeSO_4 \cdot 7H_2O$ амміаком с добавлением Cr_2O_3 и MgO. Исследования проводились при следующих условиях: NH_3 : N_2O – в соответствии со стехиометрией реакции (8), состав смеси, об. %: N_2O (0,1–0,15), NH_3 (0,07–0,1). Температура поддерживалась 240–280 °C (~270 °C). Определена

зависимость степени восстановления N_2O от содержания добавки MgO (1,0; 2,0; 3,0; 4,0, 5,0 масс. %) при содержании Cr_2O_3 – 3,5 масс. %. Результаты исследований, приведенные на рис. 2, показывают, что при соотношении компонентов меньше или больше стехиометрического на 50 об. %, наряду с восстановлением протекает процесс образования N_2O при 240–290 °С. При дефиците аммиака преобладает образование N_2O во всем диапазоне исследованных температур. Как видно из рис. 2 высокая степень восстановления N_2O аммиаком наблюдается при 250–270 °С и содержании добавки MgO ~ 1,0–1,5 масс. % и Co_3O_4 ~ 2,0–2,5 масс. %. На катализаторе с добавками Mn степень восстановления N_2O аммиаком ниже, чем на катализаторах с добавками Mg . В результате исследования большого количества систем с различным соотношением компонентов была выбрана композиция $Fe-Cr-Co-Mg-O$.

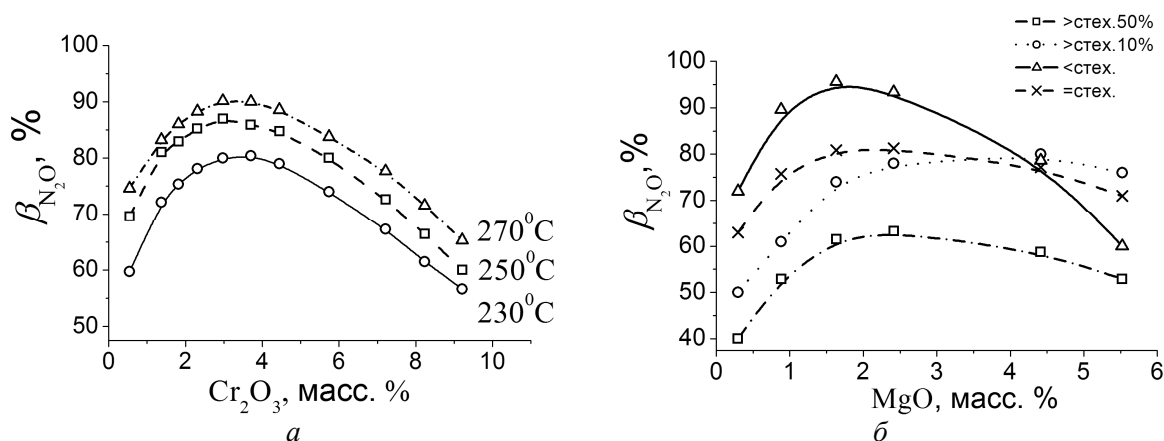


Рисунок 2 – Зависимость степени восстановления β_{N_2O} : а – на $Fe-Cr-O$ катализаторе в зависимости от содержания Cr_2O_3 ; б – на катализаторе $Fe-Cr-Mg-O$ в зависимости от содержания MgO ; $V = 10\ 000\ \text{час}^{-1}$

Блочные катализаторы сотовой структуры (ячеистое строение с параллельными каналами определенной геометрии и с тонкими разделяющими стенками между ними) обладают рядом уникальных свойств: значительная однородность геометрической структуры, максимальное соотношение поверхности к объему, низкое гидравлическое сопротивление, а также высокая механическая прочность и термостабильность. Поэтому были проведены исследования на разработанном, показавшем наибольшую активность и селективность катализаторе $Fe-Cr-Co-Mg-O$, изготовленным в виде блочного сотовой структуры по разработанной технологии. Катализатор испытан в лабораторных условиях – в форме вырезанных под диаметр реактора цилиндров.

Проведены сравнительные испытания селективности промышленного и разработанного катализаторов, которая рассчитывалась следующим образом: $\gamma, (\%) = 100 \cdot ([NO]_{\text{восст.}} - [N_2O]) / [NO]_{\text{восст.}}$, где $[NO]_{\text{восст.}} = [NO]_{\text{нач.}} - [NO]_{\text{кон.}}$. Результаты исследований показали, что селективность разработанного катализатора во всем изученном диапазоне температур выше селективности промышленных катализаторов, причем для промышленных катализаторов концентрация N_2O растет с увеличением содержания ванадия в катализаторе. При 250 °С селективность разработанного катализатора очень высокая, с ростом температуры более 300 °С – понижается. На рис. 3 (а) представлена зависимость степени восстановления N_2O аммиаком от температуры на $Fe-Cr-Co-Mg-O$ катализаторе при различной объемной скорости.

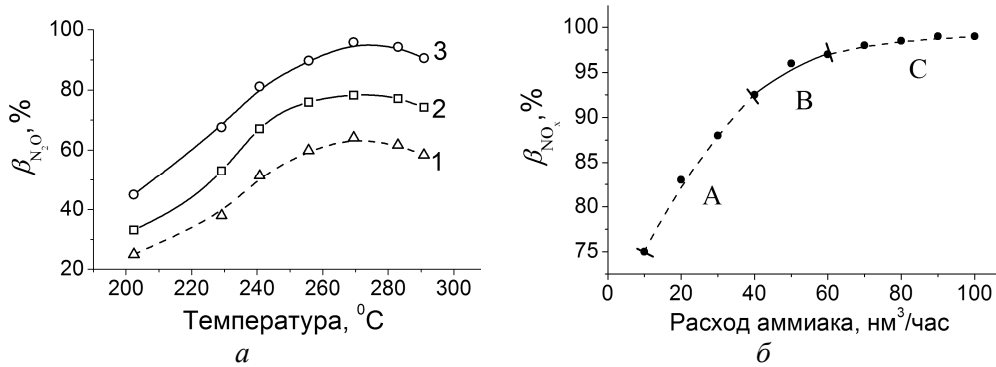


Рисунок 3 – Зависимости: *a* – степени восстановления N_2O от температуры на катализаторе Fe-Cr-Co-Mg-O при объемной скорости, час⁻¹: 1 – 20 000, 2 – 15 000, 3 – 10 000; *б* – степени восстановления NO_x от расхода аммиака

Смесь, подаваемая на катализатор, имела следующий состав: об. %: O_2 (2,75); NO (0,12); NH_3 (0,12); N_2O (0,05); N_2 (баланс). Как видно из рис. 3(а), при объемной скорости 10 000 час⁻¹ и 270 °С на разработанном катализаторе получено $\beta_{N_2O} \sim 95$ –97 %. Объемная скорость в интервале $(9,41-11,2) \cdot 10^3$ ч⁻¹ соответствует нагрузке на КА по аммиаку 4950–6250 нм³/час. Это минимально и максимально возможные нагрузки для нормальной работы агрегата.

При недостатке NH_3 суммарная степень восстановления NO_x невысокая, с увеличением $NH_3 : NO_x$ возрастает и при соотношениях 1,2–1,4 достигает 94–97 % при 270 °С (рис. 3(б)). Степень очистки 97 % обеспечивает нормы по NO_x (0,005 об. %). Таким образом, нижняя граница дозирования аммиака составляет 50 нм³/час.

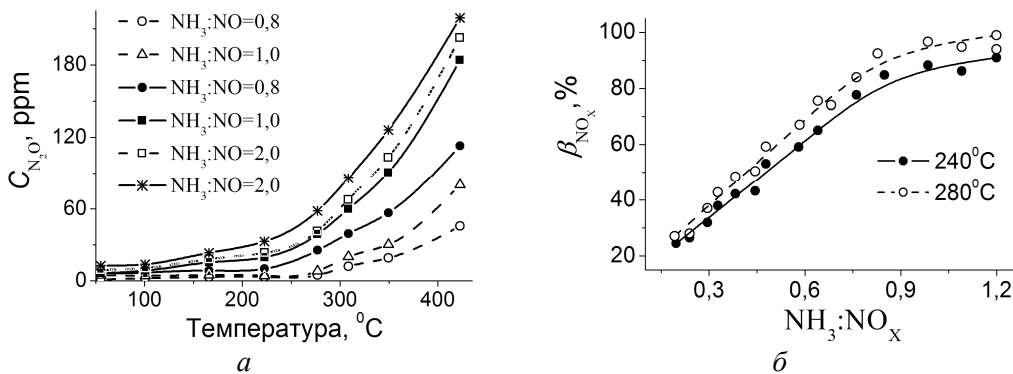


Рисунок 4 – Зависимости: *a* – C_{N_2O} на выходе из реактора на разработанном катализаторе Fe-Cr-Co-Mg-O (---) и АВК-10М катализаторе (—) от температуры; *б* – степени восстановления β_{NO_x} от соотношения $NH_3 : NO_x$ на Fe-Cr-Co-Mg-O катализаторе

Верхняя граница зависит от того, на сколько избыток аммиака прореагирует с кислородом или N_2O . Это необходимо было установить в процессе изучения селективной каталитической очистки по восстановлению N_2O . Результаты исследований зависимости концентрации N_2O на выходе от температуры при различных $NH_3 : NO_x$ (рис. 4) показали, что при оптимальных температуре и $NH_3 : NO_x$ концентрация N_2O на разработанном катализаторе минимальна.

В табл. 4 приведена зависимость изменения концентрации N_2O на входе и выходе из РСО ($\Delta C(N_2O)$) от температуры на разработанном Fe-Cr-Co-Mg-O катализаторе при разном соотношении компонентов в реакционной смеси в соответствии с реакцией

(8). Из представленных данных следует, что при пониженных соотношениях объема аммиака к объему нитрозного газа возможно как восстановление N_2O , так и его образование. При повышенных соотношениях преобладает образование N_2O при всех исследованных температурах по реакции (8). Как видно из табл. 4, минимальное остаточное содержание N_2O наблюдается при 250–300 °С, что указывает на то, что разработанный катализатор проявляет высокую селективность в процессе восстановления NO и N_2O аммиаком. При пониженных дозировках NH_3 возможно как восстановление N_2O , так и его образование, а при дозировках аммиака более стехиометрического ($> 100 \text{ nm}^3/\text{час}$) преобладает образование N_2O при всех исследованных температурах.

Таблица 4 – Зависимость $\Delta C(N_2O)$ в реакторе восстановления NO_x аммиаком от температуры на катализаторе Fe-Cr-Co-Mg-O при разных соотношениях $NH_3 : NO_x$

T, °C	$\Delta C(N_2O)$		
	$NH_3 : NO_x < \text{стехиом.}$	$NH_3 : NO_x > \text{стехиом.}$	$NH_3 : NO_x = \text{стехиом.}$
235	-0,02499	-0,01541	0,015
240	-0,02069	-0,00875	0,017
250	-0,01241	0,008	0,024
255	-0,00859	0,017	0,027
260	-0,00416	0,02385	0,031
265	-0,00315	0,033	0,03433
270	-0,00287	0,03999	0,037
275	-0,00201	0,04872	0,04
280	-0,00099	0,055	0,043
285	0,02	0,06205	0,047
290	0,02427	0,07	0,05

Были проведены исследования процесса восстановления N_2O аммиаком в зависимости от температуры на Fe-Cr-Co-Mg-O катализаторе при различном содержании O_2 , так как выхлопной газ после АК в агрегатах УКЛ-7 содержит от 2,5–2,8 % кислорода. Результаты исследований при содержании O_2 в смеси 0,25–6,0 % (об.), приведенные на рис. 5, показали, что остаточное содержание N_2O в смеси растет медленно до ~350 °С, и начинает резко возрастать при всех исследованных соотношениях и концентрациях кислорода при повышении температуры более 350 °С.

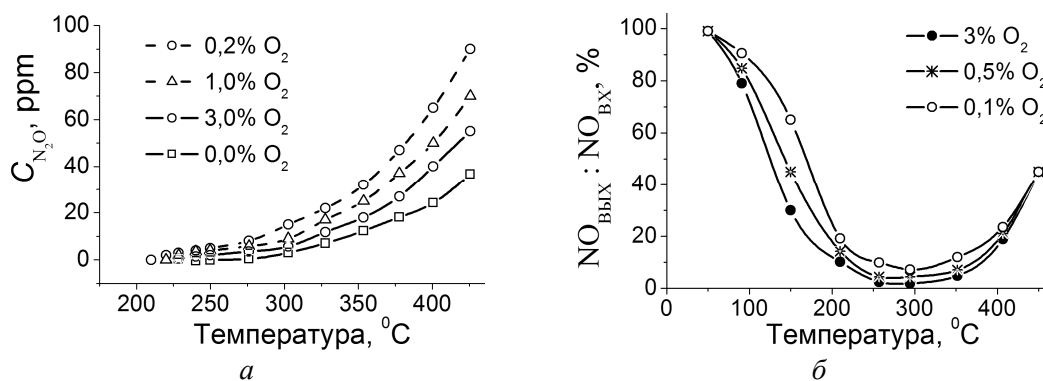


Рисунок 5 – Зависимости: а – остаточного содержания N_2O ; б – $NO_{\text{ВЫХ}}:NO_{\text{ВХ}}$ от температуры на катализаторе Fe-Cr-Co-Mg-O, при различном содержании O_2 , состав смеси, % (об.): NO (0,04), NH_3 (0,04), N_2O (0,01), $V = 10\,000 \text{ час}^{-1}$

Зависимость степени восстановления NO от объемной скорости, приведенная на рис. 6(а), показывает, что β_{NO} уменьшается от 97 % до 60 % с ростом объемной скорости от 7 000 до 64 000 час⁻¹.

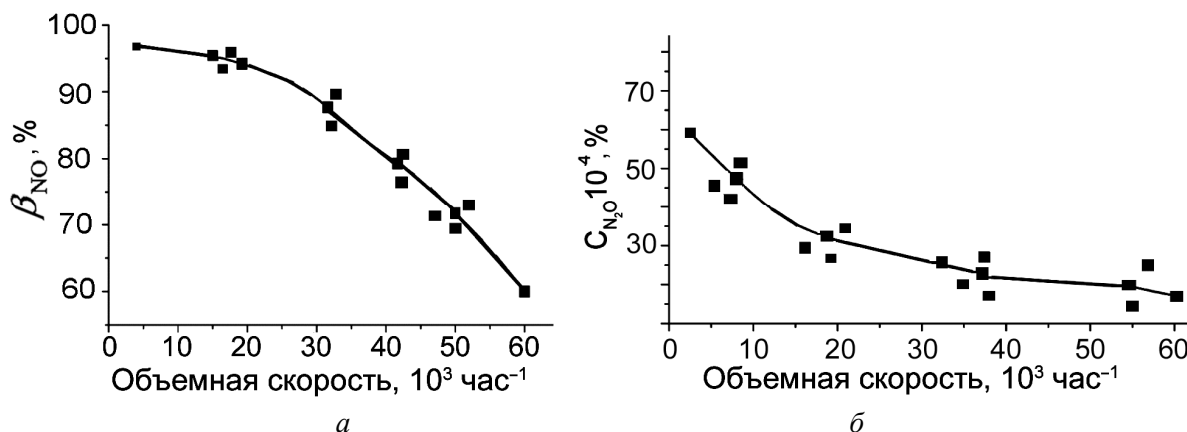


Рисунок 6 – Зависимости: *a* – степени восстановления NO от объемной скорости; *б* – концентрации N₂O на выходе от объемной скорости, T = 280°C, блочный катализатор сотовой структуры Fe-Cr-Co-Mg-O

Выводы. Разработан активный катализатор Fe-Cr-Co-Mg-O низкотемпературного селективного восстановления оксидов азота аммиаком, установлены технологические параметры, обеспечивающие степень очистки от N₂O на уровне 95,0–96 %. На основе проведенных исследований процесса восстановления оксидов азота аммиаком предложена схема двухступенчатой очистки от NO, N₂O, NO₂ аммиаком на разработанном катализаторе при 250–300 °C, позволяющая минимизировать количество N₂O в выбрасываемых газах при сохранении норм по NO_x.

Результаты исследований, проведенные на оксидном блочном катализаторе Fe-Cr-Co-Mg-O, показали:

- повышение концентрации кислорода в реакционной смеси от 0,1 до 3,0 % увеличивает степень восстановления NO, при этом в присутствии кислорода концентрация N₂O уменьшается с повышением концентрации O₂, при постоянной концентрации O₂ – повышается с ростом температуры;
- повышение соотношения NH₃ : NO_x от 0,8 до 2,0 повышает максимальную степень восстановления NO, но сопровождается увеличением концентрации N₂O, независимо от концентрации O₂ в реакционной смеси;
- повышение скорости от 7 000 час⁻¹ до 64 000 час⁻¹ понижает максимальную степень восстановления от 97 % до 60 %, но снижает концентрацию N₂O на выходе независимо от концентрации O₂ в реакционной смеси.

Оксид азота (I) поступает на оксидный катализатор восстановления аммиаком после стадии высокотемпературного окисления аммиака до NO и в тоже время образуется в реакторе селективной очистки в результате окисления аммиака (при его избытке) кислородом по реакции (7).

Проведенные нами исследования показали, что N_2O образуется в незначительных количествах при отсутствии в смеси O_2 . На основе проведенных нами исследований можно сделать вывод, что основное количество N_2O образуется по реакциям (3, 5, 7) в присутствии O_2 и в условиях избытка NH_3 . Избыток NH_3 по отношению к стехиометрическому количеству способствует более полному разложению $NO + NO_2$, но этот же избыток приводит к увеличению образования N_2O в реакторе селективной каталитической очистки на 0,025–0,035 об. %. Влияние температуры на процесс образования N_2O в реакторе тем сильнее, чем больше избыток NH_3 . При дозировке NH_3 в количестве ниже и стехиометрически необходимого, может быть достигнуто снижение объемной доли N_2O на 0,025 и увеличение на 0,030 об. % при изменении температуры от 230°C до 290°C. При подаче аммиака 100 $nm^3/час$ преобладает образование N_2O во всем исследованном диапазоне температур.

Литература

1. Nitrous Oxide and Climate Change / Ed. by K. Smith. – London : Earthscan Ltd., 2010. – 232 p.
2. Pérez-Ramírez J. Formation and Control of N_2O in Nitric Acid Production. Where do We Stand Today? / J. Pérez-Ramírez, F. Kapteijn, K. Schöffel, J.A. Moulijn // Applied Catalysis B: Environmental. – 2003. – V. 44. – P. 117–151.
3. Kondratenko E.V. Transient studies of direct N_2O decomposition over Pt–Rh catalyst. Mechanistic and kinetic aspects of oxygen formation / E.V. Kondratenko, J. Perez-Ramirez // Catalysis Letters. – 2003. – V. 91, № 3–4. – P. 211–216.
4. Steady-state N_2O decomposition on Pt and Rh surfaces using a free-jet molecular-beam excited by nozzle heating / [Uetsuka H., Mizutani N., Hayashi H. et al.] // Catalysis Letters. – 2005. – V. 169, № 1–2. – P. 165–168.
5. N_2O formation in the selective catalytic reduction of NO_x with NH_3 at low temperature on CuO-supported monolithic catalysts / [Suárez S., Martín J.A., Yates M. et al.] // Catalysis Today. – 2005. – V. 229, № 3–4. – P. 227–236.
6. Cybulski A., Moulijn J.A., Stankiewicz A. Novel Concepts in Catalysis and Chemical Reactors. / WILEY-VCH. – 2010. – 372 p.
7. Гайдей Т.П. Каталитическая активность металлических и нанесённых оксидных катализаторов в реакции разложения закиси азота / [Т.П. Гайдей, А.И. Кокорин, Н. Пиллет, и др.] // Журнал Физической Химии. – 2007. – Т. 81, № 6. – С. 1028–1033.
8. Голодец Г.И. Гетерогенно-каталитические реакции с участием молекулярного кислорода / Г.И. Голодец, Н.И. Ильченко – К. : Наукова думка, 1977. – 115 с.
9. Огурцов А.Н. Кинетическое моделирование разложения оксида азота (I) в технологиях очистки хвостовых газов и стимулированной диссоциации биополимеров ДНК / Огурцов А.Н., Близнюк О.М. // Интегрированные технологии и энергосбережение. – 2012. – №4. – С. 48–53.
10. Огурцов А.Н. Моделирование нестационарной кинетики каталитического

восстановления оксида азота (I) аммиаком / Огурцов А.Н., Близнюк О.Н., Савенков А.С., Хлопицкий А.А. // Вопросы химии и химической технологии. – 2012. – №5. – С. 147–150.

Bibliography (transliterated)

1. Nitrous Oxide and Climate Change Ed. by K. Smith. – London : Earthscan Ltd., 2010. – 232 p.
2. Pérez-Ramírez J. Formation and Control of N₂O in Nitric Acid Production. Where do We Stand Today? J. Pérez-Ramírez, F. Kapteijn, K. Schöffel, J.A. Moulijn Applied Catalysis B: Environmental. – 2003. – V. 44. – P. 117–151.
3. Kondratenko E.V. Transient studies of direct N₂O decomposition over Pt–Rh catalyst. Mechanistic and kinetic aspects of oxygen formation E.V. Kondratenko , J. Perez-Ramirez Catalysis Letters. – 2003. – V. 91, # 3–4. – R. 211–216.
4. Steady-state N₂O decomposition on Pt and Rh surfaces using a free-jet molecular-beam excited by nozzle heating [Uetsuka H., Mizutani N., Hayashi H. et al.] Catalysis Letters. – 2005. – V. 169, # 1–2. – P. 165–168.
5. N₂O formation in the selective catalytic reduction of NO_x with NH₃ at low temperature on CuO-supported monolithic catalysts [Suárez S., Martín J.A., Yates M. et al.] Catalysis Today. – 2005. – V. 229, # 3–4. – P. 227–236.
6. Cybulski A., Moulijn J.A., Stankiewicz A. Novel Concepts in Catalysis and Chemical Reactors. WILEY-VCH. – 2010. – 372 p.
7. Gajdej T.P. Kataliticheskaia aktivnost' metallicheskih i nanesjonnyh oksidnyh katalizatorov v reakcii razlozhenija zakisi azota [T.P. Gajdej, A.I. Kokorin, N. Pillet, i dr.] Zhurnal Fizicheskoi Himii. – 2007. – T. 81, # 6. – p. 1028–1033.
8. Golodec G.I. Geterogenno-kataliticheskie reakcii s uchastiem molekuljarnogo kisloroda G.I. Golodec, N.I. Il'chenko – K. : Naukova dumka, 1977. – 115 p.
9. Ogurcov A.N. Kineticheskoe modelirovanie razlozhenija oksida azota (I) v tehnologijah ochistki hvostovyh gazov i stimulirovannoj dissociacii biopolimerov DNK Ogurcov A.N., Bliznjuk O.M. Integrirovannye tehnologii i jenergosberezhenie. – 2012. – #4. – p. 48–53.
10. Ogurcov A.N. Modelirovanie nestacionarnoj kinetiki kataliticheskogo vosstanovlenija oksida azota (I) ammiakom Ogurcov A.N., Bliznjuk O.N., Savenkov A.S., Hlopickij A.A. Voprosy himii i himicheskoi tehnologii. – 2012. – #5. – p. 147–150.

УДК 544.542.2; 577.34; 661.566

Близнюк О.М., Клещев М.Ф., Огурцов О.М.

**ОПТИМІЗАЦІЯ ПРОЦЕСУ СЕЛЕКТИВНОГО НИЗЬКОТЕМПЕРАТУРНОГО
ВІДНОВЛЕННЯ N₂O АМІАКОМ. МОДИФІКАЦІЯ ОКСИДНОЇ КАТАЛІТИЧНОЇ
СИСТЕМИ**

Систематизовано результати розробки та дослідження каталізаторів, що зменшують кількість N_2O після реактора селективної каталітичної очистки (PCO) в виробництві нітратної кислоти. Запропоновано активний каталізатор Fe-Cr-Co-Mg-O низькотемпературного селективного відновлення нітроген оксидів амоніаком, встановлено технологічні параметри, що забезпечують ступінь відновлення N_2O на рівні 95 %.

Bliznjuk O.N., Kleshchev N.F., Ogurtsov A.N.

OPTIMIZATION OF THE PROCESS OF SELECTIVE LOW-TEMPERATURE N_2O REDUCTION BY AMMONIA. MODIFICATION OF THE OXIDE CATALYTIC SYSTEM

The results of research and development of catalysts towards decreasing of N_2O amount after selective catalytic reduction (SCR) reactor in nitric acid production were systematized. The active catalyst Fe-Cr-Co-Mg-O for low-temperature selective reduction of nitric oxides by ammonia was proposed, the technological parameters provided reduction value up to 95 % were determined.