VERMINDERUNG VON NOX UND N2O IM ABGAS VON MIT NH3 BETRIEBENEN FEUERUNGSANLAGEN

[0001] Es werden die Prioritäten beansprucht von europäischer Patentanmeldung Nr. 22 216 421.2, eingereicht am 23. Dezember 2022, von europäischer Patentanmeldung Nr. 23 165 192.8, eingereicht am 29. März 2023, und von deutscher Patentanmeldung Nr. 10 2023 118 563.2, eingereicht am 13. Juli 2023.

[0002] Die Erfindung betrifft die Verminderung des Gehalts an NO_X und N_2O im Abgas (Rauchgas) einer mit NH_3 betriebenen Feuerungsanlage, welche in eine Anlage zur katalytischen Zersetzung von NH_3 zu N_2 und H_2 integriert ist. Dazu umfasst die Feuerungsanlage bevorzugt eine Verbrennungseinrichtung, in welcher NH_3 unter Erzeugung von Verbrennungswärme verbrannt wird, sowie eine NH_3-Zersetzungseinrichtung, welche mit der Verbrennungseinrichtung in Wärmeaustausch steht und in welcher NH_3 katalytisch in N_2 und H_2 zersetzt wird. Die für die katalytische Zersetzung von NH_3 in der NH_3-Zersetzungseinrichtung benötigte Wärme wird durch die Verbrennung von NH_3 in der Verbrennungseinrichtung bereitgestellt. Die Verbrennungseinrichtung umfasst bevorzugt mindestens einen Brenner sowie einen Verbrennungsraum. Bevorzugt ist die Feuerungsanlage analog einem Primärreformer ausgestaltet.

[0003] H_2 kann durch erneuerbare Energien aus H_2O gewonnen und anschließend mit N_2 in NH_3 umgewandelt werden. NH_3 lässt sich weitaus sicherer als H_2 speichern und transportieren. Anschließend kann NH_3 wieder in H_2 und N_2 zersetzt werden. Nach Abtrennung von N_2 findet H_2 unterschiedlichste industrielle Anwendungen.

[0004] Die Zersetzung von NH_3 zu N_2 und H_2 ist eine endotherme Reaktion ($\Delta H° = 45{,}9\ kJ \cdot mol^{-1}$), bei der sich die Stoffmenge verdoppelt ($2\ NH_3 \leftrightarrow N_2 + 3\ H_2$), so dass die Reaktion grundsätzlich durch hohe Temperaturen sowie niedrige Drücke begünstigt wird. Je höher der Druck ist, desto höher muss die Temperatur sein, um noch zufriedenstellende Reaktionsausbeuten zu erreichen. Als Katalysatoren für die Zersetzung von NH_3 wurde eine Vielzahl von Materialien vorgeschlagen, welche bei unterschiedlichen Temperaturen aktiv sind (vgl. z.B. Il. Lucentini et al., Ind. Eng. Chem. Res. 2021, 60, 18560-18611).

[0005] Bei der katalytischen Zersetzung von NH_3 wird ein Produktgas erhalten, welches H_2 im Gemisch mit N_2 und ggf. weiteren gasförmigen Bestandteilen enthält, z.B. nicht zersetztes NH_3. Viele industrielle Anwendungen erfordern jedoch H_2 in hoher Reinheit, so dass eine Reinigung des Produktgases erforderlich ist, ehe H_2 den industriellen Anwendungen zugeführt werden kann. Während die Reinigung von H_2 grundsätzlich über verschiedene Verfahren möglich ist, z.B. kryogene Verfahren oder

Membranverfahren, ist in großtechnischem Maßstab eine Reinigung durch Druckwechseladsorption besonders wirtschaftlich.

[0006] Die katalytische Zersetzung von NH_3 in N_2 und H_2 findet bei hoher Temperatur und mittlerem Druck in der Gasphase statt. Gelagertes NH_3 liegt in gekühlten Tanks flüssig vor, bei Atmosphärendruck und -32,8°C. Mit einer Pumpe wird NH_3 bei Anlagendruck in die Anlage eingespeist. Durch den erhöhten Anlagendruck steigt der Siedepunkt des NH_3, z.B. bei 27,8 bar a auf etwa 62,2°C. Um NH_3 in die Gasphase zu überführen, ist zur Verdampfung des NH_3 die Zufuhr von Wärme notwendig.

[0007] Herkömmliche Prozesse zur katalytischen Zersetzung von NH_3 erzeugen erhebliche Mengen an Wärme, welche zum Verdampfen von NH_3 genutzt werden kann.

[0008] US 4 704 267 A betrifft die Herstellung von hochreinem H_2 aus flüssigem, wasserfreiem NH_3. NH_3 wird verdampft und anschließend in seine Bestandteile aufgespalten. Der resultierende dissoziierte Gasstrom wird einer adiabatischen Metallhydrid-Reinigungseinheit zugeführt, um den im Strom vorhandenen H_2 zu absorbieren. Der adsorbierte H_2 wird dann als hochreines Produkt zurückgewonnen.

[0009] FR 1 469 045 A betrifft einen Apparat aus einem mit NH_3 gespeisten Vorwärmer, einem Rohrbündel, das einen Katalysator zur Spaltung von NH_3 umschließt, und gegebenenfalls einer Zelle zur Reinigung von H_2 durch Diffusion, die miteinander verbunden sind und sich in einem einzigen Gehäuse befinden, welches Heizmittel enthält.

[0010] CN 111 957 270 A betrifft eine NH_3-Zersetzungsvorrichtung, welche eine NH_3-Zersetzungseinheit und eine Verbrennungseinheit umfasst, welche auf die NH_3-Zersetzungseinheit einwirkt. NH_3 tritt in die NH_3-Zersetzungseinheit über einen ersten Einlass für gereinigtes Gas ein, um eine Zersetzungsreaktion des NH_3 durchzuführen. Erzeugtes Mischgas wird über einen zweiten Auslass für gereinigtes Gas abgeleitet und tritt dann in die Verbrennungseinheit über einen zweiten Einlass für gereinigtes Gas ein. Das Mischgas umfasst N_2, H_2 und nicht zersetztes NH_3. Das Mischgas tritt in die Verbrennungseinheit ein, um Wärme für die Zersetzungsreaktion des NH_3 der NH_3-Zersetzungseinheit bereitzustellen, so dass die Selbstversorgung mit Wärme in dem NH_3-Zersetzungs-H_2-Produktionssystem realisiert wird. Es wird kein zusätzlicher Brennstoff für die Energieversorgung benötigt und die Kosten des NH_3-Zersetzungs-H_2-Produktionssystems werden reduziert.

[0011] CN 113 896 168 A betrifft ein Verfahren zur Herstellung von H_2 oder reduzierendem Gas durch Spaltung von NH_3 mit einem zweistufigen Verfahren, das die folgenden Schritte umfasst: Das flüssige NH_3 des Rohmaterials wird vollständig vergast und durch ein Wärmeaustausch-Vergasungssystem erhitzt und tritt dann in ein Wärmeaustausch-NH_3-Crack-Reaktionssystem der ersten Stufe ein, um eine partielle NH_3-Crack-Reaktion zu erzeugen. Das Reaktionsgas aus dem Wärmeaustausch-NH_3-Crack-Reaktionssystem der ersten Stufe tritt in ein Hochtemperatur-NH_3-Crack-Reaktionssystem der zweiten Stufe ein, um eine Rest-NH_3-Crack-Reaktion durchzuführen. Das Hochtemperatur-NH_3-Crack-Reaktionsgas der zweiten Stufe tritt nacheinander in das Wärmeaustausch-NH_3-Crack-Reaktionssystem der

ersten Stufe und das Wärmeaustausch-Vergasungssystem ein, um allmählich Wärme zurückzugewinnen, so dass das Reduktionsgas erhalten wird.

[0012] WO 2001/087770 A1 betrifft die autotherme Zersetzung von NH_3 zur Herstellung von hochreinem H_2.

[0013] WO 2011/107279 A1 betrifft einen auf NH_3 basierenden H_2-Erzeugungsreaktor umfassend eine NH_3-Spaltkammer mit einem NH_3-Spaltkatalysator, eine innere Verbrennungskammer mit einem Verbrennungs- oder Oxidationskatalysator, der in thermischem Kontakt mit der NH_3-Spaltkammer steht, eine NH_3-Gas-Vorheizkammer und einen äußeren Mantelring zur Wärmerückgewinnung aus den aus der Verbrennungskammer austretenden Verbrennungsprodukten, wobei die Spaltkammer, die innere Verbrennungskammer, die Vorheizkammer und der Wärmerückgewinnungs-Mantelring konzentrisch angeordnet sind.

[0014] WO 2017/160154 A1 betrifft ein Verfahren zur Energieerzeugung mit einer Gasturbine, das die folgenden Schritte umfasst: (i) Verdampfen und Vorwärmen von flüssigem NH_3, um vorgewärmtes NH_3-Gas zu erzeugen; (ii) Einführen des vorgewärmten NH_3-Gases in eine NH_3-Spaltvorrichtung, die zur Umwandlung von NH_3-Gas in ein Gemisch aus H_2 und N_2 geeignet ist; (iii) Umwandeln des vorgewärmten NH_3-Gases in ein Gemisch aus H_2 und N_2 in der Vorrichtung; (iv) Abkühlen des Gemischs aus H_2 und N_2, um ein gekühltes H_2- und N_2-Gemisch zu erhalten; (v) Einleiten des gekühlten H_2- und N_2-Gemischs in eine Gasturbine; und (vi) Verbrennen des gekühlten H_2- und N_2-Gemischs in der Gasturbine zur Energieerzeugung.

[0015] WO 2019/038251 A1 betrifft ein Verfahren zur Herstellung eines N_2 und H_2 enthaltenden Produktgases aus NH_3, umfassend die Schritte der nicht-katalytischen partiellen Oxidation von NH_3 mit einem O_2-haltigen Gas zu einem Prozessgas, das N_2, Wasser, Mengen von Stickoxiden und Restmengen von NH_3 enthält; Cracken von mindestens einem Teil der Restmengen an NH_3 zu H_2 und N_2 in dem Prozessgas durch Kontakt mit einem nickelhaltigen Katalysator und gleichzeitiges Reduzieren der Mengen an Stickoxiden zu N_2 und Wasser durch Reaktion mit einem Teil des H_2, der während des Crackens des Prozessgases durch Kontakt des Prozessgases mit dem nickelhaltigen Katalysator gebildet wird; und Abziehen des H_2 und N_2 enthaltenden Produktgases.

[0016] WO 2012/039183 A1 betrifft eine NH_3-Zersetzungsvorrichtung, die H_2 als Verbrennungsverbesserer erzeugt, und eine NH_3-Oxidationsvorrichtung, die einen Teil des eingeleiteten NH_3 mit O_2 unter Verwendung eines Oxidationskatalysators umsetzt, was eine Verbrennung bewirkt, um die für eine NH_3-Zersetzungsreaktion erforderliche Wärme zu liefern.

[0017] WO 2012/090739 A1 betrifft einen H_2-Generator umfassend eine Zersetzungsvorrichtung, die eine Verbindung, die ein H-Atom und ein N-Atom enthält, zersetzt und H_2 erzeugt; einer Verbindungszufuhrvorrichtung, die die Verbindung der Zersetzungsvorrichtung zuführt; und einer O_2-Zufuhrvorrichtung, die der Zersetzungsvorrichtung O_2 zuführt.

[0018] WO 2020/095467 A betrifft eine Vorrichtung zur Erzeugung von H_2-Gas umfassend: eine NH_3-Verdampfungseinrichtung, die flüssiges NH_3 erhitzt, um NH_3-Gas zu erzeugen; eine Hauptvorrichtung zur thermischen Zersetzung, welche die Verbrennung eines Brenngases bewirkt, wodurch das von der NH_3-Verdampfungseinrichtung erzeugte NH_3-Gas erhitzt und in N_2-Gas und H_2-Gas zersetzt wird; einen Kühler, der ein durch die Zersetzung erzeugtes Gas kühlt, welches das N_2-Gas und das durch die Zersetzung durch die Hauptvorrichtung zur thermischen Zersetzung erzeugte H_2-Gas enthält; und einen Abscheider, der das H_2-Gas von dem gekühlten, durch die Zersetzung erzeugten Gas trennt.

[0019] WO 2021/257944 A1 betrifft die Rückgewinnung von H_2 aus einem NH_3-Spaltverfahren, bei dem das Spaltgas in einer PSA-Vorrichtung gereinigt wird. Durch die Verwendung eines Membranseparators für das PSA-Abgas wird die Rückgewinnung verbessert.

[0020] WO 2022/096529 A1 betrifft ein Verfahren zum Cracken von NH_3, zum Erzeugen von H_2 und zum Erzeugen von elektrischem Strom, umfassend Elektrolyse von Wasser in zugeführtem NH_3, Verdampfen, Vorwärmen und Cracken von NH_3 unter Verwendung von NH_3-Synthese-Katalysatoren bei niedrigen Temperaturen.

[0021] WO 2022/243410 A1 betrifft ein Verfahren zur Synthese von H_2 über das katalytische Cracken von NH_3; wobei ein NH_3-haltiger Strom einem katalytischen Crackschritt in Gegenwart von Wärme unterzogen wird, um ein verbranntes Gas und einen thermisch gecrackten Strom zu erhalten, der N_2, H_2 und möglicherweise restliches NH_3 und gegebenenfalls Wasser enthält; wobei der thermisch gecrackte Strom einem H_2-Gewinnungsschritt unterzogen wird, um einen hochreinen H_2-Strom zu erhalten.

[0022] WO 2022/265647 A1 betrifft die Rückgewinnung eines erneuerbaren H_2-Produkts aus einem NH_3-Crackverfahren, bei dem das gecrackte Gas in einer ersten PSA-Vorrichtung gereinigt wird und mindestens ein Teil des ersten PSA-Endgases als Brennstoff zurückgeführt wird, um die Kohlenstoffintensität des erneuerbaren H_2-Produkts zu verringern.

[0023] WO 2022/265648 A1 betrifft die Entfernung von NO_X-Verunreinigungen durch selektive katalytische Reduktion (SCR) aus einem Rauchgas, das in einem NH_3-Crackverfahren erzeugt wird, wobei eine wässrige NH_3-Lösung verwendet wird, die durch Kühlen des komprimierten Abgases aus einer H_2-PSA-Vorrichtung zur Reinigung des gecrackten Gases erzeugt wird.

[0024] WO 2022/265649 A1 betrifft die Verringerung des Wassergehalts des in einem NH_3-Spaltverfahren verwendeten NH_3, wodurch der Einsatz wasserunverträglicher Spaltkatalysatoren ermöglicht wird. Der Prozess der Wasserentfernung kann auch zur Rückgewinnung und Rückführung von NH_3 aus dem Spaltgas genutzt werden.

[0025] WO 2022/265650 A1 betrifft ein NH_3-Spaltverfahren, bei dem Spaltgas in einem PSA-System gereinigt wird. Restliches NH_3 in einem ersten Spaltgas wird in weiteren H_2 und N_2 umgewandelt, indem PSA-Restgas oder ein davon abgeleitetes Gas einem sekundären Spaltreaktor zugeführt und ein zweites Spaltgas weiterverarbeitet wird.

[0026] WO 2022/265651 A1 betrifft ein Verfahren, bei dem restliches NH_3 in einem H_2-PSA-System mit einem nicht-zeolithischen Adsorptionsmittel wie Aktivkohle, Aktivtonerde oder Kieselgel aus NH_3-Spaltgas entfernt wird.

[0027] US 2003/0143142 A1 und US 2017/0334722 A1 beschreiben Verfahren zur Reduzierung der NO_X-Konzentration und der N_2O-Konzentration des Restgases aus der Salpetersäureproduktion.

[0028] CN 114 412 668 A betrifft Ammoniak-Kraftstoff-Motoren, insbesondere ein Ammoniak-Wasserstoff-Fusion-Typ-Hybrid-Energie-System und einen Motor.

[0029] JP 2023 026798A, veröffentlicht am 1. März 2023 betrifft ein Abgasverarbeitungssystem eines Ammoniakmotors, umfassend als ersten Katalysator einen Oxidationskatalysator, umfassend eine Katalysatorschicht, die Pt und Zeolith enthält, und als zweiten Katalysator einen Denitrierungskatalysator, umfassend eine Katalysatorschicht, die Zeolith enthält, der mit Cu-, Co- oder Fe-Ionen ionenausgetauscht ist.

[0030] Y.K. Park, Chemical Engineering Journal, Volume 461, 141958, veröffentlicht am 1. April 2023 ist ein Review über die katalytische Entfernung von Stickoxiden (NO, NO_2, N_2O) aus Abgas, welches beim Einsatz von Ammoniak als Treibstoff entsteht.

[0031] KR 2023 095308 A, veröffentlicht am 29. Juni 2023, betrifft eine Anlage mit einem katalytischen Reaktor; einem Vorratstank für flüssiges Ammoniak; einen ersten Verteiler zum Zuführen mindestens eines Teils des aus dem Vorratstank zugeführten Ammoniaks zu einem katalytischen Reaktor als Zersetzungsammoniak; wobei das dem katalytischen Reaktor zugeführte Ammoniak mit einem Ammoniakspaltkatalysator in Kontakt gebracht wird, um Stickstoff und Wasserstoff zu erzeugen. Ein zweiter Verteiler führt verbleibenden Ammoniak, der den ersten Verteiler passiert hat, einem Denitrifikationsreaktor und einem Mischer zu.

[0032] NH_3 hat einen vergleichsweise geringen Heizwert sowie eine niedrige Flammenfortschreitungsgeschwindigkeit und birgt die Gefahr des Flammenabrisses mit der Folge unvollständiger Verbrennung. Außerdem birgt die Verbrennung von NH_3 das Risiko erhöhter Emissionen von Stickoxiden (insbesondere NO, NO_2, N_2O), was Einfluss auf seine Eignung als Verbrennungsgas hat. Es wurden gasförmige Ammoniak/Wasserstoff/Luft-Gemische vorgeschlagen, bei denen ein bestimmter Wasserstoffanteil als Verbrennungsbeschleuniger verwendet wird, welcher z.B. durch katalytische oder wärmeunterstützte NH_3-Dissoziation erzeugt werden könnte.

[0033] Die bisherigen Forschungsschwerpunkte konzentrieren sich auf die Optimierung der Verbrennung von Ammoniak als solche, insbesondere im Hinblick auf Energieausbeute und Wirtschaftlichkeit, aber auch im Hinblick auf die Bildung von unerwünschten Stickoxiden. Es ist jedoch davon auszugehen, dass die Bildung von NO_X (d.h. NO und NO_2) und von N_2O beim Verbrennungsprozess nicht vollständig wird unterdrückt werden können.

[0034] Emissionen von NO_X, N_2O und ggf. von anderen Bestandteilen, welche in Verbrennungsgasen enthalten sein können (z.B. CO, HCN oder auch NH_3), sind jedoch zum Schutz der Gesundheit, der Umwelt und des Klimas zu vermeiden oder zumindest möglichst weit zu vermindern. Viele Industriestaaten haben deshalb entsprechende Auflagen erlassen.

[0035] Außerdem entstehen bei der Verbrennung von Kohlenwasserstoffen (CH_4, Erdgas, etc.) in Gegenwart von NH_3 Abgase, welche Cyanwasserstoff (HCN, Blausäure) enthalten können. Bereits geringe Mengen an HCN sind problematisch, da es als hochgiftig eingestuft wird und entsprechend niedrige Grenzwerte für die Emissionen von HCN in die Umwelt einzuhalten sind. Mit HCN belastete Abgase können prinzipiell durch verschiedene Maßnahmen aufgereinigt werden. Durch alkalische Wäschen können Cyanide gebildet und abgetrennt werden, welche dann aber ihrerseits als hochgiftige Verbindungen entsorgt werden müssen. Mit speziellen Oxidationskatalysatoren auf Basis von Edelmetallen kann HCN zu CO_2, H_2O, N_2 und verschiedenen Stickoxiden umgesetzt werden. Dies bedeutet allerdings einen nicht unerheblichen Verfahrens- und Kostenaufwand. So müssen die entstehenden Stickoxide in einem weiteren Prozessschritt, z.B. mittels SCR abgebaut werden. Auch das Überleiten über spezielle Katalysatoren, z.B. auf Basis TiO_2, zur Hydrolyse des HCN gemäß $HCN + H_2O \rightarrow CO + NH_3$ ist beschrieben. Auch in diesem Falle ist dann ebenfalls eine anschließende weitere Oxidation über entsprechenden separaten Oxidationskatalysatoren notwendig. Es besteht daher ein Bedarf an Reinigungsverfahren für HCN belastete Abgase, welche sich durch einfache und kostengünstige Betriebsweise und einen geringen apparativen (Kosten-)Aufwand auszeichnen. Zudem sollte in den Verfahren HCN in ungiftige Substanzen überführt werden, welche keiner weiteren Nachbehandlung bedürfen.

[0036] Ein weiteres Problem stellt die unvollständige Verbrennung von Ammoniak dar, welche dazu führt, dass die Abgase von mit Ammoniak als Treibstoff betriebenen Feuerungsanlagen erhebliche Mengen von nicht verbranntem Ammoniak enthalten können (sog. NH_3-Schlupf, NH_3-Durchbruch). Akzeptable Grenzwerte für Ammoniak zur Abgabe an die Atmosphäre sind vergleichsweise streng. Daher muss in solchen Fällen dafür gesorgt werden, dass Ammoniak zu Stickstoff oxidiert wird, bevor das Abgas an die Atmosphäre abgegeben werden darf. Für diesen Zweck wurden sogenannte Ammoniak-Schlupf-Katalysatoren (*ammonia slip catalysts*, ASC) entwickelt, welche üblicherweise auf Edelmetallen der Platingruppe basieren (d.h. Ru, Rh, Pd, Os, Ir, Pt). Solche Katalysatoren sind nicht nur kostenintensiv, sondern auch wenig selektiv (d.h. sie bilden aus NH_3 ggf. NO_X oder N_2O) und anfällig gegenüber Chlor und Chlorverbindungen.

[0037] Es besteht daher ein Bedarf an Maßnahmen, welche dazu geeignet sind,

- Stickoxide (insbesondere N_2O und NO_X (d.h. NO und NO_2)),
- ggf. vorhandenes überschüssiges NH_3, sowie
- ggf. vorhandene, weitere umweltschädliche Bestandteile der Abgase (wie z.B. CO oder HCN),

die verbrennungsbedingt im Abgas von mit NH_3 betriebenen Feuerungsanlagen enthalten sind, zumindest teilweise zu beseitigen, damit das Abgas anschließend unter Einhaltung aller Umweltauflagen an die Umgebungsluft abgegeben werden kann.

[0038] Bevorzugt umfassen die Feuerungsanlagen dabei eine Verbrennungseinrichtung, in welcher NH_3 unter Erzeugung von Verbrennungswärme verbrannt wird, sowie eine NH_3-Zersetzungseinrichtung, welche mit der Verbrennungseinrichtung in Wärmeaustausch steht und in welcher NH_3 katalytisch in N_2 und H_2 zersetzt wird.

[0039] Dabei sind die besonderen Umstände zu berücksichtigen, welche sich aus einer möglichst effizienten Verbrennung von NH_3 zum Betrieb von Feuerungsanlagen, bevorzugt umfassend eine Verbrennungseinrichtung zum Verbrennen von NH_3 und eine NH_3-Zersetzungseinrichtung zum Spalten von NH_3 in N_2 und H_2, ergeben. Wesentliche Parameter sind neben der unterschiedlichen Zusammensetzung des Abgases insbesondere auch Druck und Temperatur des Abgases. Diese Parameter können von denen anderer Abgase erheblich abweichen, für welche bisher Maßnahmen zur Beseitigung von NO_X und N_2O entwickelt wurden.

[0040] Beispielsweise wird bei der industriellen Produktion von Salpetersäure NH_3 bewusst bis zu NO_X oxidiert, um daraus anschließend durch Umsetzung mit Wasser in einem Absorptionsturm Salpetersäure zu gewinnen. Für die Oxidation werden dazu besondere Katalysatoren aus Edelmetallen eingesetzt und die Umsetzung erfolgt häufig bei erhöhtem Druck. Ziel der Verbrennung von NH_3 ist dabei eine möglichst große Ausbeute an NO_X und typische Wassergehalte im Abgas liegen im Bereich von ca. 1 bis 3 Vol.-%.

[0041] Im Gegensatz dazu wird NH_3 bei der Verbrennung zum Betrieb Feuerungsanlagen, bevorzugt umfassend eine Verbrennungseinrichtung zum Verbrennen von NH_3 und eine NH_3-Zersetzungseinrichtung zum Spalten von NH_3 in N_2 und H_2, vorzugsweise nur bis zur Stufe von N_2 oxidiert, wozu üblicherweise keine Katalysatoren notwendig sind, und wobei diese Umsetzung meist bei atmosphärischem Druck erfolgt. Typische Wassergehalte im Abgas liegen deutlich oberhalb von 3 Vol.-%. So liefert die Verbrennung von reinem NH_3 in Luft bei einem Restsauerstoffgehalt von 3 Mol.-% beispielsweise mehr als 28 Mol.-% Wasser. Das wesentliche Ziel der Verbrennung von NH_3 ist dabei die Erzeugung der bei der katalytischen Zersetzungsreaktion von NH_3 in N_2 und H_2 benötigten Energie. Niedrige Gehalte an Stickoxiden im bei der Verbrennung gebildeten Abgas sind dabei vorteilhaft, weil dann nur eine vergleichsweise kleine Abgasbehandlungsanlage erforderlich ist, um den Gehalt an Stickoxiden im Rauchgas zu vermindern und so die behördlichen Auflagen hinsichtlich der zulässigen Emissionen zu erfüllen bzw. weil nur dann überhaupt ausreichend niedrige Restkonzentration mit bekannten Verfahren zur Stickoxid-Minderung erreicht werden können.

[0042] Im Unterschied zu herkömmlichen Abgasbehandlungsanlagen, wie sie etwa bei Abgasen aus Anlagen zur Herstellung von HNO_3 eingesetzt werden, bringt die erfindungsgemäße Verbrennung von

NH_3, bevorzugt im Gemisch mit H_2, verbunden mit der katalytischen Zersetzung von NH_3 zu H_2 und, Besonderheiten mit sich, welche besondere Maßnahmen erfordern.

[0043] Zum einen sind die drucklosen Bedingungen und zum anderen der sehr hohe Wassergehalt wesentlich. Drucklos bedeutet, dass bei Einsatz herkömmlicher Katalysatorbetten auf Basis von Schüttungen von partikulären Formkörpern etc. die Druckverluste ggf. zu groß sein könnten. Der hohe Wassergehalt führt durch die hydrothermale Belastung der Katalysatoren in der Abgasbehandlungsanlage, insbesondere im Fall von Zeolith-Material, bei gleichzeitig hoher Temperatur ggfs. zu einer fortschreitenden Deaktivierung der Katalysatoren. Die maximale Temperatur sollte deshalb begrenzt werden. Abgesehen von der Alterung wird die chemische Reduktion von NO_X durch den hohen Wassergehalt kaum beeinträchtigt, während der Abbau von N_2O durch Zersetzung und/oder chemische Reduktion durch hohen Wassergehalt signifikant beeinträchtigt wird.

[0044] Ein weiterer Unterschied der erfindungsgemäß zu behandelnden Abgase im Vergleich zur Herstellung von HNO_3 ist der relativ hohe NO_X-Gehalt, welcher mehrere tausend ppmv betragen kann. Der Gehalt an NO_X hängt von den Bedingungen der Verbrennung von NH_3 ab, insbesondere vom Gehalt an NH_3, eventuell vorhandenen weiteren brennbaren Gasen (H_2 und/oder CH_4 (Erdgas)) und der Luftzahl λ. Aufgrund der hohen Temperaturen bei der Verbrennung von bis zu 1000°C und mehr liegt das NO_X außerdem zunächst fast ausschließlich als NO, d.h. mit einem sehr hohen Anteil an NO und einem sehr niedrigen Anteil an NO_2 vor. Auch durch die bevorzugte Abkühlung im nachgeschalten Wärmetauscher wird aufgrund der bei hohen Temperaturen langsamen Bildungskinetik von NO_2 nur ein geringer Teil des NO in NO_2 überführt. Das bedeutet, dass der Oxidationsgrad (β) des NO_X, d.h. der molare Anteil von NO_2 am gesamten NO_X ($\beta = n(NO_2)/(n(NO) + n(NO_2))$, beim Eintritt des Abgases in die Abgasbehandlungsanlage klein ist, typischerweise <5 Vol.-%. Dies wiederum bedeutet, dass die gewünschte selektive katalytische NO_X-Reduktion eigentlich nur sehr schlecht bzw. langsam ablaufen kann, entsprechend der langsamen sog. *normal SCR*.

[0045] Dies sind fundamentale Unterschiede zur etablierten Abgasreinigung in HNO_3-Anlagen, in welchen das N_2O und NO_X enthaltende Restgas unter einem Überdruck von zumeist 4-10 bar nach Verlassen des Absorptionsturmes aus „kaltem“ Zustand (das thermodynamische NO_X-Gleichgewicht liegt hier praktisch vollständig auf der Seite von NO_2) stufenweise erhitzt wird. So beträgt der NO_X-Oxidationsgrad von Restgasen bei der HNO_3-Produktion vor Eintritt in entsprechende Abgasbehandlungsanlage typischerweise zwischen 30 und 70 Vol.-%, d.h. nahe am idealen stöchiometrischen Verhältnis für eine NO_X-Reduktion gemäß der sehr schnellen *fast SCR*.

[0046] Der hohe NO_X-Gehalt, verbunden mit einem sehr niedrigen NO_X-Oxidationsgrad und hohen Wassergehalt bei gleichzeitig niedrigem Betriebsdruck (nahe Atmosphärendruck) stellt damit im vorliegenden Fall besondere Herausforderungen an die Wirksamkeit der erfindungsgemäßen Abgasbehandlungsanlage. Hinzu kommt die Herausforderung bzw. Notwendigkeit zur Beseitigung des ebenfalls im

Abgas enthalten N_2O, welches mit herkömmlichen SCR-Verfahren auf Basis von V_2O_5/TiO_2-Katalysatoren nicht reduzierbar ist.

[0047] Die Zielsetzungen und die erhaltenen Reaktionsprodukte bei der Verbrennung von NH_3 unterscheiden sich daher mitunter erheblich voneinander.

[0048] Bei herkömmlichen Anlagen zur Herstellung von Salpetersäure weist das Abgas häufig bei vergleichsweise hohem Druck

- einen vergleichsweise geringen Gehalt von NO_X;
- einen vergleichsweise hohen Anteil an NO_2;
- einen vergleichsweise hohen Gehalt von N_2O;
- einen vergleichsweise geringen Gehalt an Wasser; und
- keinen Anteil an nicht verbranntem NH_3 (NH_3 Schlupf)

auf.

[0049] Im Gegensatz dazu weist bei Feuerungsanlagen, bevorzugt umfassend Verbrennungseinrichtungen und NH_3-Zersetzungseinrichtungen zum Spalten von NH_3 in N_2 und H_2, das Abgas häufig bei vergleichsweise geringem Druck

- einen vergleichsweise hohen Gehalt von NO_X;
- einen vergleichsweise geringen Anteil von NO_2;
- einen vergleichsweise geringen Gehalt an N_2O;
- einen wesentlich höheren Gehalt an Wasser;
- ggf. einen nicht unerheblichen Anteil an nicht verbranntem NH_3 (NH_3 Schlupf); und
- ggf. einen nicht zu vernachlässigenden Anteil an HCN, sofern NH_3 zusammen mit CH_4 (Erdgas) verbrannt wird;

auf.

[0050] Diesen besonderen Umständen muss bei der Beseitigung von NO_X und N_2O aus den Abgasen Rechnung getragen werden, was eine besondere Herausforderung darstellt.

[0051] Es ist eine Aufgabe der Erfindung, den Gehalt an NO_X (d.h. NO und NO_2), N_2O und ggf. NH_3, CO und/oder HCN in Abgasen zu vermindern, welche bei mit NH_3 betriebenen Feuerungsanlagen, bevorzugt umfassend eine Verbrennungseinrichtung zum Verbrennen von NH_3 und eine NH_3-Zersetzungseinrichtung zum Spalten von NH_3 in N_2 und H_2, anfallen. Dabei sollte es möglich sein, ggf. eine sehr große Menge an NO_X und zusätzlich auch N_2O abzubauen, um den jeweiligen Gehalt zu vermindern.

[0052] Diese Aufgabe wird durch den Gegenstand der Patentansprüche gelöst.

[0053] Ein erster Aspekt der Erfindung betrifft ein Verfahren zur Verminderung des Gehalts an NO_X und N_2O im Abgas einer mit NH_3 betriebenen Feuerungsanlage, bevorzugt umfassend eine Verbrennungseinrichtung zum Verbrennen von NH_3 und eine NH_3-Zersetzungseinrichtung zum Spalten von NH_3 in N_2 und H_2, wobei das Verfahren folgende Schritte umfasst:

(a) Verbrennen von NH_3 (ggf. im Gemisch mit einem oder mehreren weiteren brennbaren Gasen, wie z.B. H_2, CH_4, etc.) zum Betrieb der Feuerungsanlage, bevorzugt umfassend eine Verbrennungseinrichtung zum Verbrennen von NH_3 (bevorzugt umfassend mindestens einen Brenner sowie einen Verbrennungsraum) und eine NH_3-Zersetzungseinrichtung zum Spalten von NH_3 in N_2 und H_2, unter Erzeugung eines Abgases, welches N_2, H_2O, NO_X und N_2O sowie ggfs. HCN umfasst und welches die Feuerungsanlage, bevorzugt umfassend eine Verbrennungseinrichtung zum Verbrennen von NH_3 und eine NH_3-Zersetzungseinrichtung zum Spalten von NH_3 in N_2 und H_2, verlässt;

(b) optional und bevorzugt Abkühlen des Abgases in mindestens einem Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Feuerungsanlage angeordnet ist;

(c) Überführen des optional abgekühlten Abgases in eine Abgasbehandlungsanlage;

(d) Vermindern des Gehalts an N_2O im Abgas durch
(d_1) Zersetzung von N_2O an einem N_2O-Zersetzungskatalysator und/oder
(d_2) chemische Reduktion von N_2O mit Reduktionsmittel an einem N_2O-Reduktionskatalysator;

(e) Vermindern des Gehalts an NO_X im Abgas durch chemische Reduktion von NO_X mit Reduktionsmittel an einem NO_X-Reduktionskatalysator; und

(f) optional und bevorzugt Abkühlen des Abgases in mindestens einem Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist.

[0054] Die Reihenfolge der Schritte (d) und (e) ist beliebig; alle Möglichkeiten sind erfindungsgemäß umfasst von zeitlich nacheinander in beliebiger Reihenfolge bis gleichzeitig oder Mischformen davon.

[0055] Bevorzugt betrifft die Erfindung ein Verfahren zur Verminderung des Gehalts an NO_X und N_2O im Abgas einer mit NH_3 und H_2 betriebenen Feuerungsanlage, bevorzugt umfassend eine Verbrennungseinrichtung zum Verbrennen von NH_3 und eine NH_3-Zersetzungseinrichtung zum Spalten von NH_3 in N_2 und H_2, wobei das Verfahren folgende Schritte umfasst:

(a) Verbrennen von NH_3 und H_2 zum Betrieb der Feuerungsanlage, bevorzugt umfassend eine Verbrennungseinrichtung zum Verbrennen von NH_3 (bevorzugt umfassend mindestens einen Brenner sowie einen Verbrennungsraum) und eine NH_3-Zersetzungseinrichtung zum Spalten von NH_3 in N_2 und H_2, unter Erzeugung eines Abgases, welches N_2, H_2O, NO_X und N_2O umfasst und welches die Feuerungsanlage, bevorzugt umfassend eine Verbrennungseinrichtung zum Verbrennen von NH_3 und eine NH_3-Zersetzungseinrichtung zum Spalten von NH_3 in N_2 und H_2, verlässt;

(b) optional und bevorzugt Abkühlen des Abgases in mindestens einem Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Feuerungsanlage angeordnet ist;

(c) Überführen des optional abgekühlten Abgases in eine Abgasbehandlungsanlage, welche in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Feuerungsanlage und ggf. des mindestens einen Wärmetauschers angeordnet ist;

(d) Vermindern des Gehalts an N_2O im Abgas durch
   (d_1) Zersetzung von N_2O an einem N_2O-Zersetzungskatalysator und/oder
   (d_2) chemische Reduktion von N_2O mit Reduktionsmittel an einem N_2O-Reduktionskatalysator;

(e) Vermindern des Gehalts an NO_X im Abgas durch chemische Reduktion von NO_X mit Reduktionsmittel an einem NO_X-Reduktionskatalysator; und

(f) optional und bevorzugt Abkühlen des Abgases in mindestens einem Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist.

[0056] Es wurde gefunden, dass der Gehalt an NO_X im Rauchgas vorteilhaft genutzt werden kann. So wird in der Abgasbehandlungsanlage bei der chemischen Reduktion von NO_X mit einem Reduktionsmittel, bevorzugt mit NH_3, eine erhebliche Menge an Wärme erzeugt, welche mit Hilfe von einem oder mehreren Wärmetauschern an ein geeignetes Wärmeträgermedium abgegeben werden kann. Als Wärmeträgermedium dient dabei bevorzugt Wasser bzw. Wasserdampf, was u.a. Vorteile im Hinblick auf die Sicherheit hat. Die von dem Wärmeträgermedium aufgenommene Wärme wird dann bevorzugt für die Erwärmung von NH_3 genutzt, welches als Feedstrom der NH_3-Zersetzungseinrichtung zugeführt wird. Alternativ oder zusätzlich kann die Wärme auch zur Vorwärmung von Verbrennungsluft genutzt werden.

[0057] Experimentelle Erkenntnisse bzw. Simulationsrechnungen deuten darauf hin, dass die bei der chemischen Reduktion von NO_X mit einem Reduktionsmittel, bevorzugt mit NH_3, freigesetzte Wärme das Abgas relativ um bis zu 70 K, bevorzugt bis zu 50 K erwärmt, d.h. dass die Gastemperatur am Austritt aus der Abgasbehandlungsanlage um bis zu 70 K, bevorzugt bis zu 50 K höher liegt als am Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage.

[0058] Ferner wurde gefunden, dass die Menge der bei der Verbrennung von NH_3 gebildeten Stickoxide im Abgas von zahlreichen Faktoren abhängig sein kann, u.a. dem Mischungsverhältnis von H_2 : NH_3, der Luftzahl λ, der Vorwärmung der Verbrennungsluft, der Bauweise der Brenner, etc.

[0059] Die katalytische Zersetzung von NH_3 dient der Bildung von H_2 als Produkt. Ein weiterer Aspekt der Erfindung betrifft daher ein Verfahren zur Herstellung von H_2 durch katalytische Zersetzung von NH_3 umfassend das erfindungsgemäße Verfahren zur Verminderung des Gehalts an NO_X und N_2O im Abgas einer mit NH_3 betriebenen Feuerungsanlage, bevorzugt umfassend eine Verbrennungseinrichtung zum Verbrennen von NH_3 und eine NH_3-Zersetzungseinrichtung zum Spalten von NH_3 in N_2 und H_2. Bevorzugt betrifft dieser Aspekt ein Verfahren zur Herstellung von H_2 durch katalytische Zersetzung von NH_3 umfassend das erfindungsgemäße Verfahren zur Verminderung des Gehalts an NO_X und N_2O im Abgas einer mit NH_3 und H_2 betriebenen Feuerungsanlage, bevorzugt umfassend eine Verbrennungseinrichtung zum Verbrennen von NH_3 und eine NH_3-Zersetzungseinrichtung zum Spalten von NH_3 in N_2 und H_2.

[0060] Die erfindungsgemäße Abgasbehandlungsanlage umfasst mindestens

- einen N_2O-Reduktionskatalysator und/oder einen N_2O-Zersetzungskatalysator; und
- einen NO_X-Reduktionskatalysator;

welche je nach gegebener Funktionalität bzw. Mehrfachfunktionalität gleich oder verschieden sein können und in gemeinsamen oder getrennten Reaktionszonen (Katalysatorbetten) vorliegen können.

[0061] In bevorzugten Ausführungsformen umfasst die erfindungsgemäße Abgasbehandlungsanlage

- einen N_2O-Reduktionskatalysator;
- einen N_2O-Zersetzungskatalysator; und
- einen NO_X-Reduktionskatalysator;

welche je nach gegebener Funktionalität bzw. Mehrfachfunktionalität gleich oder verschieden sein können und in gemeinsamen oder getrennten Reaktionszonen (Katalysatorbetten) vorliegen können.

[0062] In bevorzugten Ausführungsformen umfasst die erfindungsgemäße Abgasbehandlungsanlage zusätzlich wenigstens einen weiteren Katalysator bzw. erfüllt einer der vorstehend genannten N_2O-Reduktions-, N_2O-Zersetzungs- oder NO_X-Reduktionskatalysator wenigstens eine weitere Funktionalität ausgewählt aus

- NH_3-Oxidationskatalysator;
- HCN-Abbaukatalysator; und
- CO-Oxidationskatalysator.

[0063] Der NH_3-Oxidationskatalysator wird vorzugsweise eingesetzt, wenn der Anteil von unverbranntem NH_3 im Abgas (NH_3-Schlupf) größer ist als der Bedarf an NH_3 als Reduktionsmittel für NO_X und/oder N_2O in der Abgasbehandlungsanlage, so dass das Abgas nach Durchlaufen der Schritte (d_1) und/oder (d_2) sowie (e) immer noch Restmengen an NH_3 enthält, welche nicht an die Umgebung abgegeben werden sollen bzw. dürfen. Diese Restmengen an NH_3 können dann mit Hilfe des nachgeschalteten NH_3-Oxidationskatalysators durch Oxidation von NH_3 abgebaut werden.

[0064] Der HCN-Abbaukatalysator wird vorzugsweise eingesetzt, wenn der Brennstoff neben NH_3 Kohlenwasserstoffe (CH_4, Erdgas, etc.) enthält und das bei der Verbrennung gebildete Abgas gewisse Mengen an HCN enthält. Das dabei anfallende HCN kann dann mit Hilfe des HCN-Abbaukatalysators durch Hydrolyse des HCN und Oxidation der dabei gebildeten Hydrolyseprodukte (Hydrolysate), d.h. von NH_3 und CO, mit vorzugsweise im Abgas enthaltenen NO_X und N_2O abgebaut (beseitigt) werden.

[0065] Es wurde überraschend gefunden, dass HCN in wasserhaltigen Abgasen, welche gleichzeitig NO_X und N_2O in einer jeweils solchen molaren Menge enthalten, die größer oder gleich der molaren Menge an HCN ist, durch Überleiten des Abgases über einen mit Übergangsmetallen beladenen zeolithischen Katalysator, z.B. eine Packung von Katalysatorpellets enthaltend ein mit Eisen beladenes zeolithisches Material vom Strukturtyp BEA, bei Temperaturen von 300 bis 600°C, (vorzugsweise 350 bis 550°C) zu N_2, H_2O und CO_2 abgebaut werden kann.

[0066] Im Gegensatz zu bekannten Verfahren kann auf diese Weise in einem einstufigen Prozess, d.h. in einem Verfahrensschritt unter Verzicht auf teure Edelmetallkatalysatoren, eine vollständige Beseitigung von HCN, d.h. eine Überführung in ungiftige Substanzen bewirkt werden. Zur Beseitigung überschüssiger Gehalte an NO_X und N_2O kann dem HCN, NO_X und N_2O enthaltenden Abgas zusätzlich NH_3 zur NO_X- und N_2O-Reduktion und ggfs. CO oder Kohlenwasserstoffe wie z.B. CH_4 oder Propan zur N_2O-Reduktion zugesetzt werden. Die Menge an Reduktionsmittel ist in diesem Fall entsprechend den molaren Eingangsmengen an N_2O und NO_X, jeweils reduziert um die im Abgas enthaltene molare Menge an HCN, zu bemessen. Sind überschüssige Mengen an N_2O im Abgas enthalten, welche mit NH_3 oder CO bzw. Kohlenwasserstoff reduziert werden sollen, ist der NO_X-Gehalt mittels NH_3 in jedem Fall auf Null (oder nahe Null) zu reduzieren. Im Fall der Verwendung von CO oder Kohlenwasserstoffen als zusätzlichen Reduktionsmitteln kann zur Beseitigung eventueller Emissionen von CO ggf. ein zusätzlicher CO-Oxidationskatalysator nachgeschaltet dem Zeolith-Katalysator eingesetzt werden.

[0067] Der CO-Oxidationskatalysator wird vorzugsweise eingesetzt, wenn (i) Kohlenwasserstoffe (CH_4, Erdgas, etc.) als Reduktionsmittel für N_2O eingesetzt werden; und/oder (ii) ein HCN-Abbaukatalysator zum Abbau von HCN eingesetzt wird, in dessen Abbauprodukten CO enthalten ist. Das dabei jeweils ggf. anfallende CO kann dann mit Hilfe des nachgeschalteten CO-Oxidationskatalysators durch Oxidation zu CO_2 abgebaut werden.

[0068] Sofern die erfindungsgemäße Abgasbehandlungsanlage einen NH_3-Oxidationskatalysator umfasst, kann es erfindungsgemäß bevorzugt sein, das Abgas zunächst innerhalb der Abgasbehandlungsanlage mit einem Wärmetauscher auf eine tiefere Temperatur als am Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage abzukühlen, damit der NH_3-Oxidationskatalysator seine Wirkung optimiert entfalten kann. In bevorzugten Ausführungsformen umfasst die erfindungsgemäße Abgasbehandlungsanlage daher zusätzlich einen oder mehrere Wärmetauscher.

[0069] Zum Zwecke der Beschreibung bedeutet "*und/oder*" entweder "*oder*" oder "*und*", so dass beispielsweise "*A und/oder B*" die folgenden drei Bedeutungen hat: (i) nur A aber nicht B, (ii) nur B aber nicht A, und (iii) sowohl A als auch B.

[0070] Zum Zwecke der Beschreibung umfasst "NO_X" Stickstoffmonoxid (NO) sowie Stickstoffdioxid (NO_2), jedoch nicht Lachgas (N_2O).

[0071] Katalysatoren beschleunigen bestimmte chemische Umsetzungen, indem sie deren Aktivierungsenergien absenken.

[0072] Sofern nicht ausdrücklich etwas anderes angegeben ist, sind alle Angaben in ppm volumenbezogen, d.h. ppmv. Sofern nicht ausdrücklich etwas anderes angegeben ist, sind alle Prozentangaben im Hinblick auf die Gaszusammensetzung volumenbezogen, d.h. Vol.-%. Sofern nicht ausdrücklich etwas anderes angegeben ist, sind alle übrigen Prozentangaben gewichtsbezogen, d.h. Gew.-%.

[0073] Schritte (b) und (f) des erfindungsgemäßen Verfahrens sind unabhängig voneinander optional und bevorzugt.

[0074] Die Schritte (a), ggf. (b), und (c) des erfindungsgemäßen Verfahrens erfolgen nacheinander in alphabetischer Reihenfolge, gefolgt von Schritten (d) und (e) in grundsätzlich beliebiger Reihenfolge. Schritt (d) kann demnach vor Schritt (e) oder nach Schritt (e) oder gleichzeitig mit Schritt (e) erfolgen. Auch Mischformen teilweiser Gleichzeitigkeit sind möglich. Dies kann insbesondere dann relevant sein, wenn ein und dasselbe Katalysatormaterial in der Lage ist, mehrere Umsetzungen zu katalysieren. Solche Ausführungsformen sind erfindungsgemäß besonders bevorzugt. Diese Umsetzungen finden dann erfindungsgemäß ggf. gleichzeitig statt, wobei die Kinetik der jeweiligen Umsetzungen allerdings variieren kann, so dass eine erste Umsetzung früher beendet sein kann oder einen höheren Umsatz erreicht haben kann, als eine parallel ablaufende, zweite Umsetzung. Der optionale Schritt (f) erfolgt nach den Schritten (d) und (e).

[0075] Schritte (d_1) und (d_2) werden zum Zwecke der Beschreibung separat betrachtet, dienen aber beide dem gemeinsamen Zweck des Verminderns des Gehalts an N_2O im Abgas.

[0076] Die Schritte (d_1), (d_2) und (e) können ebenfalls in beliebiger Reihenfolge erfolgen, wobei auch diesbezüglich Mischformen teilweiser Gleichzeitigkeit möglich sind.

[0077] In bevorzugten Ausführungsformen umfasst das erfindungsgemäße Verfahren Schritte (a), ggf. (b), (c), (d_1), (e) und ggf. (f); Schritte (a), ggf. (b), (c), (d_2), (e) und ggf. (f); oder Schritte (a), ggf. (b), (c), (d_1), (d_2), (e) und ggf. (f).

[0078] In bevorzugten Ausführungsformen durchläuft das Abgas die Schritte des erfindungsgemäßen Verfahrens in einer der folgenden Reihenfolgen:

(i) (a) → (c) → (d_1) → (e);

(ii) (a) → (c) → (e) → (d_2);

(iii) (a) → (c) → (e) → (d_2) → (d_1);

(iv) (a) → (c) → (e) → (d1+d2); oder

(v) (a) → (c) → (e) → (d_1).

[0079] In bevorzugten Ausführungsformen durchläuft das Abgas die Schritte des erfindungsgemäßen Verfahrens in einer der folgenden Reihenfolgen:

(vi) (a) → (b) → (c) → (d_1) → (e);

(vii) (a) → (b) → (c) → (e) → (d_2);

(viii) (a) → (b) → (c) → (e) → (d_2) → (d_1);

(ix) (a) → (b) → (c) → (e) → (d1+d2); oder

(x) (a) → (b) → (c) → (e) → (d_1).

[0080] In bevorzugten Ausführungsformen durchläuft das Abgas die Schritte des erfindungsgemäßen Verfahrens in einer der folgenden Reihenfolgen:

(xi) (a) → (b) → (c) → (d_1) → (e) → (f);

(xii) (a) → (b) → (c) → (e) → (d_2) → (f);

(xiii) (a) → (b) → (c) → (e) → (d_2) → (d_1) → (f);

(xiv) (a) → (b) → (c) → (e) → (d1+d2) → (f); oder

(xv) (a) → (b) → (c) → (e) → (d_1) → (f).

[0081] Dabei bedeutet (d1+d2), dass sowohl Schritt (d_1) als auch Schritt (d_2) durchlaufen wird, wobei die Durchführung dieser beiden Schritte (d_1) und (d_2) mindestens zum Teil gleichzeitig erfolgt, d.h. beide Schritte parallel ablaufen.

[0082] Zwischen diesen Schritten können weitere, nicht ausdrücklich genannte Schritte erfolgen.

Stoffströme:

[0083] Zum Zwecke der Beschreibung werden u.a. folgende Stoffströme unterschieden:

- NH_3 (Edukt), welches als Ausgangsmaterial für die katalytische Zersetzung eingesetzt und dazu bevorzugt der NH_3-Zersetzungseinrichtung zugeführt wird;
- Zwischenproduktgas, welches im Falle hintereinandergeschalteter NH_3-Zersetzungseinrichtungen eine vorgeschaltete NH_3-Zersetzungseinrichtung (Vorreaktor) verlässt und einer nachgeschalteten NH_3-Zersetzungseinrichtung (Hauptreaktor) zugeführt wird; im Falle mehrerer Vorreaktoren werden ggf. mehrere Zwischenproduktgase unterschieden; das Zwischenproduktgas enthält die Produkte einer partiellen katalytischen Zersetzung von NH_3, typischerweise H_2, N_2 und vergleichsweise große Mengen an nicht zersetztem NH_3;
- Produktgas, welches durch die katalytische Zersetzung von NH_3 erhalten wird, typischerweise H_2, N_2 und vergleichsweise geringe Mengen an nicht zersetztem NH_3; im Falle mehrerer hintereinandergeschalteter NH_3-Zersetzungseinrichtungen ist das Produktgas das Gasgemisch, welches die letzte der hintereinandergeschalteten NH_3-Zersetzungseinrichtungen verlässt;
- Verbrennungsgas, welches in der erfindungsgemäßen Feuerungsanlage, bevorzugt in der Verbrennungseinrichtung, zur Erzeugung von Verbrennungswärme verbrannt wird; das Verbrennungsgas enthält NH_3 und H_2, ggf. zusätzlich N_2;
- Verbrennungsluft, welche der erfindungsgemäßen Feuerungsanlage, bevorzugt der Verbrennungseinrichtung, zugeführt wird, damit das Verbrennungsgas im Gemisch mit der Verbrennungsluft verbrennen kann; die Verbrennungsluft enthält O_2 und N_2;
- Abgas, welches bei der Verbrennung des Verbrennungsgases im Gemisch mit der Verbrennungsluft gebildet wird; das Abgas enthält N_2, H_2O, NO_X und N_2O.

[0084] Es ist eine wesentliche Aufgabe der Erfindung, in diesem Abgas den Gehalt an NO_X und N_2O zu vermindern.

Schritt (a):

[0085] In Schritt (a) des erfindungsgemäßen Verfahrens erfolgt das Verbrennen von NH_3 zum Betrieb einer Feuerungsanlage. Bevorzugt wird in Schritt (a) des erfindungsgemäßen Verfahrens NH_3 verbrannt, ggf. im Gemisch mit weiteren Bestandteilen (z.B. H_2 oder CH_4). Bevorzugt umfasst die Feuerungsanlagen dabei eine Verbrennungseinrichtung, in welcher NH_3 unter Erzeugung von Verbrennungswärme verbrannt wird, sowie eine NH_3-Zersetzungseinrichtung, welche mit der Verbrennungseinrichtung in Wärmeaustausch steht und in welcher NH_3 katalytisch in N_2 und H_2 zersetzt wird. Bei der Verbrennung wird ein Abgas erzeugt, welches N_2, H_2O, NO_X und N_2O umfasst. Reste an nicht verbranntem NH_3 können ggf. ebenfalls enthalten sein. Das Abgas verlässt die Feuerungsanlage, bevorzugt die Verbrennungseinrichtung, und wird anschließend dem optionalen Schritt (b) oder direkt Schritt (c) des erfindungsgemäßen Verfahrens zugeführt.

[0086] "*Feuerungsanlagen*" im Sinne der Erfindung erzeugen Wärme durch Verbrennungsprozesse. Bevorzugt umfassen die Feuerungsanlagen eine Verbrennungseinrichtung zum Verbrennen von NH_3 und eine NH_3-Zersetzungseinrichtung zum Spalten von NH_3 in N_2 und H_2. Durch Verfeuerung von Verbrennungsgasen wird Wärme erzeugt. "*Feuerungsanlagen*" bzw. die davon umfassten "*Verbrennungseinrichtungen*" im Sinne der Erfindung sind jegliche Anlagen, bei denen NH_3 oder ein NH_3 enthaltender Brennstoff mit O_2 (vorzugsweise aus Verbrennungsluft) oxidiert wird mit dem Ziel, dabei als Hauptprodukte insbesondere N_2 und H_2O zu erzeugen. Anlagen, bei denen NH_3 mit O_2 oxidiert wird mit dem Ziel, dabei als Hauptprodukte Stickstoffverbindungen höher Oxidationszahlen zu erzeugen (z.B. NO_X), wie dies beispielsweise bei der Herstellung von Salpetersäure der Fall ist, sind weder Feuerungsanlagen noch Verbrennungseinrichtungen im Sinne der Erfindung. Zur Erzeugung solcher Stickstoffverbindungen höher Oxidationszahlen als Hauptprodukte sind üblicherweise Katalysatoren erforderlich. Erfindungsgemäß bevorzugt ist die erfindungsgemäße Feuerungsanlage mit keinem Katalysator ausgerüstet, d.h. die erfindungsgemäße Verbrennung von NH_3 und H_2 erfolgt erfindungsgemäß bevorzugt nicht katalysiert.

[0087] Das Verbrennen von NH_3 bedeutet die Oxidation von NH_3 mit O_2, wobei diese Umsetzung erfindungsgemäß nicht vollständig sein muss, so dass das Abgas restliches, nicht verbranntes (nicht oxidiertes, nicht umgesetztes) NH_3 enthalten kann (NH_3-Schlupf, NH_3-Durchbruch). Dasselbe gilt, wenn NH_3 nicht in Reinform, sondern zusammen mit anderen brennbaren Gasen verbrannt wird, insbesondere H_2 und/oder CH_4 (Erdgas). Das zur Verbrennung eingesetzte O_2 kann in Form von Verbrennungsluft eingesetzt werden, wobei die Verbrennungsluft ggf. mit O_2 angereichert sein kann.

[0088] In bevorzugten Ausführungsformen erfolgt in Schritt (a) des erfindungsgemäßen Verfahrens das Verbrennen von NH_3 in einer Feuerungsanlage, welche eine Verbrennungseinrichtung zum Verbrennen von NH_3 und eine NH_3-Zersetzungseinrichtung zum Spalten von NH_3 in N_2 und H_2 umfasst. Die Verbrennung von NH_3 in der Verbrennungseinrichtung dient der Beheizung der NH_3-Zersetzungseinrichtung, bevorzugt eines mit Katalysator gefüllten Reaktors, zum Spalten (*Cracking*) von NH_3 in N_2

und H_2. Das Spalten von NH_3 in N_2 und H_2 erfolgt erfindungsgemäß als katalytische Zersetzung von NH_3 an einem NH_3-Zersetzungskatalysator.

[0089] Erfindungsgemäß bedeutet die katalytische Zersetzung von NH_3 die Bildung von N_2 und H_2, im Stand der Technik gelegentlich auch als "*Spaltung*" oder "*Cracking*" bezeichnet. Die Begriffe "*katalytische Zersetzung*", "*Zersetzung*", "*katalytische Spaltung*", "Spaltung", "*katalytisches Cracking*" und "*Cracking*" von NH_3 werden zum Zwecke der Beschreibung als untereinander austauschbare Synonyme verwendet. Die katalytische Zersetzung von NH_3 erfolgt erfindungsgemäß bevorzugt in Abwesenheit von O_2.

[0090] Die erfindungsgemäße Feuerungsanlage umfasst bevorzugt eine Verbrennungseinrichtung und eine NH_3-Zersetzungseinrichtung, welche miteinander in Wärmeaustausch stehen. In der Verbrennungseinrichtung wird ein Verbrennungsgas, welches NH_3 und bevorzugt H_2 enthält, zusammen mit Verbrennungsluft, welche O_2 enthält, unter Erzeugung von Verbrennungswärme verbrannt. Die so erzeugte Verbrennungswärme wird mindestens teilweise als Wärmestrom der NH_3-Zersetzungseinrichtung zugeführt (bzw. auf die NH_3-Zersetzungseinrichtung übertragen), um die für die endotherme katalytische Zersetzung von NH_3 zu H_2 und N_2 benötigte Wärme zu liefern. Darüber hinaus wird die Verbrennungswärme erfindungsgemäß bevorzugt dazu genutzt, das zu zersetzende NH_3, das Verbrennungsgas sowie die Verbrennungsluft auf erhöhte Temperatur vorzuwärmen.

[0091] "*Verbrennungseinrichtung*" und "*Ofen*" werden zum Zwecke der Beschreibung als untereinander austauschbare Synonyme verwendet.

[0092] Die NH_3-Zersetungseinrichtung ist bevorzugt ein Röhrenreaktor, welcher analog einem Primärreformer zur Erzeugung von Synthesegas oder Wasserstoff aus Erdgas ausgestaltet ist. Die grundlegende Konstruktion eines solchen gefeuerten Rohrreaktors, welcher analog einem Primärreformer ausgestaltet ist, beinhaltet ein oder mehrere den NH_3-Zersetzungskatalysator enthaltende Rohre, die in einem Verbrennungsraum angeordnet sind, in den Flammen von Brennern hineinragen und in dem die Strahlungswärme und Konvektionswärme der Flammen und des heißen Abgases eine Wärmeübertragung auf das durch den NH_3-Zersetzungskatalysator strömende NH_3 (Prozessgas) bewirken.. Die Verbrennungseinrichtung umfasst somit bevorzugt einen Verbrennungsraum und einen oder mehrere Brenner, bevorzugt mehrere Brenner. Die NH_3-Zersetzungseinrichtung (parallel angeordnete Rohre) befindet sich dann innerhalb der Verbrennungseinrichtung (Verbrennungsraum, Brennkammer). Um einen gleichmäßigen Energieeintrag sicherzustellen und die Flammenform definieren zu können, wird das Abgas durch einen aufgeprägten Druckgradienten aus der Verbrennungseinrichtung abgeführt, etwa durch die Verwendung von Verdichtern in der Zufuhr der Verbrennungsluft oder der Abfuhr des Abgases. Um über die Länge des NH_3-Zersetzungskatalysatorbettes innerhalb der Rohre einen ausreichenden Wärmedurchgang sicher zu stellen, muss das Abgas auch am Ende des NH_3-Zersetzungskatalysatorbettes, d.h. am Ende der Rohre, noch eine ausreichend hohe Temperatur aufweisen, die eine signifikante Abgabe an Strahlungswärme erlaubt. Das Abgas verlässt die Verbrennungseinrichtung (Verbrennungsraum, Brennkammer)

daher mit hohen Temperaturen, die im Fall eines analog eines Primärreformers ausgestalteten Röhrenreaktors über 1000°C liegen können. Typischerweise beträgt der Anteil der in die endotherme katalytische Zersetzung von NH_3 übertragenen Wärme an der gesamten Energie, welche durch die Verbrennung des Verbrennungsgases erzeugt wird, etwa 40-60%. Die restliche Wärme kann für andere Zwecke genutzt werden.

[0093] Das Abgas wird nach dem Abzug aus der Verbrennungseinrichtung (Verbrennungsraum, Brennkammer) bevorzugt durch einen Abgaskanal geleitet, der bevorzugt drei wesentliche Aufgaben erfüllt:

1. Nutzung der nicht durch die endotherme katalytische Zersetzung von NH_3 zu N_2 und H_2 genutzten Wärme der Verbrennung von NH_3 mit dem Ziel der Vermeidung von Energievergeudung bzw. der Steigerung der Energieeffizienz;
2. Vorwärmung von Stoffströmen (z.B. NH_3, Verbrennungsgas, Verbrennungsluft) mit dem Ziel der Verbesserung der Energieintegration und der Steigerung der Wasserstoffausbeute; und
3. Verringerung des Gehaltes an Stickoxiden (insbesondere NO, NO_2 und N_2O) durch geeignete Reaktionsführung mit dem Ziel der Minimierung ihrer Emission bzw. Einhaltung regulatorischer Grenzwerte.

[0094] Bevorzugt umfasst Schritt (a) des erfindungsgemäßen Verfahrens, d.h. das Verbrennen von NH_3 und bevorzugt H_2 zum Betrieb der Feuerungsanlage unter Erzeugung eines Abgases, welches die Feuerungsanlage verlässt, folgende Teilschritte:

(a_1) optional und bevorzugt Erwärmen und Verdampfen von (flüssigem) NH_3;

(a_2) optional und bevorzugt Erwärmen von Verbrennungsluft (bevorzugt umfassend N_2 und O_2);

(a_3) Verbrennen von Verbrennungsgas (umfassend NH_3 und bevorzugt H_2) und Verbrennungsluft (umfassend O_2) in einer Feuerungsanlage, bevorzugt einer Verbrennungseinrichtung, wobei ein Abgas (umfassend N_2, H_2O, NO_X und N_2O) erzeugt und Verbrennungswärme freigesetzt wird, wobei zumindest ein Teil der Verbrennungswärme in eine NH_3-Zersetzungseinrichtung strömt; und

(a_4) katalytisches Zersetzen von NH_3 in der NH_3-Zersetzungseinrichtung an einem NH_3-Zersetzungskatalysator, wobei Verbrennungswärme aus Teilschritt (a_3) aufgenommen wird und ein Produktgas erzeugt wird (umfassend H_2 und N_2).

<u>Verbrennung von Verbrennungsgas und Verbrennungsluft:</u>

[0095] In bevorzugten Ausführungsformen erfolgt das Verbrennen von NH_3 als alleiniger Treibstoff, d.h. es wird neben dem NH_3 bevorzugt kein weiteres Gas verbrannt. In anderen bevorzugten Ausfüh-

rungsformen erfolgt das Verbrennen von NH_3 im Gemisch mit H_2. In weiteren bevorzugten Ausführungsformen erfolgt das Verbrennen von NH_3 im Gemisch mit CH_4 (Erdgas). Diese Gase bzw. Gemische werden zum Zwecke der Beschreibung auch als "*Verbrennungsgas*" bezeichnet. Neben NH_3 und ggf. H_2 und/oder CH_4 kann das Verbrennungsgas ggf. weitere Bestandteile enthalten, z.B. N_2.

[0096] Erfindungsgemäß wird Wärme durch Verbrennung eines Verbrennungsgases in einer Feuerungsanlage, bevorzugt in einer Verbrennungseinrichtung bereitgestellt. Die Verbrennungseinrichtung weist dafür bevorzugt einen oder mehrere Brenner auf, bevorzugt mindestens zwei Brenner, bevorzugter mindestens drei Brenner.

[0097] Das Verbrennungsgas enthält eine Mischung aus H_2 und NH_3, u.a. da diese Mischung eine mittlere Flammtemperatur erzeugt und bessere Verbrennungseigenschaften als reines NH_3 aufweist. Durch ein geeignetes Mischungsverhältnis von H_2 und NH_3 kann zudem auch der Gehalt an Stickoxiden beeinflusst werden.

[0098] Bevorzugt erfolgt die Verbrennung von NH_3, d.h. die Oxidation von NH_3 mit O_2 (oder des Gemisches von NH_3 mit einem weiteren brennbaren Gas, wie z.B. H_2, CH_4, etc.), nicht an einem Katalysator, d.h. die Verbrennung wird nicht in Gegenwart eines heterogenen Katalysators durchgeführt.

[0099] Besonders bevorzugt wird das H_2, welches im Verbrennungsgas im Gemisch mit dem zu verbrennenden NH_3 vorliegt, durch thermische und/oder katalytische Zersetzung von NH_3 gebildet (Teilschritt (a_4)). Die integrierte Verbrennung von NH_3 mit O_2 liefert dabei bevorzugt die Energie für die katalytische Zersetzung (*Cracking*). Bevorzugt erfolgt in Schritt (a) daher die Verbrennung von NH_3 integriert in einem Prozess zur thermischen und/oder katalytischen katalytische Zersetzung von NH_3 in N_2 und H_2.

[0100] Das bei der Verbrennung gebildete Abgas ist in seiner Zusammensetzung vom eingesetzten Verbrennungsgas abhängig. In bevorzugten Ausführungsformen wird NH_3 ausreichend H_2 zugesetzt, um die Verbrennungseigenschaften des Verbrennungsgases dahingehend zu verändern, dass eine weitgehend quantitative Umsetzung während der Verbrennung erreicht wird. In anderen bevorzugten Ausführungsformen wird als Verbrennungsgas eine Mischung aus dem Ablauf einer Abtrenneinheit zur Aufreinigung des H2, bevorzugt aus dem Off-Gas einer Druckwechseladsorptionsvorrichtung oder dem Retentat einer Membraneinheit, bevorzugt einer Druckwechseladsorptionsvorrichtung, und einem Anteil des NH_3 oder des als Produkt erzeugten H_2 eingesetzt.

[0101] Wenn die katalytische Zersetzung von NH_3 unvollständig verläuft, enthält das Produktgas (d.h. das Produkt der katalytische Zersetzung) neben N_2 und H_2 zusätzlich noch restliches, nicht umgesetztes NH_3. Bevorzugt wird das H_2, welches im Verbrennungsgas im Gemisch mit dem zu verbrennenden NH_3 vorliegt, durch katalytische Zersetzung von NH_3 gebildet und anschließend ggf. im Gemisch mit restlichem NH_3 und/oder N_2 von dem bei der katalytischen Zersetzung von NH_3 gebildeten Produktgas abgetrennt, bevorzugt durch Druckwechseladsorption (PSA). So wird das bei der katalytischen Zersetzung

von NH_3 and einem NH_3-Zersetzungskatalysator erhaltene Produktgas erfindungsgemäß bevorzugt durch Druckwechseladsorption getrennt

- in H_2 hoher Reinheit einerseits (Produktwasserstoff) und
- in ein Gasgemisch (Off-Gas der Druckwechseladsorption) andererseits.

[0102] Das von dem H_2 abgetrennte Gasgemisch (Off-Gas der Druckwechseladsorption) enthält neben N_2 ggf. restliches, nicht katalytisch zersetztes NH_3 sowie eine gewisse Menge an H_2. So bestimmt die Trenneffizienz der Vorrichtung zur Aufreinigung des H_2 darüber, wie viel H_2 im Off-Gas der Druckwechseladsorptionsvorrichtung oder im Retentat der Membraneinheit enthalten ist und hat deshalb ebenfalls einen Einfluss auf die Zusammensetzung des daraus bei der Verbrennung gebildeten Abgases. Die quantitative Abtrennung der Gesamtmenge an H_2 ist produktionstechnisch nicht möglich bzw. nicht wirtschaftlich, weshalb das abgetrennte Gasgemisch (Off-Gas der Druckwechseladsorption) häufig eine gewisse Menge an H_2 enthält. Auf diese Weise wird dann bereits als ein Gemisch aus NH_3 und H_2 erhalten, welches entweder als solches direkt verbrannt oder zunächst mit weiterem NH_3 (oder H_2) angereichert werden kann.

[0103] Dieses durch Druckwechseladsorption vom Produktgas abgetrennte Gasgemisch wird daher erfindungsgemäß bevorzugt als Verbrennungsgas eingesetzt. Dabei kann das abgetrennte Gasgemisch je nach Gehalt an NH_3 und H_2 als solches unverändert als Verbrennungsgas eingesetzt werden, oder es wird eine entsprechende Menge an NH_3 oder H_2 zudosiert, um das gewünschte Verhältnis von NH_3 zu H_2 einzustellen. Wenn die katalytische Zersetzung vollständig oder nahezu vollständig verläuft, ist der Gehalt an NH_3 im abgetrennten Gasgemisch (Off-Gas der Druckwechseladsorption) ggf. noch zu gering und es muss noch die erforderliche Menge an NH_3 zugesetzt werden.

[0104] Die genaue Zusammensetzung des bei der Verbrennung des Verbrennungsgases gebildeten Abgases ist von der Zusammensetzung des Verbrennungsgases und der Verbrennungsluft abhängig. Ein wesentlicher Parameter bei der Beschreibung der Verbrennungseigenschaften des Verbrennungsgas, der Emission von Schadstoffen und der Zusammensetzung des Abgases ist das Mischungsverhältnis von NH_3 zu H_2.

[0105] Die folgende Tabelle zeigt auf Grundlage von Simulationsrechnungen für fünf verschiedene Prozessführungen #1 bis #5 die Zusammensetzung des Verbrennungsgases und des entstehenden Abgases bei gleicher Zusammensetzung der Verbrennungsluft. Die Molenströme sind normiert auf einen Brennwertstrom von 1 MW, damit sie vergleichbar sind. Bei Prozessführungen #1 bis #3 (Vergleichsbeispiele) werden reines CH_4, reines NH_3 bzw. reiner H_2 als Verbrennungsgas eingesetzt. Bei Prozessführungen #4 und #5 (erfindungsgemäße Beispiele) werden Mischungen aus H_2 und NH_3 (Prozessführung #4) bzw. H_2, NH_3, N_2 und H_2O als Verbrennungsgas (Prozessführung #5; Off-Gas einer Druckwechseladsorptionsvorrichtung (PSA)) eingesetzt:

	#1	#2	#3	#4	#5
	CH_4	NH_3	H_2	Anfahr-	Normal-

					betrieb	betrieb
Verbrennungsgas:						
CH_4	Mol.-%	100,00	0	0	0	0
H_2	Mol.-%	0	0	100,00	10,00	26,4
N_2	Mol.-%	0	0	0	0	62,7
NH_3	Mol.-%	0	100,00	0	90,00	10,6
H_2O	Mol.-%	0	0	0	0	0,2
molarer Strom	kmol/h	4,49	11,36	14,89	11,64	36,95
Verbrennungsluft:						
N_2	Mol.-%	77,48	77,48	77,48	77,48	77,48
O_2	Mol.-%	20,78	20,78	20,78	20,78	20,78
Ar	Mol.-%	0,91	0,91	0,91	0,91	0,91
CO_2	Mol.-%	0,03	0,03	0,03	0,03	0,03
H_2O	Mol.-%	0,80	0,80	0,80	0,80	0,80
molarer Strom	kmol/h	49,63	47,40	40,56	46,86	50,72
Luftzahl		1,15	1,16	1,13	1,15	1,35
Abgas:						
N_2	Mol.-%	71,06	68,84	65,47	68,63	80,93
O_2	Mol.-%	2,48	2,15	2,05	2,15	2,52
Ar	Mol.-%	0,83	0,70	0,77	0,70	0,43
CO_2	Mol.-%	8,32	0,03	0,03	0,03	0,02
H_2O	Mol.-%	17,31	28,29	31,69	28,50	16,11
molarer Strom	kmol/h	54,12	61,60	48,00	60,54	108,24

[0106] Wie die Daten in vorstehender Tabelle veranschaulichen, strömt bei der erfindungsgemäßen Verfahrensführung #5 (Off-Gas der PSA) fast doppelt so viel Abgas durch den Abgaskanal wie bei einem mit Wasserstoff gefeuerten Reformer (Verfahrensführung #3), und nur knapp weniger als das Doppelte verglichen mit einem mit Methan gefeuerten Reformer (Verfahrensführung #1).

[0107] Daher hat die erfindungsgemäße Verfahrensführung #5 im Abgaskanal ein deutlich flacheres Temperaturprofil als die anderen Verfahrensführungen und kann daher mehr Schritte zur Wärmeintegration umfassen, darunter auch solche, die bei niedriger Rauchgastemperatur möglich sind. Wie Verfahrensführungen #5 bis #7 veranschaulichen, wird dadurch eine (beinahe) vollständige Energieintegration ermöglicht.

[0108] Bei mit Wasserstoff oder Methan gefeuerten Reformern müsste das Temperaturprofil im Abgaskanal deutlich steiler sein, weil ein geringes Volumen an Abgas zur Verfügung steht. Da die Wärmetauscher im Abgaskanal eine Mindesttemperaturdifferenz benötigen, um wirtschaftlich ausgelegt werden zu können, ist bei steilen Temperaturprofilen die Gefahr deutlich größer, aufgrund der erforderlichen Temperaturdifferenz nicht übertragbare Restwärme ungenutzt zu lassen. In jedem Fall ist das in den Abgaskanal eintretende Abgas in diesen Fällen deutlich heißer und erfordert den Einsatz aufwändigerer Materialien.

[0109] Bevorzugt wird im Verbrennungsgas ein Mischungsverhältnis von NH_3 und H_2 eingestellt, welches im Hinblick auf die anschließende Verbrennung optimiert ist. Bevorzugt beträgt der Anteil von H_2 höchstens 80 Mol.-%, bevorzugter höchstens 70 Mol.-%, noch bevorzugter höchstens 60 Mol.-%, am bevorzugtesten höchstens 50 Mol.-%, und insbesondere höchstens 40 Mol.-%. Bevorzugt beträgt der Anteil von H_2 höchstens 30 Mol.-%, bevorzugter höchstens 20 Mol.-%, noch bevorzugter höchstens 15 Mol.-%, am bevorzugtesten höchstens 10 Mol.-%, und insbesondere höchstens 5 Mol.-%.

[0110] Bevorzugt beträgt der Anteil von H_2 mindestens 1 Mol.-%, bevorzugter mindestens 2 Mol.-%, noch bevorzugter mindestens 3 Mol.-%, am bevorzugtesten mindestens 4 Mol.-%, und insbesondere mindestens 5 Mol.-%. Bevorzugt beträgt der Anteil von H_2 mindestens 10 Mol.-%, bevorzugter mindestens 20 Mol.-%, noch bevorzugter mindestens 30 Mol.-%, am bevorzugtesten mindestens 40 Mol.-%, und insbesondere mindestens 50 Mol.-%.

[0111] In besonders bevorzugten Ausführungsformen liegt das molare Verhältnis von H_2 : NH_3 im Gemisch im Bereich von 45:55 bis 90:10, bevorzugt 50:50 bis 85:15, bevorzugter 55:45 bis 80:20, noch bevorzugter 60:40 bis 75:25, am bevorzugtesten 65:35 bis 70:30 oder 70:30 bis 75:25. Da erfindungsgemäß bevorzugt als Verbrennungsgas das abgetrennte Gasgemisch einer Gaswechseladsorptionsanlage eingesetzt wird, ist das molare Verhältnis von H_2 : NH_3 hautsächlich von deren Wasserstoffausbeute abhängig und kann im Extremfall bei etwa 15:1 liegen.

[0112] Bei der Verbrennung des Gemisches von Verbrennungsgas und Verbrennungsluft liegt die Luftzahl λ für die Verbrennung bevorzugt im Bereich von 0,9 bis 1,7, bevorzugter 1,0 bis 1,6, noch bevorzugter 1,1 bis 1,5, am bevorzugtesten 1,2 bis 1,4. Ein weiterer ganz bevorzugter Bereich der Luftzahl λ liegt zwischen 1,0 und 1,2.

[0113] In besonders bevorzugten Ausführungsformen liegt die Luftzahl im Bereich von 1,06±0,06, bevorzugt 1,06±0,05, bevorzugter 1,06±0,04, noch bevorzugter 1,06±0,03, am bevorzugtesten 1,06±0,02, und insbesondere 1,06±0,01.

[0114] Die Luftzahl λ (d.h. das Verbrennungsluftverhältnis) gibt das Massenverhältnis von Verbrennungsluft zu Verbrennungsgas relativ zum stöchiometrisch idealen Verhältnis für einen theoretisch vollständigen Verbrennungsprozess an. Es ist definiert als dasjenige Verhältnis von Luft zu Brennstoff, welches eine ausreichende Masse an Sauerstoff enthält, um eine vollständige Verbrennung einer gegebenen Masse an Brennstoff zu erreichen (vgl. z.B. K. Soman, Thermal Engineering, PHI, 2011, Seite 224, Nr. 5.4.2). Grundsätzlich kann das Verhältnis massenbezogen oder stoffmengenbezogen ausgedrückt werden (vgl. z.B. P. Majumdar, Design of Thermal Energy Systems, Wiley 2021, Seite 66, Nr. 2.13.5.2). Zum Zwecke der Beschreibung ist das Verhältnis massenbezogen. Wird für einen Verbrennungsvorgang nicht Luft, sondern ein anderes sauerstoffhaltiges Gas verwendet, so ist "*Luft*" strenggenommen durch "*Sauerstoffträger*" zu ersetzen. Der Parameter λ wird aber weiter in der obigen Definition genutzt.

[0115] In bevorzugten Ausführungsformen liegt das Äquivalenzverhältnis NH_3/H_2 (Φ) (nicht zu verwechseln mit dem Kehrwert der Luftzahl $1/\lambda$) im Bereich von 0,55 bis 1,40, bevorzugter 1,05 bis 1,20. Die Bildung von Stickoxiden hängt u.a. Zusammen mit dem Gehalt an Restsauerstoff im Abgas, welcher beispielsweise 3 Mol.-% oder 1 Mol.-% betragen kann. Um beispielweise einen Restsauerstoffgehalt von 1 Mol.-% zu erreichen, ist eine Luftzahl von ca. 1,1 erforderlich.

[0116] Die Konzentration an Stickoxiden (insbesondere NO, NO_2 und N_2O) sowie die Taupunkte kondensierbarer Komponenten sind zwei Parameter, welche für die technische Ausführung und Ausrüstung des Abgaskanals von großer Bedeutung sind. Diese Parameter werden ebenfalls maßgeblich von der Zusammensetzung des Abgases bestimmt. Im Abgas von Röhrenreaktoren, welche analog einem Primärreformer ausgebildet sind, sind Stickoxide enthalten, welche in der Verbrennungsreaktion entstehen. In vielen Ländern ist die Emission von Stickoxiden reguliert, und muss, im Fall einer Überschreitung zulässiger Grenzwerte, durch Einsatz geeigneter Techniken verringert werden.

[0117] Stickoxide (insbesondere NO, NO_2 und N_2O) entstehen in Verbrennungsreaktionen durch verschiedene Mechanismen. In Röhrenreaktoren, welche analog einem Primärreformer ausgebildet sind, werden mit einem Verbrennungsgas, welches kein NH_3 enthält, ausschließlich sogenannte "*thermische Stickoxide*" erzeugt, und zwar durch Rekombination von Stickstoffradikalen mit Sauerstoff, deren Bildung bei hohen Temperaturen bevorzugt ist. Mit einem Verbrennungsgas, welches NH_3 enthält, können sich Stickoxide über verschiedene Reaktionspfade in der komplexen Kinetik der Verbrennung von NH_3 bilden, sogenannte "*kinetische Stickoxide*".

[0118] In Anlagen zur Herstellung von H_2 aus NH_3 können sowohl thermische Stickoxide als auch kinetische Stickoxide gebildet werden. Die Anwesenheit von H_2 im Verbrennungsgas erhöht die Flammentemperatur, und die Zumischung von NH_3 erhöht die Neigung zur Bildung kinetischer Stickoxide. In der Literatur sind zahlreiche Fälle beschrieben, bei denen die Verbrennung von Gemischen von NH_3 und H_2 zu deutlich größeren Emissionen von Stickoxiden führt, als dies bei herkömmlichen Primärreformern der Fall ist. Dabei ist die Emission von Stickoxiden nicht nur abhängig von der Zusammensetzung des Verbrennungsgases, spezifisch vom Mischungsverhältnis von NH_3 und H_2, sondern auch von verschiedenen anderen Parametern, insbesondere

- der Vorheiztemperatur der Verbrennungsluft und des Verbrennungsgases;
- dem Überschuss der Verbrennungsluft bei der Verbrennung; und
- der Bauweise und Geometrie des verwendeten Brenners.

[0119] Die genauen Emissionen an Stickoxiden sind daher weitaus stärker vom Einzelfall abhängig, als es beim herkömmlichen Primärreformern der Fall ist. Übliche Emissionen an NO_X (d.h. NO und NO_2) liegen im Bereich 100 – 10.000 ppmv. Ein Beispiel für ein Abgas mit einem vergleichsweise geringen Gehalt an Stickoxiden enthält 500 ppmv NO, 10 ppmv NO_2 und 10 ppmv N_2O (Fall A). Ein Beispiel für ein Abgas mit einem vergleichsweise hohen Gehalt an Stickoxiden enthält 5000 ppmv NO, 10 ppmv NO_2 und 50 ppmv N_2O (Fall B).

[0120] Während des Anfahrens der Anlage mit einem Verbrennungsgas reich an NH_3 würde zu vergleichsweise geringen Emissionen an NO führen, aber zu vergleichsweise hohen Emissionen an N_2O. Dieser Fall muss bei der Auslegung der Ausrüstungen berücksichtigt werden, auch wenn er für die Massenbilanz der Anlage im Normalbetrieb, d.h. nach Abschluss des Anfahrbetriebs, ohne größere Bedeutung ist.

[0121] Außerdem sind bei der Betrachtung des Abgaskanals einer Anlage zur Herstellung von H_2 aus NH_3 sind zwei Taupunkte von Interesse: der Taupunkt von H_2O und der Taupunkt von NH_4NO_3.

[0122] Der Taupunkt von H_2O ist abhängig vom Partialdruck von H_2O im Abgas. In Prozessvarianten, bei denen das Off-Gas der Druckwechseladsorptionsvorrichtung (PSA) oder das Retentat einer Membraneinheit ins Verbrennungsgassystem geleitet wird, enthält das Abgas hauptsächlich N_2, und nur vergleichsweise wenig H_2O, was zu allgemein eher niedrigen Taupunkten führt.

[0123] Die nachfolgende Tabelle zeigt für die bereits eingeführten Prozessvarianten den Wassergehalt des Abgases und den Taupunkt von Wasser:

	Molanteil H_2O [Mol.-%]	Partialdruck H_2O [bar]	Taupunkt [°C]
CH_4	17,31	0,16	54,78
NH_3	28,29	0,25	65,40
H_2	31,69	0,29	67,97
90 Mol.-% NH_3 10 Mol.-% H_2	28,5	0,26	65,57
PSA-Offgas + NH_3	16,11	0,14	53,29

[0124] Wird dieser Taupunkt von H_2O im Betrieb der Anlage erreicht, kommt es zur Tropfenbildung. Da eine Temperaturveränderung im Abgas durch den Wärmeabfluss in einem Wärmetauscher verursacht wird, kann es auf der Oberfläche der Rohre zu einem Niederschlag des auskondensierten Wassers kommen, und zu einer Verschlechterung des Wärmeübergangs. Beim Eintritt von Tropfen in ein Abgasgebläse kann es zu einer Beschädigung des Rotors kommen. Die Auskondensation von flüssigem H_2O ist daher nicht erwünscht. Um die Beeinflussung des Betriebs der Anlage und ihre Beschädigung zu vermeiden, sollte im Abgaskanal ein Abstand der minimalen Abgastemperatur vom Taupunkt von 25 K eingehalten werden. Erfindungsgemäß bevorzugt wird das Abgas daher im Abgaskanal nicht unter ca. 81-88°C abgekühlt werden, je nach den jeweils gegebenen Rahmenbedingungen. Diese Temperatur ist folglich das technisch erreichbare Minimum, und die innere Energie des Abgases kann nicht weiter genutzt werden. Es handelt sich hier daher um einen nicht weiter vermeidbaren Energieverlust.

[0125] Der Taupunkt von NH_4NO_3 ist relevant, weil Einrichtungen zur Entfernung von Stickoxiden aus Abgasen (Abgasbehandlungsanlagen) einen Schlupf an nicht vollständig abgebauten Stickoxiden, meist NO, aufweisen können. Das in die Abgasbehandlungsanlage als Reduktionsmittel zudosierte NH_3 wird häufig ebenfalls nicht vollständig umgesetzt, so dass es zum Schlupf geringer Mengen an NO und NH_3 kommt. Durch die Abkühlung des Abgases im Abgaskanal kann es zur Unterschreitung des Taupunktes von NH_4NO_3 kommen, welches sich auf den Rohren eines Wärmetauschers niederschlagen

kann. Dieser Niederschlag stellt eine Gefahr für den sicheren Betrieb der Anlage dar, da er schlagempfindlich ist und explosiv reagieren kann. Die Tabelle zeigt die Taupunkte von NH_4NO_3 bei verschiedenen typischen Restgehalten von NO und NH_3 im Abgas:

Druck	[bar a]	1,00	1,00	1,00	1,00
restliches NH_3	[ppmv v]	10	10	50	10
restliches NO_X	[ppmv v]	10	10	10	50
Verhältnis NO_2/NO		1	9	1	1
Taupunkt NH_4NO_3	[°C]	71	79	79	79

[0126] Um die kritische Temperatur für den Niederschlag von NH_4NO_3 zu erreichen, muss nicht unbedingt der Gasstrom diese Temperatur erreichen bzw. unterschreiten, auch die Wandtemperatur des Rohrs eines Wärmetauschers kann bereits ausreichen und zum Niederschlag von NH_4NO_3 führen. Da die Verbrennungseinrichtung Verbrennungsluft benötigt, welche üblicherweise bei Umgebungstemperatur angesaugt wird, besteht auf den Rohren eines Wärmetauschers zur Vorwärmung von Verbrennungsluft unter üblichen Betriebsbedingungen die Gefahr des Niederschlags von NH_4NO_3.

[0127] Anders als beim Taupunkt von H_2O ist daher die Einhaltung einer Mindesttemperatur für das Abgas keine ausreichende Lösung. Um die Gefahr eines Niederschlages von NH_4NO_3 zu vermeiden, wird die Vorrichtung zur Entfernung von Stickoxiden (Abgasbehandlungsanlage) erfindungsgemäß so betrieben, dass der Schlupf entweder von NO_X oder NH_3, oder idealerweise von beiden, auf höchstens 1 ppmv reduziert wird. Dies kann erfindungsgemäß durch geeignete Reaktionsführung bei der chemischen Reduktion von NO_X mit NH_3 realisiert werden, und bevorzugt mit einem Reaktor zur Nachoxidation von NH_3 mit Restsauerstoff aus dem Abgas.

Katalytisches Zersetzen von NH_3 in H_2 und N_2:

[0128] Die katalytische Zersetzung von NH_3 läuft grundsätzlich thermisch ab, wird jedoch durch den Einsatz eines NH_3-Zersetzungskatalysators beschleunigt. Die katalytische Zersetzung von NH_3 kann erfindungsgemäß bei verschiedenen Bedingungen unter Einsatz verschiedener NH_3-Zersetzungskatalysatoren und mit verschiedenen Verschaltungen mit unterschiedlichen Reaktortypen durchgeführt werden.

[0129] Erfindungsgemäß erfolgt die katalytische Zersetzung von NH_3 bevorzugt durch Zufuhr von Wärme in Gegenwart eines NH_3-Zersetzungskatalysators. Wichtige Parameter für die katalytische Zersetzung von NH_3 sind die Art des NH_3-Zersetzungskatalysators, die Reaktionstemperatur sowie die Reaktionsdruck.

[0130] Als NH_3-Zersetzungskatalysator kommen erfindungsgemäß verschiedene Materialien in Betracht. Die Reaktionstemperatur, bei der die katalytische Zersetzung von NH_3 abläuft, ist insbesondere durch die Wahl des NH_3-Zersetzungskatalysators vorgegeben.

[0131] Geeignete Verfahren zum thermischen und/oder katalytischen Zersetzen von NH_3 in N_2 und H_2 sind einem Fachmann bekannt. Geeignete Katalysatoren für das katalytischen Zersetzen von NH_3 in N_2 und H_2 sind beispielsweise auf Al_2O_3 oder auf SiO_2 geträgertes Ru, auf $MgAl_2O_4$ geträgertes Fe, Co, Ni,

Cu oder Ru, oder Co_3Mo_3N (A. Boisen et al., Journal of Catalysis 230 (2005) 309-312; I. Lucentini et al., Ind. Eng. Chem. Res. 2021, 60, 18560-18611; H.J. Lee et al., Catalysts 2022, 12, 1203).

[0132] In bevorzugten Ausführungsformen der Erfindung wird ein Nickel-basierter NH_3-Zersetzungskatalysator eingesetzt. Die Reaktionstemperatur und der Reaktionsdruck bestimmen den Gleichgewichtsumsatz. Bei 900°C und 20 bar Druck verläuft die Zersetzung von NH_3 beinahe quantitativ. Bei 650°C beträgt der Umsatz an NH_3 etwa 98,5%, bei 500°C nur noch etwa 95%.

[0133] In bevorzugten Ausführungsformen werden Reaktionstemperaturen im Bereich von etwa 550°C bis etwa 900°C, bevorzugt etwa 550°C bis etwa 700°C eingestellt, so dass ein hoher Umsatz erreicht wird.

[0134] In anderen bevorzugten Ausführungsformen werden Reaktionstemperaturen im Bereich von etwa 600°C bis etwa 900°C, bevorzugt etwa 600°C bis etwa 700°C eingestellt, so dass ein hoher Umsatz erreicht wird.

[0135] Im Hinblick auf Energiebilanz und Umsatz liegen optimale Reaktionstemperaturen im Bereich von etwa 630°C bis 640°C. Nickel-basierte NH_3-Zersetzungskatalysatoren sind trotz der vergleichsweise hohen Reaktionstemperatur vorteilhaft. Wegen des hohen Umsatzes ist der verbleidende Restgehalt an nicht zersetztem NH_3 im Produktgas vergleichsweise gering, so dass bevorzugt auf eine separate Abscheidung von nicht zersetztem NH_3 für dessen Rückgewinnung verzichtet wird. Stattdessen erfolgt dann die gemeinsame Abscheidung von N_2 und nicht zersetztem NH_3 aus dem Produktgas durch Druckwechseladsorption im Zuge der Aufreinigung von H_2 zusammengefasst werden.

[0136] Bevorzugt umfasst der NH_3-Zersetzungskatalysator geträgertes Nickel. Bevorzugte Trägermaterialien sind ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Al_2O_3, MgO, SiO_2, mesoporöses SiO_2 (z.B. MCF-17, MCM-41, SBA-15), Zeolith (z.B. HY, H-ZSM-5), $BaMnO_3$, $BaTiO_3$, $BaZrO_3$, $CaMnO_3$, $CaTiO_3$, $CaZrO_3$, CeO_2, Gd_2O_3, $GdAlO_3$, $KNbO_3$, La_2O_3, $LaAlO_3$, MnO_2, $NaNbO_3$, Nb_2O_5, Sm_2O_3, $SmAlO_3$, $SrMnO_3$, $SrTiO_3$, $SrZrO_3$, TiO_2, Y_2O_3, ZrO_2, Kohlenstoff (z.B. CNTs, SWCNTs, AX-21, MSC-30, MESO-C, GNP, Aktivkohle, Graphen, Graphenoxid), Attapulgit, Hydrocalumit, Sepiolit, und Mischungen daraus.

[0137] In anderen bevorzugten Ausführungsformen der Erfindung wird ein Ruthenium-basierter NH_3-Zersetzungskatalysator eingesetzt. Dafür werden erfindungsgemäß bevorzugt Reaktionstemperaturen im Bereich von etwa 450°C bis etwa 500°C eingestellt, wobei allerdings etwas geringere Umsätze von beispielsweise etwa 95% erzielbar sind, so dass der verbleidende Restgehalt an nicht zersetztem NH_3 im Produktgas größer ist.

[0138] Alternativ können gegebenenfalls auch andere NH_3-Zersetzungskatalysatoren bei noch niedrigeren Reaktionstemperaturen eingesetzt werden. Je niedriger die Reaktionstemperatur ist, desto niedriger ist der Umsatz und desto mehr nicht zersetztes NH_3 muss aus dem Produktgas abgeschieden und zurückgeführt werden.

[0139] Der Reaktionsdruck beträgt erfindungsgemäß bevorzugt etwa 15 bar a bis etwa 25 bar a. Die Stöchiometrie der Reaktion ($2\ NH_3 \rightarrow N_2 + 3\ H_2$) erhöht das Volumen, weshalb sich ein erhöhter Reaktionsdruck grundsätzlich negativ auf den Umsatz auswirkt. Andererseits ist es sinnvoll, den Gesamtprozess bei höheren Drücken zu betreiben, um das Behältervolumen und damit die Investitionskosten zu begrenzen. Bei einem Reaktionsdruck von nur 1 bar könnten bei Reaktionstemperaturen ab 400°C Umsätze von mehr als 99% erreicht werden. Da ein Reaktionsdruck von 1 bar jedoch nur für Kleinstanlagen sinnvoll ist, wird die erfindungsgemäße Anlage bevorzugt bei höherem Reaktionsdruck betrieben, auch wenn dadurch eine gewisse Einbuße an Umsatz in Kauf genommen werden muss.

[0140] Der Reaktionsdruck ist insbesondere vorgegeben durch die Ausführung der Aufreinigung von H_2. Die erfindungsgemäß bevorzugte Druckwechselabsorption (PSA) zur Aufreinigung von H_2 kann erfindungsgemäß bevorzugt bei einem Druck im Bereich von etwa 15 bar bis etwa 25 bar effektiv betrieben werden. Bevorzugt liegt der Druck des Produktgases beim Verlassen der NH_3-Zersetzungseinrichtung im Bereich von etwa 15 bis etwa 25 bar a, bevorzugter etwa 18 bar a bis etwa 22 bar a, noch bevorzugter etwa 19 bar a bis etwa 21 bar a. Auf diese Weise wird ein guter Ausgleich gefunden zwischen den Anforderungen der Druckwechseladsorption einerseits und dem erzielten Umsatz andererseits.

[0141] Die katalytische Zersetzung von NH_3 kann grundsätzlich in unterschiedlichen Reaktortypen ablaufen.

[0142] Bei adiabater Reaktionsführung wird die innere Wärme des Reaktionsgases als Energiequelle für die Reaktion verwendet. Geeignete Reaktoren dafür sind autotherme Reformer und Sekundärreformer, welche mit interner Energieerzeugung arbeiten. Dem Prozessgas wird Verbrennungsluft zugefügt und ein Teil des Reaktionsgases wird verbrannt, um die Temperatur so zu erhöhen, dass am Reaktoraustritt die gewünschte Temperatur herrscht. Nachteilig ist die Anwesenheit des bei der Verbrennung entstehenden Wassers im Prozessgas, das durch Kondensation entfernt werden muss. Ein Teil des nicht zersetzten NH_3 löst sich dann im kondensierten Wasser und geht verloren. Außerdem führen die hohen Temperaturen zur Bildung erheblicher Mengen an Stickoxiden.

[0143] Erfindungsgemäß werden diese Nachteile vermieden, indem das Produktgas bevorzugt physikalisch von dem Verbrennungsgas und dem daraus gebildeten Abgas getrennt ist. Das Produktgas wird in der erfindungsgemäßen NH_3-Zersetzungseinrichtung der Feuerungsanlage durch Zersetzung von NH_3 gebildet und verlässt die NH_3-Zersetzungseinrichtung bevorzugt über einen eigenen Auslass. Das Verbrennungsgas wird zusammen mit Verbrennungsluft in der Verbrennungseinrichtung der Feuerungsanlage verbrannt und das dabei gebildete Abgas verlässt die Verbrennungseinrichtung bevorzugt ebenfalls über einen eigenen Auslass, vorzugsweise in einen Abgaskanal. Produktgas und Abgas werden bevorzugt nicht miteinander vermischt, sondern bleiben physikalisch voneinander getrennt. Bei der Verbren-

nung des Verbrennungsgases gebildete Verbrennungswärme strömt als Wärmestrom in die NH_3-Zersetzungseinrichtung und liefert so die erforderliche Wärme für die Aufrechterhaltung der endothermen katalytischen Zersetzung von NH_3.

[0144] Bevorzugt wird die katalytische Zersetzung von NH_3 isotherm, quasi-isotherm oder in einer Mischform von isothermer und adiabater Prozessführung durchgeführt. Bei isothermer Reaktionsführung bleibt die Temperatur des Gases weitgehend unverändert.

[0145] In bevorzugten Ausführungsformen der Erfindung erfolgt die katalytische Zersetzung von NH_3 in einem Reaktor analog einem Primärreformer. Dazu umfasst der Reaktor sowohl die erfindungsgemäße NH_3-Zersetzungseinrichtung als auch die erfindungsgemäße Verbrennungseinrichtung.

[0146] Der NH_3-Zersetzungskatalysator ist dazu bevorzugt in mindestens einem von NH_3 durchströmten Rohr angeordnet, bevorzugter mindestens zwei Rohren, noch bevorzugter mindestens drei Rohren. Das mindestens eine Rohr enthält den NH_3-Zersetzungskatalysator. Das mindestens eine Rohr wird bevorzugt von oben nach unten mit NH_3 durchströmt. In einer physikalisch getrennten Brennkammer wird bevorzugt als Verbrennungsgas ein Gemisch aus NH_3 und H_2 zusammen mit Verbrennungsluft verbrannt (Verbrennungseinrichtung). Der bei der katalytischen Zersetzung von NH_3 neben H_2 gebildete N_2 ist inert und dient als zusätzlicher Wärmeträger. Die durch den Verbrennungsprozess in der Brennkammer der Verbrennungseinrichtung erzeugte Verbrennungswärme wird zur Aufheizung der NH_3-Zersetzungseinrichtung genutzt, bevorzugt des Rohrs bzw. der Rohre, durch die das zu zersetzende NH_3 hindurchgeleitet wird. Dazu wird ein Wärmestrom von der Verbrennungseinrichtung in die NH_3-Zersetzungseinrichtung geleitet.

[0147] In besonders bevorzugten Ausführungsformen der Erfindung wird NH_3 vor Eintritt in die erfindungsgemäße NH_3-Zersetzungseinrichtung vorgeheizt. Durch diese Vorheizung beträgt die Temperatur des NH_3 vor Eintritt in die erfindungsgemäße NH_3-Zersetzungseinrichtung bevorzugt mindestens etwa 600°C, bevorzugt mindestens etwa 630°C. Die Temperatur des NH_3 beträgt bevorzugt höchstens etwa 850°C, bevorzugter höchstens etwa 820°C. Besonders bevorzugt beträgt die Temperatur des NH_3 bei Eintritt in die erfindungsgemäße NH_3-Zersetzungseinrichtung etwa 780°C bis 820°C, bevorzugt etwa 800°C. Dabei bilden die erfindungsgemäße NH_3-Zersetzungseinrichtung sowie die erfindungsgemäße Verbrennungseinrichtung bevorzugt einen analog einem Primärreformer ausgeführten Reaktor. Bevorzugt ist der NH_3-Zersetzungskatalysator Nickel-basiert. In bevorzugten Ausführungsformen beträgt die Reaktionstemperatur in der NH_3-Zersetzungseinrichtung, bevorzugt in dem mindestens einen Rohr, welches den NH_3-Zersetzungskatalysator enthält und durch welches das NH_3 geleitet wird, bevorzugt etwa 630°C bis etwa 670°C, vorzugsweise etwa 650°C. In anderen bevorzugten Ausführungsformen beträgt diese Temperatur etwa 660°C bis 700°C, vorzugsweise etwa 680°C. Das Produktgas verlässt den Reaktor (die NH_3-Zersetzungseinrichtung) bevorzugt bei einem Druck von etwa 15 bar a bis etwa 25 bar a, vorzugsweise etwa 20 bar a.

[0148] In weiteren besonders bevorzugten Ausführungsformen der Erfindung erfolgt die Zersetzung von NH_3 zweistufig in zwei nacheinander durchströmten NH_3-Zersetzungseinrichtungen. In einem Vorreaktor (erste NH_3-Zersetzungseinrichtung) wird zunächst nur ein Teil des NH_3 zersetzt. Die restliche Zersetzung von NH_3 bis zum maximal erreichten Umsatz erfolgt dann anschließend in einer zweiten NH_3-Zersetzungseinrichtung. Bevorzugt bildet dazu die zweite NH_3-Zersetzungseinrichtung zusammen mit der erfindungsgemäßen Verbrennungseinrichtung einen vorstehend näher beschriebenen, analog einem Primärreformer ausgeführten Reaktor.

[0149] Bevorzugt wird das NH_3 vor Einleitung in den Vorreaktor (erste NH_3-Zersetzungseinrichtung) vorgeheizt. Bevorzugt beträgt die Temperatur des NH_3 nach Aufheizung und bei Eintritt in den Vorreaktor (erste NH_3-Zersetzungseinrichtung) etwa 620°C bis etwa 680°C, bevorzugter etwa 650°C. Das vorgeheizte NH_3 tritt dann in den Vorreaktor ein, welcher NH_3-Zersetzungskatalysator enthält und in dem zu einem gewissen Ausmaß eine katalytische Zersetzung von NH_3 zu N_2 und H_2 erfolgt. Es wird ein Zwischenproduktgas gebildet, welches noch erhebliche Restmengen an nicht zersetztem NH_3, aber auch bereits gebildetes N_2 und H_2 enthält. Infolge der endothermen Zersetzung von NH_3 kühlt sich das Zwischenproduktgas bevorzugt ab.

[0150] Bevorzugt beträgt der Umsatz von zersetztem NH_3 im Vorreaktor höchstens 30%, bevorzugter höchstens 25%, noch bevorzugter höchstens 20% des insgesamt erreichten Gesamtumsatzes.

[0151] Bevorzugt beträgt der Umsatz von zersetztem NH_3 im Vorreaktor mindestens 10%, bevorzugter mindestens 15% des insgesamt erreichten Gesamtumsatzes.

[0152] Nach Verlassen des Vorreaktors wird das Zwischenproduktgas bevorzugt erneut aufgeheizt, ehe es in die nachgeschaltete, zweite NH_3-Zersetzungseinrichtung eintritt.

[0153] In bevorzugten Ausführungsformen beträgt die Temperatur des Zwischenproduktgases nach erneuter Aufheizung und bei Eintritt in die zweite NH_3-Zersetzungseinrichtung etwa 550°C bis etwa 680°C, bevorzugter etwa 580°C.

[0154] In anderen bevorzugten Ausführungsformen beträgt die Temperatur des Zwischenproduktgases nach erneuter Aufheizung und bei Eintritt in die zweite NH_3-Zersetzungseinrichtung etwa 620°C bis etwa 680°C, bevorzugter etwa 650°C.

[0155] In der zweiten NH_3-Zersetzungseinrichtung erfolgt dann die restliche Zersetzung von NH_3 bis zum insgesamt erreichten Gesamtumsatz.

[0156] Bei dieser bevorzugten Ausführungsform der Erfindung kann bei gleichem Gesamtumsatz die Temperatur des Zwischenproduktgases bei Eintritt in den Vorreaktor (erste NH_3-Zersetzungseinrichtung) und bei Eintritt in die zweite NH_3-Zersetzungseinrichtung jeweils niedriger sein als die Temperatur des NH_3 bei einstufiger Zersetzung von NH_3, wenn also nur eine einzelne NH_3-Zersetzungseinrich-

tung durchströmt wird. Wegen der niedrigeren Temperatur kommt es in geringerem Maße zu Nitrierungen der Rohrleitungen, wodurch die Lebensdauer des Stahls erhöht wird, der mit NH_3 im Kontakt kommt.

[0157] Der NH_3-Zersetzungskatalysator in der ersten NH_3-Zersetzungseinrichtung (Vorreaktor) ist bevorzugt der gleiche wie in der zweiten NH_3-Zersetzungseinrichtung.

Eigenschaften des Abgases beim Verlassen der Feuerungsanlage:

[0158] Durch das Verbrennen von Verbrennungsgas mit Verbrennungsluft wird in der Feuerungsanlage, bevorzugt der Verbrennungseinrichtung ein Abgas erzeugt, welches die Feuerungsanlage verlässt, bevorzugt in einen Abgaskanal.

[0159] In bevorzugten Ausführungsformen weist das Abgas beim Verlassen der Feuerungsanlage, bevorzugt der Verbrennungseinrichtung und beim Eintritt in den Abgaskanal eine oder mehrere der folgenden Eigenschaften auf:

[0160] In bevorzugten Ausführungsformen weist das Abgas einen Gehalt an NO_X auf, welcher größer ist als der Gehalt an N_2O. Bevorzugt ist der Gehalt an NO_X mindestens doppelt so groß, bevorzugter mindestens dreimal so groß, noch bevorzugter mindestens viermal so groß, am bevorzugtesten mindestens siebenmal so groß und insbesondere mindestens zehnmal so groß wie der Gehalt an N_2O. Bevorzugt beträgt das molare Verhältnis von NO_X:N_2O mehr als 10:1, bevorzugter mindestens 20:1, noch bevorzugter mindestens 30:1, am bevorzugtesten mindestens 40:1, und insbesondere mindestens 50:1.

[0161] In bevorzugten Ausführungsformen weist das Abgas einen Gehalt an NO auf, welcher größer ist als der Gehalt an N_2O. Bevorzugt ist der Gehalt an NO mindestens doppelt so groß, bevorzugter mindestens dreimal so groß, noch bevorzugter mindestens viermal so groß, am bevorzugtesten mindestens siebenmal so groß und insbesondere mindestens zehnmal so groß wie der Gehalt an N_2O.

[0162] In bevorzugten Ausführungsformen weist das Abgas einen Gehalt an NO_2 auf, welcher größer ist als der Gehalt an N_2O. Bevorzugt ist der Gehalt an NO_2 mindestens doppelt so groß, bevorzugter mindestens dreimal so groß, noch bevorzugter mindestens viermal so groß, am bevorzugtesten mindestens siebenmal so groß und insbesondere mindestens zehnmal so groß wie der Gehalt an N_2O.

[0163] Bevorzugt weist das Abgas einen Gehalt an NO_X von mindestens 10 ppmv, bevorzugt mindestens 20 ppmv, bevorzugter mindestens 30 ppmv, noch bevorzugter mindestens 40 ppmv, und insbesondere mindestens 50 ppmv auf.

[0164] Bevorzugt weist das Abgas einen Gehalt an NO_X von mindestens 75 ppmv, bevorzugt mindestens 100 ppmv, bevorzugter mindestens 150 ppmv, noch bevorzugter mindestens 200 ppmv, und insbesondere mindestens 250 ppmv auf.

[0165] Bevorzugt weist Abgas einen Gehalt an NO_X von mindestens 500 ppmv, bevorzugt mindestens 1000 ppmv, bevorzugter mindestens 2000 ppmv, noch bevorzugter mindestens 3000 ppmv, und insbesondere mindestens 3500 ppmv auf.

[0166] Bevorzugt weist das Abgas einen Gehalt an N_2O von mindestens 10 ppmv, bevorzugt mindestens 20 ppmv, bevorzugter mindestens 30 ppmv, noch bevorzugter mindestens 40 ppmv, und insbesondere mindestens 50 ppmv auf.

[0167] Bevorzugt weist das Abgas einen Gehalt an N_2O von mindestens 75 ppmv, bevorzugt mindestens 100 ppmv, bevorzugter mindestens 150 ppmv, noch bevorzugter mindestens 200 ppmv, und insbesondere mindestens 250 ppmv aufweist.

[0168] Bevorzugte Abgase weisen einen Gehalt an NO_X im Bereich von 1500 bis 3000 ppmv, bevorzugt 2000 bis 3000 ppmv, und einen Gehalt an N_2O im Bereich von 20 bis 100 ppmv auf.

[0169] In bevorzugten Ausführungsformen weist das Abgas einen Gehalt an H_2O von mehr als 4,0 Vol.-% auf; bevorzugt mindestens 5,0 Vol.-%, bevorzugter mindestens 6,0 Vol.-%, noch bevorzugter mindestens 7,0 Vol.-%, am bevorzugtesten mindestens 8,0 Vol.-%, und insbesondere mindestens 9,0 Vol.-%.

[0170] In weiteren bevorzugten Ausführungsformen weist das Abgas einen Gehalt an H_2O von mindestens 10 Vol.-% auf; bevorzugt mindestens 12 Vol.-%, bevorzugter mindestens 14 Vol.-%, noch bevorzugter mindestens 16 Vol.-%, am bevorzugtesten mindestens 18 Vol.-%, und insbesondere mindestens 20 Vol.-%.

[0171] In bevorzugten Ausführungsformen weist das Abgas einen Gehalt an H_2O im Bereich von 10±8 Vol.-% auf; bevorzugt im Bereich von 10±7 Vol.-%, bevorzugter im Bereich von 10±6 Vol.-%, noch bevorzugter im Bereich von 10±5 Vol.-%, am bevorzugtesten im Bereich von 10±4 Vol.-%, und insbesondere im Bereich von 10±3 Vol.-%.

[0172] In bevorzugten Ausführungsformen weist das Abgas einen Gehalt an H_2O im Bereich von 15±8 Vol.-% auf; bevorzugt im Bereich von 15±7 Vol.-%, bevorzugter im Bereich von 15±6 Vol.-%, noch bevorzugter im Bereich von 15±5 Vol.-%, am bevorzugtesten im Bereich von 15±4 Vol.-%, und insbesondere im Bereich von 15±3 Vol.-%.

[0173] In bevorzugten Ausführungsformen weist das Abgas einen Gehalt an H_2O im Bereich von 20±8 Vol.-% auf; bevorzugt im Bereich von 20±7 Vol.-%, bevorzugter im Bereich von 20±6 Vol.-%, noch bevorzugter im Bereich von 20±5 Vol.-%, am bevorzugtesten im Bereich von 20±4 Vol.-%, und insbesondere im Bereich von 20±3 Vol.-%.

[0174] In bevorzugten Ausführungsformen weist das Abgas einen Gehalt an H_2O im Bereich von 25±8 Vol.-% auf; bevorzugt im Bereich von 25±7 Vol.-%, bevorzugter im Bereich von 25±6 Vol.-%, noch

bevorzugter im Bereich von 25±5 Vol.-%, am bevorzugtesten im Bereich von 25±4 Vol.-%, und insbesondere im Bereich von 25±3 Vol.-%.

[0175] In bevorzugten Ausführungsformen weist das Abgas einen Gehalt an H_2O im Bereich von 30±8 Vol.-% auf; bevorzugt im Bereich von 30±7 Vol.-%, bevorzugter im Bereich von 30±6 Vol.-%, noch bevorzugter im Bereich von 30±5 Vol.-%, am bevorzugtesten im Bereich von 30±4 Vol.-%, und insbesondere im Bereich von 30±3 Vol.-%.

[0176] Bevorzugt weist das Abgas einen Gehalt an N_2 von höchstens 95 Vol.-%, bevorzugt höchstens 90 Vol.-%, bevorzugter höchstens 85 Vol.-%, noch bevorzugter höchstens 80 Vol.-%, am bevorzugtesten höchstens 75 Vol.-%, und insbesondere höchstens 70 Vol.-% auf.

[0177] Bevorzugt weist das Abgas einen Gehalt an N_2 von mindestens 40 Vol.-%, bevorzugt mindestens 50 Vol.-%, bevorzugter mindestens 60 Vol.-%, noch bevorzugter mindestens 70 Vol.-%, am bevorzugtesten mindestens 80 Vol.-%, und insbesondere mindestens 90 Vol.-% auf.

[0178] Bevorzugt weist das Abgas beim Verlassen der Feuerungsanlage, bevorzugt der Verbrennungseinrichtung, eine Temperatur T_1 von mindestens 500°C, bevorzugter mindestens 600°C, noch bevorzugter mindestens 700°C, am bevorzugtesten mindestens 800°C, und insbesondere mindestens 900°C auf.

[0179] Bevorzugt weist das Abgas beim Verlassen der Feuerungsanlage, bevorzugt der Verbrennungseinrichtung, eine Temperatur T_1 von höchstens 1100°C, bevorzugter höchstens 1000°C, noch bevorzugter höchstens 900°C, am bevorzugtesten höchstens 800°C, und insbesondere höchstens 700°C auf.

[0180] Bevorzugt weist das Abgas beim Verlassen der Feuerungsanlage, bevorzugt der Verbrennungseinrichtung einen Druck von höchstens 1,5 bar auf; bevorzugt atmosphärischen Druck.

[0181] Bevorzugt weist das Abgas beim Verlassen der Feuerungsanlage, bevorzugt der Verbrennungseinrichtung einen Oxidationsgrad von NO_X von mindestens 10%, bevorzugter mindestens 20%, noch bevorzugter mindestens 30%, am bevorzugtesten mindestens 40%, und insbesondere mindestens 50% auf.

[0182] Bevorzugt weist das Abgas beim Verlassen der Feuerungsanlage, bevorzugt der Verbrennungseinrichtung einen Oxidationsgrad von NO_X von höchstens 90%, bevorzugter höchstens 80%, noch bevorzugter höchstens 70%, am bevorzugtesten höchstens 60%, und insbesondere höchstens 50% auf.

[0183] Bevorzugt weist das Abgas beim Verlassen der Feuerungsanlage, bevorzugt der Verbrennungseinrichtung einen Gehalt an O_2 von weniger als 2,0 Vol.-% auf.

Schritt (b):

[0184] Im optionalen und bevorzugten Schritt (b) des erfindungsgemäßen Verfahrens wird die Temperatur T_1 des Abgases am Ausgang der Feuerungsanlage, bevorzugt der Verbrennungseinrichtung bevorzugt gemessen und mit geeigneten Vorrichtungen verändert, damit das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage eine Temperatur T_2 aufweist, welche unter den gegebenen Bedingungen zur Durchführung der Schritte (d) und (e) des erfindungsgemäßen Verfahrens innerhalb der Abgasbehandlungsanlage optimiert ist. Die optimierte Temperatur richtet sich nach der gewählten Ausgestaltung der Schritte (d) und (e), d.h. nach der Art und Reihenfolge der einzelnen Prozessschritte zur N_2O-Minderung und NO_X-Minderung und dabei insbesondere nach der Art der eingesetzten Katalysatormaterialien für den N_2O-Zersetzungskatalysator und/oder N_2O-Reduktionskatalysator sowie den NO_X-Reduktionskatalysator.

[0185] Geeignete Vorrichtungen zur Veränderung der Temperatur des Abgases sind einem Fachmann bekannt und umfassen insbesondere Wärmetauscher, welche z.B. als Plattenwärmetauscher oder Rohrwärmetauscher ausgestaltet sein können.

[0186] Im optionalen und bevorzugten Schritt (b) des erfindungsgemäßen Verfahrens erfolgt das Abkühlen des Abgases bevorzugt in mindestens einem Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Feuerungsanlage angeordnet ist.

[0187] Das Abgas eines analog einem Primärreformer ausgebildeten Rohrreaktors enthält erhebliche Mengen an innerer Energie. Der Prozess zur Erzeugung von H_2 aus NH_3 erfordert die Zufuhr von Prozessströmen bei hohen Temperaturen. Erfindungsgemäß wird das Abgas zur Vorwärmung dieser Prozessströme genutzt und dabei abgekühlt. Dies hat den Vorteil, den Bedarf der Anlage an Verbrennungsgas zu verringern und die Ausbeute an Wasserstoffprodukt zu steigern.

[0188] Die Effektivität unterschiedlicher Varianten der Verfahrensführung kann an der Wasserstoffausbeute gemessen werden. Diese ist wie folgend definiert:

$$Y_{H_2} = \frac{\dot{n}_{H_2,Produkt}}{1{,}5 \times \dot{n}_{NH_3,Feed}}$$

[0189] Die Wasserstoffausbeute der Anlage bezeichnet das Verhältnis des Molenstroms an H_2, der als Produkt die Anlage verlässt, verglichen mit dem Molenstrom an NH_3, das die Anlage im Feedstrom betritt, einschließlich eines eventuellen Abzweiges zum Verbrennungsgas.

[0190] Zur Aufnahme von Wärme aus dem Abgas bietet sich eine Reihe von Prozessströme an:

- Vorwärmung und Verdampfung von NH_3 (auch indirekt möglich);
- weiteres Erwärmung von verdampftem NH_3 und von Zwischenproduktgas;
- Erwärmung von Verbrennungsluft;
- Vorwärmung von Kesselspeisewasser;
- Erwärmung von Wasser;
- Erwärmung von Verbrennungsgas;

- Verdampfung von Kesselspeisewasser zur Erzeugung von Wasserdampf;
- Überhitzung von Wasserdampf;
- Hilfsströme (Wärmeträger zur Vorwärmung von NH_3 oder für den Verdampfer einer NH_3-Desorptionseinheit).

[0191] Die Zieltemperatur der aufzuwärmenden Prozessströme gibt in der Regel die Reihenfolge ihrer Erwärmung vor. Hohe Temperaturdifferenzen zwischen Abgas und Wärme aufnehmenden Prozessstrom verringern die erforderliche Größe der Wärmetauscher.

[0192] Es ist jedoch vorteilhaft, über alle Komponenten ein Maß an Temperaturdifferenz zu halten, das nicht unterschritten werden sollte. Dies verhindert die Erhöhung der Temperaturdifferenz an einem Wärmetauscher, und damit seine Verkleinerung, "erkauft" mit einer Vergrößerung aller anderen Wärmetauscher. Um ein wirtschaftliches Design der Wärmetauscher im Abgaskanal zu ermöglichen, wird erfindungsgemäß bevorzugt eine Temperaturdifferenz von 45 K zwischen dem Eintritt des heißen Stroms und dem Austritt des kalten Stroms, oder dem Eintritt des kalten Stroms und dem Austritt des heißen Stroms, je nachdem, welches Wertepaar kleiner ist, nicht unterschritten.

[0193] Ein weiterer wesentlicher Faktor bei der Entwicklung einer effektiven Lösung für den Abgaskanal eines analog einem Primärreformers ausgebildeten Rohrreaktors ist die Einstellung der erforderlichen Temperaturn für die Einheit zur Entfernung von Stickoxiden aus dem Abgas.

[0194] Theoretisch ist es möglich, die Wärme des Abgases in zahlreichen unterschiedlichen Konfigurationen zu nutzen. In einer Anlage zur Herstellung von H_2 aus NH_3 steht mit dem Strom des in der NH_3-Zersetzungseinrichtung erzeugten Produktgases eine weitere bedeutende Wärmequelle zur Verfügung. Es ist vorteilhaft und erfindungsgemäß bevorzugt, die im Produktgas enthaltene Wärme für die folgenden Maßnahmen zur Wärmeintegration zu nutzen:

- Erzeugung von Wasserdampf;
- Vorwärmung von NH_3;
- Vorwärmung von H_2O für die Erzeugung von Wasserdampf; und/oder
- Abkühlung des Produktgases bei späterer Wärmeintegration des Kühlwassers.

[0195] Außerdem ist es vorteilhaft und erfindungsgemäß bevorzugt, die im Abgas enthaltene Wärme für die folgenden Maßnahmen zur Wärmeintegration zu nutzen:

- Vorwärmung des NH_3 auf die Eintrittstemperatur für die NH_3Zersetzungseinrichtung;
- Vorwärmung von Kesselspeisewasser; und/oder
- Vorwärmung von Verbrennungsluft.

[0196] Aufgrund der mechanischen Begrenzungen der im Abgaskanal eingesetzten Wärmetauscher, der benötigten Energiemengen und der Temperaturprofile von Abgas und zu erwärmenden Prozessströmen bleibt in solchen Konfigurationen oft eine nutzbare, aber nicht integrierbare Restwärme im Abgas zurück. Diese äußert sich in einer hohen Eintrittstemperatur des Abgases in den Kamin des Abgaskanals.

In diesem Strom enthaltene innere Energie ist dem Prozess verloren, und senkt letztlich die Ausbeute an H_2.

[0197] Zur Verringerung des Verlustes an Wärme über das Abgas und zur Steigerung der Ausbeute an H_2 sind erfindungsgemäß weitere Integrationsstufen im Abgaskanal möglich und bevorzugt:

- Vorwärmung von NH_3 auf die Eintrittstemperatur für einen ersten Vorreaktor (bevorzugt adiabater Festbettreaktor);
- Vorwärmung von NH_3 auf die Eintrittstemperatur für einen zweiten Vorreaktor (bevorzugt adiabater Festbettreaktor);
- zweistufige Vorwärmung der Verbrennungsluft;
- Vorwärmung des Verbrennungsgases (bevorzugt Ablauf der Aufreinigungsanlage für H_2, bevorzugter Off-Gas einer Druckwechseladsorptionsvorrichtung oder Retentat einer Membraneinheit); und/oder
- Vorwärmung eines Hilfsstroms zur Integration von nutzbarer Restwärme.

[0198] Erfindungsgemäße Wärmetauscher dienen der Übertragung von Wärme von einem Medium auf ein anderes Medium, ohne dass die Medien dabei miteinander vermischt werden. Zum Zwecke der Beschreibung wird in Bezug auf einen "*A/B-Wärmetauscher*" das die Wärme abgebende Medium A zuerst genannt, gefolgt von dem die Wärme aufnehmenden Medium B. Demzufolge dient beispielsweise ein "*Abgas/NH_3-Wärmetauscher*" dazu, im Abgas enthaltene Wärme an NH_3 abzugeben. Dazu ist der Abgas/NH_3-Wärmetauscher entsprechend verschaltet, d.h. seine wärmere Seite wird von Abgas durchströmt, wohingegen seine kühlere Seite von NH_3 durchströmt wird. Aus Gründen der Einfachheit wird bei der Nomenklatur "*NH_3*" verwendet für Ausgangsmaterial sowie für jegliches Zwischenproduktgas, welches noch signifikante Mengen an NH_3 enthält. Wärmetauscher gleicher Funktionalität sind zur Unterscheidbarkeit ggf. nummeriert, wobei eine bestimmte Nummer nicht zwangsläufig bedeutet, dass auch alle Wärmetauscher gleicher Funktonalität niedrigerer Nummer zwingend gleichzeitig anwesend sein müssen. Es ist demnach möglich, dass z.B. ein zweiter Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher anwesend ist, ein erster Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher hingegen nicht.

[0199] Jeder erfindungsgemäße Wärmetauscher kann unabhängig voneinander ggf. als einzelner Wärmetauscher der beschriebenen Bauart bzw. Verschaltung vorliegen, oder ggf. auch als Teil einer Vielzahl mehrerer, z.B. zwei oder drei unmittelbar hintereinander geschalteter Wärmetauscher gleicher Funktionalität der beschriebenen Bauart bzw. Verschaltung vorliegen. Das die Wärme abgebende Medium sowie das die Wärme aufnehmende Medium sind dann in der Vielzahl mehrerer Wärmetauscher gleicher Funktionalität jeweils gleich. Diese Aufteilung eines einzelnen Wärmetauschers auf z.B. zwei hintereinandergeschaltete Wärmetauscher gleicher Funktionalität kann bautechnische und/oder konstruktionstechnische Vorteile haben.

[0200] Das Abgas verlässt die Feuerungsanlage, bevorzugt die Verbrennungseinrichtung, bei einer Temperatur T_1 und wird in Schritt (b) bevorzugt auf eine Temperatur T_2 abgekühlt, bei der das Abgas

dann anschließend in die Abgasbehandlungsanlage überführt wird. Bevorzugt sind sowohl der mindestens eine Wärmetauscher als auch die Abgasbehandlungsanlage in einem Abgaskanal angeordnet.

[0201] In bevorzugten Ausführungsformen ist ein einzelner Wärmetauscher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Feuerungsanlage angeordnet, in dem das Abkühlen des Abgases erfolgt (vgl. Abbildung 2).

[0202] In anderen bevorzugten Ausführungsformen sind mindestens zwei Wärmetauscher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Feuerungsanlage angeordnet, in denen nacheinander das Abkühlen des Abgases erfolgt (vgl. Abbildungen 3, 5 und 6).

[0203] In weiteren bevorzugten Ausführungsformen sind mindestens drei Wärmetauscher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Feuerungsanlage angeordnet, in denen nacheinander das Abkühlen des Abgases erfolgt (vgl. Abbildung 4).

[0204] Das Abkühlen des Abgases in dem mindestens einen Wärmetauscher erfolgt durch Abgabe von Wärme aus dem Abgas an ein Wärmeträgermedium.

[0205] Als Wärmeträgermedium dient erfindungsgemäß bevorzugt NH_3, welches dann anschließend der katalytischen Zersetzung in einer NH_3-Zersetzungseinrichtung an einem NH_3-Zersetzungskatalysator zugeführt wird.

[0206] In bevorzugten Ausführungsformen erfolgt in Schritt (b) des erfindungsgemäßen Verfahrens das Abkühlen des Abgases in mindestens einem ersten Abgas/NH_3-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Feuerungsanlage angeordnet ist. Bevorzugt ist in Strömungsrichtung des NH_3 stromabwärts des ersten Abgas/NH_3-Wärmetauschers eine NH_3-Zersetzungseinrichtung angeordnet, in welcher eine katalytische Zersetzung des erwärmten NH_3 an einem NH_3-Zersetzungskatalysator unter Erzeugung eines Produktgases erfolgt. Das NH_3 wird im ersten Abgas/NH_3-Wärmetauscher durch Aufnahme von Wärme aus dem Abgas erwärmt (vgl. Abbildung 2).

[0207] In anderen bevorzugten Ausführungsformen erfolgt in Schritt (b) des erfindungsgemäßen Verfahrens das Abkühlen des Abgases

- in einem ersten Abgas/NH_3-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Feuerungsanlage angeordnet ist, sowie
- in einem zweiten Abgas/NH_3-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/NH_3-Wärmetauschers angeordnet ist.

[0208] Bevorzugt ist in Strömungsrichtung des NH_3 stromabwärts des ersten Abgas/NH_3-Wärmetauschers eine erste NH_3-Zersetzungseinrichtung (Vorreaktor) angeordnet, in welcher eine partielle katalytische Zersetzung des erwärmten NH_3 an einem NH_3-Zersetzungskatalysator unter Erzeugung eines Zwischenproduktgases erfolgt. Bevorzugt ist in Strömungsrichtung des NH_3 stromabwärts der ersten NH_3-Zersetzungseinrichtung (Vorreaktor) der zweite Abgas/NH_3-Wärmetauscher angeordnet.

[0209] Bevorzugt ist in Strömungsrichtung des NH_3 stromabwärts des zweiten Abgas/NH_3-Wärmetauschers eine zweite NH_3-Zersetzungseinrichtung (Hauptreaktor) angeordnet, in welcher eine katalytische Zersetzung des erwärmten NH_3 an einem NH_3-Zersetzungskatalysator unter Erzeugung eines Produktgases erfolgt.

[0210] Das NH_3 (bzw. das Zwischenproduktgas) wird im ersten Abgas/NH_3-Wärmetauscher und im zweiten Abgas/NH_3-Wärmetauscher jeweils durch Aufnahme von Wärme aus dem Abgas erwärmt.

[0211] Das Abgas durchströmt zunächst den ersten Abgas/NH_3-Wärmetauscher und anschließend den zweiten Abgas/NH_3-Wärmetauscher.

[0212] Das NH_3 (bzw. das Zwischenproduktgas) durchströmt zunächst den ersten Abgas/NH_3-Wärmetauscher und nimmt darin Wärme aus dem Abgas auf. Danach strömt das erwärmte NH_3 in die erste NH_3-Zersetzungseinrichtung, in welcher eine partielle katalytische Zersetzung des erwärmten NH_3 an einem NH_3-Zersetzungskatalysator unter Erzeugung eines Zwischenproduktgases erfolgt. Das so gebildete Zwischenproduktgas, welches immer noch erhebliche Mengen an nicht zersetztem NH_3 enthält, durchströmt anschließend den zweiten Abgas/NH_3-Wärmetauscher und nimmt darin erneut Wärme aus dem Abgas auf. Schließlich strömt das erwärmte Zwischenproduktgas in die zweite NH_3-Zersetzungseinrichtung, in welcher eine katalytische Zersetzung des erwärmten NH_3 an einem NH_3-Zersetzungskatalysator unter Erzeugung eines Produktgases erfolgt (vgl. Abbildungen 3, 5 und 6).

[0213] In weiteren bevorzugten Ausführungsformen erfolgt in Schritt (b) des erfindungsgemäßen Verfahrens das Abkühlen des Abgases

- in einem ersten Abgas/NH_3-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Feuerungsanlage angeordnet ist,
- in einem zweiten Abgas/NH_3-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/NH_3-Wärmetauschers angeordnet ist, sowie
- in einem dritten Abgas/NH_3-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des zweiten Abgas/NH_3-Wärmetauschers angeordnet ist.

[0214] Bevorzugt ist in Strömungsrichtung des NH_3 stromabwärts des ersten Abgas/NH_3-Wärmetauschers eine erste NH_3-Zersetzungseinrichtung (erster Vorreaktor) angeordnet, in welcher eine partielle katalytische Zersetzung des erwärmten NH_3 an einem NH_3-Zersetzungskatalysator unter Erzeugung eines ersten Zwischenproduktgases erfolgt. Bevorzugt ist in Strömungsrichtung des NH_3 stromabwärts der ersten NH_3-Zersetzungseinrichtung (erster Vorreaktor) der zweite Abgas/NH_3-Wärmetauscher angeordnet.

[0215] Bevorzugt ist in Strömungsrichtung des NH_3 stromabwärts des zweiten Abgas/NH_3-Wärmetauschers eine zweite NH_3-Zersetzungseinrichtung (zweiter Vorreaktor) angeordnet, in welcher eine weitere partielle katalytische Zersetzung des erwärmten NH_3 (ersten Zwischenproduktgases) an einem NH_3-Zersetzungskatalysator unter Erzeugung eines zweiten Zwischenproduktgases erfolgt. Bevorzugt ist in

Strömungsrichtung des NH_3 stromabwärts der zweiten NH_3-Zersetzungseinrichtung (zweiter Vorreaktor) der dritte Abgas/NH_3-Wärmetauscher angeordnet.

[0216] Bevorzugt ist in Strömungsrichtung des NH_3 stromabwärts des dritten Abgas/NH_3-Wärmetauschers eine dritte NH_3-Zersetzungseinrichtung (Hauptreaktor) angeordnet, in welcher eine katalytische Zersetzung des erwärmten NH_3 (zweites Zwischenproduktgas) an einem NH_3-Zersetzungskatalysator unter Erzeugung eines Produktgases erfolgt.

[0217] Das NH_3 (bzw. das erste Zwischenproduktgas bzw. das zweite Zwischenproduktgas) wird im ersten Abgas/NH_3-Wärmetauscher, im zweiten Abgas/NH_3-Wärmetauscher sowie im dritten Abgas/NH_3-Wärmetauscher jeweils durch Aufnahme von Wärme aus dem Abgas erwärmt.

[0218] Das Abgas durchströmt zunächst den ersten Abgas/NH_3-Wärmetauscher, danach den zweiten Abgas/NH_3-Wärmetauscher und anschließend den dritten Abgas/NH_3-Wärmetauscher.

[0219] Das NH_3 (bzw. das erste Zwischenproduktgas bzw. das zweite Zwischenproduktgas) durchströmt zunächst den ersten Abgas/NH_3-Wärmetauscher und nimmt darin Wärme aus dem Abgas auf. Danach strömt das erwärmte NH_3 in die erste NH_3-Zersetzungseinrichtung, in welcher eine partielle katalytische Zersetzung des erwärmten NH_3 an einem NH_3-Zersetzungskatalysator unter Erzeugung eines ersten Zwischenproduktgases erfolgt. Das so gebildete erste Zwischenproduktgas, welches immer noch erhebliche Mengen an nicht zersetztem NH_3 enthält, durchströmt anschließend den zweiten Abgas/NH_3-Wärmetauscher und nimmt darin erneut Wärme aus dem Abgas auf. Danach strömt das erwärmte erste Zwischenproduktgas in die zweite NH_3-Zersetzungseinrichtung, in welcher eine weitere partielle katalytische Zersetzung des erwärmten NH_3 an einem NH_3-Zersetzungskatalysator unter Erzeugung eines zweiten Zwischenproduktgases erfolgt. Das so gebildete zweite Zwischenproduktgas, welches immer noch erhebliche Mengen an nicht zersetztem NH_3 enthält, durchströmt anschließend den dritten Abgas/NH_3-Wärmetauscher und nimmt darin erneut Wärme aus dem Abgas auf. Schließlich strömt das erwärmte zweite Zwischenproduktgas in die dritte NH_3-Zersetzungseinrichtung, in welcher eine katalytische Zersetzung des erwärmten NH_3 an einem NH_3-Zersetzungskatalysator unter Erzeugung eines Produktgases erfolgt (vgl. Abbildung 4).

[0220] Das Abgas wird in Schritt (b) bevorzugt auf eine Temperatur T_2 abgekühlt, bei der das Abgas dann anschließend in die Abgasbehandlungsanlage überführt wird.

[0221] Bevorzugt beträgt die Temperatur T_2 mindestens 360°C, bevorzugter mindestens 370°C, noch bevorzugter mindestens 380°C, am bevorzugtesten mindestens 390°C, und insbesondere mindestens 400°C.

[0222] Bevorzugt beträgt die Temperatur T_2 höchstens 500°C, bevorzugter höchstens 480°C, noch bevorzugter höchstens 460°C, am bevorzugtesten höchstens 440°C, und insbesondere höchstens 420°C.

[0223] Bevorzugt liegt die Temperatur T_2 im Bereich von 400 bis 450°C, bevorzugter 400 bis 420°C. Die ideale Temperatur T_2 hängt von der NO_X-Eintrittskonzentration und der damit verbundenen Wärmetönung ab. Pro 1000 ppmv NO_X ist dabei mit einem ΔT von rund 12K zu rechnen. Enthält das Abgas beispielsweise 7000 ppmv NO_X, entspräche dies rund 80-90 K. Die Austrittstemperatur sollte nicht zu hoch werden, denn die Stabilität der Katalysatoren in der Abgasbehandlungsanalage ist aufgrund des hohen Wassergehaltes des Abgases ein kritischer Faktor.

[0224] Bei sehr hohen NO_X-Konzentrationen wird erfindungsgemäß bevorzugt eine mehrstufige Anordnung von Katalysatorbetten mit mehrstufiger NH_3-Einspeisung und intermediären Wärmetauchern vorgesehen. So werden überhohe Temperaturen vermieden. Außerdem ermöglicht dies (bei gleichem Katalysatorvolumen) einen deutlich höheren NO_X- und N_2O-Abbau.

[0225] Bevorzugt weist das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage eine Temperatur T_2 auf, welche relativ um mindestens 20°C, bevorzugt mindestens 40°C, bevorzugter mindestens 60°C, noch bevorzugter mindestens 80°C, am bevorzugtesten mindestens 100°C, und insbesondere mindestens 120°C unterhalb der Temperatur T_1 liegt, welche das Abgas beim Verlassen der Feuerungsanlage, bevorzugt der Verbrennungseinrichtung auf.

[0226] Bevorzugt ist die Temperatur T_2 relativ um mindestens 50°C geringer als die Temperatur T_1, bevorzugter mindestens 100°C, noch bevorzugter mindestens 150°C, am bevorzugtesten mindestens 200°C und insbesondere mindestens 250°C.

Schritt (c):

[0227] In Schritt (c) des erfindungsgemäßen Verfahrens erfolgt das Überführen des optional abgekühlten Abgases in eine Abgasbehandlungsanlage, d.h. von der Feuerungsanlage aus Schritt (a) oder von dem mindestens einen Wärmetauscher aus dem optionalen und bevorzugten Schritt (b) zu einer Abgasbehandlungsanlage.

[0228] In Schritt (c) des erfindungsgemäßen Verfahrens wird das Abgas, welches die Feuerungsanlage, bevorzugt die Verbrennungseinrichtung verlassen hat und ggf. In Schritt (b) abgekühlt wurde, in eine Abgasbehandlungsanlage überführt.

[0229] Dies kann beispielsweise durch Rohrleitungen erfolgen, welche den Ausgang der Feuerungsanlage, bevorzugt der Verbrennungseinrichtung mit dem Eingang der Abgasbehandlungsanlage verbinden. Bevorzugt wird diese Verbindung über einen Abgaskanal hergestellt. Da das erfindungsgemäße Verfahren bevorzugt bei Atmosphärendruck durchgeführt wird, werden an solche Rohrleitungen bzw. an die Wandungen des Abgaskanals hinsichtlich einer möglichen Druckbeanspruchung typischerweise keine besonderen Anforderungen gestellt.

[0230] Die Rohrleitungen bzw. Wandungen des Abgaskanals sollten jedoch den Temperaturen standhalten, welche das Abgas beim Verlassen der Feuerungsanlage, bevorzugt der Verbrennungseinrichtung bzw. beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage aufweist.

[0231] In der erfindungsgemäßen Abgasbehandlungsanlage erfolgen die Schritte (d) und (e) des erfindungsgemäßen Verfahrens. Dazu ist die Abgasbehandlungsanlage mit dem N_2O-Zersetzungskatalysator für Schritt (d_1) und/oder mit dem N_2O-Reduktionskatalysator für Schritt (d_2) ausgerüstet, sowie mit dem NO_X-Reduktionskatalysator für Schritt (e).

[0232] Sofern die erfindungsgemäße Abgasbehandlungsanlage zusätzlich wenigstens einen weiteren Katalysator umfasst bzw. einer der vorstehend genannten N_2O-Reduktions-, N_2O-Zersetzungs- oder NO_X-Reduktionskatalysatoren wenigstens eine weitere Funktionalität erfüllt, erfolgt in der erfindungsgemäßen Abgasbehandlungsanlage bevorzugt zusätzlich mindestens einer der folgenden Schritte (g_1), bis (g_4):

(g_1) Abkühlen des Abgases in mindestens einem Wärmetauscher, welcher bevorzugt innerhalb der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist; bevorzugt in Strömungsrichtung des Abgases stromaufwärts des NH_3-Oxidationskatalysators;

(g_2) Vermindern des Gehalts an NH_3 im Abgas durch Oxidation mit einem Oxidationsmittel an einem NH_3-Oxidationskatalysator; wobei das Oxidationsmittel bevorzugt O_2 umfasst;

(g_3) Vermindern des Gehalts an HCN im Abgas durch Hydrolyse und Oxidation der Hydrolysate mit einem Oxidationsmittel an einem HCN-Abbaukatalysator; wobei das Oxidationsmittel bevorzugt NO_X und/oder N_2O umfasst; und

(g_4) Vermindern des Gehalts an CO im Abgas durch chemische Oxidation mit einem Oxidationsmittel an einem CO-Oxidationskatalysator; wobei das Oxidationsmittel bevorzugt O_2 umfasst.

Schritt (d):

[0233] In Schritt (d) des erfindungsgemäßen Verfahrens erfolgt das Vermindern des Gehalts an N_2O im Abgas. Dies kann erfolgen durch (d_1) Zersetzung von N_2O an einem N_2O-Zersetzungskatalysator und/oder (d_2) chemische Reduktion von N_2O mit Reduktionsmittel an einem N_2O-Reduktionskatalysator.

[0234] Bei der Zersetzung von N_2O werden N_2 und O_2 gemäß nachstehender Bruttoreaktion gebildet:

$$2\ N_2O \rightarrow 2\ N_2 + O_2.$$

[0235] Zersetzung von N_2O bedeutet daher Zerlegung in N_2 und O_2. Ein "*N_2O-Zersetzungskatalysator*" im Sinne der Erfindung katalysiert die Zersetzung von N_2O. Der erreichbare Abbau an N_2O durch katalytische Zersetzung ist neben der Art, d.h. der chemischen Natur und physischen Ausgestaltung des N_2O-Zersetzungskatalysators und den vorliegenden Druck- und Temperaturverhältnissen vor allem auch abhängig von der gewählten Raumgeschwindigkeit, d.h. dem Verhältnis von Abgasvolumenstrom

zum Katalysatorvolumen. Die katalytische Aktivität eines N_2O-Zersetzungskatalysators muss jedoch nicht ausschließlich auf diese Umsetzung beschränkt sein. So ist es durchaus möglich und erfindungsgemäß auch bevorzugt, dass der N_2O-Zersetzungskatalysator zusätzlich auch weitere Umsetzungen katalysieren kann, beispielsweise die chemische Reduktion von N_2O und/oder die chemische Reduktion von NO_X. Ob solche weiteren Umsetzungen auch tatsächlich stattfinden, hängt von den Bedingungen des Einzelfalls, insbesondere der Art des Katalysators, und der Kinetik der ggf. parallel stattfindenden Prozessen ab, beispielsweise von der Gegenwart bzw. Menge des Reduktionsmittels und der Gegenwart bzw. Menge anderer Reaktionspartner.

[0236] Bei der chemischen Reduktion von N_2O mit Reduktionsmittel werden in Abhängigkeit vom Reduktionsmittel unterschiedliche Reaktionsprodukte gebildet.

[0237] Im Falle vom erfindungsgemäß bevorzugten Reduktionsmittel NH_3 werden bei der chemischen Reduktion von N_2O insbesondere N_2 und H_2O gebildet, z.B. gemäß:

$$3\ N_2O + 2\ NH_3 \rightarrow 4\ N_2 + 3\ H_2O \text{ oder}$$

$$4\ N_2O + 4\ NH_3 + O_2 \rightarrow 6\ N_2 + 6\ H_2O$$

oder auch in der gemeinsamen Reduktion mit NO gemäß

$$2\ NO + N_2O + 2\ NH_3 \rightarrow 3\ N_2 + 3\ H_2O.$$

[0238] Im Falle von Kohlenwasserstoffen, welche erfindungsgemäß ebenfalls als Reduktionsmittel bevorzugt sind, werden bei der chemischen Reduktion von N_2O insbesondere CO und H_2O gebildet, z.B. gemäß

$$(2n+1)\ N_2O + C_nH_{2n+2} \rightarrow (2n+1)\ N_2 + n\ CO + (n+1)\ H_2O$$

oder auch CO_2 und H_2O gemäß

$$4n\ N_2O + C_nH_{2n+2} \rightarrow 4n\ N_2 + n\ CO_2 + 2n\ H_2O.$$

[0239] CO ist erfindungsgemäß ebenfalls als Reduktionsmittel bevorzugt. Es kann mit N_2O zu CO_2 weiterreagieren, z.B. gemäß:

$$N_2O + CO \rightarrow N_2 + CO_2.$$

[0240] Ein "*N_2O-Reduktionskatalysator*" im Sinne der Erfindung katalysiert die chemische Reduktion von N_2O mit Reduktionsmittel. Die katalytische Aktivität eines N_2O-Reduktionskatalysators muss jedoch nicht ausschließlich auf diese Umsetzung beschränkt sein. So ist es durchaus möglich und erfindungsgemäß auch bevorzugt, dass der N_2O-Reduktionskatalysator zusätzlich auch weitere Umsetzungen katalysieren kann, beispielsweise die Zersetzung von N_2O und/oder die chemische Reduktion von NO_X. Ob solche weiteren Umsetzungen auch tatsächlich stattfinden, hängt von den Bedingungen des Einzelfalls, insbesondere der Art des Katalysators, und der Kinetik der ggf. parallel stattfindenden Prozessen ab, beispielsweise von der Gegenwart bzw. Menge des Reduktionsmittels und der Gegenwart bzw. Menge anderer Reaktionspartner.

Schritt (e):

[0241] In Schritt (e) des erfindungsgemäßen Verfahrens erfolgt das Vermindern des Gehalts an NO_X im Abgas durch chemische Reduktion von NO_X mit Reduktionsmittel an einem NO_X-Reduktionskatalysator.

[0242] Bevorzugt sind dabei solche NO_X-Reduktionskatalysatoren, welche möglichst die selektive katalytische Reduktion (SCR) der im Abgas enthaltenen Stickoxide, insbesondere von NO_X ermöglichen, d.h. die NO_X-Reduktionskatalysatoren katalysieren vornehmlich die Oxidation von NH_3 mit NO_X und nicht bzw. nachrangig die Oxidation von NH_3 mit im Abgas ggf. vorhandenen freien Sauerstoff (O_2).

[0243] Bei der chemischen Reduktion von NO_X mit Reduktionsmittel werden in Abhängigkeit vom Reduktionsmittel unterschiedliche Reaktionsprodukte gebildet. Im Falle vom erfindungsgemäß bevorzugten Reduktionsmittel NH_3 werden bei der chemischen Reduktion von NO_X insbesondere N_2 und H_2O gebildet, je nach Art des NO_X-Reduktionskatalysators und des Verhältnisses von NO zu NO_2 z.B. gemäß:

$4\ NH_3 + 2\ NO + 2\ NO_2 \rightarrow 4\ N_2 + 6\ H_2O$ (sog. *fast SCR*)

$4\ NH_3 + 4\ NO + O_2 \rightarrow 4\ N_2 + 6\ H_2O$ (sog. *normal SCR*)

$8\ NH_3 + 6\ NO_2 \rightarrow 7\ N_2 + 12\ H_2O$ (sog. *NO_2 SCR*).

[0244] Die gemeinsame selektive katalytische Reduktion wird als sog. *fast SCR* bezeichnet und verläuft generell sehr viel schneller als die sog. *normal SCR* oder *NO_2 SCR*.

[0245] Ein "*NO_X-Reduktionskatalysator*" im Sinne der Erfindung katalysiert die chemische Reduktion von NO_X mit Reduktionsmittel. Die katalytische Aktivität eines NO_X-Reduktionskatalysators muss jedoch nicht ausschließlich auf diese Umsetzung beschränkt sein. So ist es durchaus möglich und erfindungsgemäß auch bevorzugt, dass der NO_X-Reduktionskatalysator zusätzlich auch weitere Umsetzungen katalysieren kann, beispielsweise die Zersetzung von N_2O, die chemische Reduktion von N_2O und/oder die Einstellung des NO_X-Gleichgewichtes oder auch die selektive Oxidation von überschüssigem NH_3 mit freiem O_2. Ob solche weiteren Umsetzungen auch tatsächlich stattfinden, hängt von den Bedingungen des Einzelfalls und der Kinetik der ggf. parallel stattfindenden Prozessen ab, beispielsweise von der Gegenwart bzw. Menge des Reduktionsmittels und der Gegenwart bzw. Menge anderer Reaktionspartner.

Katalysatoren

[0246] N_2O-Zersetzungskatalysatoren sind an sich bekannt und es können unterschiedlichste Stoffklassen verwendet werden. Bevorzugt sind N_2O-Zersetzungskatalysatoren, die beispielsweise im Temperaturbereich von 350 bis 600°C eine hohe katalytische Aktivität zur Zersetzung von N_2O in N_2 und O_2 aufweisen.

[0247] Erfindungsgemäß bevorzugte Beispiele für N_2O-Zersetzungskatalysatoren sind metallbeladene Zeolith-Katalysatoren, beispielsweise mit Kupfer oder Kobalt oder insbesondere mit Eisen beladene Zeolith-Katalysatoren, Edelmetall-Katalysatoren oder auch Übergangsmetalloxid-Katalysatoren, wie z.B. Cobaltoxid enthaltende Katalysatoren. Beispiele für geeignete Katalysatoren sind unter anderem von Kapteijn et al. in Appl. Cat. B: Environmental 9 (1996), 25-64, in US-A-5, 171, 553, in Actes du 2ieme Congres International sur la Catalyse, Technip, Paris 1961, 1937-1953, sowie in WO-A-01/58,570 beschrieben. Bei der Verwendung von mit Eisen beladenen Zeolith-Katalysatoren im ersten Katalysatorbett beschleunigt dabei das noch im Gas vorhandene NO_X erwartungsgemäß die gewünschte N_2O Zersetzung durch eine aktivierende Wirkung (co-katalytischer Effekt), wie diese für unterschiedliche N_2O/NO_X-Verhältnisse von Kögel et al. in Catal. Comm. 2 (2001) 273-276 beschrieben wurde.

[0248] Weitere erfindungsgemäß bevorzugte Beispiele für N_2O-Zersetzungskatalysatoren sind Katalysatoren, deren Aktivität zur N_2O-Zersetzung durch die Anwesenheit von NO_X deutlich eingeschränkt ist. Solche N_2O-Zersetzungskatalysatoren werden zum Zwecke der Beschreibung auch als "*NO_X-sensitive N_2O-Zersetzungskatalysatoren*" bezeichnet. Diese Katalysatoren enthalten eine oder mehrere katalytische aktive Verbindungen von Elementen ausgewählt aus den Gruppen 5 bis 11 des Periodensystems der Elemente (PSE). Insbesondere bevorzugt sind Verbindungen der Elemente der Gruppe 9 bis 11 des PSE. Hiervon wiederum bevorzugt sind die Verbindungen der Elemente Co, Pt, Pd, Ir, Rh, Ni und/oder Cu, vorzugsweise Co, Rh, Ni und/oder Cu und hierbei insbesondere Co oder Rh. Bevorzugt handelt es sich um einen N_2O-Zersetzungskatalysator auf Basis von Edelmetallen, welche bevorzugt auf refraktären Oxiden geträgert sind, oder auf Basis von Mischungen von Übergangsmetalloxiden, insbesondere Mischoxiden oder einfachen Übergangsmetalloxiden, jeweils entweder geträgert oder vorzugsweise als Vollkatalysatoren.

[0249] Bei den katalytisch aktiven Verbindungen selbst kann es sich um metallische und/oder oxidische Verbindungen handeln, wobei letztere sowohl als singuläre Oxide oder auch als binäre, ternäre oder polynäre Mischoxide unterschiedlichen Strukturtyps, wie z.B. Perowskite oder Spinelle vorliegen können. Solche sind bspw. in Catalysis Letters 35 (1995) 372-382, Applied Catalysis 73 (1991) 165-171, Catal. Rev.-Sci. Eng.; 34(4), 409-425 (1992) oder Actes du 2ieme Congres International sur la Catalyse 97 (1961) 1937-1953 beschrieben. Es können auch Gemische von verschiedenen katalytisch aktiven Verbindungen eingesetzt werden. Beispiele für besonders bevorzugte katalytisch aktive Verbindungen sind metallisches Rhodium, Rhodiumoxide, wie RhO_2, oder Rh_2O_3, CoO, Co_2O_3, Co-haltige Spinelle, wie Co_3O_4, $Cu_xCo_{3-x}O_4$ oder Co-haltige Perowskite wie $LaCoO_3$ oder auf A- und B-Plätzen substituierte Co-haltige Perowskite.

[0250] Die katalytisch aktiven Verbindungen können in den Katalysatoren in reiner Form enthalten sein oder auf geeigneten Trägermaterialien aufgebracht bzw. mit solchen vermengt sein. Im ersten Fall handelt es sich um sog. Vollkatalysatoren, welche neben aktiven Verbindungen noch dem Fachmann

bekannte Zusätze wie Bindemittel oder andere herstellungsbedingte Zusätze wie Plastifikatoren, Porenbildner, Faserverstärkungen oder Presshilfsmittel enthalten können.

[0251] Die Methoden zur Herstellung derartiger Katalysatoren sind dem Fachmann bekannt. Im Falle von "*Trägerkatalysatoren*" sind die katalytisch aktiven Verbindungen auf das Trägermaterial aufgebracht. Hierdurch erfährt die katalytisch aktive Verbindung eine Dispergierung und Stabilisierung sowohl gegen mechanische als auch thermische Belastung. Die Methoden zur Herstellung derartiger Katalysatoren sind dem Fachmann ebenfalls bekannt. Bei den Trägermaterialien handelt es sich bevorzugt um refraktäre Oxide, wie SiO_2, TiO_2, ZrO_2 oder Al_2O_3 bzw. Gemische von zwei oder mehreren davon oder um Materialien, die selbst eine gewisse katalytische Aktivität zur N_2O-Zersetzung aufweisen, wie bspw. MgO, Zeolithe, Hydrotalcite oder Gemische von zwei oder mehreren davon. Bevorzugt werden Katalysatoren eingesetzt, die keine oder im Wesentlichen keine Zeolithe, vorzugsweise weniger als 15 Gew.-% an Zeolithen, insbesondere weniger als 5 Gew.-% an Zeolithen, enthalten.

[0252] Bevorzugte Trägermaterialien für Rh-haltige Verbindungen sind ZrO_2, TiO_2, Al_2O_3, Hydrotalcite oder Zeolithe, z.B. vom Strukturtyp MFI. Solche werden bspw. in Chemical Engineering and Technology 24 (2001) 281-285 oder in Catalysis Today 35 (1997) 113-120 beschrieben. Besonders bevorzugte Träger für Rh-haltige Verbindungen sind ZrO_2, TiO_2 und Hydrotalcite. Der Rh-Gehalt dieser Katalysatoren beträgt vorzugsweise 0,1 bis 10 Gew.-%, vorzugsweise 0,5 bis 5 Gew.-%. Besonders bevorzugt enthalten Rh-haltige Katalysatoren neben Rh auch CeO_2. Der Anteil an CeO_2 beträgt bevorzugt 5 bis 50 Gew.-%, insbesondere 10 bis 30 Gew.-%.

[0253] Bevorzugte Träger für Co-haltige Verbindungen sind Zeolithe oder die bevorzugten Träger enthalten Magnesiumoxid. Im Falle von Zeolithen besonders bevorzugt sind Si-reiche Strukturtypen, wie MFI, BEA, FER, MEL oder MOR. Die Herstellung solcher Co-dotierter Zeolithe ist dem Fachmann bekannt. Im Falle von Magnesiumoxid-Trägern kann es sich um reines MgO handeln oder um MgO-haltige Verbindungen wie z.B. Hydrotalcite. Solche Katalysatoren sind bspw. in Appl. Catal. B: Environmental 7 (1996) 397-406 oder Appl. Catal. B: Environmental 13 (1997) 69-79 beschrieben.

[0254] Besonders bevorzugt sind Katalysatoren, die im Wesentlichen aus mindestens einer oxidischen Magnesiumverbindung und mindestens einer oxidischen Kobaltverbindung bestehen, wobei der Gehalt an oxidischen Kobaltverbindungen im Bereich von 0,1 bis 50 Gew.-% und der Gehalt an oxidischen Magnesiumverbindungen im Bereich von 50 bis 99,9 Gew.-%, jeweils bezogen auf die Gesamtmasse des Katalysators, liegt und mindestens 30 Gew.-% der im Katalysator enthaltenen Co-Atome im chemisch dreiwertigen Zustand vorliegen. Derartige Katalysatoren und deren Herstellung sind in EP 1 257 347 B1 beschrieben. Weiterhin besonders bevorzugt bei Verwendung oxidischer Co-Verbindungen als aktiver Komponente sind Katalysatoren mit einem Träger, der zu mindestens 50 Gew.-% aus MgO besteht oder aus einem Mischoxid, welches zu mindestens 50 Gew.-% aus MgO besteht, und wobei auf den Träger eine Ceroxid-Funktionsschicht aufgebracht ist. Solche Katalysatoren und deren Herstellung werden in DE 10 2007 038 71 1 A1 beschrieben.

[0255] Der N_2O-Zersetzungskatalysator kann als Formkörper beliebiger Größe und Geometrie vorliegen, bevorzugt in Geometrien, die ein großes Verhältnis von Oberfläche zu Volumen aufweisen und bei deren Durchströmung ein möglichst geringer Druckverlust erzeugt wird. Typisch sind alle in der Katalyse bekannten Geometrien, wie z.B. Zylinder, Hohlzylinder, Mehrlochzylinder, Ringe, Granulatbruch, Trilobes oder Wabenstrukturen.

[0256] N_2O-Reduktionskatalysatoren sowie NO_X-Reduktionskatalysatoren sind ebenfalls an sich bekannt und es können ebenfalls unterschiedlichste Stoffklassen verwendet werden. Beispiele dafür sind metallbeladene Zeolith-Katalysatoren, wie mit Kupfer oder Kobalt beladene Zeolith-Katalysatoren, oder insbesondere mit Eisen beladene Zeolith-Katalysatoren, oder Edelmetall-Katalysatoren oder Katalysatoren, die in den bekannten SCR-Verfahren (*Selective Catalytic Reduction*) eingesetzt werden.

[0257] Bevorzugt enthält der N_2O-Zersetzungskatalysator und/oder der N_2O-Reduktionskatalysator und/oder der NO_X-Reduktionskatalysator unabhängig voneinander ein zeolithisches Material; bevorzugt einen mit Übergangsmetall (einschließlich Lanthanid), insbesondere mit Eisen, Kobalt oder Kupfer beladenen Zeolith; bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith; noch bevorzugter unabhängig voneinander einen mit Eisen beladenen Zeolith vom Strukturtyp MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder MEL.

[0258] Bevorzugt umfasst sowohl der N_2O-Zersetzungskatalysator und/oder der N_2O-Reduktionskatalysator als auch der NO_X-Reduktionskatalysator unabhängig voneinander ein zeolithisches Material; bevorzugt einen mit Übergangsmetall (einschließlich Lanthanid), insbesondere mit Eisen, Kobalt oder Kupfer beladenen Zeolith; bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith; noch bevorzugter unabhängig voneinander einen mit Eisen beladenen Zeolith vom Strukturtyp MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder MEL.

[0259] Dabei kann es sich um unterschiedliche Katalysatoren oder um gleiche Katalysatoren handeln. Erfindungsgemäß besonders bevorzugt eingesetzte mit Eisen-beladene Zeolith-Katalysatoren enthalten im wesentlichen, vorzugsweise > 50 Gew.-%, insbesondere > 70 Gew.-% eines oder mehrerer mit Eisen beladener Zeolithe. So kann beispielsweise neben einem Fe-ZSM-5 Zeolith ein weiterer Eisen enthaltender Zeolith, wie z.B. ein eisenhaltiger Zeolith des FER-Typs, in dem erfindungsgemäß verwendeten Katalysator enthalten sein.

[0260] Darüber hinaus kann der erfindungsgemäß verwendete Katalysator weitere dem Fachmann bekannte Zusatzstoffe, wie z.B. Bindemittel enthalten.

[0261] Der Eisengehalt der bevorzugt eingesetzten Zeolithe kann dabei bezogen auf die Masse an Zeolith bis zu 25% betragen, vorzugsweise jedoch 0,1 bis 10%.

[0262] Im erfindungsgemäßen Verfahren ist auch der Einsatz solcher Zeolithe eingeschlossen, in welchen das Gitteraluminium teilweise durch ein oder mehrere Elemente isomorph substituiert ist, beispielsweise durch ein oder mehrere Elemente ausgewählt aus B, Be, Ga, Fe, Cr, V, As, Sb und Bi ersetzt ist. Ebenso eingeschlossen ist der Einsatz von Zeolithen, bei denen das Gittersilicium durch ein oder

mehrere Elemente isomorph substituiert ist, beispielsweise durch ein oder mehrere Elemente ausgewählt aus Ge, Ti, Zr und Hf ersetzt ist. Genaue Angaben zum Aufbau oder Struktur der erfindungsgemäß bevorzugt eingesetzten Zeolithe werden im *Atlas of Zeolite Structure Types*, Elsevier, 4" revised Edition 1996, gegeben, auf den hiermit ausdrücklich Bezug genommen wird.

[0263] Ganz besonders bevorzugt kommen im erfindungsgemäßen Verfahren Zeolith-Katalysatoren zum Einsatz, die mit Wasserdampf behandelt worden sind ("*gesteamte*" Katalysatoren). Durch eine derartige Behandlung wird das Gitter des Zeolithen dealuminiert; diese Behandlung ist dem Fachmann an sich bekannt. Diese hydrothermal behandelten Zeolith-Katalysatoren zeichnen sich im erfindungsgemäßen Verfahren durch eine besonders hohe Aktivität aus. Bevorzugt werden hydrothermal behandelte Zeolith-Katalysatoren eingesetzt, die mit Eisen beladen worden sind und bei denen das Verhältnis von Extra-Gitter-Aluminium zu Gitter-Aluminium mindestens 1:2 beträgt, vorzugsweise 1:2 bis 20:1 beträgt.

[0264] Der N_2O-Zersetzungskatalysator und/oder der N_2O-Reduktionskatalysator sowie der NO_X-Reduktionskatalysator umfassen bevorzugt jeweils unabhängig voneinander mit Übergangsmetall beladene Zeolithe, bevorzugter jeweils mit Eisen beladene Zeolithe (Fe-Zeolithe), noch bevorzugter jeweils mit Eisen beladene Zeolithe vom gleichen Strukturtyp, am bevorzugtesten mit gleicher äußerer Form (z.B. Wabe oder Pellet).

[0265] In bevorzugten Ausführungsformen sind der N_2O-Zersetzungskatalysator und der N_2O-Reduktionskatalysator aus dem gleichen Material.

[0266] In bevorzugten Ausführungsformen sind der N_2O-Zersetzungskatalysator und der NO_X-Reduktionskatalysator aus dem gleichen Material.

[0267] In bevorzugten Ausführungsformen sind der N_2O-Reduktionskatalysator und der NO_X-Reduktionskatalysator aus dem gleichen Material.

[0268] In bevorzugten Ausführungsformen sind der N_2O-Zersetzungskatalysator, der N_2O-Reduktionskatalysator und der NO_X-Reduktionskatalysator aus dem gleichen Material.

[0269] Bevorzugt wird das Abgas nach dem Verlassen der Feuerungsanlage, bevorzugt der Verbrennungseinrichtung im Verlauf des optionalen und bevorzugten Schritts (b) des erfindungsgemäßen Verfahrens abgekühlt, wobei die Schritte (d_1) und/oder (d_2) und/oder (e) neue Wärme einbringen können.

Bevorzugte Katalysatoren für den Abbau von N_2O und NO_X

[0270] Die erfindungsgemäßen N_2O-Zersetzungskatalysatoren, N_2O-Reduktionskatalysatoren, und NO_X-Reduktionskatalysatoren enthalten unabhängig voneinander bevorzugt zeolithische Materialien (zum Zwecke der Beschreibung auch "*Zeolithe*"), welche mit mindestens einem Übergangsmetall (Ordnungszahlen 21-30, 39-48, 57-80, 89-112) und/oder mit mindestens einem Lanthanoid (auch "*Lantha-*

nid" genannt; Ordnungszahlen 57-71) beladen sind. Zum Zwecke der Beschreibung werden Übergangsmetalle und Lanthanoide der Einfachheit halber gemeinsam als "*Übergangsmetalle*" bezeichnet. Bevorzugt sind die Übergangsmetalle Eisen ("*Fe-Zeolithe*"), Kupfer ("*Cu-Zeolithe*") und Cobalt ("*Co-Zeolithe*"). Mit Eisen beladene zeolithische Materialien (d.h. Fe-Zeolithe) sind besonders bevorzugt und können neben Eisen zusätzlich auch mit anderen Übergangsmetallen beladen sein bzw. diese enthalten, beispielsweise Mangan, Vanadium, Chrom, Nickel oder Mischungen.

[0271] Die erfindungsgemäßen zeolithischen Materialien weisen bevorzugt eine hohe hydrothermale Beständigkeit auf. Besonders bevorzugt sind SiO_2-reiche Zeolithe, sog. "*high-silica Zeolithe*", die ein molares Verhältnis von [SiO_2]- zu [AlO_2^-]-Einheiten, und damit ein molares Si/Al-Verhältnis, von mindestens 8 aufweisen, bevorzugt mindestens 9, bevorzugter mindestens 10, noch bevorzugter mindestens 11, am bevorzugtesten mindestens 12, und insbesondere mindestens 13.

[0272] Erfindungsgemäß bevorzugte zeolithische Materialien weisen im Wesentlichen eine Zeolithstruktur vom Strukturtyp BEA, MFI, MOR, MEL oder FER auf, bevorzugter vom Strukturtyp MFI und BEA, noch bevorzugter vom Strukturtyp BEA. Beim Strukturtyp MFI ist insbesondere der Typ ZSM-5 bevorzugt. Nähere Angaben zur Bezeichnung der Strukturtypen zeolithischer Materialen und deren Aufbau können dem *Atlas of Zeolite Structure Types*, Elsevier, 4th revised Edition 1996, entnommen werden.

[0273] Erfindungsgemäß besonders bevorzugte N_2O-Zersetzungs-, N_2O-Reduktions- oder NO_X-Reduktionskatalysatoren enthalten unabhängig voneinander mindestens 50 Gew.-% Fe-Zeolith in Bezug auf das Gesamtgewicht des zeolithischen Materials, bevorzugter mindestens 70 Gew.-% Fe-Zeolith, wobei ein einzelner Strukturtyp oder auch mehrere Strukturtypen vorliegen können. In bevorzugten Ausführungsformen liegt neben Fe-BEA-Zeolith ein weiterer Fe-Zeolith eines anderen Strukturtyps vor, bevorzugt Fe-MOR-Zeolith.

[0274] Die Beladung (Dotierung) der zeolithischen Materialien mit den Übergangsmetallen/Lanthanoiden kann nach einschlägigen Methoden zur Beladung bzw. Dotierung von Zeolithen mit Übergangsmetallen/Lanthanoiden erfolgen, welche Fachleuten bekannt sind. Bevorzugt erfolgt die Beladung ausgehend von der kommerziell verfügbaren H-Form oder bevorzugt NH_4-Form der zeolithischen Materialien durch Ionenaustausch mit entsprechenden Salzen der Übergangsmetalle, und zwar in wässriger Phase oder durch Festkörperreaktion. Die so erhaltenen beladenen zeolithischen Materialien werden anschließend kalziniert, bevorzugt an der Luft in einem Ofen bei Temperaturen im Bereich von 400 bis 650°C. Nach dem Kalzinieren werden die beladenen zeolithischen Materialien in destilliertem Wasser intensiv gewaschen und die abfiltrierten beladenen zeolithischen Materialien werden dann getrocknet. Bevorzugt werden die so erhaltenen beladenen zeolithischen Materialien mit geeigneten Bindemitteln, wie beispielsweise Alumosilikaten, Böhmit oder Kieselsol, und ggfs. Hilfsstoffen zur Plastifizierung oder zur Herstellung von Schlickern versetzt und gemischt. In bevorzugten Ausführungsformen werden die so erhaltenen Mischungen zu Katalysatorkörpern extrudiert (Vollkatalysatoren) und abschließend

kalziniert. In anderen bevorzugten Ausführungsformen werden die so erhaltenen Mischungen auf Katalysatorträger aufgezogen (geträgerte Katalysatoren) und abschließend kalziniert. Auch diese Methoden sind Fachleuten bekannt und in vielen technischen Anwendungen etabliert.

[0275] Die erfindungsgemäßen N_2O-Zersetzungs-, N_2O-Reduktions-, NO_X-Reduktions-, NH_3-Oxidations-, HCN-Abbau- und CO-Oxidationskatalysatoren können unabhängig voneinander als Formkörper beliebiger Größe und Geometrie vorliegen, bevorzugt in Geometrien, die ein großes Verhältnis von Oberfläche zu Volumen aufweisen und bei deren Durchströmung ein möglichst geringer Druckverlust erzeugt wird. Typisch sind alle in der Katalyse bekannten Geometrien, wie z.B. Zylinder, Hohlzylinder, Mehrlochzylinder, Ringe, Trilobes oder sternförmige Extrudate. Besonders bevorzugt sind von parallelen Kanälen durchzogene monolithische Katalysatorelemente, z.B. monolithische Wabenkörper, sog. "*Katalysatorwaben*", wie diese beispielweise aus der Reinigung bzw. Entstickung von Kraftwerks- oder automobilen Abgasen bekannt sind.

Katalysatorwaben, Wabenkörper und Wabenkörpermodule

[0276] Bevorzugt weist die erfindungsgemäße Abgasbehandlungsanlage bzw. die darin umfassten Katalysatorbetten Katalysatorwaben auf, bevorzugt mehrere Katalysatorwaben, die parallel zueinander mit jeweils längs zur Strömungsrichtung des Abgases ausgerichteten Wabenkanälen im Abgaskanal angeordnet sind. Die Geometrie der Querschnittsfläche der Katalysatorwaben (senkrecht zur Durchströmungsrichtung des Abgases) ist grundsätzlich frei wählbar. Bevorzugt haben die Katalysatorwaben eine rechteckige oder insbesondere quadratische Querschnittsfläche, es sind jedoch auch andere Querschnittsflächen möglich, insbesondere hexagonal, dreieckig, trapezförmig, etc. Geeignete Geometrien sind Fachleuten bekannt. Der Begriff "*Wabe*" ist demnach erfindungsgemäß nicht auf eine rechteckige oder quadratische Querschnittsfläche beschränkt.

[0277] Sofern die erfindungsgemäße Abgasbehandlungsanlage eine erste Reaktionszone (erstes Katalysatorbett) und in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts eine zweite Reaktionszone (zweites Katalysatorbett) umfasst, was erfindungsgemäß bevorzugt ist, weisen die erste und zweite Reaktionszone (das erste und zweite Katalysatorbett) bevorzugt mehrere Katalysatorwaben auf, die parallel zueinander mit jeweils längs zur Strömungsrichtung des Abgases ausgerichteten Wabenkanälen im Abgaskanal angeordnet sind.

[0278] In bevorzugten Ausführungsformen sind mehrere Katalysatorwaben, d.h. mehrere monolithische Wabenkörper, zu einem Wabenkörpermodul zusammengefasst, bevorzugt durch einen Metallrahmen, welcher in Durchströmungsrichtung des Abgases offen ist. Bevorzugt werden dabei jeweils zwei, vier oder sechs Wabenkörper, bevorzugt monolithische Wabenkörper, zu einem Wabenkörpermodul zusammengefasst. Diese modulare Konstruktion erlaubt eine gute Ausnutzung der zur Verfügung stehenden Querschnittsfläche des Abgaskanals sowie einen einfachen Austausch defekter oder deaktivierter Wabenkörper.

[0279] Die Wabenkörper weisen bevorzugt einen rechteckigen Querschnitt auf. Bevorzugt hat der

rechteckige Querschnitt eine erste Kantenlänge (senkrecht zur Strömungsrichtung des Abgases) im Bereich von 5 bis 20 cm, bevorzugter 10 bis 15 cm, und eine zweite Kantenlänge (ebenfalls senkrecht zur Strömungsrichtung des Abgases) im Bereich von 5 bis 20 cm, bevorzugt 10 bis 15 cm. Die Höhe eines Wabenkörpers (Strömungsrichtung des Abgases) liegt bevorzugt im Bereich von 5 bis 25 cm, vorzugsweise im Bereich von 7,5 bis 15 cm.

[0280] Die sog. Zelldichte d.h. Dichte der Kanäle einer einzelnen Katalysatorwabe beträgt bevorzugt 150 bis 500 cpsi, bevorzugter 180 bis 450 cpsi (*cell per square inch*). 100 cpsi, d.h. 100 Zellen oder Wabenkanäle pro Quadratzoll, entsprechen ca. 15,5 Katalysatorkanälen pro cm^2.

[0281] Bevorzugt werden die einzelnen Wabenkörpermodule so in Strömungsrichtung übereinander und nebeneinander gestapelt und durch entsprechende Haltervorrichtungen fixiert, dass eine möglichst gute Ausnutzung der Anströmfläche, d.h. Querschnittsfläche des Abgaskanals erreicht wird. Bypass-Strömungen zwischen den einzelnen Wabenkörpermodulen oder im äußeren Randbereich zwischen der äußeren Berandung der Wabenkörpermodule und der Innenwandung des Abgaskanals sollten vermieden werden. Hierzu werden bevorzugt geeignete Dichtmaterialen zwischen den einzelnen Wabenkörpermodulen und zwischen den äußeren Wabenkörpermodulen und der Innenwand angebracht und bei größeren Wandabständen Abdeckbleche verwendet, welche an der Innenwandung des Abgaskanals in Strömungsrichtung vor und/oder hinter der Packung der Wabenkörpermodule angebracht. Bevorzugt sind die Abdeckbleche an den Kontaktstellen zu den Wabenkörpermodulen mit Dichtungen belegt. Bevorzugt sind die Wabenkörpermodule so angeordnet und größenmäßig so ausgewählt, dass die nutzbare Anströmfläche an Katalysator vorzugsweise mindestens 60% der inneren Querschnittsfläche des Abgaskanals beträgt, bevorzugter mindestens 70%, noch bevorzugter mindestens 80%.

[0282] Bei kreisförmigen Abgaskanälen oder Abgasrohrleitungen sind die im Randbereich der Packung der Wabenköpermodule entstehenden Zwickel, sofern diese nicht in einfacher Weise mit rechteckigen Wabenkörpermodulen belegt werden können, vorzugsweise nicht mit speziell zugeschnittenen Wabenkörpern ausgefüllt, sondern durch Blindbleche verschlossen. Dies hat den Vorteil, dass bei einem Tausch verbrauchter Wabenkörper nur standardisierte Wabenkörpermodule ausgetauscht werden müssen und keine speziellen Anpassungen erforderlich sind.

[0283] Bei Verwendung von Abgasrohrleitungen können bevorzugt auch einzelne, größere dem Rohrleitungsquerschnitt angepasste Wabenkörper mit kreisförmigen Anströmquerschnitt verwendet werden, von welchen in bevorzugter Ausgestaltung auch mehrere in Strömungsrichtung hintereinander angeordnet werden können. In diesem Fall ist es dann nicht erforderlich, mehrere Wabenkörper parallel zueinander zu Wabenkörpermodulen zusammenzufassen.

[0284] In bevorzugten Ausführungsformen sind die Wabenkörper bzw. Wabenkörpermodule in Strömungsrichtung des Abgases in mehreren, entlang der Längsachse versetzten, Schichten angeordnet. Bevorzugt sind die Wabenkörper bzw. Wabenkörpermodule in 2 bis 5 Schichten angeordnet, besonders

bevorzugt in 2 bis 3 Schichten. Zwischen den Schichten, d.h. zwischen den Stirnflächen der Wabenkörper bzw. Wabenkörpermodule, ist bevorzugt ein Abstand vorgesehen, bevorzugt im Bereich von 3 bis 30 mm, bevorzugter 4 bis 20 mm. Durch den Abstand kann eine intermediäre, insbesondere radiale, Durchmischung des aus einer ersten Schicht der Wabenkörper bzw. Wabenkörpermodule austretenden Gasstromes ermöglicht werden. Ferner kann vermieden werden, dass sich ein möglicher Schlupf von nicht umgesetztem Reduktionsmittel und/oder von dessen noch nicht vollständig oxidierten Reaktionsprodukten aus der ersten Schicht der Wabenkörper in eine nachfolgende, zweite Schicht der Wabenkörper fortpflanzt.

[0285] Die Zuführung und Verteilung der Reduktionsmittel für NO_X und ggf. N_2O erfolgt bevorzugt über ein mit einer Vielzahl von Öffnungen bzw. Düsen versehenes vielfach verzweigtes Rohrleitungssystem, welches im Abgaskanal bzw. in der Abgasleitung in Strömungsrichtung vor dem jeweiligen Katalysatorbett, bevorzugt der Packung der Katalysatorwaben als Wabenkörper bzw. Wabenkörpermodule angeordnet ist.

[0286] Die Verteilerrohre sind dabei bevorzugt in Form von Gittern, sog. *Grids*, oder in Form von konzentrisch miteinander verbundenen Kreisen ausgestaltet, welche sich möglichst weit über die Querschnittsfläche des Abgaskanals bzw. die Anströmfläche des Katalysatorbetts ausdehnen.

[0287] Die konkrete Ausgestaltung und Dimensionierung dieser Verteiler inklusive geeigneter Austrittsdüsen zählt zum Fachwissen in der katalytischen Abgasreinigungstechnik und findet z.B. ist der Abgasreinigung von Kohlekraftwerken verbreitete Anwendung.

<u>NH_3-Oxidationskatalysator</u>

[0288] NH_3-Oxidationskatalysatoren sind Fachleuten bekannt.

[0289] Bevorzugt ist der NH_3-Oxidationskatalysator platingruppenmetallfrei, bevorzugter edelmetallfrei.

[0290] Zum Zwecke der Beschreibung bedeutet "*platingruppenmetallfrei*", dass im Wesentlichen kein Metall der Platingruppe (d.h. Ru, Rh, Pd, Os, Ir, Pt) enthalten ist. Analytisch nachweisbare geringste Spuren an Metallen der Platingruppe sind jedoch möglich. Zum Zwecke der Beschreibung bedeutet "*edelmetallfrei*", dass im Wesentlichen kein Edelmetall enthalten ist. Analytisch nachweisbare geringste Spuren an Edelmetall sind jedoch möglich.

[0291] Bevorzugt ist der NH_3-Oxidationskatalysator ein mit Eisen oder Kupfer beladener Zeolith; bevorzugt ein mit Eisen oder Kupfer beladener Zeolith vom Strukturtyp MFI, BEA, FER, MOR, FAU, AEI und/oder MEL (nachfolgend bezeichnet als "*NH_3-oxidationsaktiver, mit Eisen oder Kupfer beladener Zeolith-Katalysator*").

[0292] Bevorzugte platingruppenmetallfreie NH_3-Oxidationskatalysatoren sind ausgewählt aus Übergangsmetalloxiden (z.B. von Fe, Mn, Cu, Cr, Co, Ni …), mit Metallen beladene Zeolithe, z.B. beschrie-

ben in Handbook of Heterogeneous Catalysis, Wiley-VCH, Edited by Ertl, Knötzinger, Schüth, Weitkamp, 2nd Ed. 2008, Volume 5, Chapter 11.5 „*Solid Catalysts for the Oxidation of Volatile Organic Compounds*".

[0293] Bevorzugte NH_3-Oxidationskatalysatoren umfassen

- kobalthaltige Katalysatoren; insbesondere Co_3O_4; von Co_3O_4 abgeleitete Mischoxide ($Co_{3-y}M_yO_4$), die bevorzugt wie Co_3O_4 in der Spinell-Struktur kristallisieren, wobei M bevorzugt ausgewählt ist aus Zn, Cu, Fe, Mn und V; mit Cobalt beladene Zeolithe, bevorzugt vom Strukturtyp MFI, BEA, FER, Mor, FAU, CHA, oder AFI;
- manganhaltige Katalysatoren; insbesondere MnO_X mit x = 1-2; von MnO_X abgeleitete Mischoxide ($Mn_{x-y}M_yO_x$), wobei M bevorzugt ausgewählt ist aus Zn, Cu, Fe und Mn; mit Mangan beladene Zeolithe, bevorzugt vom Strukturtyp MFI, BEA, FER, Mor, FAU, CHA oder AFI;
- kupferhaltige Katalysatoren; insbesondere CuO_X mit x = 0,5-1; von CuO_X abgeleitete Mischoxide ($Cu_{x-y}M_yO_x$), wobei M bevorzugt ausgewählt ist aus Zn, Co, Fe und Mn; mit Kupfer beladene Zeolithe, bevorzugt vom Strukturtyp MFI, BEA, FER, Mor, FAU, CHA, AFI;
- silberhaltige Katalysatoren; insbesondere geträgert, bevorzugt geträgert auf Al_2O_3, TiO_2, oder SiO_2, bevorzugter z.B. X% Ag/TiO_2, X% Ag/Al_2O_3, oder X% Ag/SiO_2 jeweils mit X=1-10.

[0294] In bevorzugten Ausführungsformen enthält die erfindungsgemäße Vorrichtung neben dem mit Eisen oder Kupfer beladenen Zeolith keinen weiteren NH_3-Oxidationskatalysator.

[0295] In bevorzugten Ausführungsformen weist der NH_3-Oxidationskatalysator, bevorzugt der NH_3-oxidationsaktive, mit Eisen beladene Zeolith-Katalysator, ein molares Verhältnis von Eisen zu zeolithischem Aluminium n(Fe)/n(Al) von kleiner 0,50 bis größer 0,05 auf; bevorzugt kleiner 0,40 bis größer 0,05, bevorzugter kleiner 0,25 bis größer 0,05, noch bevorzugter kleiner 0,15 bis größer 0,05.

[0296] In bevorzugten Ausführungsformen weist der NH_3-Oxidationskatalysator, bevorzugt der NH_3-oxidationsaktive, mit Kupfer beladene Zeolith-Katalysator, ein molares Verhältnis von Kupfer zu zeolithischem Aluminium n(Cu)/n(Al) von kleiner 1,00 bis größer 0,10 auf; bevorzugt kleiner 0,80 bis größer 0,10, bevorzugter kleiner 0,50 bis größer 0,10, noch bevorzugter kleiner 0,30 bis größer 0,10.

[0297] So wurde überraschend gefunden, dass mit Eisen oder Kupfer beladene Zeolithe, in welchen nur ein Teil der potenziell verfügbaren Kationenplätze mit Fe- oder Cu-Ionen belegt sind, so dass die restlichen Kationenplätze im Wesentlichen durch Protonen abgesättigt sind, eine signifikant gesteigerte Aktivität zur Oxidation von NH_3 mit freiem Sauerstoff aufweisen.

[0298] Das Verhältnis von Eisen bzw. Kupfer zu zeolithischem Aluminium kann eingestellt werden durch Auswahl des Al-Gehaltes bei der Synthese des zeolithischen Materials, insbesondere durch die Mengenverhältnisse der gewählten Si- und Al-Ausgangsstoffe, sowie durch die spätere Beladung mit Eisen- oder Kupferionen.

[0299] Bei der Synthese von Zeolithen werden die gewählten Si- und Al-Ausgangsstoffe zumeist in

alkalischer Lösung erhitzt, oftmals unter erhöhtem Druck, wodurch eine Kristallisation zu den mikroporösen, aus dreidimensional verketteten AlO_2^-- und SiO_2-Einheiten aufgebauten Alumosilikaten, den Zeolithen eintritt. Durch gezielte Wahl der Synthesebedingungen, beispielsweise auch durch Zugabe strukturdirigierender Reagenzien, z.B. organischer Kationen, kann so nicht nur das Si/Al-Verhältnis und damit der Al-Gehalt, sondern auch der Strukturtyp des Zeolithen gezielt eingestellt bzw. gesteuert werden. Die Synthesemethoden sind industriell etabliert. Zeolithe verschiedenen Strukturtyps mit unterschiedlichen Si/Al-Verhältnissen und beladen mit unterschiedlichen Kationen, z.B. in Na- oder NH_4-Form sind kommerziell verfügbar.

[0300] Durch geeignete, Fachleuten bekannte Methoden, wie z.B. Flüssigphasen- oder Festkörperionenaustausch, können die im Zeolith enthaltenen Kationen, wie z.B. NH_4^+, gezielt gegen andere Kationen, z.B. Eisen- oder Kupferionen ausgetauscht werden (J. Weitkamp, L. Puppe *Catalysis and Zeolites – Fundamental and Applications* Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York, 1999 oder Kucherov, A.V. Slinkin, A. a.: *Solid state reactions as method of introducing transition metals cations into high-silica zeolites*, Russ. Chem. Rev. 1992, Bd. 61, Nr. 9, S. 925-943). Sind alle durch die AlO_2-Einheiten erzeugten negativen Ladungen durch Kationen kompensiert, beträgt der sog. Austauschgrad 100%.

[0301] Der genaue Al-Gehalt des vorliegenden zeolithischen Materials oder der daraus hergestellten Katalysatorformköper kann ebenso wie der Fe-Gehalt bekannterweise mittels Röntgenfluoreszenzanalyse (RFA) ermittelt werden. Zweckmäßigerweise erfolgt diese gemäß DIN EN 169-2 (Abschnitt 5) nach Bestimmung des Glühverlustes und nach einem Lithiumtetraborat-Aufschluss.

[0302] Will man am fertigen Formköper nachträglich den Al-Gehalt des zugrundeliegenden zeolithischen Materials bestimmen, ist zu beachten, dass der Formkörper auch Al-basierte Binderbestandteile enthalten kann, welche per RFA nicht von zeolithischem Al unterscheidbar sind. In diesem Fall ist eine zusätzliche Untersuchung der Formkörper z.B. mittels ^{27}Al-Festkörper-NMR erforderlich, welche eine Unterscheidung des in der Zeolithstruktur gebundenen und dem Extragitter Al erlaubt. Einzelheiten zu Grundlagen, Durchführung und Auswertung derartiger Untersuchungen sind Fachleuten bekannt (J. Weitkamp, L. Puppe *Catalysis and Zeolites – Fundamental and Applications* Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York, 1999, Chapter 4.2 (*NMR Spectroscopy*; insbesondere Abschnitte 4.2.4.1(*^{29}Si MAS NMR Spectroscopy of SiO_4 Tetrahedra in the Zeolite Framework*) und 4.3.4.2 (*^{27}Al NMR Spectroscopy of Framework and Non-Framework Aluminum in Zeolites*)).

[0303] Bevorzugt weist der NH_3-Oxidationskatalysator, bevorzugt der NH_3-oxidationsaktive, mit Eisen beladene Zeolith-Katalysator, einen Gesamtgehalt an Eisen (angegeben als Massengehalt Fe_2O_3) von kleiner 10,0 Gew.-% bis größer 2,0 Gew.-%, bevorzugt von kleiner 7,0 Gew.-% bis größer 2,0 Gew.-%, bevorzugter von kleiner 5,0 Gew.-% bis größer 2,0 Gew.-% und noch bevorzugter von kleiner 4,0 Gew.-% bis größer 2,0 Gew.-% auf.

[0304] Bevorzugt weist der NH_3-Oxidationskatalysator, bevorzugt der NH_3-oxidationsaktive, mit Kupfer beladene Zeolith-Katalysator, einen Gesamtgehalt an Kupfer (angegeben als Massengehalt Cu_2O)

von kleiner 9,0 Gew.-% bis größer 1,5 Gew.-% auf; bevorzugt von kleiner 6,5 Gew.-% bis größer 1,5 Gew.-%, bevorzugter von kleiner 4,5 Gew.-% bis größer 1,5 Gew.-% und noch bevorzugter von kleiner 3,5 Gew.-% bis größer 1,5 Gew.-% auf.

[0305] In bevorzugten Ausführungsformen ist der NH_3-Oxidationskatalysator, bevorzugt der NH_3-oxidationsaktive, mit Eisen oder Kupfer beladene Zeolith-Katalysator, zur selektiven Oxidation von NH_3 mit O_2 zu N_2 und H_2O konfiguriert, und bewirkt eingefüllt als partikuläre Schüttung, deren Partikel einen Äquivalenzdurchmesser von 3,5 bis 5,5 mm aufweisen, welcher definiert ist als Durchmesser eines volumengleichen kugelförmigen Partikels, und wobei das Verhältnis der äußeren, geometrisch erfassbaren Oberfläche der Partikel zum Volumen der partikulären Schüttung 1000 m^2/m^3 bis 1500 m^2/m^3 beträgt, in einer Menge von 8,0±0,5 mL in einem isotherm betriebenen, axial durchströmten Rohrreaktor mit einem Innendurchmesser von 20±3 mm beaufschlagt mit einem Volumenstrom eines Gasgemisches bestehend aus 500±50 ppmv NH_3, 2,5±0,1 Vol.-% O_2 und 0,30±0,05 Vol.-% H_2O in N_2 bei einer auf Normbedingungen (0°C; 1,01325 bara) bezogenen Raumgeschwindigkeit von 10.000±500 h^{-1}, einem Gesamtdruck von 6±0,5 bara und einer Temperatur von 380°C±5 K einen NH_3-Umsatz von mindestens 50%, bevorzugt mindestens 60%, bevorzugter mindestens 70%, noch bevorzugter mindestens 80% insbesondere mindestens 90%.

[0306] In bevorzugten Ausführungsformen weist der N_2O-Zersetzungskatalysator und/oder der N_2O-Reduktionskatalysator und/oder der NO_X-Reduktionskatalysator und/oder der NH_3-Oxidationskatalysator unabhängig voneinander eine wabenförmige monolithische Struktur auf.

[0307] In bevorzugten Ausführungsformen weist der N_2O-Zersetzungskatalysator und/oder der N_2O-Reduktionskatalysator und/oder der NO_X-Reduktionskatalysator und/oder der NH_3-Oxidationskatalysator unabhängig voneinander eine wabenförmige monolithische Struktur auf.

[0308] In bevorzugten Ausführungsformen sind der NH_3-Oxidationskatalysator und der N_2O-Zersetzungskatalysator aus dem gleichen Material.

[0309] In bevorzugten Ausführungsformen sind der NH_3-Oxidationskatalysator und der N_2O-Reduktionskatalysator aus dem gleichen Material.

[0310] In bevorzugten Ausführungsformen sind der NH_3-Oxidationskatalysator und der NO_X-Reduktionskatalysator aus dem gleichen Material.

[0311] In bevorzugten Ausführungsformen sind der NH_3-Oxidationskatalysator, der NO_X-Reduktionskatalysator und der N_2O-Zersetzungskatalysator aus dem gleichen Material.

<u>Bevorzugte Varianten von Kombinationen der Schritte (d) und (e):</u>

[0312] In bevorzugten Ausführungsformen werden Schritte (d_1) und/oder (d_2) und/oder (e) des erfindungsgemäßen Verfahrens bei unterschiedlichen Temperaturen, d.h. auf unterschiedlichen Tempera-

turniveaus durchgeführt, wobei ein zeitlich früherer bzw. in Strömungsrichtung des Abgases ein stromaufwärts durchgeführter Schritt bevorzugt bei einer höheren Temperatur abläuft als ein zeitlich nachfolgender bzw. in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts durchgeführter Schritt.

[0313] Je nach Art der eingesetzten Katalysatoren lassen sich die Schritte jedoch ggf. nicht vollständig voneinander separieren, weder örtlich noch zeitlich. Ist ein eingesetzter Katalysator gleichzeitig zur Katalyse mehrerer der Schritte (d_1), (d_2) und (e) geeignet, laufen diese Schritte ggf. gleichzeitig und/oder nacheinander ab. In Strömungsrichtung des Abgases können dazu einzelne Segmente ein und desselben Katalysators betrachtet werden, welche von dem Abgas nacheinander durchströmt werden und auf denen ggf. unterschiedliche Umsetzungen dominieren. In welchem Segment welche Reaktion dominiert, hängt insbesondere von der jeweiligen Reaktionskinetik, der lokalen Temperatur und den lokalen Konzentrationen der Reaktanden ab, ggf. einschließlich der Konzentration an Reduktionsmittel und ggf. einschließlich der Konzentration an co-katalytisch aktiven Spezies.

[0314] Die erfindungsgemäße Abgasbehandlungsanlage dient insbesondere zur Durchführung der Schritte (d) und (e) des erfindungsgemäßen Verfahrens. Es ist jedoch auch möglich, dass innerhalb der Abgasbehandlungsanlage neben den Schritten (d) und (e) weitere Schritte durchgeführt werden und chemische Umsetzungen erfolgen.

[0315] Dies betrifft bevorzugt die Installation eines in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts angeordneten Katalysatorbettes zur Oxidation von nicht vollständig umgesetzten Reduktionsmitteln oder von deren nicht vollständig oxidierten Reaktionsprodukten, also z.B. zur Oxidation von NH_3 (NH_3-Oxidationskatalysator) oder CO (CO-Oxidationskatalysator; bei Verwendung von Kohlenwasserstoffen als Reduktionsmittel). In solchen Ausführungsformen wird das Abgas bevorzugt abgekühlt, bevor es in das stromabwärts angeordnete Katalysatorbett eingeleitet wird, d.h. die Oxidation von NH_3 und/oder CO erfolgt bevorzugt bei geringerer Temperatur als Schritte (d) und (e).

[0316] Bei der Durchführung der Schritte (d) und (e) des erfindungsgemäßen Verfahrens gibt es erfindungsgemäß verschiedene bevorzugte Varianten der Verfahrensführung, welche sich hinsichtlich der Reihenfolge der ablaufenden Umsetzungen, der eingesetzten Katalysatoren, der eingesetzten Reduktionsmittel, der Raumgeschwindigkeiten und sonstigen Reaktionsbedingungen voneinander unterscheiden können.

[0317] In bevorzugten Ausführungsformen werden diese Umsetzungen in einer gemeinsamen Reaktionszone (Katalysatorbett) durchgeführt, welche stromaufwärts mit einer Vorrichtung zum Zudosieren von Reduktionsmittel in das Abgas ausgerüstet ist.

[0318] In anderen bevorzugten Ausführungsformen werden diese Umsetzungen in zwei nacheinander angeordneten, voneinander getrennten Reaktionszonen (Katalysatorbetten) durchgeführt, von denen bevorzugt mindestens eine Reaktionszone, bevorzugt beide Reaktionszonen unabhängig voneinander stromaufwärts mit einer Vorrichtung zum Zudosieren von Reduktionsmittel in das Abgas ausgerüstet

ist bzw. sind. Das Abgas durchströmt dann zunächst die erste Reaktionszone und anschließend die zweite Reaktionszone.

[0319] Besonders bevorzugte Varianten/Ausführungsformen umfassen

[a] (d_2) die chemische Reduktion von N_2O mit NH_3 und (e) die chemische Reduktion von NO_X mit NH_3, vorzugsweise gemeinsam in einer Reaktionszone;

[b] (d_2) die chemische Reduktion von N_2O mit Kohlenwasserstoff (CH_4, Erdgas, etc.) und (e) die chemische Reduktion von NO_X mit NH_3, vorzugsweise gemeinsam in einer Reaktionszone;

[c] (d_1) die Zersetzung von N_2O und (e) die chemische Reduktion von NO_X mit NH_3, vorzugsweise gemeinsam in einer Reaktionszone;

[d] (d_1) die Zersetzung von N_2O und (d_2) die chemische Reduktion von N_2O mit NH_3 und (e) die chemische Reduktion von NO_X mit NH_3, vorzugsweise gemeinsam in einer Reaktionszone;

[e] (d_1) die Zersetzung von N_2O und (d_2) die chemische Reduktion von N_2O mit Kohlenwasserstoff (CH_4, Erdgas, etc.) und (e) die chemische Reduktion von NO_X mit NH_3, vorzugsweise gemeinsam in einer Reaktionszone;

[f] (d_1) die Zersetzung von N_2O, vorzugsweise in einer ersten Reaktionszone; sowie anschließend (e) die chemische Reduktion von NO_X mit NH_3, vorzugsweise in einer zweiten Reaktionszone;

[g] (d_1) die unvollständige Zersetzung von N_2O, vorzugsweise in einer ersten Reaktionszone; sowie anschließend (d_2) die chemische Reduktion von restlichem N_2O mit NH_3 und (e) die chemische Reduktion von NO_X mit NH_3, vorzugsweise in einer zweiten Reaktionszone;

[h] (d_1) die unvollständige Zersetzung von N_2O, vorzugsweise in einer ersten Reaktionszone; sowie anschließend (d_2) die chemische Reduktion von restlichem N_2O mit Kohlenwasserstoff (CH_4, Erdgas, etc.) und (e) die chemische Reduktion von NO_X mit NH_3, vorzugsweise in einer zweiten Reaktionszone;

[i] (d_1) die unvollständige Zersetzung von N_2O, vorzugsweise in einer ersten Reaktionszone; sowie anschließend (d1*) die Zersetzung von restlichem N_2O und (e) die chemische Reduktion von NO_X mit NH_3, vorzugsweise in einer zweiten Reaktionszone;

[j] (d_1) die unvollständige Zersetzung von N_2O, vorzugsweise in einer ersten Reaktionszone; sowie anschließend (d1*) die Zersetzung von restlichem N_2O und (d_2) die chemische Reduktion von restlichem N_2O mit NH_3 (e) und die chemische Reduktion von NO_X mit NH_3, vorzugsweise in einer zweiten Reaktionszone;

[k] (d_1) die unvollständige Zersetzung von N_2O, vorzugsweise in einer ersten Reaktionszone; sowie anschließend (d1*) die Zersetzung von restlichem N_2O und (d_2) die chemische Reduktion von restlichem N_2O mit Kohlenwasserstoff (CH_4, Erdgas, etc.) und (e) die chemische Reduktion von NO_X mit NH_3, vorzugsweise in einer zweiten Reaktionszone;

[l] (e) die unvollständige chemische Reduktion von NO_X, vorzugsweise in einer ersten Reaktionszone; sowie anschließend (d_1) die Zersetzung von N_2O und (e*) die chemische Reduktion von restlichem NO_X mit NH_3, vorzugsweise in einer zweiten Reaktionszone;

[m] (e) die unvollständige chemische Reduktion von NO_X, vorzugsweise in einer ersten Reaktionszone; sowie anschließend (d_1) die Zersetzung von N_2O und (d_2) die chemische Reduktion von N_2O mit NH_3 und (e*) die chemische Reduktion von restlichem NO_X mit NH_3, vorzugsweise in einer zweiten Reaktionszone; oder

[n] (e) die unvollständige chemische Reduktion von NO_X, vorzugsweise in einer ersten Reaktionszone; sowie anschließend (d_1) die Zersetzung von N_2O und (d_2) die chemische Reduktion von N_2O mit Kohlenwasserstoff (CH_4, Erdgas, etc.) und (e*) die chemische Reduktion von restlichem NO_X mit NH_3, vorzugsweise in einer zweiten Reaktionszone.

[0320] Dies bedeutet aber nicht, dass die ausdrücklich genannten Umsetzungen die einzigen Umsetzungen sein müssen, welche in der jeweiligen Reaktionszone stattfinden. Je nach verwendetem Katalysator ist es erfindungsgemäß vielmehr bevorzugt, dass zusätzlich auch weitere Umsetzungen gleichzeitig stattfinden, welche nicht ausdrücklich genannt sind, aber parallel ablaufen können. Die ausdrücklich genannten Umsetzungen sind daher nur diejenigen Umsetzungen, welche bei der jeweiligen Variante/Ausführungsform mindestens stattfinden.

[0321] Wenn NO_X, N_2O und NH_3 im Gemisch vorliegen und der eingesetzte Katalysator sowohl die chemische Reduktion von NO_X mit NH_3 als auch die chemische Reduktion von N_2O mit NH_3 katalysiert, ist die chemische Reduktion von NO_X mit NH_3 typischerweise deutlich schneller als die chemische Reduktion von N_2O mit NH_3. Wenn der eingesetzte Katalysator zusätzlich die Zersetzung von N_2O katalysiert, ist die Zersetzung von N_2O typischerweise der chemischen Reduktion von N_2O mit NH_3 überlagert, wobei das Ausmaß der chemischen Reduktion von N_2O durch Erhöhung der zudosierten Menge an NH_3 gesteigert werden kann.

[0322] Zum Zwecke der Beschreibung kennzeichnet "*" einen Verfahrensteilschritt, welcher zuvor in einem artgleichen Verfahrensteilschritt nur unvollständig durchgeführt wurde, wobei der mit "*" gekennzeichnete Verfahrensteilschritt anschließend den zuvor nur unvollständig durchgeführten Verfahrensteilschritt fortsetzt, ggf. jedoch in einer anderen Reaktionszone bzw. einem anderen Katalysatorbett. Wie auch bei allen anderen Verfahrensschritten ist, sofern nicht ausdrücklich etwas anderes angegeben ist, das dabei am Ende aller Verfahrensteilschritte erreichte Ergebnis nicht quantitativ festgelegt. Wird also beispielsweise in einem ersten Verfahrensteilschritt (e) NO_X chemisch unvollständig reduziert, so ergibt sich aus der Tatsache, dass anschließend Verfahrensteilschritt (e*) durchgeführt wird, nicht zwingend das Erfordernis, dass am Ende von Verfahrensteilschritt (e*) die Gesamtmenge an NO_X vollständig chemisch reduziert worden sein muss, d.h. bis auf 0,0 ppmv. Vielmehr ist es durchaus möglich, dass am Ende von Verfahrensteilschritt (e*) noch eine Restmenge an NO_X vorhanden ist.

[0323] Die Abgasbehandlungsanlage umfasst mindestens eine Einspeisungsstelle für Reduktionsmittel. Die Abgasbehandlungsanlage kann mehrere Einspeisungsstellen für Reduktionsmittel umfassen.

[0324] Die Art der Einbringung der Reduktionsmittel in den zu behandelnden Strom des Abgases ist erfindungsgemäß frei gestaltbar, solange dieses in Stromrichtung vor dem N_2O-Reduktionskatalysator bzw. NO_X-Reduktionskatalysator erfolgt. Das Reduktionsmittel kann in Form eines Gases oder auch einer Flüssigkeit bzw. wässrigen Lösung eingebracht werden, die im zu behandelnden Strom des Abgases verdampft. Die Einspeisung erfolgt durch eine geeignete Vorrichtung, wie z.B. einem entsprechenden Druckventil oder entsprechend ausgestalteten Düsen, die in einen Mischer für den zu behandelnden Strom des Abgases und das zugeführte Reduktionsmittel mündet. Bei Verwendung verschiedener Reduktionsmittel für NO_X und N_2O kann die Zuführung und Einleitung in das Abgas getrennt oder zusammen erfolgen.

[0325] Bei der Ausgestaltung der Katalysatorbetten als Packung von Katalysatorwaben bzw. Wabenkörpermodulen erfolgt die Zuführung und Verteilung der Reduktionsmittel für NO_X und ggf. N_2O zu der einen oder den mehreren Reaktionszonen (Katalysatorbetten) bevorzugt über ein mit einer Vielzahl von Öffnungen bzw. Düsen versehenes vielfach verzweigtes Rohrleitungssystem, welches in Strömungsrichtung des Abgases stromaufwärts der jeweiligen Reaktionszone (Katalysatorbett), d.h. der Packung der Katalysatorwaben bzw. Wabenkörpermodule angeordnet ist.

[0326] Die Verteiler sind dabei bevorzugt in Form von Gittern, sog. "*Grids*", oder konzentrisch miteinander verbundenen Kreisen ausgestaltet, welche sich möglichst weit über die Querschnittsfläche des Abgaskanals bzw. die Anströmfläche der Reaktionszone (Katalysatorbett) ausdehnen.

[0327] Die konkrete Ausgestaltung und Dimensionierung dieser Verteiler inklusive geeigneter Austrittsdüsen zählt zum Fachwissen in der katalytischen Abgasreinigungstechnik und findet z.B. ist der Abgasreinigung von Kohlekraftwerken verbreitete Anwendung.

[0328] Die erfindungsgemäße Abgasbehandlungsanlage kann eine einzige Reaktionszone umfassen. In diesem Fall dient der in dieser einzigen Reaktionszone eingesetzte Katalysator als N_2O-Zersetzungskatalysator und/oder N_2O-Reduktionskatalysator sowie als NO_X-Reduktionskatalysator. In diesem Fall erfolgen die Schritte (d) und (e) des erfindungsgemäßen Verfahrens im Wesentlichen gleichzeitig innerhalb dieser Reaktionszone. Dabei ist allerdings zu beachten, dass die Kinetik der einzelnen Umsetzungen recht unterschiedlich sein kann. So kann in Abhängigkeit vom eingesetzten Katalysatormaterial die chemische Reduktion von NO_X mit NH_3 als Reduktionsmittel z.B. deutlich schneller erfolgen als die chemische Reduktion von N_2O mit NH_3. Liegen also NO_X und N_2O im Gemisch vor und wird NH_3 als Reduktionsmittel eingespeist, so finden im vorderen Abschnitt der einzigen Reaktionszone andere Umsetzungen statt als im hinteren Abschnitt der einzigen Reaktionszone. Im vorderen Abschnitt erfolgt wegen der schnelleren Kinetik überwiegend die chemische Reduktion von NO_X und erst im hinteren Abschnitt, wenn der Großteil des NO_X abgebaut ist, erfolgt die chemische Reduktion von N_2O.

[0329] Alternativ kann die Abgasbehandlungsanlage mehrere Reaktionszonen umfassen, was erfindungsgemäß bevorzugt ist. Wenn mehrere Reaktionszonen umfasst sind, sind diese bevorzugt hintereinander angeordnet, werden also von dem Abgas nacheinander durchströmt, zunächst die erste Reaktionszone und anschließend die zweite Reaktionszone und ggf. anschließend die dritte Reaktionszone.

[0330] In bevorzugten Ausführungsformen handelt es sich bei den Reaktionszonen jeweils um voneinander räumlich abgetrennte Katalysatorbetten.

[0331] In bevorzugten Ausführungsformen durchläuft das Abgas dabei die Schritte des erfindungsgemäßen Verfahrens in einer der folgenden Reihenfolgen:

(i) (a) → (b) → (c) → (d_1) → (e); wobei bevorzugt Schritt (d_1) in einer ersten Reaktionszone abläuft; und Schritt (e) in einer zweiten Reaktionszone abläuft;

(ii) (a) → (b) → (c) → (e) → (d_2); wobei bevorzugt Schritt (e) in einer ersten Reaktionszone abläuft; und Schritt (d_2) in einer zweiten Reaktionszone abläuft;

(iii) (a) → (b) → (c) → (e) → (d_2) → (d_1); wobei bevorzugt Schritt (e) in einer ersten Reaktionszone abläuft; Schritt (d_2) in einer zweiten Reaktionszone abläuft; und Schritt (d_1) in einer dritten Reaktionszone abläuft;

(iv) (a) → (b) → (c) → (e) → (d_1)+(d_2); wobei bevorzugt Schritt (e) in einer ersten Reaktionszone abläuft; und Schritt (d_1) sowie Schritt (d_2) in einer zweiten Reaktionszone ablaufen;

(v) (a) → (b) → (c) → (e) → (d_1); wobei bevorzugt Schritt (e) in einer ersten Reaktionszone abläuft; und Schritt (d_1) in einer zweiten Reaktionszone abläuft;

(vi) (a) → (b) → (c) → (d_1)+(e) → (e*); wobei bevorzugt Schritt (d_1) sowie unvollständig Schritt (e) in einer ersten Reaktionszone ablaufen; und restlicher Schritt (e*) in einer zweiten Reaktionszone abläuft;

(vii) (a) → (b) → (c) → (d_1)+(e) → (e*)+(d_2); wobei bevorzugt Schritt (d_1) sowie unvollständig Schritt (e) in einer ersten Reaktionszone ablaufen; und Schritt (d_2) sowie restlicher Schritt (e*) in einer zweiten Reaktionszone ablaufen;

(viii) (a) → (b) → (c) → (d_1)+(d_2)+(e) → (d1*)+(d2*)+(e*); wobei bevorzugt unvollständig Schritt (d_1) sowie unvollständig Schritt (d_2) sowie unvollständig Schritt (e) in einer ersten Reaktionszone ablaufen, welche bevorzugt als Katalysator kein zeolithisches Material enthält; und restlicher Schritt (d1*) sowie restlicher Schritt (d2*) sowie restlicher Schritt (e*) in einer zweiten Reaktionszone ablaufen, welche bevorzugt als Katalysator zeolithisches Material enthält;

(ix) (a) → (b) → (c) → (d_1)+(d_2)+(e) → (d1*)+(d2*)+(e*); wobei bevorzugt unvollständig Schritt (d_1) sowie unvollständig Schritt (d_2) sowie unvollständig Schritt (e) in einer ersten Reaktionszone ablaufen, welche bevorzugt als Katalysator zeolithisches Material enthält; und restlicher Schritt (d1*) sowie restlicher Schritt (d2*) sowie restlicher Schritt (e*) in einer zweiten Reaktionszone ablaufen, welche bevorzugt als Katalysator einen NO_X-sensitiven N_2O-Zersetzungskatalysator enthält;

(x) (a) → (b) → (c) → (d_1) → (d1*)+(d_2)+(e); wobei bevorzugt unvollständig Schritt (d_1) in einer ersten Reaktionszone abläuft, welche bevorzugt als Katalysator zeolithisches Material enthält; und restlicher Schritt (d1*) sowie Schritt (d_2) sowie Schritt (e) in einer zweiten Reaktionszone ablaufen, welche bevorzugt als Katalysator zeolithisches Material enthält;

(xi) (a) → (b) → (c) → (d_1) → (d1*)+(d_2)+(e); wobei bevorzugt unvollständig Schritt (d_1) in einer ersten Reaktionszone abläuft, welche bevorzugt als Katalysator einen NO_X-sensitiven N_2O-Zersetzungskatalysator enthält; und restlicher Schritt (d1*) sowie Schritt (d_2) sowie Schritt (e) in einer zweiten Reaktionszone ablaufen, welche bevorzugt als Katalysator zeolithisches Material enthält.

[0332] Es ist jedoch auch möglich, dass mehrere Reaktionszonen durch ein einzelnes Katalysatorbett verwirklicht werden. Zwei Reaktionszonen auf einem gemeinsamen Katalysatorbett können insbesondere durch eine Einspeisung von Reduktionsmittel in der Mitte (oder einer anderen Position entlang der Längsausdehnung) des Katalysatorbetts gebildet werden. Stromaufwärts von der Einspeisungsstelle ist dann kein Reduktionsmittel vorhanden, so dass Schritte (d_2) und (e) des erfindungsgemäßen Verfahrens in Ermangelung von Reduktionsmittel nicht stattfinden können. Es erfolgt dann stromaufwärts im Wesentlichen die Zersetzung von N_2O gemäß Schritt (d_1) (erste Reaktionszone). Stromabwärts von der Einspeisungsstelle ist Reduktionsmittel vorhanden, so dass Schritte (d_2) und (e) des erfindungsgemäßen Verfahrens stattfinden können, ggf. überlagert von Schritt (d_1) des erfindungsgemäßen Verfahrens (zweite Reaktionszone). Auch in diesem Fall können wegen der unterschiedlichen Reaktionskinetik im vorderen Abschnitt jeder Reaktionszone andere Umsetzungen ablaufen als im hinteren Abschnitt jeder Reaktionszone; die erste Reaktionszone und die zweite Reaktionszone unterscheiden sich jedoch jedenfalls voneinander darin, dass in der ersten Reaktionszone in Ermangelung von Reduktionsmittel keine chemische Reduktion von N_2O und auch keine chemische Reduktion von NO_X erfolgt.

[0333] In besonders bevorzugten Ausführungsformen umfasst die Abgasbehandlungsanlage eine erste Reaktionszone und eine zweite Reaktionszone. Es ist möglich, dass weitere Reaktionszonen vorhanden sind.

[0334] In bevorzugten Ausführungsformen sind die erste Reaktionszone und die zweite Reaktionszone räumlich voneinander getrennt. In diesem Fall handelt es sich bevorzugt um separate Katalysatorbetten. Bei einer räumlichen Trennung der Katalysatorbetten ist es möglich, die Temperatur des zweiten Katalysatorbettes bzw. des darin eintretenden Gasstromes durch Wärmeabfuhr oder -zufuhr so einzustellen, dass sie niedriger oder höher als die des ersten Katalysatorbettes ist. Die Temperatur eines einzelnen Katalysatorbettes lässt sich zweckmäßig als arithmetischer Mittelwert der Temperatur des Gasstromes am Ein- und Austritt des Katalysatorbettes bestimmen.

[0335] In bevorzugten Ausführungsformen ist die Temperatur in der ersten Reaktionszone (im ersten Katalysatorbett) höher als die Temperatur in der zweiten Reaktionszone (im zweiten Katalysatorbett).

[0336] Bevorzugt beträgt die Temperatur in der ersten Reaktionszone mindestens 450°C, bevorzugter mindestens 500°C, noch bevorzugter mindestens 550°C, am bevorzugtesten mindestens 600°C und insbesondere mindestens 650°C.

[0337] Bevorzugt beträgt die Temperatur in der zweiten Reaktionszone (im zweiten Katalysatorbett) höchstens 600°C, bevorzugter höchstens 550°C, noch bevorzugter höchstens 500°C, am bevorzugtesten höchstens 450°C und insbesondere höchstens 400°C.

[0338] In bevorzugten Ausführungsformen ist die Temperatur in der ersten Reaktionszone (im ersten Katalysatorbett) relativ um mindestens 20°C, bevorzugter um mindestens 40°C, noch bevorzugter um mindestens 60°C, am bevorzugtesten um mindestens 80°C und insbesondere um mindestens 100°C höher als die Temperatur in der zweiten Reaktionszone (im zweiten Katalysatorbett).

[0339] In anderen bevorzugten Ausführungsformen ist die Temperatur in der zweiten Reaktionszone (im zweiten Katalysatorbett) relativ um mindestens 20°C, bevorzugter um mindestens 40°C, noch bevorzugter um mindestens 60°C, am bevorzugtesten um mindestens 80°C und insbesondere um mindestens 100°C höher als die Temperatur in der ersten Reaktionszone (im ersten Katalysatorbett).

[0340] In bevorzugten Ausführungsformen ist die Temperatur in der ersten Reaktionszone (im ersten Katalysatorbett) relativ um mindestens 120°C, bevorzugter um mindestens 140°C, noch bevorzugter um mindestens 160°C, am bevorzugtesten um mindestens 180°C und insbesondere um mindestens 200°C höher als die Temperatur in der zweiten Reaktionszone (im zweiten Katalysatorbett).

[0341] In anderen bevorzugten Ausführungsformen ist die Temperatur in der zweiten Reaktionszone (im zweiten Katalysatorbett) relativ um mindestens 120°C, bevorzugter um mindestens 140°C, noch bevorzugter um mindestens 160°C, am bevorzugtesten um mindestens 180°C und insbesondere um mindestens 200°C höher als die Temperatur in der ersten Reaktionszone (im ersten Katalysatorbett).

[0342] Bevorzugt beträgt die Temperatur des Abgases am Eintritt in die erste Reaktionszone (in das erste Katalysatorbett) mindestens 400°C, bevorzugter mindestens 425°C, noch bevorzugter mindestens 450°C, am bevorzugtesten mindestens 500°C.

[0343] Bevorzugt beträgt die Temperatur des Abgases am Austritt aus der zweiten Reaktionszone (aus dem zweiten Katalysatorbett) höchstens 600°C, bevorzugter höchstens 550°C, noch bevorzugter höchstens 500°C.

[0344] In bevorzugten Ausführungsformen ist die Temperatur des Abgases am Eintritt in die erste Reaktionszone (in das erste Katalysatorbett) relativ um mindestens 20K, bevorzugter um mindestens 40K, noch bevorzugter um mindestens 60K, am bevorzugtesten um mindestens 80K und insbesondere um mindestens 100K höher als die Temperatur des Abgases am Eintritt in die zweite Reaktionszone (in das zweite Katalysatorbett.

[0345] In bevorzugten Ausführungsformen ist die Temperatur des Abgases am Eintritt in die zweite Reaktionszone (in das zweite Katalysatorbett) relativ um mindestens 10K, bevorzugter um mindestens 20K, noch bevorzugter um mindestens 30K, am bevorzugtesten um mindestens 40K und insbesondere um mindestens 50K höher als die Temperatur des Abgases am Eintritt in die erste Reaktionszone (in das erste Katalysatorbett).

[0346] In bevorzugten Ausführungsformen ist die Temperatur in der ersten Reaktionszone (im ersten Katalysatorbett) relativ um mindestens 120K, bevorzugter um mindestens 140K, noch bevorzugter um mindestens 160K, am bevorzugtesten um mindestens 180K und insbesondere um mindestens 200K höher als die Temperatur in der zweiten Reaktionszone (im ersten Katalysatorbett).

[0347] In bevorzugten Ausführungsformen ist die Temperatur in der zweiten Reaktionszone (im zweiten Katalysatorbett) relativ um mindestens 120K, bevorzugter um mindestens 140K, noch bevorzugter um mindestens 160K, am bevorzugtesten um mindestens 180K und insbesondere um mindestens 200K höher als die Temperatur in der ersten Reaktionszone (im ersten Katalysatorbett).

[0348] In anderen bevorzugten Ausführungsformen sind die erste Reaktionszone und die zweite Reaktionszone räumlich miteinander verbunden. In diesem Fall handelt es sich bevorzugt um ein gemeinsames Katalysatorbett, wobei durch äußere Einflüsse eine Aufteilung in Reaktionszonen erfolgt, insbesondere durch den Ort der Einspeisung von Reduktionsmittel, so dass nicht überall auf dem Katalysatorbett gleichermaßen Reduktionsmittel vorhanden ist.

[0349] Bevorzugt sind die erste Reaktionszone und die zweite Reaktionszone in einem gemeinsamen Behälter angeordnet.

[0350] Bevorzugt beträgt die Temperatur des Abgases in der ersten Reaktionszone und in der zweiten Reaktionszone jeweils unabhängig voneinander höchstens 500°C, bevorzugt liegt sie jeweils unabhängig voneinander im Bereich von 350 bis 450°C.

[0351] In bevorzugten Ausführungsformen ist die Raumgeschwindigkeit in der ersten Reaktionszone größer als die Raumgeschwindigkeit in der zweiten Reaktionszone. Bevorzugt ist die Raumgeschwindigkeit in der ersten Reaktionszone um mindestens Faktor 1,2, bevorzugter mindestens Faktor 1,4, noch bevorzugter mindestens Faktor 1,6, am bevorzugtesten mindestens Faktor 1,8, und insbesondere mindestens Faktor 2,0 größer als die Raumgeschwindigkeit in der zweiten Reaktionszone.

[0352] In anderen bevorzugten Ausführungsformen ist die Raumgeschwindigkeit in der zweiten Reaktionszone größer als die Raumgeschwindigkeit in der ersten Reaktionszone. Bevorzugt ist die Raumgeschwindigkeit in der zweiten Reaktionszone um mindestens Faktor 1,5, bevorzugter mindestens Faktor 2,0, noch bevorzugter mindestens Faktor 3,0, am bevorzugtesten mindestens Faktor 5,0, und insbesondere mindestens Faktor 10,0 größer als die Raumgeschwindigkeit in der ersten Reaktionszone.

[0353] Unter "*Raumgeschwindigkeit*" ist im Sinne der Erfindung der Quotient aus dem Volumenstrom des durch das Katalysatorbett geführten Gasgemisches (gemessen bei 0 °C und 1,014 bara und üblicherweise angegeben in $Nm^3 \cdot h^{-1}$) bezogen auf das Volumen des Katalysators bzw. Katalysatorbettes zu verstehen. Die Raumgeschwindigkeit kann somit über den Volumenstrom des Gases und/oder über die Katalysatormenge eingestellt werden.

[0354] Bevorzugt weist das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage eine Temperatur von mindestens 300°C, bevorzugter mindestens 350°C, noch bevorzugter mindestens 400°C, am bevorzugtesten mindestens 425°C, und insbesondere mindestens 450°C auf.

[0355] Bevorzugt weist das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage eine Temperatur von mindestens 500°C, bevorzugter mindestens 550°C, noch bevorzugter mindestens 600°C, am bevorzugtesten mindestens 625°C, und insbesondere mindestens 650°C auf.

[0356] Bevorzugt weist das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage eine Temperatur von höchstens 825°C, bevorzugter höchstens 800°C, noch bevorzugter höchstens 775°C, am bevorzugtesten höchstens 750°C, und insbesondere höchstens 725°C auf.

[0357] Bevorzugt weist das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage eine Temperatur von höchstens 700°C, bevorzugter höchstens 650°C, noch bevorzugter höchstens 600°C, am bevorzugtesten höchstens 550°C, und insbesondere höchstens 500°C auf.

[0358] In bevorzugten Ausführungsformen weist das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage einen Druck von höchstens 1,4 bara, bevorzugt von höchstens 1,3 bara, bevorzugter von höchstens 1,2 bara auf.

[0359] In anderen bevorzugten Ausführungsformen weist das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage einen Unterdruck auf, bevorzugt von etwa - 5 mbar. Dies hat den Vorteil, dass im Falle von eventuellen Undichtigkeiten kein Gas an die Umgebung abgegeben wird.

[0360] Bevorzugt weist das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage einen Oxidationsgrad von NO_X von mindestens 10%, bevorzugter mindestens 20%, noch bevorzugter mindestens 30%, am bevorzugtesten mindestens 40%, und insbesondere mindestens 50% auf.

[0361] Bevorzugt weist das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage einen Oxidationsgrad von NO_X von höchstens 90%, bevorzugter höchstens 80%, noch bevorzugter höchstens 70%, am bevorzugtesten höchstens 60%, und insbesondere höchstens 50% auf.

[0362] Je nach Verbrennungstemperatur kann der Oxidationsgrad auch deutlich niedriger sein, wobei der Oxidationsgrad mit steigender Verbrennungstemperatur abnimmt. Bevorzugt weist das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage einen Oxidationsgrad von NO_X von höchstens 15%, bevorzugter höchstens 12,5%, noch bevorzugter höchstens 10%, am bevorzugtesten höchstens 7,5%, und insbesondere höchstens 5,0% auf.

[0363] Bevorzugt weist das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage einen Gehalt an O_2 von weniger als 2,0 Vol.-% auf.

[0364] Bevorzugt weist das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage einen Gehalt an O_2 von mehr als 4,0 Vol.-% auf.

[0365] In Schritt (d) des erfindungsgemäßen Verfahrens wird der Gehalt an N_2O im Abgas vermindert. Dies kann auf unterschiedliche Weise erfolgen, nämlich durch (d_1) Zersetzung von N_2O an einem N_2O-Zersetzungskatalysator und/oder durch (d_2) chemische Reduktion von N_2O mit Reduktionsmittel an einem N_2O-Reduktionskatalysator. Schritt (d) des erfindungsgemäßen Verfahrens wird in der Abgasbehandlungsanlage durchgeführt.

[0366] In bevorzugten Ausführungsformen umfasst Schritt (d) das Vermindern des Gehalts an N_2O in dem Abgas durch (d_1) Zersetzung von N_2O an einem N_2O-Zersetzungskatalysator.

[0367] In bevorzugten Ausführungsformen umfasst der N_2O-Zersetzungskatalysator ein zeolithisches Material; bevorzugt einen mit Übergangsmetall (einschließlich Lanthanid), insbesondere mit Eisen, Kobalt oder Kupfer beladenen Zeolith; bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith; noch bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith vom Strukturtyp MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder MEL.

[0368] In anderen bevorzugten Ausführungsformen ist der N_2O-Zersetzungskatalysator ein NO_X-sensitiver N_2O-Zersetzungskatalysator im Sinne der Erfindung, welcher oben bereits näher beschrieben wurde. In diesem Fall durchläuft das Abgas bevorzugt zunächst Schritt (e), d.h. es wird zunächst der Gehalt an NO_X im Abgas durch chemische Reduktion von NO_X mit Reduktionsmittel an einem NO_X-Reduktionskatalysator vermindert, bevorzugt quantitativ, bevor das Abgas anschließend mit dem NO_X-sensitiven N_2O-Zersetzungskatalysator in Kontakt kommt.

[0369] Bevorzugt ist der N_2O-Zersetzungskatalysator in einem Radialkorb angeordnet, welcher axial durchströmt wird.

[0370] Bevorzugt ist der N_2O-Zersetzungskatalysator partikulär und umfasst mindestens 50 Partikel.

[0371] In bevorzugten Ausführungsformen umfasst Schritt (d) das Vermindern des Gehalts an N_2O in dem Abgas durch (d_2) chemische Reduktion von N_2O mit Reduktionsmittel an einem N_2O-Reduktionskatalysator; bevorzugt wobei der N_2O-Reduktionskatalysator ein zeolithisches Material umfasst; bevorzugt einen mit Übergangsmetall (einschließlich Lanthanid), insbesondere mit Eisen, Kobalt oder Kupfer beladenen Zeolith; bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith; noch bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith vom Strukturtyp MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder MEL.

[0372] Bevorzugt ist der N_2O-Reduktionskatalysator in einem Radialkorb angeordnet, welcher axial durchströmt wird.

[0373] Bevorzugt ist der N_2O-Reduktionskatalysator partikulär und umfasst mindestens 50 Partikel.

[0374] In bevorzugten Ausführungsformen umfasst Schritt (d) das Vermindern des Gehalts an N_2O in dem Abgas

- sowohl durch (d_1) Zersetzung von N_2O an einem N_2O-Zersetzungskatalysator; bevorzugt wobei der N_2O-Zersetzungskatalysator ein zeolithisches Material; bevorzugt einen mit Übergangsmetall (einschließlich Lanthanid), insbesondere mit Eisen, Kobalt oder Kupfer beladenen Zeolith; bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith umfasst; noch bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith vom Strukturtyp MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder MEL;
- also auch durch (d_2) chemische Reduktion von N_2O mit Reduktionsmittel an einem N_2O-Reduktionskatalysator; bevorzugt wobei der N_2O-Reduktionskatalysator ein zeolithisches Material umfasst; bevorzugt einen mit Übergangsmetall (einschließlich Lanthanid), insbesondere mit Eisen, Kobalt oder Kupfer beladenen Zeolith; bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith; noch bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith vom Strukturtyp MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder MEL.

[0375] Bevorzugt ist das Reduktionsmittel in Schritt (d_2) ausgewählt aus NH_3, Kohlenwasserstoffen, CO, H_2 und deren Mischungen; bevorzugt NH_3.

[0376] In bevorzugten Ausführungsformen ist das Reduktionsmittel in Schritt (d_2) NH_3, welches bevorzugt in einer Menge von 0,5 bis 2,0 molaren Anteilen, bevorzugter in einer Menge von 0,8 bis 1,8 molaren Anteilen, eingesetzt wird, bezogen auf einen molaren Anteil an chemisch zu reduzierendem N_2O, d.h. bezogen auf die Menge an N_2O am Eintritt in das Katalysatorbett des N_2O-Reduktionskatalysators.

[0377] In bevorzugten Ausführungsformen ist das Reduktionsmittel in Schritt (d_2) NH_3, welches bevorzugt in einer Menge von 0,5 bis 2,0 molaren Anteilen, bevorzugter in einer Menge von 0,8 bis 1,8 molaren Anteilen bezogen auf die molare Menge an N_2O im Abgas am Eintritt in das Katalysatorbett des N_2O-Reduktionskatalysators eingesetzt wird. Diese Menge ist additiv zur ggf. erforderlichen Menge an NH_3 zur NO_X-Reduktion, sofern Schritt (e) ebenfalls im Katalysatorbett des N_2O-Reduktionskatalysators abläuft.

[0378] In anderen bevorzugten Ausführungsformen ist das Reduktionsmittel ein Kohlenwasserstoff oder eine Mischung mehrerer Kohlenwasserstoffe, welche bevorzugt in einer Menge von 0,2 bis 1,0 molaren Anteilen, bevorzugter von 0,2 bis 0,7 molaren Anteilen bezogen auf die molare Menge an N_2O im Abgas am Eintritt in das Katalysatorbett des N_2O-Reduktionskatalysators eingesetzt werden. Diese Menge ist ebenfalls additiv zur ggf. erforderlichen Menge an NH_3 zur NO_X-Reduktion, sofern Schritt (e) ebenfalls im Katalysatorbett des N_2O-Reduktionskatalysators abläuft.

[0379] Ebenso kann das Reduktionsmittel auch schon im Abgas vorhanden sein, z.B. als restliche Verbrennungsgase und/oder deren Oxidationsprodukte. Das erfindungsgemäße Verfahren vermindert dann nicht nur den Gehalt an Stickoxiden (NO_X und N_2O), sondern zusätzlich auch den Gehalt an diesen Verunreinigungen (restliche Verbrennungsgase und/oder deren Oxidationsprodukte).

[0380] In Schritt (e) des erfindungsgemäßen Verfahrens wird der Gehalt an NO_X (d.h. NO und NO_2) im Abgas vermindert. Dies erfolgt durch chemische Reduktion von NO_X mit Reduktionsmittel an einem NO_X-Reduktionskatalysator. Schritt (e) des erfindungsgemäßen Verfahrens wird ebenfalls in der Abgasbehandlungsanlage durchgeführt.

[0381] Bevorzugt enthält der NO_X-Reduktionskatalysator ein zeolithisches Material; bevorzugt einen mit Übergangsmetall (einschließlich Lanthanid), insbesondere mit Eisen, Kobalt oder Kupfer beladenen Zeolith; bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith umfasst; noch bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith vom Strukturtyp MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder MEL.

[0382] Bevorzugt ist der NO_X-Reduktionskatalysator in einem Radialkorb angeordnet, welcher axial durchströmt wird.

[0383] Bevorzugt ist der NO_X-Reduktionskatalysator partikulär und umfasst mindestens 50 Partikel.

[0384] Bevorzugt ist das Reduktionsmittel in Schritt (e) ausgewählt aus NH_3, Kohlenwasserstoffen, CO, H_2 und deren Mischungen; bevorzugt NH_3.

[0385] Bevorzugt ist das Reduktionsmittel in Schritt (e) NH_3, welches in einer Menge von 0,9 bis 2,5 molaren Anteilen, bevorzugt 1,0 bis 1,4 molaren Anteilen, bevorzugter 1,0 bis 1,2 molaren Anteilen, eingesetzt wird, bezogen auf einen molaren Anteil an chemisch zu reduzierendem NO_X.

[0386] In bevorzugten Ausführungsformen ist das Reduktionsmittel in Schritt (d_2) das gleiche wie das Reduktionsmittel in Schritt (e); bevorzugt NH_3.

[0387] Neben NH_3 eignen sich in Schritten (d_2) und/oder (e) des erfindungsgemäßen Verfahrens grundsätzlich auch andere Stickstoff enthaltende Reduktionsmittel, beispielsweise Wasserstoffverbindungen des Stickstoffs, wie Azane, Hydroxylderivate von Azanen, sowie Amine, Oxime, Carbamate, Harnstoff oder Harnstoffderivate. Beispiele für Azane sind Hydrazin und ganz besonders Ammoniak. Beispiele für Hydroxylderivate von Azanen sind Hydroxylamin. Beispiele für Amine sind primäre aliphatische Amine, wie Methylamin. Ein Beispiel für Carbamate ist Ammoniumcarbamat. Beispiele für Harnstoffderivate sind N,N'-substituierte Harnstoffe, wie N,N'-Dimethylharnstoff. Harnstoffe und Harnstoffderivate werden vorzugsweise in Form von wässrigen Lösungen eingesetzt. Besonders bevorzugt wird Ammoniak oder Stoffe, die bei Einbringung Ammoniak freisetzen, wie Harnstoff oder Ammoniumcarbamat.

[0388] Besonders bevorzugte erfindungsgemäße Verfahrensführungen werden nachfolgend näher erläutert:

<u>$DeNO_X$-DeN_2O - Variante 1</u>

[0389] In bevorzugten Ausführungsformen umfasst die Abgasbehandlungsanlage eine erste Reaktionszone und eine dahinter angeordnete zweite Reaktionszone, welche vom Abgas nacheinander durchströmt werden;
wobei dem Abgas vor der ersten Reaktionszone Reduktionsmittel zugesetzt wird;
wobei zunächst in der ersten Reaktionszone der Gehalt an NO_X im Abgas durch chemische Reduktion von NO_X mit Reduktionsmittel an einem NO_X-Reduktionskatalysator vermindert wird (Schritt (e)), ($DeNO_X$-Stufe); wobei optional zusätzlich der Gehalt an N_2O im Abgas durch Zersetzung von N_2O an einem N_2O-Zersetzungskatalysator (Schritt (d_1)) und/oder durch chemische Reduktion von N_2O mit Reduktionsmittel an einem N_2O-Reduktionskatalysator (Schritt (d_2)) vermindert wird;
wobei optional dem Abgas vor der zweiten Reaktionszone weiteres Reduktionsmittel zugesetzt wird; und
wobei anschließend in der zweiten Reaktionszone der Gehalt an N_2O im Abgas durch Zersetzung von N_2O an einem N_2O-Zersetzungskatalysator (Schritt (d_1)) und/oder durch chemische Reduktion von N_2O mit Reduktionsmittel an einem N_2O-Reduktionskatalysator vermindert wird (Schritt (d_2)) (DeN_2O-Stufe); wobei optional zusätzlich der Gehalt an NO_X im Abgas durch chemische Reduktion von NO_X an einem NO_X-Reduktionskatalysator weiter vermindert wird (Schritt (e)).

[0390] Bevorzugt umfasst der NO_X-Reduktionskatalysator in der ersten Reaktionszone einen klassischen, vorzugsweise nicht zeolithischen SCR-Katalysator, z.B. auf Basis von V_2O_5-WO_3-/TiO_2.

[0391] Bevorzugt beträgt die Temperatur des Abgases beim Eintritt in die erste Reaktionszone höchstens 400°C, bevorzugt höchstens 350°C.

[0392] Bevorzugt umfasst der N_2O-Zersetzungskatalysator in der zweiten Reaktionszone ein zeolithisches Material; bevorzugt einen mit Übergangsmetall (einschließlich Lanthanid), insbesondere mit Eisen, Kobalt oder Kupfer beladenen Zeolith; bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith; noch bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith vom Strukturtyp MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder MEL.

[0393] Bevorzugt liegt die Temperatur des Abgases beim Eintritt in die zweite Reaktionszone im Bereich von 300 bis 550°C, bevorzugt 350 bis 500°C.

[0394] Bevorzugt weist das Abgas nach Verlassen der ersten Reaktionszone und vor Eintritt in die zweite Reaktionszone einen Gehalt an NO_X im Bereich von 0 bis 200 ppmv, bevorzugt 1 bis 200 ppmv, und einen Gehalt an N_2O im Bereich von 200 bis 2000 ppmv auf.

<u>$DeNO_X$-DeN_2O - Variante 2</u>

[0395] In anderen bevorzugten Ausführungsformen umfasst die Abgasbehandlungsanlage ebenfalls eine erste Reaktionszone und eine dahinter angeordnete zweite Reaktionszone, welche vom Abgas nacheinander durchströmt werden;
wobei dem Abgas vor der ersten Reaktionszone Reduktionsmittel zugesetzt wird;

wobei zunächst in der ersten Reaktionszone der Gehalt an NO_X im Abgas durch chemische Reduktion von NO_X mit Reduktionsmittel an einem NO_X-Reduktionskatalysator vermindert wird; (Schritt (e)) ($DeNO_X$-Stufe); wobei optional zusätzlich der Gehalt an N_2O im Abgas durch Zersetzung von N_2O an einem N_2O-Zersetzungskatalysator (Schritt (d_1)) und/oder durch chemische Reduktion von N_2O mit Reduktionsmittel an einem N_2O-Reduktionskatalysator (Schritt (d_2)) vermindert wird;
wobei optional dem Abgas vor der zweiten Reaktionszone weiteres Reduktionsmittel zugesetzt wird; und
wobei anschließend in der zweiten Reaktionszone der Gehalt an N_2O im Abgas durch Zersetzung von N_2O an einem N_2O-Zersetzungskatalysator (Schritt (d_1)) und/oder durch chemische Reduktion von N_2O mit Reduktionsmittel an einem N_2O-Reduktionskatalysator vermindert wird (Schritt (d_2)) (DeN_2O-Stufe); wobei optional zusätzlich der Gehalt an NO_X im Abgas durch chemische Reduktion von NO_X an einem NO_X-Reduktionskatalysator weiter vermindert wird (Schritt (e)).

[0396] Bevorzugt umfasst der NO_X-Reduktionskatalysator in der ersten Reaktionszone ein zeolithisches Material; bevorzugt einen mit Übergangsmetall (einschließlich Lanthanid), insbesondere mit Eisen, Kobalt oder Kupfer beladenen Zeolith; bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith; noch bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith vom Strukturtyp MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder MEL.

[0397] Bevorzugt beträgt die Temperatur des Abgases beim Eintritt in die erste Reaktionszone mindestens 300°C, bevorzugter mindestens 350°C, noch bevorzugter mindestens 400°C. Bevorzugt beträgt die Temperatur des Abgases beim Eintritt in die erste Reaktionszone höchstens 600°C, bevorzugter höchstens 550°C.

[0398] Bevorzugt umfasst der N_2O-Zersetzungskatalysator in der zweiten Reaktionszone einen NO_X-sensitiven N_2O-Zersetzungskatalysator im Sinne der Erfindung, welcher oben bereits näher beschrieben wurde.

[0399] Bevorzugt beträgt die Temperatur des Abgases beim Eintritt in die zweite Reaktionszone mindestens 300°C, bevorzugter mindestens 350°C, noch bevorzugter mindestens 400°C. Bevorzugt beträgt die Temperatur des Abgases beim Eintritt in die zweite Reaktionszone höchstens 600°C, bevorzugter höchstens 550°C.

[0400] Bevorzugt weist das Abgas nach Verlassen der ersten Reaktionszone und vor Eintritt in die zweite Reaktionszone einen Gehalt an NO_X von höchstens 20 ppmv, bevorzugter höchstens 10 ppmv, noch bevorzugter höchstens 5 ppmv und einen Gehalt an N_2O im Bereich von 200 bis 2000 ppmv auf.

Besonders bevorzugte Ausführungsformen von $DeNO_X$-DeN_2O - Variante 2

[0401] In besonders bevorzugten Ausführungsformen umfasst die erfindungsgemäße Abgasbehandlungsanlage ein erstes Katalysatorbett und ein räumlich davon getrenntes zweites Katalysatorbett; wobei das erste Katalysatorbett in Strömungsrichtung des Abgases stromaufwärts des zweiten Katalysatorbetts

angeordnet ist; wobei optional und bevorzugt stromaufwärts des ersten Katalysatorbetts eine erste Vorrichtung mit einem ersten Regelventil zum Zudosieren von NH_3 in das Abgas angeordnet ist; wobei stromabwärts des ersten Katalysatorbetts und stromaufwärts des zweiten Katalysatorbetts eine zweite Vorrichtung mit einem zweiten Regelventil zum Zudosieren von NH_3 in das Abgas angeordnet ist, mit der weiteres NH_3 in das Abgas zudosiert wird; wobei sowohl das erste Katalysatorbett als auch das zweite Katalysatorbett jeweils einen mit Eisen beladenen Zeolith-Katalysator enthalten; wobei (i) im ersten Katalysatorbett (d_1) N_2O zersetzt wird; und (e) NO_X unvollständig mit NH_3 chemisch reduziert wird, wobei optional und bevorzugt zumindest ein Teil des NH_3 aus einer unvollständigen Verbrennung von NH_3 in Schritt (a) stammt (NH_3-Schlupf); und (ii) im zweiten Katalysatorbett (d_2) restliches N_2O mit NH_3 chemisch reduziert und optional (d1*) restliches N_2O zersetzt wird; und (e*) restliches NO_X mit NH_3 chemisch reduziert wird.

[0402] Bevorzugt erfolgt im ersten Katalysatorbett die katalytische Zersetzung von N_2O co-katalysiert durch im Abgas vorhandenes NO_X.

[0403] Bevorzugt führt die unvollständige chemische Reduktion von NO_X mit NH_3 im ersten Katalysatorbett bis zu einem vorgegebenen Restgehalt an NO_X, welche ausreichend ist, um einen co-katalytischen Effekt auf die Zersetzung von N_2O im ersten Katalysatorbett zu bewirken. Da im ersten Katalysatorbett die chemische Reduktion von NO_X mit NH_3 typischerweise deutlich schneller als die chemische Reduktion von N_2O mit NH_3 verläuft und im ersten Katalysatorbett nicht die gesamte Menge an NO_X chemisch reduziert wird, ist das Ausmaß der ggf. parallel ablaufenden chemischen Reduktion von N_2O mit NH_3 im ersten Katalysatorbett typischerweise vernachlässigbar.

[0404] Bevorzugt wird über die erste Vorrichtung zusätzliches NH_3 zur NO_X-Reduktion in das Abgas zudosiert; bevorzugt unter *Feedback*-Regelung, d.h. es wird ein bestimmter Wert für die Konzentration an NO_X am Austritt des ersten Katalysatorbetts als Zielwert (Sollwert) vorgegeben und die tatsächliche Konzentration an NO_X am Austritt des ersten Katalysatorbetts gemessen (Istwert) und im Falle einer Differenz aus Sollwert und Istwert (Regeldifferenz) der Stellgrad des ersten Regelventils verändert, um die Differenz zu minimieren. Bevorzugt wird der Sollwert der NO_X-Konzentration am Austritt des ersten Katalysatorbetts und damit die Menge an zusätzlichem NH_3 so gewählt, dass die Restkonzentration an NO_X am Austritt des ersten Katalysatorbetts höchstens 1000 ppmv beträgt, bevorzugt höchstens 500 ppmv, bevorzugter höchstens 100 ppmv. Bevorzugt wird der Sollwert der NO_X-Konzentration am Austritt des ersten Katalysatorbetts und damit die Menge an zusätzlichem NH_3 so gewählt, dass die Restkonzentration an NO_X am Austritt des ersten Katalysatorbetts mindestens 10 ppmv beträgt, bevorzugt mindestens 20 ppmv, bevorzugter mindestens 40 ppmv. Der erwartete spezifische Verbrauch an NH_3 für die chemische Reduktion von NO_X im ersten Katalysatorbett liegt typischerweise im Bereich von 0,9 bis 1,1 mol NH_3 pro mol reduziertes NO_X und ist damit signifikant kleiner als der erwartete spezifische (mol/mol) Verbrauch an NH_3 im zweiten Katalysatorbett.

[0405] Bevorzugt liegt die Temperatur des Abgases am Austritt aus dem ersten Katalysatorbett im Bereich von 400 bis 550°C.

[0406] Bevorzugt weist das Abgas am Austritt aus dem ersten Katalysatorbett einen Druck auf, welcher größer Atmosphärendruck ist, d.h. ≥ 1,0 bara, jedoch höchstens 1,2 bara beträgt, bevorzugter höchstens 1,1 bara.

[0407] Bevorzugt weist das Abgas am Austritt aus dem ersten Katalysatorbett einen Oxidationsgrad von NO_X von mindestens 5,0% auf, bevorzugt mindestens 7,5%, bevorzugter mindestens 10%, noch bevorzugter mindestens 12,5%, am bevorzugtesten mindestens 15%, und insbesondere mindestens 17,5%.

[0408] In bevorzugten Ausführungsformen weist das Abgas am Austritt aus dem ersten Katalysatorbett einen Oxidationsgrad von NO_X im Bereich von 30 bis 50% auf.

[0409] In anderen bevorzugten Ausführungsformen weist das Abgas am Austritt aus dem ersten Katalysatorbett einen Oxidationsgrad von NO_X im Bereich von 15 bis 35% auf, bevorzugt 15 bis 30%.

[0410] In weiteren bevorzugten Ausführungsformen weist das Abgas am Austritt aus dem ersten Katalysatorbett einen Oxidationsgrad von NO_X im Bereich von 10 bis 20% auf.

[0411] In anderen bevorzugten Ausführungsformen weist das Abgas am Austritt aus dem ersten Katalysatorbett einen Oxidationsgrad von NO_X im Bereich von 5 bis 15% auf.

[0412] Bevorzugt wird im zweiten Katalysatorbett restliches N_2O bis zu einer Restkonzentration an N_2O am Austritt des zweiten Katalysatorbetts von höchstens 20 ppmv abgebaut, bevorzugter höchstens 10 ppmv, noch bevorzugter höchstens 5 ppmv, am bevorzugtesten höchstens 2 ppmv.

[0413] Bevorzugt wird im zweiten Katalysatorbett restliches NO_X bis zu einer Restkonzentration an NO_X am Austritt des zweiten Katalysatorbetts von höchstens 20 ppmv abgebaut, bevorzugter höchstens 10 ppmv, noch bevorzugter höchstens 5 ppmv, am bevorzugtesten höchstens 2 ppmv.

[0414] Bevorzugt wird das weitere NH_3 mit der zweiten Vorrichtung unter *Feedforward*-Regelung zudosiert, d.h. die Konzentrationen an NO_X und optional bevorzugt an N_2O jeweils am Austritt des ersten Katalysatorbetts oder optional jeweils am Eintritt in das zweite Katalysatorbett wird gemessen; unter Berücksichtigung der in das zweite Katalysatorbett eintretenden Menge an Abgas wird die zur NO_X-Reduktion und optional bevorzugt die Summe der zur NO_X-Reduktion und zur N_2O-Reduktion erforderliche Menge an NH_3 mit Hilfe von hinterlegten Verhältnissen, d.h. z.B. Stoffmengenverhältnissen (mol/mol) von NH_3/NO_X und optional bevorzugt von $NH_3//N_2O$ bzw. daraus abgeleiteten Faktoren berechnet; und mit dem berechneten Ergebnis (Stellgröße) wird der Stellgrad des zweiten Regelventils verändert, um die erforderliche Menge an NH_3 zuzudosieren.

[0415] Die molare NH_3-Konzentration [NH_3] des Abgases am Eintritt in das zweite Katalysatorbett liegt erfindungsgemäß bevorzugt im Bereich von der Summe aus 0,7 x [N_2O] und 1,0 x [NO_X] bis der Summe aus 4,0 x [N_2O] und 2,0 x [NO_X], bevorzugter im Bereich von der Summe aus 1,0 x [N_2O] und 1,1 x [NO_X] bis der Summe aus 3,0 x [N_2O] und 1,6 x [NO_X], noch bevorzugter im Bereich von der Summe aus 1,5 x [N_2O] und 1,2 x [NO_X] bis der Summe aus 2,5 x [N_2O] und 1,4 x [NO_X], wobei [N_2O] die molare Konzentration von N_2O und [NO_X] die molare Konzentration von NO_X jeweils im Abgases am Eintritt in das zweite Katalysatorbett sind.

[0416] Bevorzugt wird zur *Feedforward*-Regelung der NH_3-Dosierung in das zweite Katalysatorbett hinsichtlich der NO_X-Reduktion ein Stoffmengenverhältnis von NH_3/NO_X im Bereich von 1,0 bis 2,0; bevorzugt 1,1 bis 1,6; bevorzugter 1,2 bis 1,4 gewählt.

[0417] . Bevorzugt wird zur *Feedforward*-Regelung der NH_3-Dosierung in das zweite Katalysatorbett hinsichtlich der N_2O-Reduktion ein Stoffmengenverhältnis von NH_3/N_2O im Bereich von 0,7 bis 4,0; bevorzugt 1,0 bis 3,0; bevorzugter 1,5 bis 2,5 gewählt.

[0418] Bevorzugt wird das weitere NH_3 mit der zweiten Vorrichtung nicht unter *Feedback*-Regelung zudosiert, da eine möglichst vollständige chemische Reduktion von NO_X im zweiten Katalysatorbett angestrebt wird, d.h. keine oder nur sehr geringe Restkonzentrationen an NO_X und N_2O resultieren, welche als Führungsgrößen regelungstechnisch schlecht verwendbar wären.

[0419] Bevorzugt wird die Katalysatormenge, d.h. die Raumgeschwindigkeit (= Verhältnis aus Abgasvolumenstrom unter Normbedingungen zu Katalysatorvolumen) so gewählt, dass im ersten Katalysatorbett ein Abbau von N_2O von mindestens 50% erfolgt, bevorzugter mindestens 70%, noch bevorzugter mindestens 80%, bezogen auf die Konzentration an N_2O am Eintritt in das erste Katalysatorbett.

[0420] Bevorzugt werden die Katalysatormenge und die Menge an zusätzlichem NH_3 so gewählt, dass am Austritt des ersten Katalysatorbetts das molare Verhältnis von NO_X/N_2O mindestens 5 beträgt, bevorzugter mindestens 10, noch bevorzugter mindestens 20.

[0421] Bevorzugt liegt die Raumgeschwindigkeit des ersten Katalysatorbetts im Bereich von 5.000 h^{-1} bis 100.000 h^{-1}, bevorzugter 10.000 h^{-1} bis 50.000 h^{-1}, noch bevorzugter 15.000 h^{-1} bis 45.000 h^{-1}.

[0422] Beträgt das molare Verhältnis von NO_X/N_2O am Austritt des ersten Katalysatorbetts mindestens 10, dann kann die Zudosierung von NH_3 in das zweite Katalysatorbett über die zweite Vorrichtung bevorzugt alleinig in Relation zur Menge an eintretendem NO_X erfolgen.

[0423] Bevorzugt beträgt die Temperatur des Abgases bei Eintritt in das erste Katalysatorbett mindestens 400°C, bevorzugter mindestens 425°C, noch bevorzugter mindestens 450°C. Bevorzugt beträgt die Temperatur des Abgases bei Eintritt in das erste Katalysatorbett höchstens 550°C, bevorzugter höchstens 525°C, noch bevorzugter höchstens 500°C. Die Temperatur kann durch Maßnahmen eingestellt

werden, welche Fachleuten bekannt sind, insbesondere Auslegung von Wärmetauschern und Bedingungen der Verbrennung von NH_3.

[0424] Abhängig von der Wärmetönung der im ersten Katalysatorbett und im zweiten Katalysatorbett ablaufenden chemischen Reaktionen wird die Eintrittstemperatur des Abgases in das erste Katalysatorbett bevorzugt so gewählt, dass die Temperatur des Abgases am Austritt des zweiten Katalysatorbetts höchstens 600°C beträgt, bevorzugter höchstens 550°C, noch bevorzugter höchstens 520°C.

[0425] Bevorzugt liegt die Raumgeschwindigkeit des zweiten Katalysatorbetts im Bereich von 5.000 h^{-1} bis 100.000 h^{-1}, bevorzugter 10.000 h^{-1} bis 50.000 h^{-1}, noch bevorzugter 15.000 h^{-1} bis 45.000 h^{-1}.

[0426] Bevorzugt liegt das Verhältnis der Katalysatorvolumina ($V1_{kat}/V2_{kat}$) vom ersten Katalysatorbett $V1_{kat}$ zum zweiten Katalysatorbett $V2_{kat}$ im Bereich von 1/2 bis 20/1, bevorzugter 1/2 bis 10/1, noch bevorzugter 1/1 bis 4/1.

[0427] In bevorzugten Ausführungsformen sind mindestens eine, mehrere oder alle der nachfolgenden Bedingungen erfüllt:

- der Druck des Abgases bei Eintritt in das erste Katalysatorbett beträgt höchstens 5 bara, bevorzugter höchstens 4 bara, noch bevorzugter höchstens 1,3 bara, am bevorzugtesten höchstens 1,2 bara und insbesondere höchstens 1,1 bara;
- der Gehalt an H_2O im Abgas bei Eintritt in das erste Katalysatorbett beträgt mindestens 5 Vol.-%, bevorzugter mindestens 10 Vol.-%, noch bevorzugter mindestens 15 Vol.-%, am bevorzugtesten mindestens 20 Vol.-% und insbesondere mindestens 25 Vol.-%;
- der Gehalt an NO_X im Abgas bei Eintritt in das erste Katalysatorbett beträgt mindestens 500 ppmv, bevorzugter mindestens 1000 ppmv, noch bevorzugter mindestens 1500 ppmv, am bevorzugtesten mindestens 2000 ppmv, und insbesondere mindestens 2500 ppmv;
- der Gehalt an N_2O im Abgas bei Eintritt in das erste Katalysatorbett beträgt höchstens < 500 ppmv, bevorzugter höchstens 200 ppmv, noch bevorzugter höchstens 100 ppmv, jedoch mindestens 5 ppmv, bevorzugt mindestens 10 ppmv, bevorzugter mindestens 50 ppmv;
- das Abgas enthält bei Eintritt in das erste Katalysatorbett nicht verbrannte Reste an NH_3 aus der Verbrennung von NH_3;
- der N_2O-Zersetzungskatalysator und/oder der N_2O-Reduktionskatalysator liegt als Wabenkörper vor;
- der NO_X-Reduktionskatalysator liegt als Wabenkörper vor;
- das erste Katalysatorbett enthält Fe-Zeolith;
- das zweite Katalysatorbett enthält Fe-Zeolith;

- das Abgas durchströmt vor Eintritt in das erste Katalysatorbett einen Wärmetauscher und wird darin aufgeheizt;
- der Gehalt an NO_X am Austritt des ersten Katalysatorbetts beträgt höchstens 1000 ppmv, bevorzugter höchstens 500 ppmv, noch bevorzugter höchstens 300 ppmv, am bevorzugtesten höchstens 100 ppmv; jedoch bevorzugt mindestens 10 ppmv, bevorzugter mindestens 20 ppm, noch bevorzugter mindestens 40 ppmv, am bevorzugtesten mindestens 100 ppmv, und insbesondere mindestens 250 ppmv;
- der Gehalt an N_2O am Austritt des ersten Katalysatorbetts beträgt höchstens 20 ppmv, bevorzugter höchstens 15 ppmv, noch bevorzugter höchstens 10 ppmv, am bevorzugtesten höchstens 5 ppmv und insbesondere höchstens 2 ppmv;
- nach Verlassen des ersten Katalysatorbetts und bis zum Eintritt in das zweite Katalysatorbett erfolgt keine Zwischenkühlung des Abgases;
- das molare Verhältnis von N_2O : NO_X beim Eintritt in das erste Katalysatorbett beträgt höchstens 0,5, bevorzugter höchstens 0,2, noch bevorzugter höchstens 0,1;
- das molare Verhältnis von N_2O : NO_X am Austritt aus dem ersten Katalysatorbett beträgt höchstens 0,20, bevorzugter höchstens 0,1, noch bevorzugter höchstens 0,05;
- die Einspeisung von NH_3 in das Abgas in Strömungsrichtung des Abgases stromaufwärts des ersten Katalysatorbetts erfolgt optional; sofern eine Einspeisung erfolgt, ist diese bevorzugt unterstöchiometrisch im Hinblick auf den Gehalt an NO_X am Eintritt in das erste Katalysatorbett;
- die Einspeisung von NH_3 in das Abgas in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Katalysatorbetts und stromaufwärts des zweiten Katalysatorbetts erfolgt zwingend, bevorzugt überstöchiometrisch im Hinblick auf den Gesamtgehalt an NO_X und N_2O am Eintritt in das zweite Katalysatorbett.

[0428] Das vorstehend beschriebene Verfahren unter Verwendung von Fe-Zeolith-Katalysatoren in zwei Katalysatorbetten ermöglicht im Vergleich zu klassischen $DeNO_X$-Verfahren unter Verwendung von V_2O_5/TiO_2-Katalysatoren

- den vollständigen oder nahezu vollständigen Abbau großer Mengen an NO_X, ohne dass die Gefahr eines NH_3-Schlupfes besteht; sowie
- den gleichzeitigen, vollständigen oder nahezu vollständigen Abbau von N_2O

bei vergleichsweise geringen Katalysatorvolumina, d.h. bei vergleichsweise hohen Raumgeschwindigkeiten.

[0429] Erreicht wird dies neben der erfindungsgemäßen Betriebsweise durch die oxidativen Eigenschaften der erfindungsgemäß verwendeten Fe-Zeolith-Katalysatoren. So wird im ersten Katalysatorbett das molare Verhältnis von NO zu NO_2 erfindungsgemäß möglichst nahe an die thermodynamische

Gleichgewichtslage herangeführt. So beträgt der NO_X-Oxidationsgrad (molares Verhältnis von $NO_2/(NO + NO_2)$) vor Eintritt in das erste Katalysatorbett aufgrund der vorgelagerten NH_3-Verbrennung bei sehr hohen Temperaturen und der nur langsamen Einstellung des Gleichgewichtes in der Gasphase bei der Abkühlung des Abgases in dem oder den ggf. anschließenden Wärmetauschern erwartungsgemäß weniger als 5% und liegt damit deutlich unterhalb des für die Eintrittstemperatur in das erste Katalysatorbett gültigen thermodynamischen Gleichgewichts. Dies ist jedoch sehr unvorteilhaft für eine effiziente chemische Reduktion von NO_X, da dadurch nur ein geringer Teil des im Abgas vorhandenen NO_X entsprechend einer *fast SCR* abgebaut werden kann und ein Großteil des NO_X bzw. des verbleibenden NO gemäß der deutlich langsameren *normal SCR* abgebaut werden muss.

[0430] Durch die gewählte Betriebsweise der begrenzten NH_3-Dosierung im ersten Katalysatorbett und das Vermögen der Fe-Zeolith-Katalysatoren zur Oxidation von NO bzw. zur katalytischen Beschleunigung der Gleichgewichtseinstellung wird im ersten Katalysatorbett eine deutlich schnellere, d.h. effizientere chemische Reduktion von NO_X erreicht und gleichzeitig der maximal mögliche NO_X-Oxidationsgrad des austretenden restlichen NO_X eingestellt. Damit wird auch im zweiten Katalysatorbett eine effiziente chemische Reduktion von NO_X schon von Beginn an ermöglicht.

[0431] So wurde gefunden, dass große Mengen an NH_3, wie diese zur vollständigen chemischen Reduktion von hohen Konzentrationen an NO_X notwendig sind, ähnlich wie Wasser, die Einstellung des NO_X-Gleichgewichtes auf dem Fe-Zeolith-Katalysator inhibieren.

[0432] Außerdem wird die chemische Reduktion von NO_X als solche ebenfalls bei entsprechend hoher Dosierung von NH_3 durch NH_3 selbst inhibiert. Dies hat zur Folge, dass abhängig von Temperatur, Katalysatormenge und Gehalt an NO_X mit ansteigender Zugabe von NH_3 ab einer bestimmten Menge an NH_3 keine weitere Erhöhung des NO_X-Abbaus mehr stattfindet. Bei weiterer Erhöhung der NH_3-Zugabe kann dann u.U. sogar ein Rückgang des NO_X-Abbaus beobachtet werden bei gleichzeitig auftretendem NH_3-Schlupf.

[0433] Durch chemische Reduktion des NO_X zuvor im ersten Katalysatorbett wird die zur chemischen Reduktion von NO_X notwendige Menge an NH_3 im zweiten Katalysatorbett deutlich reduziert.

[0434] Auf diese Weise ist, zusammen mit der oben beschriebenen Einstellung bzw. permanenten Nachführung des NO_X-Gleichgewichtes, auch im zweiten Katalysatorbett eine sehr effiziente chemische Reduktion von NO_X selbst bei der erfindungsgemäßen überstöchiometrischen Dosierung von NH_3 möglich.

[0435] Dass dies zudem erfindungsgemäß ohne oder nur bei einem unbeachtlichen NH_3-Schlupf von bevorzugt höchstens 10 ppmv, bevorzugter höchstens 5 ppmv, noch bevorzugter höchstens 3 ppmv erfolgt, liegt ebenfalls in den oxidativen Eigenschaften der erfindungsgemäß verwendeten Fe-Zeolith-Katalysatoren begründet. Beträgt die Eintrittstemperatur des Abgases in das zweite Katalysatorbett bevorzugt mindestens 400°C, bevorzugter mindestens 425°C, noch bevorzugter mindestens 450°C, so

wird das in den erfindungsgemäßen Grenzen überschüssig dosierte NH_3 durch den vorhandenen Restsauerstoffgehalt des Abgases selektiv zu N_2 und H_2O oxidiert.

[0436] Alle diese Vorteile können bei Verwendung klassischer V_2O_5/TiO_2-basierter SCR-Katalysatoren, wie diese typischerweise auch zur Entstickung von Abgasen von Erdgas-befeuerten Reformern eingesetzt werden, in einfacher oder auch mehrstufiger Anordnung nicht realisiert werden. So können diese klassischen SCR-Katalysatoren aus Stabilitätsgründen typischerweise nicht bei Temperaturen oberhalb von 400°C betrieben werden, was die erreichbaren Reaktionsgeschwindigkeiten der Abbaureaktion begrenzt. Auch weisen klassische SCR-Katalysatoren nur eine sehr begrenzte Oxidationsaktivität auf, so dass weder eine Einstellung oder permanente Nachführung des NO_X-Gleichgewichtes möglich ist, noch ermöglichen diese Katalysatoren eine effektive und N_2-selektive Oxidation von überschüssig dosiertem NH_3. Vielmehr besteht dann sogar die Gefahr der unerwünschten Bildung von N_2O.

[0437] In einer erfindungsgemäß bevorzugten Variante der vorstehend beschriebenen Ausführungsformen enthalten das erste Katalysatorbett und das zweite Katalysatorbett den gleichen Katalysator. In bevorzugten Ausführungsformen entfällt die zweite Vorrichtung mit einem zweiten Regelventil zum Zudosieren von NH_3 in das Abgas, wobei bevorzugt die räumliche Trennung des ersten Katalysatorbetts vom zweiten Katalysatorbett entfällt - es liegt dann faktisch nur noch ein gemeinsames Katalysatorbett vor, wobei bevorzugt stromaufwärts dieses gemeinsamen Katalysatorbetts eine erste Vorrichtung mit einem ersten Regelventil zum Zudosieren von NH_3 in das Abgas angeordnet ist. Bevorzugt wird über die erste Vorrichtung zusätzliches NH_3 in das Abgas zudosiert; bevorzugt unter *Feedforward*-Regelung, d.h. die Konzentration an NO_X, N_2O und NH_3 im Abgas stromaufwärts des gemeinsamen Katalysatorbetts wird gemessen; unter Berücksichtigung der in das gemeinsame Katalysatorbett eintretenden Menge an Abgas wird die noch erforderliche zusätzliche Menge an NH_3 berechnet; und mit dem berechneten Ergebnis (Stellgröße) wird der Stellgrad des ersten Regelventils verändert, um die noch erforderliche Menge an zusätzlichem NH_3 zuzudosieren. Bevorzugt ist in solchen Ausführungsformen stromabwärts des gemeinsamen Katalysatorbetts ein NH_3-Oxidationskatalysator angeordnet, um möglichen NH_3-Schlupf abzubauen.

<u>Gleichzeitige Verfeuerung von NH_3 und CH_4 - Verminderung des Gehalts an Blausäure</u>

[0438] In bevorzugten Ausführungsformen erfolgt in Schritt (a) die Verbrennung eines Gemischs von CH_4 und NH_3 mit Luft und/oder Sauerstoff unter Erzeugung eines Abgases, welches neben NO_X und N_2O zusätzlich CO_2, CO und HCN enthält.

[0439] In diesen Fällen übernimmt das erste Katalysatorbett bevorzugt die zusätzliche Funktion der katalytischen Spaltung von HCN durch Hydrolyse mit im Abgas vorhandenen Wasser in die Produkte CO und NH_3 gemäß $HCN + H_2O \leftrightarrow CO + NH_3$. Die dabei gebildeten Produkte CO und NH_3 können

dann anschließend hinsichtlich NH_3 bevorzugt zur NO_X-Reduktion im ersten Katalysatorbett und hinsichtlich CO bevorzugt zur N_2O-Reduktion im zweiten Katalysatorbett als Reduktionsmittel zur Beseitigung von N_2O und NO_X im Abgas genutzt werden.

[0440] HCN ist wegen seiner Toxizität sowie seiner Langlebigkeit in der Atmosphäre und der Absorption im Infraroten als Schadstoff und Treibhausgas in seinem Gehalt im Abgas zu begrenzen bzw. zu eliminieren. Dass beim erfindungsgemäßen Abbau von HCN an Zeolith-Katalysatoren im ersten Katalysatorbett mit CO und NH_3 Spaltprodukte entstehen, welche sich als Reduktionsmittel für die weitere Abgasnachbehandlung von NO_X und N_2O im zweiten Katalysatorbett eignen, komplettiert die Einzigartigkeit der erfindungsgemäßen Abgasbehandlung an Zeolith-Katalysatoren. Klassische SCR-Katalysatoren auf Basis Vanadiumoxid zeigen nahezu keine Aktivität zur HCN-Hydrolyse und eignen sich daher nicht zur Beseitigung von HCN aus Abgasen. In diesem Fall müsste ein nachgeschalteter Oxidationskatalysator verwendet werden.

<u>DeN_2O-$DeNO_X$</u>

[0441] In weiteren bevorzugten Ausführungsformen umfasst die Abgasbehandlungsanlage eine erste Reaktionszone und eine dahinter angeordnete zweite Reaktionszone, welche vom Abgas nacheinander durchströmt werden;
wobei dem Abgas zwischen der ersten Reaktionszone und der zweiten Reaktionszone Reduktionsmittel zugesetzt wird;
wobei zunächst in der ersten Reaktionszone der Gehalt an N_2O im Abgas durch Zersetzung von N_2O an einem N_2O-Zersetzungskatalysator vermindert wird (Schritt (d_1)) (DeN_2O-Stufe); und
wobei anschließend in der zweiten Reaktionszone der Gehalt an NO_X im Abgas durch chemische Reduktion von NO_X mit Reduktionsmittel an einem NO_X-Reduktionskatalysator vermindert wird (Schritt (e)) ($DeNO_X$-Stufe); wobei optional zusätzlich der Gehalt an N_2O im Abgas durch weitere Zersetzung von N_2O an einem N_2O-Zersetzungskatalysator (Schritt (d_1)) und/oder durch chemische Reduktion von N_2O mit Reduktionsmittel an einem N_2O-Reduktionskatalysator (Schritt (d_2)) weiter vermindert wird.

[0442] Bevorzugt wird dem Abgas vor der ersten Reaktionszone kein Reduktionsmittel zugesetzt.

[0443] Eine solche Verfahrensführung ist erfindungsgemäß besonders bevorzugt. Sie ermöglicht es, zunächst ohne Verbrauch von Reduktionsmittel den relativen Gehalt von NO_X und N_2O einzustellen. Während der absolute Gehalt an NO_X in der ersten Reaktionszone praktisch unverändert bleibt, wird selektiv der Gehalt an N_2O im Abgas durch Zersetzung vermindert. Dies kann in einem Ausmaß erfolgen, wie es zur Einstellung des gewünschten relativen Gehalts von NO_X und N_2O erforderlich ist. Aus ökonomischen Gründen wird dazu die Menge des N_2O-Zersetzungskatalsators bevorzugt nicht so groß gewählt, dass eine quantitativ vollständige Verminderung des Gehalts an N_2O im Abgas durch Zersetzung erfolgt (0 ppmv), sondern es wird ein Kompromiss gefunden zwischen Abbaurate und Dimensionierung des N_2O-Zersetzungskatalysators.

[0444] In bevorzugten Ausführungsformen umfasst der N_2O-Zersetzungskatalysator in der ersten Reaktionszone ein zeolithisches Material; bevorzugt einen mit Übergangsmetall (einschließlich Lanthanid), insbesondere mit Eisen, Kobalt oder Kupfer beladenen Zeolith; bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith; noch bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith vom Strukturtyp MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder MEL.

[0445] In anderen bevorzugten Ausführungsformen umfasst der N_2O-Zersetzungskatalysator in der ersten Reaktionszone einen NO_X-sensitiven N_2O-Zersetzungskatalysator im Sinne der Erfindung, welcher bereits vorstehend beschrieben wurde.

[0446] In bevorzugten Ausführungsformen umfasst der NO_X-Reduktionskatalysator in der zweiten Reaktionszone ein zeolithisches Material; bevorzugt einen mit Übergangsmetall (einschließlich Lanthanid), insbesondere mit Eisen, Kobalt oder Kupfer beladenen Zeolith; bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith; noch bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith vom Strukturtyp MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder MEL.

[0447] Bevorzugt werden dabei die erste Reaktionszone sowie die zweite Reaktionszone auf unterschiedlichen Temperaturniveaus betrieben.

[0448] Bevorzugt umfasst

- der N_2O-Zerstezungskatalysator in der ersten Reaktionszone einen NO_X sensitiven N_2O-Zersetzungskatalysator; wobei die Temperatur des Abgases in der ersten Reaktionszone bevorzugt mindestens 450°C, bevorzugter mindestens 500°C, noch bevorzugter mindestens 550°C, am bevorzugtesten mindestens 600°C beträgt; und
- der NO_X-Reduktionskatalysator in der zweiten Reaktionszone ein zeolithisches Material; bevorzugt einen mit Übergangsmetall (einschließlich Lanthanid), insbesondere mit Eisen, Kobalt oder Kupfer beladenen Zeolith; bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith; noch bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith vom Strukturtyp MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder MEL; wobei die Temperatur des Abgases in der zweiten Reaktionszone bevorzugt höchstens 550°C, bevorzugter höchstens 500°C, noch bevorzugter höchstens 450°C, am bevorzugtesten höchstens 400°C beträgt; und wobei bevorzugt in der zweiten Reaktionszone neben der chemischen Reduktion von NO_X eine weitere Verminderung des (Rest-)Gehalts an N_2O erfolgt, durch Zersetzung und/oder chemische Reduktion.

[0449] Bevorzugt wird in der ersten Reaktionszone die Raumgeschwindigkeit so eingestellt, dass in der ersten Reaktionszone eine Verminderung des Gehalts an N_2O im Abgas um höchstens 95%, bevorzugt um höchstens 90%, bevorzugter um höchstens 85% erfolgt, bezogen auf den Gehalt an N_2O im Abgas beim Eintritt in die erste Reaktionszone.

[0450] In bevorzugten Ausführungsformen beträgt der Gehalt an N_2O im Abgas nach Verlassen der ersten Reaktionszone und vor Eintritt in die zweite Reaktionszone mindestens 20 ppmv, bevorzugter

mindestens 40 ppmv, noch bevorzugter mindestens 60 ppmv, am bevorzugtesten mindestens 80 ppmv und insbesondere mindestens 100 ppmv.

[0451] In bevorzugten Ausführungsformen beträgt der Gehalt an N_2O im Abgas nach Verlassen der ersten Reaktionszone und vor Eintritt in die zweite Reaktionszone höchstens 400 ppmv, bevorzugter höchstens 300 ppmv, noch bevorzugter höchstens 200 ppmv, am bevorzugtesten höchstens 100 ppmv und insbesondere höchstens 50 ppmv.

[0452] Bevorzugt wird in der zweiten Reaktionszone die Raumgeschwindigkeit so eingestellt, dass in der zweiten Reaktionszone eine weitere Verminderung des Gehalts an N_2O im Abgas um mindestens 30%, bevorzugt um mindestens 40%, bevorzugter um mindestens 50% erfolgt, bezogen auf den Gehalt an N_2O im Abgas beim Eintritt in die zweite Reaktionszone. Da in der zweiten Reaktionszone Reduktionsmittel anwesend ist, kann die weitere Verminderung des Gehalts an N_2O in der zweiten Reaktionszone sowohl durch Zersetzung an einem N_2O-Zersetzungskatalysator (Schritt (d_1)) als auch durch chemische Reduktion mit Reduktionsmittel an einem N_2O-Reduktionskatalysator (Schritt (d_2)) erfolgen.

[0453] Bevorzugt erfolgt in der zweiten Reaktionszone eine weitere Verminderung des Gehalts an N_2O im Abgas durch chemische Reduktion von N_2O mit Reduktionsmittel an einem N_2O-Reduktionskatalysator (Schritt (d_2)).

[0454] Zusätzlich erfolgt in der zweiten Reaktionszone eine Verminderung des Gehalts an NO_X durch chemische Reduktion mit Reduktionsmittel an einem NO_X-Reduktionskatalysator. Diese Verminderung hat typischerweise eine schnelle Kinetik und verläuft erfindungsgemäß bevorzugt praktisch quantitativ.

Schritt (f):

[0455] Im optionalen und bevorzugten Schritt (f) des erfindungsgemäßen Verfahrens erfolgt das Abkühlen des Abgases in mindestens einem Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist.

[0456] In bevorzugten Ausführungsformen ist ein einzelner Wärmetauscher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet, in dem das Abkühlen des Abgases erfolgt.

[0457] In anderen bevorzugten Ausführungsformen sind mindestens zwei Wärmetauscher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet, in denen nacheinander das Abkühlen des Abgases erfolgt (vgl. Abbildungen 2, 3 und 4).

[0458] In weiteren bevorzugten Ausführungsformen sind mindestens drei Wärmetauscher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet, in denen nacheinander das Abkühlen des Abgases erfolgt (vgl. Abbildung 5).

[0459] In anderen bevorzugten Ausführungsformen sind mindestens vier Wärmetauscher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet, in denen nacheinander das Abkühlen des Abgases erfolgt.

[0460] In weiteren bevorzugten Ausführungsformen sind mindestens fünf Wärmetauscher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet, in denen nacheinander das Abkühlen des Abgases erfolgt (vgl. Abbildung 6).

[0461] Das Abkühlen des Abgases in dem mindestens einen Wärmetauscher erfolgt durch Abgabe von Wärme aus dem Abgas an ein Wärmeträgermedium.

[0462] Als Wärmeträgermedium dient erfindungsgemäß bevorzugt ein Wärmeträgermedium ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Wasser, Wasserdampf, Verbrennungsluft, NH_3 und deren Kombinationen. Wasser bzw. Wasserdampf als Wärmeträgermedium ist besonders bevorzugt, u.a. aus Gründen der Sicherheit.

[0463] In bevorzugten Ausführungsformen erfolgt in Schritt (f) des erfindungsgemäßen Verfahrens das Abkühlen des Abgases in einem ersten Abgas/H_2O-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist. Das H_2O wird im ersten Abgas/H_2O-Wärmetauscher durch Aufnahme von Wärme aus dem Abgas erwärmt. Bevorzugt wird das erwärmte H_2O, welches flüssig und/oder als Wasserdampf vorliegen kann, zum Erwärmen von NH_3 eingesetzt. Bevorzugt ist dazu in Strömungsrichtung des H_2O stromabwärts des ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers ein H_2O/NH_3-Wärmetauscher angeordnet, in dem NH_3 durch Aufnahme von Wärme aus dem H_2O erwärmt wird (vgl. Abbildungen 2-6).

[0464] In bevorzugten Ausführungsformen erfolgt in Schritt (f) des erfindungsgemäßen Verfahrens das Abkühlen des Abgases in einem ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist. Die Verbrennungsluft wird im ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher durch Aufnahme von Wärme aus dem Abgas erwärmt. Bevorzugt wird die erwärmte Verbrennungsluft zum Verbrennen von NH_3 und H_2 in der Verbrennungseinrichtung eingesetzt, welche dazu in Strömungsrichtung der Verbrennungsluft stromabwärts des ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers angeordnet ist (vgl. Abbildungen 2-6).

[0465] In anderen bevorzugten Ausführungsformen erfolgt in Schritt (f) des erfindungsgemäßen Verfahrens das Abkühlen des Abgases

- in einem vorstehend beschriebenen ersten Abgas/H_2O-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist, sowie
- in einem vorstehend beschriebenen ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher ebenfalls in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist; bevorzugt stromabwärts des ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers (vgl. Abbildungen 2-6).

[0466] In weiteren bevorzugten Ausführungsformen erfolgt in Schritt (f) des erfindungsgemäßen Verfahrens das Abkühlen des Abgases

- in einem ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist, sowie
- in einem zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers angeordnet ist.

[0467] Die Verbrennungsluft wird im ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher und im zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher jeweils durch Aufnahme von Wärme aus dem Abgas erwärmt. Bevorzugt durchströmt das Abgas zunächst den ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher und danach den zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher. Bevorzugt durchströmt die Verbrennungsluft zunächst den zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher und danach den ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, weshalb der erste Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher in Strömungsrichtung des Verbrennungsgases bevorzugt stromabwärts des zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers angeordnet ist. Bevorzugt wird die erwärmte Verbrennungsluft zum Verbrennen von NH_3 und H_2 in der Verbrennungseinrichtung eingesetzt, welche dazu in Strömungsrichtung der Verbrennungsluft stromabwärts des ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers angeordnet ist (vgl. Abbildungen 5 und 6).

[0468] In anderen bevorzugten Ausführungsformen erfolgt in Schritt (f) des erfindungsgemäßen Verfahrens das Abkühlen des Abgases

- in einem vorstehend beschriebenen ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist,
- in einem vorstehend beschriebenen ersten Abgas/H_2O-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers angeordnet ist, sowie
- in einem vorstehend beschriebenen zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers angeordnet ist (vgl. Abbildungen 4-6).

[0469] Das Abgas durchströmt dann bevorzugt zunächst den ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, danach den ersten Abgas/H_2O-Wärmetauscher, und anschließend den zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher.

[0470] In bevorzugten Ausführungsformen erfolgt in Schritt (f) des erfindungsgemäßen Verfahrens das Abkühlen des Abgases in mindestens einem Abgas/Verbrennungsgas-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist, bevorzugt stromabwärts des vorstehend beschriebenen ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers, des vorstehend beschriebenen ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers, und/oder des vorstehend beschriebenen

zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers. Das Verbrennungsgas wird im Abgas/Verbrennungsgas-Wärmetauscher durch Aufnahme von Wärme aus dem Abgas erwärmt. Bevorzugt wird das erwärmte Verbrennungsgas zum Verbrennen in der Verbrennungseinrichtung eingesetzt, welche dazu in Strömungsrichtung des Verbrennungsgases stromabwärts des Abgas/Verbrennungsgas-Wärmetauschers angeordnet ist (vgl. Abbildung 6).

[0471] In bevorzugten Ausführungsformen erfolgt in Schritt (f) des erfindungsgemäßen Verfahrens das Abkühlen des Abgases in mindestens einem zweiten Abgas/H_2O-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist, bevorzugt stromabwärts des vorstehend beschriebenen ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers, des vorstehend beschriebenen ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers, und/oder des vorstehend beschriebenen zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers. Das H_2O wird im zweiten Abgas/H_2O-Wärmetauscher durch Aufnahme von Wärme aus dem Abgas erwärmt (vgl. Abbildung 6).

[0472] In anderen bevorzugten Ausführungsformen erfolgt in Schritt (f) des erfindungsgemäßen Verfahrens das Abkühlen des Abgases

- in einem vorstehend beschriebenen ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist,
- in einem vorstehend beschriebenen ersten Abgas/H_2O-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers angeordnet ist,
- in einem vorstehend beschriebenen zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers angeordnet ist, sowie
- in einem vorstehend beschriebenen Abgas/Verbrennungsgas-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers angeordnet ist (vgl. Abbildung 6).

[0473] In weiteren bevorzugten Ausführungsformen erfolgt in Schritt (f) des erfindungsgemäßen Verfahrens das Abkühlen des Abgases

- in einem vorstehend beschriebenen ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist,
- in einem vorstehend beschriebenen ersten Abgas/H_2O-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers angeordnet ist,
- in einem vorstehend beschriebenen zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers angeordnet ist, sowie
- in einem vorstehend beschriebenen zweiten Abgas/H_2O-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers angeordnet ist (vgl. Abbildung 6).

[0474] In anderen bevorzugten Ausführungsformen erfolgt in Schritt (f) des erfindungsgemäßen Verfahrens das Abkühlen des Abgases

- in einem vorstehend beschriebenen ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist,
- in einem vorstehend beschriebenen ersten Abgas/H_2O-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers angeordnet ist,
- in einem vorstehend beschriebenen zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers angeordnet ist,
- in einem vorstehend beschriebenen Abgas/Verbrennungsgas-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers angeordnet ist, sowie
- in einem vorstehend beschriebenen zweiten Abgas/H_2O-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des Abgas/Verbrennungsgas-Wärmetauschers angeordnet ist (vgl. Abbildung 6).

[0475] Hohe Abgastemperaturen führen durch die Einstellung hoher Wandtemperaturen zumindest an den in Strömungsrichtung des Abgases stromaufwärts gelegenen Wärmetauschern im Abgaskanal zu erheblicher Beanspruchung des verwendeten Materials, was zu reduzierter Lebensdauer oder dem Wechsel zu einem komplexeren und kostenintensiveren Werkstoff führen kann. Daher ist ein Faktor bei der Betrachtung der Effektivität einer Konfiguration des Abgaskanals die Eintrittstemperatur des Abgases in den Kanal. Die Vorwärmung des NH_3 muss auf eine durch die Anforderungen des Prozesses festgelegte Temperatur erfolgen. Dagegen stellt beispielsweise die Temperatur der Vorwärmung der Verbrennungsluft einen Freiheitsgrad im Design dar, da sie außer einer effizienten Energieintegration keinen direkten Anforderungen unterworfen ist. Die Eintrittstemperatur des Abgases in den Abgaskanal ist daher nach unten begrenzt durch die aufgrund der Anforderungen des Prozesses aufgegebenen Vorwärmtemperaturen in den analog einem Primärreformer ausgebildeten Rohrreaktor oder eventueller Vorreaktoren (bevorzugt adiabater Festbettreaktoren).

[0476] Heterogene Katalysatoren erreichen bei höheren Temperaturen durch die Beschleunigung von Diffusion und Kinetik höhere Reaktionsgeschwindigkeiten. Sie sind jedoch oft durch ihre sinkende Stabilität gegen Deaktivierung bei hohen Temperaturen in ihrem Betrieb begrenzt. Für die Abgasbehandlungsanlage gibt es daher ein optimales Betriebsfenster, in dem sie hohe Reaktionsgeschwindigkeiten erreicht, die sich wiederum in hohen zulässigen Raumgeschwindigkeiten des zugeführten Gases äußert, was wiederum das erforderliche Katalysatorvolumen reduziert. Dieses Fenster liegt jedoch unterhalb des Bereiches, in dem der Betrieb zu einer Deaktivierung und zum Verlust katalytischer Effektivität führt. Ein weitere Kriterium für die Bewertung einer effizienten Energieintegration ist es daher, ob die Eintrittstemperatur des Abgases in die Abgasbehandlungsanlage innerhalb dieses optimalen Fensters liegt.

[0477] Der dritte Faktor zur Bewertung der Effektivität einer Konfiguration des Abgaskanals ist die Eintrittstemperatur des Abgases in den Kamin. Gemeinsam mit dem Massenstrom des Abgases bestimmt sie den Verlust an Energie über den Strom verglichen mit dem theoretischen Optimum, erreicht beim Taupunkt von Wasser zuzüglich des erforderlichen Sicherheitsabstands von 25 K.

[0478] Die Ausbeute an H_2 sollte möglichst hoch sein, um die Wirtschaftlichkeit des Betriebs der Anlage zu steigern. Eine hohe Ausbeute ist typischerweise direkt verbunden mit einer niedrigen Eintrittstemperatur des Abgases in den Kamin. Kann dieses Ziel aber nicht erreicht werden, ohne die erforderliche Eintrittstemperatur des Abgases in den Kamin zu minimieren, oder eine geeignete Eintrittstemperatur für die Abgasbehandlungsanlage zu bieten, ist das gewählte Design des Abgaskanals wenig erfolgreich.

Regelung

[0479] Ungeachtet der jeweiligen Verfahrensführung wird das erfindungsgemäße Verfahren bevorzugt geregelt.

[0480] In bevorzugten Ausführungsformen wird je nach Konstruktionsweise der Feuerungsanlage, bevorzugt der Verbrennungseinrichtung für die Regelung des erfindungsgemäßen Verfahrens als erste Messgröße mindestens ein Parameter gemessen, welcher für den aktuellen Betriebszustand der Feuerungsanlage, bevorzugt der Verbrennungseinrichtung charakteristisch ist. Bevorzugt ist diese erste Messgröße bzw. der Parameter ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Verbrennungstemperatur und NH_3-Verbrauch der Feuerungsanlage, bevorzugt der Verbrennungseinrichtung.

[0481] Je nach der Beschaffenheit des Abgases, welches die Feuerungsanlage, bevorzugt die Verbrennungseinrichtung verlässt, insbesondere

- Gehalt an NO_X im Abgas;
- Oxidationsgrad des NO_X im Abgas;
- Gehalt an N_2O im Abgas;
- Gehalt anderer Bestandteile im Abgas, wie z.B. H_2O, O_2, und N_2;
- Temperatur des Abgases;
- Druck des Abgases; und
- Volumenstrom des Abgases;

können die Verfahrensbedingungen optimiert werden, um eine effiziente und wirtschaftliche Verminderung des Gehalts an NO_X und N_2O im Abgas zu bewirken.

[0482] In bevorzugten Ausführungsformen wird daher für die Regelung des erfindungsgemäßen Verfahrens am Austritt aus der Feuerungsanlage, bevorzugt der Verbrennungseinrichtung; und/oder am Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage als zweite Messgröße, entweder in Ergänzung zur ersten Messgröße oder anstelle der ersten Messgröße, mindestens ein Parameter gemessen, welcher für den aktuellen Zustand des Abgases vor Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage charakteristisch ist. Bevorzugt ist diese

zweite Messgröße bzw. der Parameter ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Gehalt an NO_X im Abgas; Oxidationsgrad des NO_X im Abgas; Gehalt an N_2O im Abgas; Gehalt anderer Bestandteile im Abgas, wie z.B. H_2O, O_2, und N_2; Temperatur des Abgases; Druck des Abgases; und Volumenstrom des Abgases.

[0483] In bevorzugten Ausführungsformen wird für die Regelung des erfindungsgemäßen Verfahrens am Ausgang der Abgasbehandlungsanalage als dritte Messgröße, entweder in Ergänzung zur ersten Messgröße oder anstelle der ersten Messgröße, sowie entweder in Ergänzung zur zweiten Messgröße oder anstelle der zweiten Messgröße, mindestens ein Parameter gemessen, welcher für den aktuellen Zustand des Abgases am Ausgang der Abgasbehandlungsanlage charakteristisch ist. Bevorzugt ist diese dritte Messgröße bzw. der Parameter ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Gehalt an NO_X im Abgas; Oxidationsgrad des NO_X im Abgas; Gehalt an N_2O im Abgas; Gehalt anderer Bestandteile im Abgas, wie z.B. H_2O, O_2, und N_2; Temperatur des Abgases; Druck des Abgases; und Volumenstrom des Abgases.

[0484] In bevorzugten Ausführungsformen, insbesondere wenn die Abgasbehandlungsanlage eine erste Reaktionszone sowie eine zweite Reaktionszone umfasst, welche nacheinander von dem Abgas durchströmt werden, wobei Reduktionsmittel zwischen der ersten Reaktionszone und der zweiten Reaktionszone eingespeist wird, wird für die Regelung des erfindungsgemäßen Verfahrens am Austritt aus der ersten Reaktionszone und vor dem Eintritt in die zweiten Reaktionszone als vierte Messgröße, entweder in Ergänzung zur ersten Messgröße oder anstelle der ersten Messgröße, sowie entweder in Ergänzung zur zweiten Messgröße oder anstelle der zweiten Messgröße, sowie entweder in Ergänzung zur dritten Messgröße oder anstelle der dritten Messgröße, mindestens ein Parameter gemessen, welcher für den aktuellen Zustand des Abgases nach Verlassen der ersten Reaktionszone und vor Eintritt in die zweite Reaktionszone charakteristisch ist. Bevorzugt ist diese vierte Messgröße bzw. der Parameter ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Gehalt an NO_X im Abgas; Oxidationsgrad des NO_X im Abgas; Gehalt an N_2O im Abgas; Gehalt anderer Bestandteile im Abgas, wie z.B. H_2O, O_2, und N_2; Temperatur des Abgases; Druck des Abgases; und Volumenstrom des Abgases.

[0485] In Abhängigkeit von der ersten Messgröße und/oder zweiten Messgröße und/oder der dritten Messgröße und/oder der vierten Messgröße wird zur Regelung bzw. Steuerung des erfindungsgemäßen Verfahrens bevorzugt mindestens eine Stellgröße verändert. Bevorzugt erfolgt daher die Regelung bzw. Steuerung des Verfahrens anhand der ersten Messgröße und/oder anhand der zweiten Messgröße und/oder anhand der dritten Messgröße und/oder anhand der vierten Messgröße durch gezielte Veränderung der Stellgröße (Steuergröße), bevorzugt durch gezielte Veränderung der zudosierten Menge an Reduktionsmittel.

[0486] Im Hinblick auf bevorzugte Stellgrößen ist zu unterscheiden zwischen

- Verfahrensbedingungen, welche nicht oder nur mit größerem apparativen Aufwand kurzfristig verändert werden können, und

- Verfahrensbedingungen, welche kurzfristig verändert werden können und sich daher zur Regelung des Verfahrens besser eignen.

[0487] Erfindungsgemäß bevorzugt sind
- die Dimensionierung der Abgasbehandlungsvorrichtung;
- die Art, Menge und Durchströmungsrichtung des N_2O-Zersetzungskatalysators und/oder N_2O-Reduktionskatalysators;
- die Art, Menge und Durchströmungsrichtung des NO_X-Reduktionskatalysators;
- die Art des Reduktionsmittels;
- der Druck des Abgases;
- die Position der Einspeisung von Reduktionsmittel; und
- die Anordnung der ersten Reaktionszone und zweiten Reaktionszone relativ zueinander

keine Stellgrößen, d.h. diese Parameter bleiben während der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens bevorzugt konstant.

[0488] Diese Parameter können jedoch bei der Planung und Auslegung der Abgasbehandlungsanlage so gewählt bzw. eingestellt werden, dass eine Regelung des erfindungsgemäßen Verfahrens in weiten Grenzen möglich ist. So kann auch auf kurzfristige Veränderungen, etwa im Hinblick auf das zu behandelnde Abgas, reagiert werden. Eine effiziente und wirtschaftliche Verminderung des Gehalts an NO_X und N_2O im Abgas bleibt gewährleistet, ohne dass es zu unerwünschtem Durchbruch von Reduktionsmittel kommt (sog. Schlupf).

[0489] Erfindungsgemäß bevorzugte Stellgrößen (Steuergrößen) sind:
- die Menge an Reduktionsmittel;
- ggf. die Temperatur des Abgases; und
- ggf. die Temperatur der Katalysatoren.

[0490] Bevorzugt verlässt das Abgas die Abgasbehandlungsanlage und weist dabei einen Restgehalt an NO_X von höchstens 20 ppmv auf, bevorzugt höchstens 15 ppmv, bevorzugter höchstens 10 ppmv, noch bevorzugter höchstens 7,5 ppmv, am bevorzugtesten höchstens 5,0 ppmv, und insbesondere höchstens 2,5 ppmv.

[0491] Bevorzugt verlässt das Abgas die Abgasbehandlungsanlage und weist dabei einen Restgehalt an N_2O von höchstens 20 ppmv auf, bevorzugt höchstens 15 ppmv, bevorzugter höchstens 10 ppmv, noch bevorzugter höchstens 7,5 ppmv, am bevorzugtesten höchstens 5,0 ppmv, und insbesondere höchstens 2,5 ppmv.

[0492] Ein weiterer Aspekt der Erfindung betrifft eine Vorrichtung umfassend

(i) eine mit NH_3 Feuerungsanlage, bevorzugt umfassend eine Verbrennungseinrichtung zum Verbrennen von NH_3 und eine NH_3-Zersetzungseinrichtung zum Spalten von NH_3 in N_2 und H_2, und

(ii) eine Abgasbehandlungsanlage;

wobei die Vorrichtung konfiguriert ist zur Durchführung des vorstehend beschriebenen erfindungsgemäßen Verfahrens.

[0493] Die erfindungsgemäße Vorrichtung ist bevorzugt ein Anlagenkomplex zur Erzeugung von reinem Wasserstoff umfassend

- eine (oder mehrere) NH_3-Zersetzungseinrichtung(en) zur katalytischen Zersetzung von NH_3 in N_2 und H_2, bevorzugt einen mit Katalysator befüllter Reaktor;
- eine Verbrennungseinrichtung zur direkten oder indirekten Beheizung der NH_3-Zersetzungseinrichtung(en), bevorzugt umfassend einen Verbrennungsraum und mindestens einen Brenner zur Verbrennung eines Brennstoffs mit (Luft-)Sauerstoff, wobei der Brennstoff NH_3 enthält oder im wesentlichen daraus besteht;
- eine Einrichtung zur Aufreinigung eines Produktstromes der NH_3-Zersetzungseinrichtung, bevorzugt durch PSA;
- eine Abgasbehandlungsanlage zur Reinigung der Abgase der Verbrennungseinrichtung umfassend ein oder mehrere Katalysatorbetten zur Reduktion von NO_X, optional zur N_2O-Reduktion und/oder N_2O-Zersetzung, und bevorzugt zur Oxidation von nicht umsetzen Reduktionsmittel und/oder deren nicht vollständig oxidierten Reaktionsprodukten (bevorzugt ein nachgeschaltetes Katalysatorbett mit NH_3-Oxidationskatalysator).

[0494] Bevorzugte Ausführungsformen der Erfindung werden nachfolgend als Sätze zusammengefasst:

Satz 1: Ein Verfahren zur Verminderung des Gehalts an NO_X und N_2O im Abgas einer mit NH_3 betriebenen Feuerungsanlage, wobei das Verfahren folgende Schritte umfasst: (a) Verbrennen von NH_3 zum Betrieb der Feuerungsanlage, bevorzugt eines Ofens, bevorzugt umfassend Verbrennungseinrichtung und NH_3-Zersetzungseinrichtung, zum katalytischen Zersetzen von NH_3 in N_2 und H_2, unter Erzeugung eines Abgases, welches N_2, H_2O, NO_X und N_2O umfasst und welches die Feuerungsanlage verlässt; (b) optional und bevorzugt Abkühlen des Abgases in mindestens einem Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Feuerungsanlage angeordnet ist; (c) Überführen des optional abgekühlten Abgases in eine Abgasbehandlungsanlage; (d) Vermindern des Gehalts an N_2O im Abgas durch (d_1) Zersetzung von N_2O an einem N_2O-Zersetzungskatalysator und/oder (d_2) chemische Reduktion von N_2O mit Reduktionsmittel an einem N_2O-Reduktionskatalysator; (e) Vermindern des Gehalts an NO_X im Abgas durch chemische Reduktion von NO_X mit Reduktionsmittel an einem NO_X-Reduktionskatalysator; und (f) optional und bevorzugt Abkühlen des Abgases in mindestens einem Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist.

Satz 2: Das Verfahren nach Satz 1, zur Verminderung des Gehalts an NO_X und N_2O im Abgas einer mit NH_3 und H_2 betriebenen Feuerungsanlage, welche in eine Anlage zur katalytischen Zersetzung von

NH_3 zu N_2 und H_2 integriert ist, wobei das Verfahren folgende Schritte umfasst: (a) Verbrennen von NH_3 und H_2 zum Betrieb der Feuerungsanlage (bevorzugt in einer Verbrennungseinrichtung) unter Erzeugung eines Abgases, welches N_2, H_2O, NO_X und N_2O umfasst und die Feuerungsanlage verlässt; (b) optional und bevorzugt Abkühlen des Abgases in mindestens einem Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Feuerungsanlage angeordnet ist; (c) Überführen des optional abgekühlten Abgases in eine Abgasbehandlungsanlage, welche in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Feuerungsanlage und ggf. des mindestens einen Wärmetauschers angeordnet ist; (d) Vermindern des Gehalts an N_2O im Abgas durch (d_1) Zersetzung von N_2O an einem N_2O-Zersetzungskatalysator und/oder (d_2) chemische Reduktion von N_2O mit Reduktionsmittel an einem N_2O-Reduktionskatalysator; (e) Vermindern des Gehalts an NO_X im Abgas durch chemische Reduktion von NO_X mit Reduktionsmittel an einem NO_X-Reduktionskatalysator; und (f) optional und bevorzugt Abkühlen des Abgases in mindestens einem Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist.

Satz 3: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Feuerungsanlage ein einzelner Wärmetauscher angeordnet ist, in dem das Abkühlen des Abgases erfolgt.

Satz 4: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Feuerungsanlage mindestens zwei Wärmetauscher angeordnet sind, in denen nacheinander das Abkühlen des Abgases erfolgt.

Satz 5: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Feuerungsanlage mindestens drei Wärmetauscher angeordnet sind, in denen nacheinander das Abkühlen des Abgases erfolgt.

Satz 6: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei in Schritt (b) das Abkühlen des Abgases in dem mindestens einen Wärmetauscher durch Abgabe von Wärme aus dem Abgas an ein Wärmeträgermedium erfolgt, wobei als Wärmeträgermedium bevorzugt NH_3 dient, welches dann anschließend der katalytischen Zersetzung in einer NH_3-Zersetzungseinrichtung an einem NH_3-Zersetzungskatalysator zugeführt wird.

Satz 7: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei in Schritt (b) das Abkühlen des Abgases in mindestens einem ersten Abgas/NH_3-Wärmetauscher erfolgt, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Feuerungsanlage angeordnet ist.

Satz 8: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei in Schritt (b) das Abkühlen des Abgases erfolgt - in einem ersten Abgas/NH_3-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Feuerungsanlage angeordnet ist, sowie - in einem zweiten Abgas/NH_3-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/NH_3-Wärmetauschers angeordnet ist.

Satz 9: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei in Schritt (b) das Abkühlen des Abgases erfolgt - in einem ersten Abgas/NH_3-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Feuerungsanlage angeordnet ist, - in einem zweiten Abgas/NH_3-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/NH_3-Wärmetauschers angeordnet ist, sowie - in einem dritten Abgas/NH_3-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des zweiten Abgas/NH_3-Wärmetauschers angeordnet ist.

Satz 10: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas in Schritt (b) auf eine Temperatur T_2 abgekühlt wird im Bereich von 400 bis 450°C, bevorzugter 400 bis 420°C.

Satz 11: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei der N_2O-Zersetzungskatalysator und/oder der N_2O-Reduktionskatalysator und/oder der NO_X-Reduktionskatalysator unabhängig voneinander ein zeolithisches Material umfasst; bevorzugt einen mit Übergangsmetall (einschließlich Lanthanid), insbesondere mit Eisen, Kobalt oder Kupfer beladenen Zeolith; bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith; noch bevorzugter unabhängig voneinander einen mit Eisen beladenen Zeolith vom Typ MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder MEL.

Satz 12: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei der N_2O-Zersetzungskatalysator und der N_2O-Reduktionskatalysator aus dem gleichen Material sind.

Satz 13: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei der N_2O-Zersetzungskatalysator und der NO_X-Reduktionskatalysator aus dem gleichen Material sind.

Satz 14: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei der N_2O-Reduktionskatalysator und der NO_X-Reduktionskatalysator aus dem gleichen Material sind.

Satz 15: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei der N_2O-Zersetzungskatalysator, der N_2O-Reduktionskatalysator und der NO_X-Reduktionskatalysator aus dem gleichen Material sind.

Satz 16: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei in Schritt (a) die Verbrennung von NH_3 nicht an einem Katalysator erfolgt.

Satz 17: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei der Anteil von H_2 im Gemisch mit NH_3 höchstens 80 Mol.-%, bevorzugter höchstens 70 Mol.-%, noch bevorzugter höchstens 60 Mol.-%, am bevorzugtesten höchstens 50 Mol.-%, und insbesondere höchstens 40 Mol.-% beträgt.

Satz 18: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei der Anteil von H_2 im Gemisch mit NH_3 mindestens 10 Mol.-%, bevorzugter mindestens 20 Mol.-%, noch bevorzugter mindestens 30 Mol.-%, am bevorzugtesten mindestens 40 Mol.-%, und insbesondere mindestens 50 Mol.-% beträgt.

Satz 19: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das molare Verhältnis von H_2 : NH_3 im Gemisch im Bereich von 45:55 bis 90:10, bevorzugt 50:50 bis 85:15, bevorzugter 55:45 bis 80:20, noch bevorzugter 60:40 bis 75:25, am bevorzugtesten 65:35 bis 70:30 liegt.

Satz 20: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei die Luftzahl λ im Bereich von 0,9 bis 1,7, bevorzugter 1,0 bis 1,6, noch bevorzugter 1,1 bis 1,5, am bevorzugtesten 1,2 bis 1,4 liegt.

Satz 21: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei die Feuerungsanlage, bevorzugt der Ofen (bevorzugt umfassend Verbrennungseinrichtung und NH_3-Zersetzungseinrichtung), in eine Anlage zur thermischen und/oder katalytischen Zersetzung von NH_3 in N_2 und H_2 integriert ist.

Satz 22: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas einen Gehalt an NO_X aufweist, welcher größer ist als der Gehalt an N_2O; bevorzugt wobei der Gehalt an NO_X mindestens doppelt so groß, bevorzugter mindestens dreimal so groß, noch bevorzugter mindestens viermal so groß, am bevorzugtesten mindestens siebenmal so groß und insbesondere mindestens zehnmal so groß ist wie der Gehalt an N_2O.

Satz 23: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas einen Gehalt an NO aufweist, welcher größer ist als der Gehalt an N_2O; bevorzugt wobei der Gehalt an NO mindestens doppelt so groß, bevorzugter mindestens dreimal so groß, noch bevorzugter mindestens viermal so groß, am bevorzugtesten mindestens siebenmal so groß und insbesondere mindestens zehnmal so groß ist wie der Gehalt an N_2O.

Satz 24: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas einen Gehalt an NO_2 aufweist, welcher größer ist als der Gehalt an N_2O; bevorzugt wobei der Gehalt an NO_2 mindestens doppelt so groß, bevorzugter mindestens dreimal so groß, noch bevorzugter mindestens viermal so groß, am bevorzugtesten mindestens siebenmal so groß und insbesondere mindestens zehnmal so groß ist wie der Gehalt an N_2O.

Satz 25: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas einen Gehalt an N_2O aufweist, welcher größer ist als der Gehalt an NO_X; bevorzugt wobei der Gehalt an N_2O mindestens doppelt so groß, bevorzugter mindestens dreimal so groß, noch bevorzugter mindestens viermal so groß, am bevorzugtesten mindestens siebenmal so groß und insbesondere mindestens zehnmal so groß ist wie der Gehalt an NO_X.

Satz 26: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas einen Gehalt an N_2O aufweist, welcher größer ist als der Gehalt an NO; bevorzugt wobei der Gehalt an N_2O mindestens doppelt so groß, bevorzugter mindestens dreimal so groß, noch bevorzugter mindestens viermal so groß, am bevorzugtesten mindestens siebenmal so groß und insbesondere mindestens zehnmal so groß ist wie der Gehalt an NO.

Satz 27: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas einen Gehalt an N_2O aufweist, welcher größer ist als der Gehalt an NO_2; bevorzugt wobei der Gehalt an N_2O mindestens doppelt so groß, bevorzugter mindestens dreimal so groß, noch bevorzugter mindestens viermal so groß, am bevorzugtesten mindestens siebenmal so groß und insbesondere mindestens zehnmal so groß ist wie der Gehalt an NO_2.

Satz 28: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas einen Gehalt an NO_X von mindestens 10 ppmv, bevorzugt mindestens 20 ppmv, bevorzugter mindestens 30 ppmv, noch bevorzugter mindestens 40 ppmv, und insbesondere mindestens 50 ppmv aufweist.

Satz 29: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas einen Gehalt an NO_X von mindestens 75 ppmv, bevorzugt mindestens 100 ppmv, bevorzugter mindestens 150 ppmv, noch bevorzugter mindestens 200 ppmv, und insbesondere mindestens 250 ppmv aufweist.

Satz 30: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas einen Gehalt an NO_X von mindestens 500 ppmv, bevorzugt mindestens 1000 ppmv, bevorzugter mindestens 2000 ppmv, noch bevorzugter mindestens 3000 ppmv, und insbesondere mindestens 3500 ppmv aufweist.

Satz 31: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas einen Gehalt an N_2O von mindestens 10 ppmv, bevorzugt mindestens 20 ppmv, bevorzugter mindestens 30 ppmv, noch bevorzugter mindestens 40 ppmv, und insbesondere mindestens 50 ppmv aufweist.

Satz 32: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas einen Gehalt an N_2O von mindestens 75 ppmv, bevorzugt mindestens 100 ppmv, bevorzugter mindestens 150 ppmv, noch bevorzugter mindestens 200 ppmv, und insbesondere mindestens 250 ppmv aufweist.

Satz 33: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas einen Gehalt an N_2O von mindestens 500 ppmv, bevorzugt mindestens 1000 ppmv, bevorzugter mindestens 2000 ppmv, noch bevorzugter mindestens 3000 ppmv, und insbesondere mindestens 3500 ppmv aufweist.

Satz 34: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas einen Gehalt an H_2O von weniger als 2,0 Vol.-% aufweist.

Satz 35: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas einen Gehalt an H_2O von mehr als 4,0 Vol.-% aufweist; bevorzugt mindestens 5,0 Vol.-%, bevorzugter mindestens 6,0 Vol.-%, noch bevorzugter mindestens 7,0 Vol.-%, am bevorzugtesten mindestens 8,0 Vol.-%, und insbesondere mindestens 9,0 Vol.-%.

Satz 36: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas einen Gehalt an H_2O von mindestens 10 Vol.-% aufweist; bevorzugt mindestens 12 Vol.-%, bevorzugter mindestens 14 Vol.-%, noch bevorzugter mindestens 16 Vol.-%, am bevorzugtesten mindestens 18 Vol.-%, und insbesondere mindestens 20 Vol.-%.

Satz 37: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas einen Gehalt an H_2O im Bereich von 10±8 Vol.-% aufweist; bevorzugt im Bereich von 10±7 Vol.-%, bevorzugter im Bereich von 10±6 Vol.-%, noch bevorzugter im Bereich von 10±5 Vol.-%, am bevorzugtesten im Bereich von 10±4 Vol.-%, und insbesondere im Bereich von 10±3 Vol.-%.

Satz 38: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas einen Gehalt an H_2O im Bereich von 15±8 Vol.-% aufweist; bevorzugt im Bereich von 15±7 Vol.-%, bevorzugter im Bereich von 15±6 Vol.-%, noch bevorzugter im Bereich von 15±5 Vol.-%, am bevorzugtesten im Bereich von 15±4 Vol.-%, und insbesondere im Bereich von 15±3 Vol.-%.

Satz 39: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas einen Gehalt an H_2O im Bereich von 20±8 Vol.-% aufweist; bevorzugt im Bereich von 20±7 Vol.-%, bevorzugter im Bereich

von 20±6 Vol.-%, noch bevorzugter im Bereich von 20±5 Vol.-%, am bevorzugtesten im Bereich von 20±4 Vol.-%, und insbesondere im Bereich von 20±3 Vol.-%.

Satz 40: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas einen Gehalt an H_2O im Bereich von 25±8 Vol.-% aufweist; bevorzugt im Bereich von 25±7 Vol.-%, bevorzugter im Bereich von 25±6 Vol.-%, noch bevorzugter im Bereich von 25±5 Vol.-%, am bevorzugtesten im Bereich von 25±4 Vol.-%, und insbesondere im Bereich von 25±3 Vol.-%.

Satz 41: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas einen Gehalt an H_2O im Bereich von 30±8 Vol.-% aufweist; bevorzugt im Bereich von 30±7 Vol.-%, bevorzugter im Bereich von 30±6 Vol.-%, noch bevorzugter im Bereich von 30±5 Vol.-%, am bevorzugtesten im Bereich von 30±4 Vol.-%, und insbesondere im Bereich von 30±3 Vol.-%.

Satz 42: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas einen Gehalt an N_2 von höchstens 95 Vol.-%, bevorzugt höchstens 90 Vol.-%, bevorzugter höchstens 85 Vol.-%, noch bevorzugter höchstens 80 Vol.-%, am bevorzugtesten höchstens 75 Vol.-%, und insbesondere höchstens 70 Vol.-% aufweist.

Satz 43: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas einen Gehalt an N_2 von mindestens 40 Vol.-%, bevorzugt mindestens 50 Vol.-%, bevorzugter mindestens 60 Vol.-%, noch bevorzugter mindestens 70 Vol.-%, am bevorzugtesten mindestens 80 Vol.-%, und insbesondere mindestens 90 Vol.-% aufweist.

Satz 44: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas weitere gasförmige Bestandteile umfasst; bevorzugt ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus O_2, CO, CO_2, NH_3, CH_4 und deren Mischungen.

Satz 45: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas beim Verlassen der Feuerungsanlage, bevorzugt des Ofens, bevorzugter der Verbrennungseinrichtung eine Temperatur von mindestens 500°C, bevorzugter mindestens 600°C, noch bevorzugter mindestens 700°C, am bevorzugtesten mindestens 800°C, und insbesondere mindestens 900°C aufweist.

Satz 46: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas beim Verlassen der Feuerungsanlage, bevorzugt des Ofens, bevorzugter der Verbrennungseinrichtung eine Temperatur von höchstens 1100°C, bevorzugter höchstens 1000°C, noch bevorzugter höchstens 900°C, am bevorzugtesten höchstens 800°C, und insbesondere höchstens 700°C aufweist.

Satz 47: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas beim Verlassen der Feuerungsanlage, bevorzugt des Ofens, bevorzugter der Verbrennungseinrichtung einen Druck von höchstens 1,5 bar aufweist; bevorzugt atmosphärischen Druck.

Satz 48: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas beim Verlassen der Feuerungsanlage, bevorzugt des Ofens, bevorzugter der Verbrennungseinrichtung einen Oxidationsgrad von NO_X von mindestens 10%, bevorzugter mindestens 20%, noch bevorzugter mindestens 30%, am bevorzugtesten mindestens 40%, und insbesondere mindestens 50% aufweist.

Satz 49: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas beim Verlassen der Feuerungsanlage, bevorzugt des Ofens, bevorzugter der Verbrennungseinrichtung einen Oxidationsgrad von NO_X von höchstens 90%, bevorzugter höchstens 80%, noch bevorzugter höchstens 70%, am bevorzugtesten höchstens 60%, und insbesondere höchstens 50% aufweist.

Satz 50: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas beim Verlassen der Feuerungsanlage, bevorzugt des Ofens, bevorzugter der Verbrennungseinrichtung einen Gehalt an O_2 von weniger als 2,0 Vol.-% aufweist.

Satz 51: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas beim Verlassen der Feuerungsanlage, bevorzugt des Ofens, bevorzugter der Verbrennungseinrichtung einen Gehalt an O_2 von mehr als 4,0 Vol.-% aufweist.

Satz 52: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage eine Temperatur von mindestens 300°C, bevorzugter mindestens 350°C, noch bevorzugter mindestens 400°C, am bevorzugtesten mindestens 425°C, und insbesondere mindestens 450°C aufweist.

Satz 53: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage eine Temperatur von mindestens 500°C, bevorzugter mindestens 550°C, noch bevorzugter mindestens 600°C, am bevorzugtesten mindestens 625°C, und insbesondere mindestens 650°C aufweist.

Satz 54: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage eine Temperatur von höchstens 825°C, bevorzugter höchstens 800°C, noch bevorzugter höchstens 775°C, am bevorzugtesten höchstens 750°C, und insbesondere höchstens 725°C aufweist.

Satz 55: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage eine Temperatur von höchstens 700°C, bevorzugter höchstens 650°C, noch bevorzugter höchstens 600°C, am bevorzugtesten höchstens 550°C, und insbesondere höchstens 500°C aufweist.

Satz 56: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage eine Temperatur aufweist, welche relativ um mindestens 20°C, bevorzugt mindestens 40°C, bevorzugter mindestens 60°C, noch bevorzugter mindestens 80°C, am bevorzugtesten mindestens 100°C, und insbesondere mindestens 120°C unterhalb der Temperatur liegt, welche das Abgas beim Verlassen der Feuerungsanlage, bevorzugt des Ofens, bevorzugter der Verbrennungseinrichtung aufweist.

Satz 57: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage einen Druck von höchstens 1,2 bar aufweist; bevorzugt atmosphärischen Druck.

Satz 58: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage einen Oxidationsgrad von NO_X von mindestens 10%, bevorzugter mindestens

20%, noch bevorzugter mindestens 30%, am bevorzugtesten mindestens 40%, und insbesondere mindestens 50% aufweist.

Satz 59: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage einen Oxidationsgrad von NO_X von höchstens 90%, bevorzugter höchstens 80%, noch bevorzugter höchstens 70%, am bevorzugtesten höchstens 60%, und insbesondere höchstens 50% aufweist.

Satz 60: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage einen Gehalt an O_2 von weniger als 2,0 Vol.-% aufweist.

Satz 61: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage einen Gehalt an O_2 von mehr als 4,0 Vol.-% aufweist.

Satz 62: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei Schritt (d) das Vermindern des Gehalts an N_2O in dem Abgas durch (d_1) Zersetzung von N_2O an einem N_2O-Zersetzungskatalysator umfasst; bevorzugt wobei der N_2O-Zersetzungskatalysator ein zeolithisches Material umfasst; bevorzugt einen mit Übergangsmetall (einschließlich Lanthanid), insbesondere mit Eisen, Kobalt oder Kupfer beladenen Zeolith; bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith; noch bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith vom Typ MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder MEL.

Satz 63: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei Schritt (d) das Vermindern des Gehalts an N_2O in dem Abgas durch (d_2) chemische Reduktion von N_2O mit Reduktionsmittel an einem N_2O-Reduktionskatalysator umfasst; bevorzugt wobei der N_2O-Reduktionskatalysator ein zeolithisches Material umfasst; bevorzugt einen mit Übergangsmetall (einschließlich Lanthanid), insbesondere mit Eisen, Kobalt oder Kupfer beladenen Zeolith; bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith; noch bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith vom Typ MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder MEL.

Satz 64: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Reduktionsmittel in Schritt (d_2) ausgewählt ist aus NH_3, Kohlenwasserstoffen, CO, H_2 und deren Mischungen; bevorzugt NH_3.

Satz 65: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Reduktionsmittel in Schritt (d_2) NH_3 ist, welches in einer Menge von 0,5 bis 2,0 molaren Anteilen, bevorzugt 0,8 bis 1,8 molaren Anteilen, eingesetzt wird, bezogen auf einen molaren Anteil an chemisch zu reduzierendem N_2O.

Satz 66: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Reduktionsmittel in Schritt (d_2) ein Kohlenwasserstoff oder eine Mischung mehrerer Kohlenwasserstoffe ist, welche bevorzugt in einer Menge von 0,2 bis 1,0 molaren Anteilen, bevorzugter von 0,2 bis 0,7 molaren Anteilen, eingesetzt werden, bezogen auf einen molaren Anteil an abzubauendem N_2O.

Satz 67: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei der NO_X-Reduktionskatalysator ein zeolithisches Material umfasst; bevorzugt einen mit Übergangsmetall (einschließlich Lanthanid), insbesondere mit Eisen, Kobalt oder Kupfer beladenen Zeolith; bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith; noch bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith vom Typ MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder MEL.

Satz 68: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Reduktionsmittel in Schritt (e) ausgewählt ist aus NH_3, Kohlenwasserstoffen, CO, H_2 und deren Mischungen; bevorzugt NH_3.

Satz 69: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Reduktionsmittel in Schritt (e) NH_3 ist, welches in einer Menge von 0,9 bis 2,5 molaren Anteilen, bevorzugt 1,0 bis 1,4 molaren Anteilen, bevorzugter 1,0 bis 1,2 molaren Anteilen, eingesetzt wird, bezogen auf einen molaren Anteil an chemisch zu reduzierendem NO_X.

Satz 70: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Reduktionsmittel in Schritt (d_2) das gleiche ist wie das Reduktionsmittel in Schritt (e); bevorzugt NH_3.

Satz 71: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei die Abgasbehandlungsanlage eine erste Reaktionszone und eine dahinter angeordnete zweite Reaktionszone umfasst, welche vom Abgas nacheinander durchströmt werden; wobei dem Abgas vor der ersten Reaktionszone Reduktionsmittel zugesetzt wird; wobei zunächst in der ersten Reaktionszone der Gehalt an NO_X im Abgas durch chemische Reduktion von NO_X mit Reduktionsmittel an einem NO_X-Reduktionskatalysator vermindert wird; (Schritt (e)); wobei optional zusätzlich der Gehalt an N_2O im Abgas durch Zersetzung von N_2O an einem N_2O-Zersetzungskatalysator (Schritt (d_1)) und/oder durch chemische Reduktion von N_2O mit Reduktionsmittel an einem N_2O-Reduktionskatalysator (Schritt (d_2)) vermindert wird; wobei optional dem Abgas vor der zweiten Reaktionszone weiteres Reduktionsmittel zugesetzt wird; und wobei anschließend in der zweiten Reaktionszone der Gehalt an N_2O im Abgas durch Zersetzung von N_2O an einem N_2O-Zersetzungskatalysator (Schritt (d_1)) und/oder durch chemische Reduktion von N_2O mit Reduktionsmittel an einem N_2O-Reduktionskatalysator vermindert wird (Schritt (d_2)); wobei optional zusätzlich der Gehalt an NO_X im Abgas durch chemische Reduktion von NO_X an einem NO_X-Reduktionskatalysator weiter vermindert wird (Schritt (e)).

Satz 72: Das Verfahren nach Satz 71, wobei der NO_X-Reduktionskatalysator in der ersten Reaktionszone einen klassischen SCR-Katalysator umfasst, bevorzugt auf Basis von V_2O_5-WO_3-/TiO_2.

Satz 73: Das Verfahren nach Satz 71 oder 72, wobei die Temperatur des Abgases beim Eintritt in die erste Reaktionszone höchstens 400°C, bevorzugt höchstens 350°C beträgt.

Satz 74: Das Verfahren nach einem der Sätze 71 bis 73, wobei der N_2O-Zersetzungskatalysator in der zweiten Reaktionszone ein zeolithisches Material umfasst; bevorzugt einen mit Übergangsmetall (einschließlich Lanthanid), insbesondere mit Eisen, Kobalt oder Kupfer beladenen Zeolith; bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith; noch bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith vom Typ MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder MEL.

Satz 75: Das Verfahren nach einem der Sätze 71 bis 74, wobei die Temperatur des Abgases beim Eintritt in die zweite Reaktionszone im Bereich von 300 bis 550°C, bevorzugt 350 bis 500°C.

Satz 76: Das Verfahren nach einem der Sätze 71 bis 75, wobei der NO_X-Reduktionskatalysator in der ersten Reaktionszone ein zeolithisches Material umfasst; bevorzugt einen mit Übergangsmetall (ein-

schließlich Lanthanid), insbesondere mit Eisen, Kobalt oder Kupfer beladenen Zeolith; bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith; noch bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith vom Typ MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder MEL.

Satz 77: Das Verfahren nach einem der Sätze 71 bis 76, wobei die Temperatur des Abgases beim Eintritt in die erste Reaktionszone mindestens 300°C, bevorzugter mindestens 350°C, noch bevorzugter mindestens 400°C beträgt.

Satz 78: Das Verfahren nach einem der Sätze 71 bis 77, wobei die Temperatur des Abgases beim Eintritt in die erste Reaktionszone höchstens 600°C, bevorzugter höchstens 550°C beträgt.

Satz 79: Das Verfahren nach einem der Sätze 71 bis 78, wobei der N_2O-Zersetzungskatalysator in der zweiten Reaktionszone einen NO_X-sensitiven N_2O-Zersetzungskatalysator umfasst.

Satz 80: Das Verfahren nach einem der Sätze 71 bis 79, wobei die Temperatur des Abgases beim Eintritt in die zweite Reaktionszone mindestens 300°C, bevorzugter mindestens 350°C, noch bevorzugter mindestens 400°C beträgt.

Satz 81: Das Verfahren nach einem der Sätze 71 bis 80, wobei die Temperatur des Abgases beim Eintritt in die zweite Reaktionszone höchstens 600°C, bevorzugter höchstens 550°C beträgt.

Satz 82: Das Verfahren nach einem der Sätze 71 bis 81, wobei das Abgas nach Verlassen der ersten Reaktionszone und vor Eintritt in die zweite Reaktionszone einen Gehalt an NO_X im Bereich von 0 bis 200 ppmv, bevorzugt 1 bis 200 ppmv, und einen Gehalt an N_2O im Bereich von 200 bis 2000 ppmv aufweist.

Satz 83: Das Verfahren nach einem der Sätze 71 bis 82, wobei das Abgas nach Verlassen der ersten Reaktionszone und vor Eintritt in die zweite Reaktionszone einen Gehalt an NO_X von höchstens 20 ppmv, bevorzugter höchstens 10 ppmv, noch bevorzugter höchstens 5 ppmv und einen Gehalt an N_2O im Bereich von 200 bis 2000 ppmv aufweist.

Satz 84: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei die Abgasbehandlungsanlage eine erste Reaktionszone und eine dahinter angeordnete zweite Reaktionszone umfasst, welche vom Abgas nacheinander durchströmt werden; wobei dem Abgas zwischen der ersten Reaktionszone und der zweiten Reaktionszone Reduktionsmittel zugesetzt wird; wobei zunächst in der ersten Reaktionszone der Gehalt an N_2O im Abgas durch Zersetzung von N_2O an einem N_2O-Zersetzungskatalysator vermindert wird (Schritt (d_1)); und wobei anschließend in der zweiten Reaktionszone der Gehalt an NO_X im Abgas durch chemische Reduktion von NO_X mit Reduktionsmittel an einem NO_X-Reduktionskatalysator vermindert wird (Schritt (e)); wobei optional zusätzlich der Gehalt an N_2O im Abgas durch weitere Zersetzung von N_2O an einem N_2O-Zersetzungskatalysator (Schritt (d_1)) und/oder durch chemische Reduktion von N_2O mit Reduktionsmittel an einem N_2O-Reduktionskatalysator (Schritt (d_2)) weiter vermindert wird.

Satz 85: Das Verfahren nach Satz 84, wobei dem Abgas vor der ersten Reaktionszone kein Reduktionsmittel zugesetzt wird.

Satz 86: Das Verfahren nach Satz 84 oder 85, wobei der N_2O-Zersetzungskatalysator in der ersten Reaktionszone ein zeolithisches Material umfasst; bevorzugt einen mit Übergangsmetall (einschließlich Lanthanid), insbesondere mit Eisen, Kobalt oder Kupfer beladenen Zeolith; bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith; noch bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith vom Typ MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder MEL.

Satz 87: Das Verfahren nach einem der Sätze 84 bis 86, wobei der N_2O-Zersetzungskatalysator in der ersten Reaktionszone einen NO_X-sensitiven N_2O-Zersetzungskatalysator umfasst.

Satz 88: Das Verfahren nach einem der Sätze 84 bis 87, wobei der NO_X-Reduktionskatalysator in der zweiten Reaktionszone ein zeolithisches Material umfasst; bevorzugt einen mit Übergangsmetall (einschließlich Lanthanid), insbesondere mit Eisen, Kobalt oder Kupfer beladenen Zeolith; bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith; noch bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith vom Typ MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder MEL.

Satz 89: Das Verfahren nach einem der Sätze 84 bis 88, wobei in der ersten Reaktionszone und in der zweiten Reaktionszone die Raumgeschwindigkeiten so eingestellt werden, dass in der ersten Reaktionszone eine Verminderung des Gehalts an N_2O im Abgas um höchstens 95%, bevorzugt höchstens 90% erfolgt, bezogen auf den Gehalt an N_2O im Abgas beim Eintritt in die erste Reaktionszone.

Satz 90: Das Verfahren nach einem der Sätze 84 bis 89, wobei in der zweiten Reaktionszone eine weitere Verminderung des Gehalts an N_2O im Abgas um mindestens 30%, bevorzugt mindestens 40%, bevorzugter mindestens 50% erfolgt, bezogen auf den Gehalt an N_2O im Abgas beim Eintritt in die zweite Reaktionszone.

Satz 91: Das Verfahren nach einem der Sätze 84 bis 90, wobei in der zweiten Reaktionszone eine weitere Verminderung des Gehalts an N_2O im Abgas durch chemische Reduktion von N_2O mit Reduktionsmittel an einem N_2O-Reduktionskatalysator erfolgt (Schritt (d_2)).

Satz 92: Das Verfahren nach einem der Sätze 71 bis 91, wobei die erste Reaktionszone und die zweite Reaktionszone räumlich getrennt sind.

Satz 93: Das Verfahren nach einem der Sätze 71 bis 92, wobei die erste Reaktionszone und die zweite Reaktionszone räumlich miteinander verbunden sind.

Satz 94: Das Verfahren nach einem der Sätze 71 bis 93, wobei die erste Reaktionszone und die zweite Reaktionszone in einem gemeinsamen Behälter angeordnet sind.

Satz 95: Das Verfahren nach einem der Sätze 71 bis 94, wobei die Temperatur des Abgases in der ersten Reaktionszone und in der zweiten Reaktionszone höchstens 500°C beträgt, bevorzugt im Bereich von 350 bis 450°C liegt.

Satz 96: Das Verfahren nach einem der Sätze 71 bis 95, wobei die Raumgeschwindigkeit in der ersten Reaktionszone größer als in der zweiten Reaktionszone ist; bevorzugt um mindestens Faktor 1,2, bevorzugter mindestens Faktor 1,4, noch bevorzugter mindestens Faktor 1,6, am bevorzugtesten mindestens Faktor 1,8, und insbesondere mindestens Faktor 2,0.

Satz 97: Das Verfahren nach einem der Sätze 71 bis 96, wobei die Raumgeschwindigkeit in der ersten Reaktionszone kleiner als in der zweiten Reaktionszone ist; bevorzugt um mindestens Faktor 1,5, bevorzugter mindestens Faktor 2,0, noch bevorzugter mindestens Faktor 3,0, am bevorzugtesten mindestens Faktor 5,0, und insbesondere mindestens Faktor 10,0.

Satz 98: Das Verfahren nach einem der Sätze 71 bis 97, wobei die Temperatur in der ersten Reaktionszone mindestens 450°C beträgt, bevorzugter mindestens 500°C, noch bevorzugter mindestens 550°C, am bevorzugtesten mindestens 600°C und insbesondere mindestens 650°C.

Satz 99: Das Verfahren nach einem der Sätze 71 bis 98, wobei die Temperatur in der zweiten Reaktionszone höchstens 600°C beträgt, bevorzugter höchstens 550°C, noch bevorzugter höchstens 500°C, am bevorzugtesten höchstens 450°C und insbesondere höchstens 400°C.

Satz 100: Das Verfahren nach einem der Sätze 71 bis 99, wobei die Temperatur in der ersten Reaktionszone relativ um mindestens 20°C, bevorzugter um mindestens 40°C, noch bevorzugter um mindestens 60°C, am bevorzugtesten um mindestens 80°C und insbesondere um mindestens 100°C höher ist als die Temperatur in der zweiten Reaktionszone.

Satz 101: Das Verfahren nach einem der Sätze 71 bis 100, wobei die Temperatur in der ersten Reaktionszone relativ um mindestens 120°C, bevorzugter um mindestens 140°C, noch bevorzugter um mindestens 160°C, am bevorzugtesten um mindestens 180°C und insbesondere um mindestens 200°C höher ist als die Temperatur in der zweiten Reaktionszone.

Satz 102: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas die Abgasbehandlungsanlage verlässt und einen Restgehalt an NO_X von höchstens 20 ppmv aufweist, bevorzugt höchstens 15 ppmv, bevorzugter höchstens 10 ppmv, noch bevorzugter höchstens 7,5 ppmv, am bevorzugtesten höchstens 5,0 ppmv, und insbesondere höchstens 2,5 ppmv.

Satz 103: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei das Abgas die Abgasbehandlungsanlage verlässt und einen Restgehalt an N_2O von höchstens 20 ppmv aufweist, bevorzugt höchstens 15 ppmv, bevorzugter höchstens 10 ppmv, noch bevorzugter höchstens 7,5 ppmv, am bevorzugtesten höchstens 5,0 ppmv, und insbesondere höchstens 2,5 ppmv.

Satz 104: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei der N_2O-Zersetzungskatalysator in einem Radialkorb angeordnet ist, welcher axial durchströmt wird.

Satz 105: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei der N_2O-Zersetzungskatalysator partikulär ist und mindestens 50 Partikel umfasst.

Satz 106: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei der N_2O-Reduktionskatalysator in einem Radialkorb angeordnet ist, welcher axial durchströmt wird.

Satz 107: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei der N_2O-Reduktionskatalysator partikulär ist und mindestens 50 Partikel umfasst.

Satz 108: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei der NO_X-Reduktionskatalysator in einem Radialkorb angeordnet ist, welcher axial durchströmt wird.

Satz 109: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei der NO_X-Reduktionskatalysator partikulär ist und mindestens 50 Partikel umfasst.

Satz 110: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei in der Feuerungsanlage als eine erste Messgröße mindestens ein Parameter gemessen wird, welcher für den aktuellen Betriebszustand der Feuerungsanlage charakteristisch ist.

Satz 111: Das Verfahren nach Satz 110, wobei die erste Messgröße ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus Verbrennungstemperatur, NH_3-Verbrauch, ggf. Umdrehungsgeschwindigkeit, und Lautstärke der Feuerungsanlage.

Satz 112: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei vor Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage als eine zweite Messgröße mindestens ein Parameter gemessen wird, welcher für den aktuellen Zustand des Abgases vor Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage charakteristisch ist.

Satz 113: Das Verfahren nach Satz 112, wobei die zweite Messgröße ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus Gehalt an NO_X im Abgas; Oxidationsgrad des NO_X im Abgas; Gehalt an N_2O im Abgas; Gehalt anderer Bestandteile im Abgas, wie z.B. H_2O, O_2, und N_2; Temperatur des Abgases; Druck des Abgases; und Volumenstrom des Abgases.

Satz 114: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei am Ausgang der Abgasbehandlungsanlage als eine dritte Messgröße mindestens ein Parameter gemessen wird, welcher für den aktuellen Zustand des Abgases am Ausgang der Abgasbehandlungsanlage charakteristisch ist.

Satz 115: Das Verfahren nach Satz 114, wobei die dritte Messgröße ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus Gehalt an NO_X im Abgas; Oxidationsgrad des NO_X im Abgas; Gehalt an N_2O im Abgas; Gehalt anderer Bestandteile im Abgas, wie z.B. H_2O, O_2, und N_2; Temperatur des Abgases; Druck des Abgases; und Volumenstrom des Abgases.

Satz 116: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei die Abgasbehandlungsanlage eine erste Reaktionszone sowie eine zweite Reaktionszone umfasst, welche nacheinander von dem Abgas durchströmt werden, wobei Reduktionsmittel zwischen der ersten Reaktionszone und der zweiten Reaktionszone eingespeist wird, und wobei nach Verlassen der ersten Reaktionszone und vor Eintritt in die zweite Reaktionszone als eine vierte Messgröße mindestens ein Parameter gemessen wird, welcher für den aktuellen Zustand des Abgases nach Verlassen der ersten Reaktionszone und vor Eintritt in die zweite Reaktionszone charakteristisch ist.

Satz 117: Das Verfahren nach Satz 116, wobei die vierte Messgröße ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus Gehalt an NO_X im Abgas; Oxidationsgrad des NO_X im Abgas; Gehalt an N_2O im Abgas; Gehalt anderer Bestandteile im Abgas, wie z.B. H_2O, O_2, und N_2; Temperatur des Abgases; Druck des Abgases; und Volumenstrom des Abgases.

Satz 118: Das Verfahren nach einem der Sätze 110 bis 117, wobei die Regelung des Verfahrens anhand der ersten Messgröße und/oder anhand der zweiten Messgröße und/oder anhand der dritten Messgröße und/oder anhand der vierten Messgröße durch gezielte Veränderung einer Stellgröße erfolgt.

Satz 119: Das Verfahren nach Satz 118, wobei die Stellgröße die zudosierte Menge an Reduktionsmittel ist.

Satz 120: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei ein einzelner Wärmetauscher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist, in dem das Abkühlen des Abgases erfolgt.

Satz 121: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage mindestens zwei Wärmetauscher angeordnet sind, in denen nacheinander das Abkühlen des Abgases erfolgt.

Satz 122: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage mindestens drei Wärmetauscher angeordnet sind, in denen nacheinander das Abkühlen des Abgases erfolgt.

Satz 123: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage mindestens vier Wärmetauscher angeordnet sind, in denen nacheinander das Abkühlen des Abgases erfolgt.

Satz 124: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage mindestens fünf Wärmetauscher angeordnet sind, in denen nacheinander das Abkühlen des Abgases erfolgt.

Satz 125: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei in Schritt (f) das Abkühlen des Abgases in dem mindestens einen Wärmetauscher durch Abgabe von Wärme aus dem Abgas an ein Wärmeträgermedium erfolgt; wobei das Wärmeträgermedium bevorzugt ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Wasser, Wasserdampf, Verbrennungsluft, NH_3 und deren Kombinationen.

Satz 126: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei in Schritt (f) das Abkühlen des Abgases in einem ersten Abgas/H_2O-Wärmetauscher erfolgt, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist.

Satz 127: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei in Schritt (f) das Abkühlen des Abgases in einem ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher erfolgt, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist

Satz 128: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei in Schritt (f) das Abkühlen des Abgases erfolgt - in einem ersten Abgas/H_2O-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist, sowie - in einem ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher ebenfalls in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist; bevorzugt stromabwärts des ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers

Satz 129: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei in Schritt (f) das Abkühlen des Abgases erfolgt - in einem ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist, sowie - in einem zweiten

Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers angeordnet ist.

Satz 130: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei in Schritt (f) das Abkühlen des Abgases erfolgt - in einem ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist, - in einem ersten Abgas/H_2O-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers angeordnet ist, sowie - in einem zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers angeordnet ist.

Satz 131: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei in Schritt (f) das Abkühlen des Abgases in mindestens einem Abgas/Verbrennungsgas-Wärmetauscher erfolgt, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist, bevorzugt stromabwärts des ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers, des ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers, und/oder des zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers.

Satz 132: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei in Schritt (f) das Abkühlen des Abgases in mindestens einem Abgas/Verbrennungsgas-Wärmetauscher erfolgt, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist, bevorzugt stromabwärts des ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers, des ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers, und/oder des zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers.

Satz 133: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei in Schritt (f) das Abkühlen des Abgases in mindestens einem zweiten Abgas/H_2O-Wärmetauscher erfolgt, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist, bevorzugt stromabwärts des ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers, des ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers, und/oder des zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers.

Satz 134: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei in Schritt (f) Verfahrens das Abkühlen des Abgases erfolgt - in einem ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist, - in einem ersten Abgas/H_2O-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers angeordnet ist, - in einem zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers angeordnet ist, sowie - in einem Abgas/Verbrennungsgas-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers angeordnet ist.

Satz 135: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei in Schritt (f) das Abkühlen des Abgases erfolgt - in einem ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist, - in einem ersten Ab-

gas/H_2O-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers angeordnet ist, - in einem zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers angeordnet ist, sowie - in einem zweiten Abgas/H_2O-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers angeordnet ist.

Satz 136: Das Verfahren nach einem der vorstehenden Sätze, wobei in Schritt (f) das Abkühlen des Abgases erfolgt - in einem ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist, - in einem ersten Abgas/H_2O-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers angeordnet ist, - in einem zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers angeordnet ist, - in einem Abgas/Verbrennungsgas-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers angeordnet ist, sowie - in einem zweiten Abgas/H_2O-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des Abgas/Verbrennungsgas-Wärmetauschers angeordnet ist.

Satz 137: Eine Vorrichtung umfassend (i) eine mit NH_3 betriebene Feuerungsanlage; bevorzugt einen Ofen (bevorzugt umfassend Verbrennungseinrichtung und NH_3-Zersetzungseinrichtung) zum katalytischen Zersetzen von NH_3 in N_2 und H_2; und (ii) eine Abgasbehandlungsanlage; wobei die Vorrichtung konfiguriert ist zur Durchführung des Verfahrens nach einem der vorstehenden Sätze.

[0495] Besonders bevorzugte Ausführungsformen der Erfindung werden nachfolgend anhand der Abbildungen erläutert. Bei allen diesen Ausführungsformen wird NH_3 bevorzugt mit Wasserdampf und Wasserdampfkondensat vorgewärmt, ggf. ausschließlich oder auch zusätzlich.

[0496] Abbildung 1 zeigt schematisch eine bevorzugte Ausführungsform der Erfindung. NH_3 wird in eine NH_3-Zersetzungseinrichtung (1) geleitet, welche analog einem Primärreformer ausgestaltet ist, und darin an einem NH_3-Zersetzungskatalysator katalytisch zersetzt in ein Produktgas umfassend H_2+N_2+NH_3. Parallel dazu wird ein Verbrennungsgas umfassend NH_3+N_2+H_2 in einer Verbrennungseinrichtung (2) mit Verbrennungsluft umfassend N_2+O_2 vermischt und verbrannt. Die dabei erzeugte Verbrennungswärme befeuert die NH_3-Zersetzungseinrichtung (1). Das bei der Verbrennung erzeugte Abgas umfassend N_2+H_2O+NO_X+N_2O tritt in einen Abgaskanal (3) ein und wird einer Abgasbehandlungsanlage (4) zugeführt, worin der Gehalt an NO_X und N_2O praktisch vollständig entfernt wird. Das die Abgasbehandlungsanlage verlassende Abgas umfassend N_2+H_2O passiert einen Ventilator (5) und verlässt dir Anlage durch einen Kamin (6). Das bei der katalytischen Zersetzung gebildete Produktgas umfassend H_2+N_2+NH_3 wird in einer Druckwechseladsorptionsanlage (7) in H_2 als Produkt und ein Off-Gas umfassend NH_3+N_2+H_2 aufgetrennt, welches als das Verbrennungsgas eingesetzt wird, ggf. nach Zudosieren von zusätzlichem NH_3.

[0497] Abbildung 2 zeigt schematisch eine bevorzugte Ausführungsform der Erfindung (Prozessvariante #1). Der Abgaskanal beinhaltet in Strömungsrichtung des Abgases einen ersten Abgas/NH_3-Wärmetauscher (Q1), in dem NH_3 Wärme aus dem Abgas aufnimmt und anschließend der NH_3-Zersetzungseinrichtung zugeführt wird. In Strömungsrichtung des Abgases ist stromabwärts des ersten Abgas/NH_3-Wärmetauschers (Q1) die Abgasbehandlungsanlage angeordnet. In Strömungsrichtung des Abgases ist stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage ein erster Abgas/H_2O-Wärmetauscher (q5) angeordnet, in dem Wasser Wärme aus dem Abgas aufnimmt. In Strömungsrichtung des Abgases ist stromabwärts des ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers e(Q5) in zweiter Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher (Q6) angeordnet, in dem Verbrennungsluft Wärme aus dem Abgas aufnimmt und anschließend der Verbrennungseinrichtung zugeführt wird.

[0498] Abbildung 3 zeigt schematisch eine bevorzugte Ausführungsform der Erfindung (Prozessvariante #2). Der Abgaskanal beinhaltet in Strömungsrichtung des Abgases einen ersten Abgas/NH_3-Wärmetauscher (Q1), in dem NH_3 Wärme aus dem Abgas aufnimmt und anschließend einem ersten Vorreaktor (NH_3-Zersetzungseinrichtung) zur partiellen katalytischen Zersetzung von NH_3 zugeführt wird. Dabei kühlt sich das Zwischenproduktgas bevorzugt ab, beispielsweise von 650°C am Eingang des ersten Vorreaktors auf 360°C am Ausgang des ersten Vorreaktors. In Strömungsrichtung des Abgases ist stromabwärts des ersten Abgas/NH_3-Wärmetauschers (Q1) ein zweiter Abgas/NH_3-Wärmetauscher (Q2) angeordnet, in dem Zwischenproduktgas Wärme aus dem Abgas aufnimmt und anschließend der NH_3-Zersetzungseinrichtung zur katalytischen Zersetzung von NH_3 zugeführt wird. In Strömungsrichtung des Abgases ist stromabwärts des zweiten Abgas/NH_3-Wärmetauschers (Q2) die Abgasbehandlungsanlage angeordnet. In Strömungsrichtung des Abgases ist stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage ein erster Abgas/H_2O-Wärmetauscher (Q5) angeordnet, in dem Wasser Wärme aus dem Abgas aufnimmt. In Strömungsrichtung des Abgases ist stromabwärts des ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers (Q5) ein zweiter Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher (Q6) angeordnet, in dem Verbrennungsluft Wärme aus dem Abgas aufnimmt und anschließend der Verbrennungseinrichtung zugeführt wird.

[0499] Abbildung 4 zeigt schematisch eine bevorzugte Ausführungsform der Erfindung (Prozessvariante #3). Der Abgaskanal beinhaltet in Strömungsrichtung des Abgases einen ersten Abgas/NH_3-Wärmetauscher (Q1), in dem NH_3 Wärme aus dem Abgas aufnimmt und anschließend einem ersten Vorreaktor (NH_3-Zersetzungseinrichtung) zur partiellen katalytischen Zersetzung von NH_3 zugeführt wird. Dabei kühlt sich das erste Zwischenproduktgas bevorzugt ab, beispielsweise von 650°C am Eingang des ersten Vorreaktors auf 480°C am Ausgang des ersten Vorreaktors. In Strömungsrichtung des Abgases ist stromabwärts des ersten Abgas/NH_3-Wärmetauschers (Q1) ein zweiter Abgas/NH_3-Wärmetauscher (Q2) angeordnet, in dem Zwischenproduktgas Wärme aus dem Abgas aufnimmt und anschließend einem zweiten Vorreaktor (NH_3-Zersetzungseinrichtung) zur partiellen katalytischen Zersetzung von NH_3 zugeführt wird. Dabei kühlt sich das zweite Zwischenproduktgas bevorzugt ab, beispielsweise von 630°C am Eingang des zweiten Vorreaktors auf 510°C am Ausgang des zweiten Vorreaktors. In Strömungsrichtung des Abgases ist stromabwärts des zweiten Abgas/NH_3-Wärmetauschers (Q2) ein dritter

Abgas/NH_3-Wärmetauscher (Q3) angeordnet, in dem Zwischenproduktgas Wärme aus dem Abgas aufnimmt und anschließend der NH_3-Zersetzungseinrichtung zur katalytischen Zersetzung von NH_3 zugeführt wird. In Strömungsrichtung des Abgases ist stromabwärts des dritten Abgas/NH_3-Wärmetauschers (Q3) die Abgasbehandlungsanlage angeordnet. In Strömungsrichtung des Abgases ist stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage ein erster Abgas/H_2O-Wärmetauscher (Q5) angeordnet, in dem Wasser Wärme aus dem Abgas aufnimmt. In Strömungsrichtung des Abgases ist stromabwärts des ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers (Q5) ein zweiter Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher (Q6) angeordnet, in dem Verbrennungsluft Wärme aus dem Abgas aufnimmt und anschließend der Verbrennungseinrichtung zugeführt wird.

[0500] Abbildung 5 zeigt schematisch eine bevorzugte Ausführungsform der Erfindung (Prozessvariante #4). Der Abgaskanal beinhaltet in Strömungsrichtung des Abgases einen ersten Abgas/NH_3-Wärmetauscher (Q1), in dem NH_3 Wärme aus dem Abgas aufnimmt und anschließend einem ersten Vorreaktor (NH_3-Zersetzungseinrichtung) zur partiellen katalytischen Zersetzung von NH_3 zugeführt wird. Dabei kühlt sich das Zwischenproduktgas bevorzugt ab, beispielsweise von 650°C am Eingang des ersten Vorreaktors auf 360°C am Ausgang des ersten Vorreaktors. In Strömungsrichtung des Abgases ist stromabwärts des ersten Abgas/NH_3-Wärmetauschers (Q1) ein zweiter Abgas/NH_3-Wärmetauscher (Q2) angeordnet, in dem Zwischenproduktgas Wärme aus dem Abgas aufnimmt und anschließend der NH_3-Zersetzungseinrichtung zur katalytischen Zersetzung von NH_3 zugeführt wird. In Strömungsrichtung des Abgases ist stromabwärts des zweiten Abgas/NH_3-Wärmetauschers (Q2) die Abgasbehandlungsanlage angeordnet. In Strömungsrichtung des Abgases ist stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage ein erster Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher (Q4) angeordnet, in dem Verbrennungsluft Wärme aus dem Abgas aufnimmt. In Strömungsrichtung des Abgases ist stromabwärts des ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers (Q4) ein erster Abgas/H_2O-Wärmetauscher (Q5) angeordnet, in dem Wasser Wärme aus dem Abgas aufnimmt. In Strömungsrichtung des Abgases ist stromabwärts des ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers (Q5) ein zweiter Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher (Q6) angeordnet, in dem Verbrennungsluft Wärme aus dem Abgas aufnimmt, danach dem ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers (Q4) und anschließend der Verbrennungseinrichtung zugeführt wird. Die Erwärmung der Verbrennungsluft erfolgt somit zweistufig, zunächst im zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher (Q6) und anschließend im erster Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher (Q4).

[0501] Abbildung 6 zeigt schematisch drei bevorzugte Ausführungsformen der Erfindung, welche einander ähneln (Prozessvarianten #5, #6 und #7). Bei allen drei Prozessvarianten beinhaltet der Abgaskanal in Strömungsrichtung des Abgases einen ersten Abgas/NH_3-Wärmetauscher (Q1), in dem NH_3 Wärme aus dem Abgas aufnimmt und anschließend einem ersten Vorreaktor (NH_3-Zersetzungseinrichtung) zur partiellen katalytischen Zersetzung von NH_3 zugeführt wird. Dabei kühlt sich das Zwischenproduktgas bevorzugt ab, beispielsweise von 650°C am Eingang des ersten Vorreaktors auf 360°C am

Ausgang des ersten Vorreaktors. In Strömungsrichtung des Abgases ist stromabwärts des ersten Abgas/NH_3-Wärmetauschers (Q1) ein zweiter Abgas/NH_3-Wärmetauscher (Q2) angeordnet, in dem Zwischenproduktgas Wärme aus dem Abgas aufnimmt und anschließend der NH_3-Zersetzungseinrichtung zur katalytischen Zersetzung von NH_3 zugeführt wird. In Strömungsrichtung des Abgases ist stromabwärts des zweiten Abgas/NH_3-Wärmetauschers (Q2) die Abgasbehandlungsanlage angeordnet. In Strömungsrichtung des Abgases ist stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage ein erster Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher (Q4) angeordnet, in dem Verbrennungsluft Wärme aus dem Abgas aufnimmt. In Strömungsrichtung des Abgases ist stromabwärts des ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers (Q4) ein erster Abgas/H_2O-Wärmetauscher (Q5) angeordnet, in dem Wasser Wärme aus dem Abgas aufnimmt. In Strömungsrichtung des Abgases ist stromabwärts des ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers (Q5) ein zweiter Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher (Q6) angeordnet, in dem Verbrennungsluft Wärme aus dem Abgas aufnimmt, danach dem ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers (Q4) und anschließend der Verbrennungseinrichtung zugeführt wird. Die Erwärmung der Verbrennungsluft erfolgt somit zweistufig, zunächst im zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher (Q6) und anschließend im erster Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher (Q4). In Strömungsrichtung des Abgases ist stromabwärts des zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers (Q6) ein Abgas/Verbrennungsgas-Wärmetauscher (Q7) angeordnet, in dem Verbrennungsgas, nämlich das Off-Gas der Druckwechseladsorptionsvorrichtung, Wärme aus dem Abgas aufnimmt und danach der Verbrennungseinrichtung zugeführt wird. In Strömungsrichtung des Abgases ist stromabwärts des ein Abgas/Verbrennungsgas-Wärmetauschers (Q7) ein zweiter Abgas/H_2O-Wärmetauscher (Q8) angeordnet, in dem Wasser Wärme aus dem Abgas aufnimmt.

[0502] Bei Prozessvariante #5 wird die im Abgas verbliebene Restwärme im zweiten Abgas/H_2O-Wärmetauscher (Q8) mit Wasser abgeführt und an NH_3 abgegeben, welches damit vom flüssigen Zustand (Lagertemperatur -33,5°C) auf beispielsweise -8°C vorgewärmt wird.

[0503] Bei Prozessvariante #6 wird Wärme im ersten Abgas/H_2O-Wärmetauscher (Q5) mit Wasser abgeführt und an NH_3 abgegeben, welches damit vom flüssigen Zustand auf beispielsweise 30°C vorgewärmt wird. Die im Abgas verbliebene Restwärme wird im zweiten Abgas/H_2O-Wärmetauscher (Q8) mit Wasser abgeführt und ebenfalls an NH_3 abgegeben, welches damit auf beispielsweise 45°C erwärmt wird.

[0504] Bei Prozessvariante #7 wird Wärme im ersten Abgas/H_2O-Wärmetauscher (Q5) mit Wasser abgeführt und an NH_3 abgegeben, welches damit vom flüssigen Zustand auf beispielsweise 30°C vorgewärmt wird. Die im Abgas verbliebene Restwärme wird im zweiten Abgas/H_2O-Wärmetauscher (Q8) mit Wasser abgeführt und ebenfalls an NH_3 abgegeben, welches damit auf beispielsweise 39°C erwärmt wird. Die Menge an vorgewärmten Kesselspeisewasser ist erhöht im Vergleich zu der Menge, welche zur Herstellung von Wasserdampf benötigt wird. Das überschüssige Kesselspeisewasser wird unterhalb

eines NH_3-Verdampfers in einen Strom aus Wasserdampfkondensat eingeleitet und dient als zusätzlicher Wärmeträger.

[0505] Massenbilanzen und Temperaturprofile für Prozessvarianten #1 bis #7 sind in nachfolgenden Tabellen zusammengestellt. Alle Daten sind für eine Anlagenkapazität von 1000 mtpd NH_3 skaliert. Die in fetten Buchstaben 1 bis 28 angegebenen Zahlen beziehen sich auf die entsprechend gekennzeichneten Positionen in Abbildung 7. Es werden jeweils zwei Fälle A und B unterschieden, bei denen das Abgas einen unterschiedlichen Gehalt an Stickoxiden enthält. Bei Fall A enthält das Abgas jeweils einen vergleichsweise geringen Gehalt an Stickoxiden von 500 ppmv NO, 10 ppmv NO_2 und 10 ppmv N_2O. Bei Fall B enthält das Abgas jeweils einen vergleichsweise hohen Gehalt an Stickoxiden von 5000 ppmv NO, 10 ppmv NO_2 und 50 ppmv N_2O:

[0506] Prozessvariante #1:

Prozessvariante 1A		**1**	**2**	**3**	**4**	**5**	**6**	7	**8**	**9**	**10**
CO_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	
Ar	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	
H_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			74,29	0,00	28,81	
N_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			24,76	0,00	68,55	
NH_3	Mol.-%	99,81	99,81	99,81	99,81			0,86	99,81	2,37	
O_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	
H_2O	Mol.-%	0,19	0,19	0,19	0,19			0,10	0,19	0,26	
NO	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	
NO_2	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	
N_2O	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	
Massestrom	kg/h	36856	36856	36856	36856			36856	4776	31312	
molarer Strom	kmol/h	2164	2164	2164	2164			4287	280	1547	
Temperatur	°C	272,0	580,0	579,9	580,0			680,0	22,8	27,0	
		11	**12**	**13**	**14**	**15**	**24**	**25**	**26**	**27**	**28**
CO_2	Mol.-%	0,00	0,03	0,03		0,02	0,02	0,00	0,00		
Ar	Mol.-%	0,00	0,90	0,90		0,53	0,53	0,00	0,00		
H_2	Mol.-%	24,39	0,00	0,00		0,00	0,00	0,00	0,00		
N_2	Mol.-%	58,03	75,30	75,30		74,10	74,10	0,00	0,00		
NH_3	Mol.-%	17,32	0,00	0,00		0,00	0,00	0,00	0,00		
O_2	Mol.-%	0,00	20,21	20,21		1,00	0,99	0,00	0,00		
H_2O	Mol.-%	0,25	3,56	3,56		24,30	24,36	100,00	100,00		

NO	ppmv	0	0	0		476	0	0	0		
NO_2	ppmv	0	0	0		5	0	0	0		
N_2O	ppmv	0	0	0		10	0	0	0		
Massestrom	kg/h	36088	71121	71121		107209	107243	27237	27237		
molarer Strom	kmol/h	1828	2489	2489		4173	4175	1512	1512		
Temperatur	°C	26,1	44,3	500,0		870,0	310,2	130,5	230,0		

Prozessvariante 1B		**1**	**2**	**3**	**4**	**5**	**6**	**7**	**8**	**9**	**10**
CO_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	
Ar	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	
H_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			74,29	0,00	28,81	
N_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			24,76	0,00	68,55	
NH_3	Mol.-%	99,81	99,81	99,81	99,81			0,86	99,81	2,37	
O_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	
H_2O	Mol.-%	0,19	0,19	0,19	0,19			0,10	0,19	0,26	
NO	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	
NO_2	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	
N_2O	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	
Massestrom	kg/h	36414	36414	36414	36414			36414	4895	30936	
molarer Strom	kmol/h	2138	2138	2138	2138			4236	287	1529	
Temperatur	°C	267,4	580,0	579,9	580,0			680,0	22,8	27,0	
		11	**12**	**13**	**14**	**15**	**24**	**25**	**26**	**27**	**28**
CO_2	Mol.-%	0,00	0,03	0,03		0,02	0,02	0,00	0,00		
Ar	Mol.-%	0,00	0,90	0,90		0,54	0,54	0,00	0,00		
H_2	Mol.-%	24,25	0,00	0,00		0,00	0,00	0,00	0,00		
N_2	Mol.-%	57,70	75,30	75,30		73,80	73,84	0,00	0,00		
NH_3	Mol.-%	17,79	0,00	0,00		0,00	0,00	0,00	0,00		
O_2	Mol.-%	0,00	20,21	20,21		1,00	0,87	0,00	0,00		
H_2O	Mol.-%	0,25	3,56	3,56		24,15	24,74	100,00	100,00		
NO	ppmv	0	0	0		4951	1	0	0		
NO_2	ppmv	0	0	0		5	0	0	0		
N_2O	ppmv	0	0	0		10	0	0	0		
Massestrom	kg/h	35831	72851	72851		108682	109039	27237	27237		
molarer Strom	kmol/h	1816	2549	2549		4226	4252	1512	1512		
Temperatur	°C	26,0	44,3	500,0		870,2	366,4	130,5	230,0		

[0507] Prozessvariante #2:

Prozessvariante 2A		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
CO_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	
Ar	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	
H_2	Mol.-%	0,00	0,00	33,06	33,06			74,29	0,00	28,81	
N_2	Mol.-%	0,00	0,00	11,02	11,02			24,76	0,00	68,55	
NH_3	Mol.-%	99,81	99,81	55,77	55,77			0,86	99,81	2,37	
O_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	
H_2O	Mol.-%	0,19	0,19	0,15	0,15			0,10	0,19	0,26	
NO	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	
NO_2	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	
N_2O	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	
Massestrom	kg/h	37669	37669	37669	37669			37669	3963	32003	
molarer Strom	kmol/h	2212	2212	2837	2837			4382	233	1582	
Temperatur	°C	280,2	650,0	360,0	580,0	0,0	27,0	680,0	22,8	27,0	
		11	**12**	**13**	**14**	**15**	**24**	**25**	**26**	**27**	**28**
CO_2	Mol.-%	0,00	0,03	0,03		0,02	0,02	0,00	0,00		
Ar	Mol.-%	0,00	0,90	0,90		0,52	0,52	0,00	0,00		
H_2	Mol.-%	25,12	0,00	0,00		0,00	0,00	0,00	0,00		
N_2	Mol.-%	59,76	75,30	75,30		74,61	74,62	0,00	0,00		
NH_3	Mol.-%	14,87	0,00	0,00		0,00	0,00	0,00	0,00		
O_2	Mol.-%	0,00	20,21	20,21		1,00	0,99	0,00	0,00		
H_2O	Mol.-%	0,25	3,56	3,56		23,79	23,85	100,00	100,00		
NO	ppmv	0	0	0		499	0	0	0		
NO_2	ppmv	0	0	0		5	0	0	0		
N_2O	ppmv	0	0	0		10	0	0	0		
Massestrom	kg/h	35966	66586	66586		102552	102586	27237	27237		
molarer Strom	kmol/h	1814	2330	2330		3984	3987	1512	1512		
Temperatur	°C	26,2	44,3	296,7		919,7	200,9	130,5	230,0		

Prozessvariante 2B		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
CO_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	
Ar	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	
H_2	Mol.-%	0,00	0,00	33,06	33,06			74,29	0,00	28,81	
N_2	Mol.-%	0,00	0,00	11,02	11,02			24,76	0,00	68,55	

NH_3	Mol.-%	99,81	99,81	55,77	55,77			0,86	99,81	2,37	
O_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	
H_2O	Mol.-%	0,19	0,19	0,15	0,15			0,10	0,19	0,26	
NO	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	
NO_2	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	
N_2O	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	
Massestrom	kg/h	37500	37500	37500	37500			37500	3826	31859	
molarer Strom	kmol/h	2202	2202	2824	2824			4362	225	1574	
Temperatur	°C	278,5	650,0	360,0	580,0			680,0	22,8	27,0	
		11	**12**	**13**	**14**	**15**	**24**	**25**	**26**	**27**	**28**
CO_2	Mol.-%	0,00	0,03	0,03		0,02	0,02	0,00	0,00		
Ar	Mol.-%	0,00	0,90	0,90		0,53	0,52	0,00	0,00		
H_2	Mol.-%	25,22	0,00	0,00		0,00	0,00	0,00	0,00		
N_2	Mol.-%	59,99	75,30	75,30		74,47	74,50	0,00	0,00		
NH_3	Mol.-%	14,54	0,00	0,00		0,00	0,00	0,00	0,00		
O_2	Mol.-%	0,00	20,21	20,21		1,00	0,87	0,00	0,00		
H_2O	Mol.-%	0,26	3,56	3,56		23,48	24,09	100,00	100,00		
NO	ppmv	0	0	0		5019	1	0	0		
NO_2	ppmv	0	0	0		5	0	0	0		
N_2O	ppmv	0	0	0		10	0	0	0		
Massestrom	kg/h	35685	66830	66830		102515	102856	27237	27237		
molarer Strom	kmol/h	1799	2339	2339		3976	4001	1512	1512		
Temperatur	°C	26,2	44,3	351,5		919,6	225,8	130,5	230,0		

[0508] Prozessvariante #3:

Prozessvariante 3A		**1**	**2**	**3**	**4**	**5**	**6**	**7**	**8**	**9**	**10**
CO_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	
Ar	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	
H_2	Mol.-%	0,00	0,00	21,45	21,45	33,48	33,48	74,28	0,00	28,81	
N_2	Mol.-%	0,00	0,00	7,15	7,15	11,16	11,16	24,76	0,00	68,54	
NH_3	Mol.-%	99,81	99,81	71,23	71,23	55,21	55,21	0,86	99,81	2,39	
O_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	
H_2O	Mol.-%	0,19	0,19	0,16	0,16	0,15	0,15	0,10	0,19	0,26	
NO	ppmv	0	0	0	0	0	0	0	0	0	
NO_2	ppmv	0	0	0	0	0	0	0	0	0	
N_2O	ppmv	0	0	0	0	0	0	0	0	0	

Massestrom	kg/h	37228	37228	37228	37228	37228	37228	37228	4403	31630	
molarer Strom	kmol/h	2186	2186	2551	2551	2814	2814	4330	259	1563	
Temperatur	°C	276,3	650,0	480,0	630,0	510,0	580,0	680,0	22,8	27,0	
		11	**12**	**13**	**14**	**15**	**24**	**25**	**26**	**27**	**28**
CO_2	Mol.-%	0,00	0,03	0,03		0,02	0,02	0,00	0,00		
Ar	Mol.-%	0,00	0,90	0,90		0,53	0,53	0,00	0,00		
H_2	Mol.-%	24,72	0,00	0,00		0,00	0,00	0,00	0,00		
N_2	Mol.-%	58,81	75,30	75,30		74,33	74,33	0,00	0,00		
NH_3	Mol.-%	16,21	0,00	0,00		0,00	0,00	0,00	0,00		
O_2	Mol.-%	0,00	20,21	20,21		1,00	0,99	0,00	0,00		
H_2O	Mol.-%	0,25	3,56	3,56		24,07	24,13	100,00	100,00		
NO	ppmv	0	0	0		499	0	0	0		
NO_2	ppmv	0	0	0		5	0	0	0		
N_2O	ppmv	0	0	0		10	0	0	0		
Massestrom	kg/h	360333	690663	690663		1050956	1051311	27237	27237		
molarer Strom	kmol/h	1822	2417	2417		4087	4090	1512	1512		
Temperatur	°C	26,1	44,3	436,0		1030,1	262,1	130,5	230,0		

Prozessvariante 3B		**1**	**2**	**3**	**4**	**5**	**6**	**7**	**8**	**9**	**10**
CO_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	
Ar	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	
H_2	Mol.-%	0,00	0,00	21,45	21,45	33,48	33,48	74,28	0,00	28,81	
N_2	Mol.-%	0,00	0,00	7,15	7,15	11,16	11,16	24,76	0,00	68,54	
NH_3	Mol.-%	99,81	99,81	71,23	71,23	55,21	55,21	0,86	99,81	2,39	
O_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	
H_2O	Mol.-%	0,19	0,19	0,16	0,16	0,15	0,15	0,10	0,19	0,26	
NO	ppmv	0	0	0	0	0	0	0	0	0	
NO_2	ppmv	0	0	0	0	0	0	0	0	0	
N_2O	ppmv	0	0	0	0	0	0	0	0	0	
Massestrom	kg/h	37058	37058	37058	37058	37058	37058	37058	4260	31484	
molarer Strom	kmol/h	2176	2176	2539	2539	2801	2801	4310	250	1556	
Temperatur	°C	274,6	650,0	480,0	630,0	510,0	580,0	680,0	22,8	27,0	
		11	**12**	**13**	**14**	**15**	**24**	**25**	**26**	**27**	**28**
CO_2	Mol.-%	0,00	0,03	0,03		0,02	0,02	0,00	0,00		
Ar	Mol.-%	0,00	0,90	0,90		0,53	0,53	0,00	0,00		

H_2	Mol.-%	24,82	0,00	0,00		0,00	0,00	0,00	0,00		
N_2	Mol.-%	59,05	75,30	75,30		74,18	74,22	0,00	0,00		
NH_3	Mol.-%	15,88	0,00	0,00		0,00	0,00	0,00	0,00		
O_2	Mol.-%	0,00	20,21	20,21		1,00	0,87	0,00	0,00		
H_2O	Mol.-%	0,25	3,56	3,56		23,76	24,36	100,00	100,00		
NO	ppmv	0	0	0		5013	1	0	0		
NO_2	ppmv	0	0	0		5	0	0	0		
N_2O	ppmv	0	0	0		10	0	0	0		
Massestrom	kg/h	35744	69301	69301		105045	105395	27237	27237		
molarer Strom	kmol/h	1806	2425	2425		4079	4104	1512	1512		
Temperatur	°C	26,2	44,3	487,9		1030,1	286,1	130,5	230,0		

[0509] Prozessvariante #4:

Prozessvariante 4A		**1**	**2**	**3**	**4**	**5**	**6**	**7**	**8**	**9**	**10**
CO_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	
Ar	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	
H_2	Mol.-%	0,00	0,00	33,06	33,06			74,29	0,00	28,81	
N_2	Mol.-%	0,00	0,00	11,02	11,02			24,76	0,00	68,55	
NH_3	Mol.-%	99,81	99,81	55,77	55,77			0,86	99,81	2,37	
O_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	
H_2O	Mol.-%	0,19	0,19	0,15	0,15			0,10	0,19	0,26	
NO	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	
NO_2	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	
N_2O	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	
Massestrom	kg/h	38059	38059	38059	38059			38059	3573	32334	
molarer Strom	kmol/h	2235	2235	2866	2866			4427	210	1598	
Temperatur	°C	284,0	650,0	360,0	580,0			680,0	22,8	27,0	
		11	**12**	**13**	**14**	**15**	**24**	**25**	**26**	**27**	**28**
CO_2	Mol.-%	0,00	0,03	0,03	0,03	0,02	0,02	0,00	0,00		
Ar	Mol.-%	0,00	0,90	0,90	0,90	0,52	0,52	0,00	0,00		
H_2	Mol.-%	25,47	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00		
N_2	Mol.-%	60,59	75,30	75,30	75,30	74,88	74,88	0,00	0,00		
NH_3	Mol.-%	13,68	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00		
O_2	Mol.-%	0,00	20,21	20,21	20,21	1,00	0,99	0,00	0,00		

H_2O	Mol.-%	0,26	3,56	3,56	3,56	23,53	23,60	100,00	100,00		
NO	ppmv	0	0	0	0	511	0	0	0		
NO_2	ppmv	0	0	0	0	5	0	0	0		
N_2O	ppmv	0	0	0	0	10	0	0	0		
Massestrom	kg/h	35908	64408	64408	64408	100316	100351	27237	27237		
molarer Strom	kmol/h	1808	2254	2254	2254	3893	3896	1512	1512		
Temperatur	°C	26,3	44,3	167,2	386,6	929,4	143,8	130,5	230,0		

Prozessvariante 4B		**1**	**2**	**3**	**4**	**5**	**6**	**7**	**8**	**9**	**10**
CO_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	
Ar	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	
H_2	Mol.-%	0,00	0,00	33,06	33,06			74,29	0,00	28,81	
N_2	Mol.-%	0,00	0,00	11,02	11,02			24,76	0,00	68,55	
NH_3	Mol.-%	99,81	99,81	55,77	55,77			0,86	99,81	2,37	
O_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	
H_2O	Mol.-%	0,19	0,19	0,15	0,15			0,10	0,19	0,26	
NO	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	
NO_2	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	
N_2O	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	
Massestrom	kg/h	37891	37891	37891	37891			37891	3442	32192	
molarer Strom	kmol/h	2225	2225	2854	2854			4407	202	1591	
Temperatur	°C	282,4	650,0	360,0	580,0			680,0	22,8	27,0	
		11	**12**	**13**	**14**	**15**	**24**	**25**	**26**	**27**	**28**
CO_2	Mol.-%	0,00	0,03	0,03	0,03	0,02	0,02	0,00	0,00		
Ar	Mol.-%	0,00	0,90	0,90	0,90	0,52	0,52	0,00	0,00		
H_2	Mol.-%	25,57	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00		
N_2	Mol.-%	60,82	75,30	75,30	75,30	74,73	74,76	0,00	0,00		
NH_3	Mol.-%	13,36	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00		
O_2	Mol.-%	0,00	20,21	20,21	20,21	1,00	0,87	0,00	0,00		
H_2O	Mol.-%	0,26	3,56	3,56	3,56	23,23	23,83	100,00	100,00		
NO	ppmv	0	0	0	0	5019	1	0	0		
NO_2	ppmv	0	0	0	0	5	0	0	0		
N_2O	ppmv	0	0	0	0	10	0	0	0		
Massestrom	kg/h	35634	64664	64664	64664	100298	100631	27237	27237		
molarer Strom	kmol/h	1793	2263	2263	2263	3887	3911	1512	1512		
Temperatur	°C	26,3	44,3	224,4	439,8	929,4	169,5	130,5	230,0		

[0510] Prozessvariante #5:

Prozessvariante 5A		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
CO_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	0,00
Ar	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	0,00
H_2	Mol.-%	0,00	0,00	33,06	33,06			74,29	0,00	28,81	28,81
N_2	Mol.-%	0,00	0,00	11,02	11,02			24,76	0,00	68,55	68,55
NH_3	Mol.-%	99,81	99,81	55,77	55,77			0,86	99,81	2,37	2,37
O_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	0,00
H_2O	Mol.-%	0,19	0,19	0,15	0,15			0,10	0,19	0,26	0,26
NO	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	0
NO_2	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	0
N_2O	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	0
Massestrom	kg/h	38355	38355	38355	38355			38355	3279	32586	32586
molarer Strom	kmol/h	2252	2252	2889	2889			4461	193	1610	1610
Temperatur	°C	321,2	650,0	360,0	580,0			680,0	22,8	27,0	81,4
		11	**12**	**13**	**14**	**15**	**24**	**25**	**26**	**27**	**28**
CO_2	Mol.-%	0,00	0,03	0,03	0,03	0,02	0,02	0,00	0,00	0,00	0,00
Ar	Mol.-%	0,00	0,90	0,90	0,90	0,52	0,51	0,00	0,00	0,00	0,00
H_2	Mol.-%	25,74	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
N_2	Mol.-%	61,23	75,30	75,30	75,30	75,09	75,09	0,00	0,00	0,00	0,00
NH_3	Mol.-%	12,78	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
O_2	Mol.-%	0,00	20,21	20,21	20,21	1,00	0,99	0,00	0,00	0,00	0,00
H_2O	Mol.-%	0,26	3,56	3,56	3,56	23,33	23,39	100,00	100,00	100,00	100,00
NO	ppmv	0	0	0	0	496	0	0	0	0	0
NO_2	ppmv	0	0	0	0	5	0	0	0	0	0
N_2O	ppmv	0	0	0	0	10	0	0	0	0	0
Massestrom	kg/h	35865	62767	62767	62767	98632	98665	25350	25350	24736	24736
molarer Strom	kmol/h	1803	2197	2197	2197	3825	3827	1407	1407	1373	1373
Temperatur	°C	73,8	44,3	175,4	381,3	909,2	88,0	130,5	230,0	76,1	30,0

Prozessvariante 5B		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
CO_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	0,00
Ar	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	0,00
H_2	Mol.-%	0,00	0,00	33,06	33,06			74,29	0,00	28,81	28,81
N_2	Mol.-%	0,00	0,00	11,02	11,02			24,76	0,00	68,55	68,55
NH_3	Mol.-%	99,81	99,81	55,77	55,77			0,86	99,81	2,37	2,37

O_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	0,00
H_2O	Mol.-%	0,19	0,19	0,15	0,15			0,10	0,19	0,26	0,26
NO	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	0
NO_2	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	0
N_2O	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	0
Massestrom	kg/h	38296	38296	38296	38296			38296	3046	32536	32536
molarer Strom	kmol/h	2248	2248	2884	2884			4455	179	1608	1608
Temperatur	°C	339,1	650,0	360,0	580,0			680,0	22,8	27,0	81,5
		11	**12**	**13**	**14**	**15**	**24**	**25**	**26**	**27**	**28**
CO_2	Mol.-%	0,00	0,03	0,03	0,03	0,02	0,02	0,00	0,00	0,00	0,00
Ar	Mol.-%	0,00	0,90	0,90	0,90	0,52	0,51	0,00	0,00	0,00	0,00
H_2	Mol.-%	25,93	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
N_2	Mol.-%	61,69	75,30	75,30	75,30	75,02	75,05	0,00	0,00	0,00	0,00
NH_3	Mol.-%	12,13	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
O_2	Mol.-%	0,00	20,21	20,21	20,21	1,00	0,87	0,00	0,00	0,00	0,00
H_2O	Mol.-%	0,26	3,56	3,56	3,56	22,95	23,55	100,00	100,00	100,00	100,00
NO	ppmv	0	0	0	0	5001	1	0	0	0	0
NO_2	ppmv	0	0	0	0	5	0	0	0	0	0
N_2O	ppmv	0	0	0	0	10	0	0	0	0	0
Massestrom	kg/h	35582	62422	62422	62422	98004	98329	23982	23982	23407	23407
molarer Strom	kmol/h	1787	2185	2185	2185	3794	3818	1331	1331	1299	1299
Temperatur	°C	74,3	44,3	243,6	435,1	899,1	88,0	130,5	230,0	114,3	30,0

[0511] Prozessvariante #6:

Prozessvariante 6A		**1**	**2**	**3**	**4**	**5**	**6**	**7**	**8**	**9**	**10**
CO_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	0,00
Ar	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	0,00
H_2	Mol.-%	0,00	0,00	33,06	33,06			74,29	0,00	28,81	28,81
N_2	Mol.-%	0,00	0,00	11,02	11,02			24,76	0,00	68,55	68,55
NH_3	Mol.-%	99,81	99,81	55,77	55,77			0,86	99,81	2,37	2,37
O_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	0,00
H_2O	Mol.-%	0,19	0,19	0,15	0,15			0,10	0,19	0,26	0,26
NO	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	0
NO_2	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	0
N_2O	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	0
Massestrom	kg/h	38749	38749	38749	38749			38749	2885	32921	32921
molarer Strom	kmol/h	2275	2275	2918	2918			4507	169	1627	1627

Temperatur	°C	371,9	650,0	360,0	580,0			680,0	22,8	27,0	113,2
		11	**12**	**13**	**14**	**15**	**24**	**25**	**26**	**27**	**28**
CO_2	Mol.-%	0,00	0,03	0,03	0,03	0,02	0,02	0,00	0,00	0,00	0,00
Ar	Mol.-%	0,00	0,90	0,90	0,90	0,51	0,51	0,00	0,00	0,00	0,00
H_2	Mol.-%	26,10	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
N_2	Mol.-%	62,09	75,30	75,30	75,30	75,38	75,38	0,00	0,00	0,00	0,00
NH_3	Mol.-%	11,56	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
O_2	Mol.-%	0,00	20,21	20,21	20,21	1,00	0,99	0,00	0,00	0,00	0,00
H_2O	Mol.-%	0,26	3,56	3,56	3,56	23,04	23,11	100,00	100,00	100,00	100,00
NO	ppmv	0	0	0	0	508	0	0	0	0	0
NO_2	ppmv	0	0	0	0	5	0	0	0	0	0
N_2O	ppmv	0	0	0	0	10	0	0	0	0	0
Massestrom	kg/h	35806	60561	60561	60561	96366	96399	21782	21782	21270	21270
molarer Strom	kmol/h	1796	2119	2119	2119	3733	3736	1209	1209	1181	1181
Temperatur	°C	102,7	44,3	196,0	374,6	878,9	88,0	130,5	230,0	76,8	30,0

Prozessvariante 6B		**1**	**2**	**3**	**4**	**5**	**6**	**7**	**8**	**9**	**10**
CO_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	0,00
Ar	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	0,00
H_2	Mol.-%	0,00	0,00	33,06	33,06			74,29	0,00	28,81	0,00
N_2	Mol.-%	0,00	0,00	11,02	11,02			24,76	0,00	68,55	0,00
NH_3	Mol.-%	99,81	99,81	55,77	55,77			0,86	99,81	2,37	0,00
O_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	0,00
H_2O	Mol.-%	0,19	0,19	0,15	0,15			0,10	0,19	0,26	0,00
NO	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	0
NO_2	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	0
N_2O	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	0
Massestrom	kg/h	38932	38932	38932	38932			38932	2423	33076	0
molarer Strom	kmol/h	2286	2286	2932	2932			4528	142	1635	0
Temperatur	°C	419,3	650,0	360,0	580,0			680,0	22,8	27,0	0,0
		11	**12**	**13**	**14**	**15**	**24**	**25**	**26**	**27**	**28**
CO_2	Mol.-%	0,00	0,03	0,03	0,03	0,02	0,02	0,00	0,00	0,00	0,00
Ar	Mol.-%	0,00	0,90	0,90	0,90	0,51	0,50	0,00	0,00	0,00	0,00
H_2	Mol.-%	26,51	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
N_2	Mol.-%	63,06	75,30	75,30	75,30	75,49	75,52	0,00	0,00	0,00	0,00
NH_3	Mol.-%	10,17	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00

O_2	Mol.-%	0,00	20,21	20,21	20,21	1,00	0,87	0,00	0,00	0,00	0,00
H_2O	Mol.-%	0,26	3,56	3,56	3,56	22,48	23,09	100,00	100,00	100,00	100,00
NO	ppmv	0	0	0	0	4998	0	0	0	0	0
NO_2	ppmv	0	0	0	0	5	0	0	0	0	0
N_2O	ppmv	0	0	0	0	10	0	0	0	0	0
Massestrom	kg/h	35499	58902	58902	58902	94400	94712	18268	18268	17857	17857
molarer Strom	kmol/h	1777	2061	2061	2061	3648	3671	1014	1014	991	991
Temperatur	°C	153,3	44,3	310,6	457,6	878,6	120,5	130,5	230,0	81,4	30,0

[0512] Prozessvariante #7:

Prozessvariante 7A		**1**	**2**	**3**	**4**	**5**	**6**	**7**	**8**	**9**	**10**
CO_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	0,00
Ar	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	0,00
H_2	Mol.-%	0,00	0,00	33,06	33,06			74,29	0,00	28,81	28,81
N_2	Mol.-%	0,00	0,00	11,02	11,02			24,76	0,00	68,55	68,55
NH_3	Mol.-%	99,81	99,81	55,77	55,77			0,86	99,81	2,37	2,37
O_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	0,00
H_2O	Mol.-%	0,19	0,19	0,15	0,15			0,10	0,19	0,26	0,26
NO	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	0
NO_2	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	0
N_2O	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	0
Massestrom	kg/h	38355	38355	38355	38355			38355	3279	32586	32586
molarer Strom	kmol/h	2252	2252	2889	2889			4461	193	1610	1610
Temperatur	°C	321,2	650,0	360,0	580,0			680,0	22,8	27,0	81,4
		11	**12**	**13**	**14**	**15**	**24**	**25**	**26**	**27**	**28**
CO_2	Mol.-%	0,00	0,03	0,03	0,03	0,02	0,02	0,00	0,00	0,00	0,00
Ar	Mol.-%	0,00	0,90	0,90	0,90	0,52	0,51	0,00	0,00	0,00	0,00
H_2	Mol.-%	25,74	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
N_2	Mol.-%	61,23	75,30	75,30	75,30	75,09	75,09	0,00	0,00	0,00	0,00
NH_3	Mol.-%	12,78	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
O_2	Mol.-%	0,00	20,21	20,21	20,21	1,00	0,99	0,00	0,00	0,00	0,00
H_2O	Mol.-%	0,26	3,56	3,56	3,56	23,33	23,39	100,00	100,00	100,00	100,00
NO	ppmv	0	0	0	0	496	0	0	0	0	0
NO_2	ppmv	0	0	0	0	5	0	0	0	0	0
N_2O	ppmv	0	0	0	0	10	0	0	0	0	0
Massestrom	kg/h	35865	62767	62767	62767	98632	98665	25350	25350	24736	24736
molarer Strom	kmol/h	1803	2197	2197	2197	3825	3827	1407	1407	1373	1373

Temperatur	°C	73,8	44,3	175,4	381,3	909,2	88,0	130,5	230,0	76,1	30,0

Prozessvariante 7B		**1**	**2**	**3**	**4**	**5**	**6**	**7**	**8**	**9**	**10**
CO_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	0,00
Ar	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	0,00
H_2	Mol.-%	0,00	0,00	33,06	33,06			74,29	0,00	28,81	28,81
N_2	Mol.-%	0,00	0,00	11,02	11,02			24,76	0,00	68,55	68,55
NH_3	Mol.-%	99,81	99,81	55,77	55,77			0,86	99,81	2,37	2,37
O_2	Mol.-%	0,00	0,00	0,00	0,00			0,00	0,00	0,00	0,00
H_2O	Mol.-%	0,19	0,19	0,15	0,15			0,10	0,19	0,26	0,26
NO	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	0
NO_2	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	0
N_2O	ppmv	0	0	0	0			0	0	0	0
Massestrom	kg/h	38781	38781	38781	38781			38781	2569	32948	32948
molarer Strom	kmol/h	2277	2277	2921	2921			4511	151	1628	1628
Temperatur	°C	405,5	650,0	360,0	580,0			680,0	22,8	27,0	123,7
		11	**12**	**13**	**14**	**15**	**24**	**25**	**26**	**27**	**28**
CO_2	Mol.-%	0,00	0,03	0,03	0,03	0,02	0,02	0,00	0,00	0,00	0,00
Ar	Mol.-%	0,00	0,90	0,90	0,90	0,51	0,51	0,00	0,00	0,00	0,00
H_2	Mol.-%	26,37	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
N_2	Mol.-%	62,74	75,30	75,30	75,30	75,38	75,41	0,00	0,00	0,00	0,00
NH_3	Mol.-%	10,63	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
O_2	Mol.-%	0,00	20,21	20,21	20,21	1,00	0,87	0,00	0,00	0,00	0,00
H_2O	Mol.-%	0,26	3,56	3,56	3,56	22,59	23,20	100,00	100,00	100,00	100,00
NO	ppmv	0	0	0	0	5034	1	0	0	0	0
NO_2	ppmv	0	0	0	0	5	0	0	0	0	0
N_2O	ppmv	0	0	0	0	10	0	0	0	0	0
Massestrom	kg/h	35516	59731	59731	59731	95248	95565	27473	27473	26799	26799
molarer Strom	kmol/h	1779	2090	2090	2090	3682	3705	1525	1525	1488	1488
Temperatur	°C	113,0	44,3	217,4	440,6	868,7	88,9	130,5	230,0	72,5	30,0

[0513] Massenbilanzen und Temperaturprofile sind in nachfolgender Tabelle zusammengefasst:

Prozessvariante		cNO_X [ppmv]	Temperatur			H_2 Ausbeute [%]	Wärmerückgewinnung [%]
			Abgaseintritt [°C]	Eintritt $DeNO_X$ [°C]	Abgas [°C]		
1	A	500	870,0	643,9	310,2	74,8	71,6
	B	5000	870,2	646,5	366,4	73,9	64,4
2	A	500	919,7	429,3	200,9	76,4	86,4
	B	5000	919,6	429,0	225,8	76,1	83,4
3	A	500	1030,1	563,4	262,1	75,5	81,5

	B	5000	1030,1	563,0	286,1	75,2	79,0
4	A	500	929,4	425,3	143,8	77,2	93,4
	B	5000	929,4	425,1	169,5	76,9	90,3
5	A	500	909,2	420,2	88,0	77,8	100,0
	B	5000	899,1	420,5	88,0	77,7	100,0
6	A	500	878,9	413,3	88,0	78,6	100,0
	B	5000	878,6	443,4	120,5	79,0	95,9
7	A	500	909,2	420,2	88,0	77,8	100,0
	B	5000	868,7	425,7	88,9	78,7	99,9

[0514] Durch Wahl geeigneter Wärmetauscher im Abgaskanal in geeigneter Anordnung ist es erfindungsgemäß möglich, die Wärmerückgewinnung des Abgaskanals bis an das theoretische Maximum des Taupunktes von Wasser plus Sicherheitsabstand zu führen. Wärmerückgewinnung und H_2-Ausbeute zeigen eine deutliche Korrelation. Durch eine hoch integrierte Wärmerückgewinnung kann die H_2-Ausbeute um mehr als 4 % gesteigert werden.

[0515] Das flache Temperaturprofil, welches eine starke Wärmeintegration erlaubt, verringert zudem die erforderliche Eintrittstemperatur des Abgases in den Abgaskanal. Dies verringert Oberflächentemperaturen an den stromaufwärts angeordneten Wärmetauschern und erlaubt die Nutzung einfacherer Materialien.

[0516] Bezugszeichenliste:

(Q1) erster Abgas/NH_3-Wärmetauscher

(Q2) zweiter Abgas/NH_3-Wärmetauscher

(Q3) dritter Abgas/NH_3-Wärmetauscher

(Q4) erster Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher

(Q5) erster Abgas/H_2O-Wärmetauscher

(Q6) zweiter Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher

(Q7) Abgas/Verbrennungsgas-Wärmetauscher

(Q8) zweiter Abgas/H_2O-Wärmetauscher

(1) NH_3-Zersetzungseinrichtung

(2) Verbrennungseinrichtung

(3) Abgaskanal

(4) Abgasbehandlungsanlage

(5) Ventilator

(6) Kamin

(7) Druckwechseladsorptionsvorrichtung

Patentansprüche:

1. Ein Verfahren zur Verminderung des Gehalts an NO_X und N_2O im Abgas einer mit NH_3 betriebenen Feuerungsanlage, wobei das Verfahren folgende Schritte umfasst:

   (a) Verbrennen von NH_3 zum Betrieb der Feuerungsanlage, bevorzugt umfassend eine Verbrennungseinrichtung und eine NH_3-Zersetzungseinrichtung, zum katalytischen Zersetzen von NH_3 in N_2 und H_2, unter Erzeugung eines Abgases, welches N_2, H_2O, NO_X und N_2O umfasst und welches die Feuerungsanlage verlässt;

   (b) optional und bevorzugt Abkühlen des Abgases in mindestens einem Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Feuerungsanlage angeordnet ist;

   (c) Überführen des optional abgekühlten Abgases in eine Abgasbehandlungsanlage;

   (d) Vermindern des Gehalts an N_2O im Abgas durch

      (d_1) Zersetzung von N_2O an einem N_2O-Zersetzungskatalysator und/oder

      (d_2) chemische Reduktion von N_2O mit Reduktionsmittel an einem N_2O-Reduktionskatalysator;

   (e) Vermindern des Gehalts an NO_X im Abgas durch chemische Reduktion von NO_X mit Reduktionsmittel an einem NO_X-Reduktionskatalysator; und

   (f) optional und bevorzugt Abkühlen des Abgases in mindestens einem Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist.

2. Das Verfahren nach Anspruch 1, zur Verminderung des Gehalts an NO_X und N_2O im Abgas einer mit NH_3 und H_2 betriebenen Feuerungsanlage, welche in eine Anlage zur katalytischen Zersetzung von NH_3 zu N_2 und H_2 integriert ist, wobei das Verfahren folgende Schritte umfasst:

   (a) Verbrennen von NH_3 und H_2 zum Betrieb der Feuerungsanlage (bevorzugt in einer Verbrennungseinrichtung) unter Erzeugung eines Abgases, welches N_2, H_2O, NO_X und N_2O umfasst und die Feuerungsanlage verlässt;

   (b) optional und bevorzugt Abkühlen des Abgases in mindestens einem Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Feuerungsanlage angeordnet ist;

   (c) Überführen des optional abgekühlten Abgases in eine Abgasbehandlungsanlage, welche in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Feuerungsanlage und ggf. des mindestens einen Wärmetauschers angeordnet ist;

   (d) Vermindern des Gehalts an N_2O im Abgas durch
   (d_1) Zersetzung von N_2O an einem N_2O-Zersetzungskatalysator und/oder

(d_2) chemische Reduktion von N_2O mit Reduktionsmittel an einem N_2O-Reduktionskatalysator;

(e) Vermindern des Gehalts an NO_X im Abgas durch chemische Reduktion von NO_X mit Reduktionsmittel an einem NO_X-Reduktionskatalysator; und

(f) optional und bevorzugt Abkühlen des Abgases in mindestens einem Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist.

3. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei in Schritt (b) das Abkühlen des Abgases in dem mindestens einen Wärmetauscher durch Abgabe von Wärme aus dem Abgas an ein Wärmeträgermedium erfolgt, wobei als Wärmeträgermedium bevorzugt NH_3 dient, welches dann anschließend der katalytischen Zersetzung in einer NH_3-Zersetzungseinrichtung an einem NH_3-Zersetzungskatalysator zugeführt wird.

4. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei in Schritt (b) das Abkühlen des Abgases in mindestens einem ersten Abgas/NH_3-Wärmetauscher erfolgt, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Feuerungsanlage angeordnet ist.

5. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei in Schritt (b) das Abkühlen des Abgases erfolgt
   - in einem ersten Abgas/NH_3-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Feuerungsanlage angeordnet ist, sowie
   - in einem zweiten Abgas/NH_3-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/NH_3-Wärmetauschers angeordnet ist.

6. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei in Schritt (b) das Abkühlen des Abgases erfolgt
   - in einem ersten Abgas/NH_3-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Feuerungsanlage angeordnet ist,
   - in einem zweiten Abgas/NH_3-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/NH_3-Wärmetauschers angeordnet ist, sowie
   - in einem dritten Abgas/NH_3-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des zweiten Abgas/NH_3-Wärmetauschers angeordnet ist.

7. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas in Schritt (b) auf eine Temperatur T_2 abgekühlt wird im Bereich von 400 bis 450°C, bevorzugter 400 bis 420°C.

8. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei der N_2O-Zersetzungskatalysator und/oder der N_2O-Reduktionskatalysator und/oder der NO_X-Reduktionskatalysator unabhängig voneinander ein zeolithisches Material umfasst; bevorzugt einen mit Übergangsmetall (einschließlich Lanthanid), insbesondere mit Eisen, Kobalt oder Kupfer beladenen Zeolith; bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith; noch bevorzugter unabhängig voneinander einen mit Eisen beladenen Zeolith vom Strukturtyp MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder MEL.

9. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei der N_2O-Zersetzungskatalysator und/oder der N_2O-Reduktionskatalysator sowie der NO_X-Reduktionskatalysator jeweils unabhängig voneinander mit Übergangsmetall beladene Zeolithe umfassen, bevorzugter jeweils mit Eisen beladene Zeolithe (Fe-Zeolithe), noch bevorzugter jeweils mit Eisen beladene Zeolithe vom gleichen Strukturtyp, am bevorzugtesten mit gleicher äußerer Form.

10. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei der N_2O-Zersetzungskatalysator und der N_2O-Reduktionskatalysator aus dem gleichen Material sind.

11. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei der N_2O-Zersetzungskatalysator und der NO_X-Reduktionskatalysator aus dem gleichen Material sind.

12. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei der N_2O-Reduktionskatalysator und der NO_X-Reduktionskatalysator aus dem gleichen Material sind.

13. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei der N_2O-Zersetzungskatalysator, der N_2O-Reduktionskatalysator und der NO_X-Reduktionskatalysator aus dem gleichen Material sind.

14. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei in Schritt (a) die Verbrennung von NH_3 nicht an einem Katalysator erfolgt.

15. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei in Schritt (a) NH_3 im Gemisch mit H_2 verbrannt wird und wobei der Anteil von H_2 im Gemisch mit NH_3 höchstens 80 Mol.-%, bevorzugter höchstens 70 Mol.-%, noch bevorzugter höchstens 60 Mol.-%, am bevorzugtesten höchstens 50 Mol.-%, und insbesondere höchstens 40 Mol.-% beträgt.

16. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei in Schritt (a) NH_3 im Gemisch mit H_2 verbrannt wird und wobei der Anteil von H_2 im Gemisch mit NH_3 mindestens 10 Mol.-%,

bevorzugter mindestens 20 Mol.-%, noch bevorzugter mindestens 30 Mol.-%, am bevorzugtesten mindestens 40 Mol.-%, und insbesondere mindestens 50 Mol.-% beträgt.

17. Das Verfahren nach Anspruch 15 oder 16, wobei das molare Verhältnis von H_2 : NH_3 im Gemisch im Bereich von 45:55 bis 90:10, bevorzugt 50:50 bis 85:15, bevorzugter 55:45 bis 80:20, noch bevorzugter 60:40 bis 75:25, am bevorzugtesten 65:35 bis 70:30 liegt.

18. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei die Luftzahl λ im Bereich von 0,9 bis 1,7, bevorzugter 1,0 bis 1,6, noch bevorzugter 1,1 bis 1,5, am bevorzugtesten 1,2 bis 1,4 liegt.

19. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei die Feuerungsanlage eine Verbrennungseinrichtung zum Verbrennen von NH_3 und eine NH_3-Zersetzungseinrichtung zum Spalten von NH_3 in N_2 und H_2 umfasst.

20. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas einen Gehalt an NO_X aufweist, welcher größer ist als der Gehalt an N_2O; bevorzugt wobei der Gehalt an NO_X mindestens doppelt so groß, bevorzugter mindestens dreimal so groß, noch bevorzugter mindestens viermal so groß, am bevorzugtesten mindestens siebenmal so groß und insbesondere mindestens zehnmal so groß ist wie der Gehalt an N_2O; bevorzugt wobei das molare Verhältnis von NO_X:N_2O mehr als 10:1 beträgt, bevorzugter mindestens 20:1, noch bevorzugter mindestens 30:1, am bevorzugtesten mindestens 40:1, und insbesondere mindestens 50:1.

21. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas einen Gehalt an NO aufweist, welcher größer ist als der Gehalt an N_2O; bevorzugt wobei der Gehalt an NO mindestens doppelt so groß, bevorzugter mindestens dreimal so groß, noch bevorzugter mindestens viermal so groß, am bevorzugtesten mindestens siebenmal so groß und insbesondere mindestens zehnmal so groß ist wie der Gehalt an N_2O.

22. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas einen Gehalt an NO_2 aufweist, welcher größer ist als der Gehalt an N_2O; bevorzugt wobei der Gehalt an NO_2 mindestens doppelt so groß, bevorzugter mindestens dreimal so groß, noch bevorzugter mindestens viermal so groß, am bevorzugtesten mindestens siebenmal so groß und insbesondere mindestens zehnmal so groß ist wie der Gehalt an N_2O.

23. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas einen Gehalt an NO_X von mindestens 10 ppmv, bevorzugt mindestens 20 ppmv, bevorzugter mindestens 30 ppmv, noch bevorzugter mindestens 40 ppmv, und insbesondere mindestens 50 ppmv aufweist.

24. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas einen Gehalt an NO_X von mindestens 75 ppmv, bevorzugt mindestens 100 ppmv, bevorzugter mindestens 150 ppmv, noch bevorzugter mindestens 200 ppmv, und insbesondere mindestens 250 ppmv aufweist.

25. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas einen Gehalt an NO_X von mindestens 500 ppmv, bevorzugt mindestens 1000 ppmv, bevorzugter mindestens 2000 ppmv, noch bevorzugter mindestens 3000 ppmv, und insbesondere mindestens 3500 ppmv aufweist.

26. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas einen Gehalt an N_2O von mindestens 10 ppmv, bevorzugt mindestens 20 ppmv, bevorzugter mindestens 30 ppmv, noch bevorzugter mindestens 40 ppmv, und insbesondere mindestens 50 ppmv aufweist.

27. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas einen Gehalt an N_2O von mindestens 75 ppmv, bevorzugt mindestens 100 ppmv, bevorzugter mindestens 150 ppmv, noch bevorzugter mindestens 200 ppmv, und insbesondere mindestens 250 ppmv aufweist.

28. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas einen Gehalt an H_2O von mehr als 4,0 Vol.-% aufweist; bevorzugt mindestens 5,0 Vol.-%, bevorzugter mindestens 6,0 Vol.-%, noch bevorzugter mindestens 7,0 Vol.-%, am bevorzugtesten mindestens 8,0 Vol.-%, und insbesondere mindestens 9,0 Vol.-%.

29. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas einen Gehalt an H_2O von mindestens 10 Vol.-% aufweist; bevorzugt mindestens 12 Vol.-%, bevorzugter mindestens 14 Vol.-%, noch bevorzugter mindestens 16 Vol.-%, am bevorzugtesten mindestens 18 Vol.-%, und insbesondere mindestens 20 Vol.-%.

30. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas einen Gehalt an H_2O im Bereich von 10±8 Vol.-% aufweist; bevorzugt im Bereich von 10±7 Vol.-%, bevorzugter im Bereich von 10±6 Vol.-%, noch bevorzugter im Bereich von 10±5 Vol.-%, am bevorzugtesten im Bereich von 10±4 Vol.-%, und insbesondere im Bereich von 10±3 Vol.-%.

31. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas einen Gehalt an H_2O im Bereich von 15±8 Vol.-% aufweist; bevorzugt im Bereich von 15±7 Vol.-%, bevorzugter im Bereich von 15±6 Vol.-%, noch bevorzugter im Bereich von 15±5 Vol.-%, am bevorzugtesten im Bereich von 15±4 Vol.-%, und insbesondere im Bereich von 15±3 Vol.-%.

32. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas einen Gehalt an H_2O im Bereich von 20±8 Vol.-% aufweist; bevorzugt im Bereich von 20±7 Vol.-%, bevorzugter im Bereich von 20±6 Vol.-%, noch bevorzugter im Bereich von 20±5 Vol.-%, am bevorzugtesten im Bereich von 20±4 Vol.-%, und insbesondere im Bereich von 20±3 Vol.-%.

33. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas einen Gehalt an H_2O im Bereich von 25±8 Vol.-% aufweist; bevorzugt im Bereich von 25±7 Vol.-%, bevorzugter im Bereich von 25±6 Vol.-%, noch bevorzugter im Bereich von 25±5 Vol.-%, am bevorzugtesten im Bereich von 25±4 Vol.-%, und insbesondere im Bereich von 25±3 Vol.-%.

34. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas einen Gehalt an H_2O im Bereich von 30±8 Vol.-% aufweist; bevorzugt im Bereich von 30±7 Vol.-%, bevorzugter im Bereich von 30±6 Vol.-%, noch bevorzugter im Bereich von 30±5 Vol.-%, am bevorzugtesten im Bereich von 30±4 Vol.-%, und insbesondere im Bereich von 30±3 Vol.-%.

35. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas einen Gehalt an N_2 von höchstens 95 Vol.-%, bevorzugt höchstens 90 Vol.-%, bevorzugter höchstens 85 Vol.-%, noch bevorzugter höchstens 80 Vol.-%, am bevorzugtesten höchstens 75 Vol.-%, und insbesondere höchstens 70 Vol.-% aufweist.

36. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas einen Gehalt an N_2 von mindestens 40 Vol.-%, bevorzugt mindestens 50 Vol.-%, bevorzugter mindestens 60 Vol.-%, noch bevorzugter mindestens 70 Vol.-%, am bevorzugtesten mindestens 80 Vol.-%, und insbesondere mindestens 90 Vol.-% aufweist.

37. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas weitere gasförmige Bestandteile umfasst; bevorzugt ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus O_2, CO, CO_2, NH_3, CH_4 und deren Mischungen.

38. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas beim Verlassen der Feuerungsanlage, bevorzugt der Verbrennungseinrichtung eine Temperatur von mindestens 500°C, bevorzugter mindestens 600°C, noch bevorzugter mindestens 700°C, am bevorzugtesten mindestens 800°C, und insbesondere mindestens 900°C aufweist.

39. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas beim Verlassen der Feuerungsanlage, bevorzugt der Verbrennungseinrichtung eine Temperatur von höchstens

1100°C, bevorzugter höchstens 1000°C, noch bevorzugter höchstens 900°C, am bevorzugtesten höchstens 800°C, und insbesondere höchstens 700°C aufweist.

40. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas beim Verlassen der Feuerungsanlage, bevorzugt der Verbrennungseinrichtung einen Druck von höchstens 1,5 bar aufweist; bevorzugt atmosphärischen Druck.

41. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas beim Verlassen der Feuerungsanlage, bevorzugt der Verbrennungseinrichtung einen Oxidationsgrad von NO_X von mindestens 10%, bevorzugter mindestens 20%, noch bevorzugter mindestens 30%, am bevorzugtesten mindestens 40%, und insbesondere mindestens 50% aufweist.

42. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas beim Verlassen der Feuerungsanlage, bevorzugt der Verbrennungseinrichtung einen Oxidationsgrad von NO_X von höchstens 90%, bevorzugter höchstens 80%, noch bevorzugter höchstens 70%, am bevorzugtesten höchstens 60%, und insbesondere höchstens 50% aufweist.

43. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas beim Verlassen der Feuerungsanlage, bevorzugt der Verbrennungseinrichtung einen Gehalt an O_2 von weniger als 2,0 Vol.-% aufweist.

44. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas beim Verlassen der Feuerungsanlage, bevorzugt der Verbrennungseinrichtung einen Gehalt an O_2 von mehr als 4,0 Vol.-% aufweist.

45. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage eine Temperatur von mindestens 300°C, bevorzugter mindestens 350°C, noch bevorzugter mindestens 400°C, am bevorzugtesten mindestens 425°C, und insbesondere mindestens 450°C aufweist.

46. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage eine Temperatur von mindestens 500°C, bevorzugter mindestens 550°C, noch bevorzugter mindestens 600°C, am bevorzugtesten mindestens 625°C, und insbesondere mindestens 650°C aufweist.

47. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage eine Temperatur von höchstens 825°C, bevorzugter höchstens 800°C,

noch bevorzugter höchstens 775°C, am bevorzugtesten höchstens 750°C, und insbesondere höchstens 725°C aufweist.

48. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage eine Temperatur von höchstens 700°C, bevorzugter höchstens 650°C, noch bevorzugter höchstens 600°C, am bevorzugtesten höchstens 550°C, und insbesondere höchstens 500°C aufweist.

49. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage eine Temperatur aufweist, welche relativ um mindestens 20°C, bevorzugt mindestens 40°C, bevorzugter mindestens 60°C, noch bevorzugter mindestens 80°C, am bevorzugtesten mindestens 100°C, und insbesondere mindestens 120°C unterhalb der Temperatur liegt, welche das Abgas beim Verlassen der Feuerungsanlage, bevorzugt der Verbrennungseinrichtung aufweist.

50. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage einen Druck von höchstens 1,4 bara aufweist, bevorzugt von höchstens 1,3 bara, bevorzugter von höchstens 1,2 bara.

51. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage einen Oxidationsgrad von NO_X von höchstens 15%, bevorzugter höchstens 12,5%, noch bevorzugter höchstens 10%, am bevorzugtesten höchstens 7,5%, und insbesondere höchstens 5,0% aufweist.

52. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage einen Gehalt an O_2 von weniger als 2,0 Vol.-% aufweist.

53. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas beim Eintritt in die Abgasbehandlungsanlage einen Gehalt an O_2 von mehr als 4,0 Vol.-% aufweist.

54. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei Schritt (d) das Vermindern des Gehalts an N_2O in dem Abgas durch (d_1) Zersetzung von N_2O an einem N_2O-Zersetzungskatalysator umfasst; bevorzugt wobei der N_2O-Zersetzungskatalysator ein zeolithisches Material umfasst; bevorzugt einen mit Übergangsmetall (einschließlich Lanthanid), insbesondere mit Eisen, Kobalt oder Kupfer beladenen Zeolith; bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith; noch bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith vom Strukturtyp MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder MEL.

55. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei Schritt (d) das Vermindern des Gehalts an N_2O in dem Abgas durch (d_2) chemische Reduktion von N_2O mit Reduktionsmittel an einem N_2O-Reduktionskatalysator umfasst; bevorzugt wobei der N_2O-Reduktionskatalysator ein zeolithisches Material umfasst; bevorzugt einen mit Übergangsmetall (einschließlich Lanthanid), insbesondere mit Eisen, Kobalt oder Kupfer beladenen Zeolith; bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith; noch bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith vom Strukturtyp MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder MEL.

56. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Reduktionsmittel in Schritt (d_2) ausgewählt ist aus NH_3, Kohlenwasserstoffen, CO, H_2 und deren Mischungen; bevorzugt NH_3.

57. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Reduktionsmittel in Schritt (d_2) NH_3 ist, welches in einer Menge von 0,5 bis 2,0 molaren Anteilen, bevorzugt 0,8 bis 1,8 molaren Anteilen, eingesetzt wird, bezogen auf einen molaren Anteil an chemisch zu reduzierendem N_2O.

58. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Reduktionsmittel in Schritt (d_2) ein Kohlenwasserstoff oder eine Mischung mehrerer Kohlenwasserstoffe ist, welche bevorzugt in einer Menge von 0,2 bis 1,0 molaren Anteilen, bevorzugter von 0,2 bis 0,7 molaren Anteilen, eingesetzt werden, bezogen auf einen molaren Anteil an abzubauendem N_2O.

59. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei der NO_X-Reduktionskatalysator ein zeolithisches Material umfasst; bevorzugt einen mit Übergangsmetall (einschließlich Lanthanid), insbesondere mit Eisen, Kobalt oder Kupfer beladenen Zeolith; bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith; noch bevorzugter einen mit Eisen beladenen Zeolith vom Strukturtyp MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder MEL.

60. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Reduktionsmittel in Schritt (e) ausgewählt ist aus NH_3, Kohlenwasserstoffen, CO, H_2 und deren Mischungen; bevorzugt NH_3.

61. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Reduktionsmittel in Schritt (e) NH_3 ist, welches in einer Menge von 0,9 bis 2,5 molaren Anteilen, bevorzugt 1,0 bis 1,4 molaren Anteilen, bevorzugter 1,0 bis 1,2 molaren Anteilen, eingesetzt wird, bezogen auf einen molaren Anteil an chemisch zu reduzierendem NO_X.

62. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Reduktionsmittel in Schritt (d_2) das gleiche ist wie das Reduktionsmittel in Schritt (e); bevorzugt NH_3.

63. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei die Abgasbehandlungsanlage ein erstes Katalysatorbett und ein räumlich davon getrenntes zweites Katalysatorbett umfasst;

wobei das erste Katalysatorbett in Strömungsrichtung des Abgases stromaufwärts des zweiten Katalysatorbetts angeordnet ist;

optional wobei bevorzugt stromaufwärts des ersten Katalysatorbetts eine erste Vorrichtung mit einem ersten Regelventil zum Zudosieren von NH_3 in das Abgas angeordnet ist;

wobei stromabwärts des ersten Katalysatorbetts und stromaufwärts des zweiten Katalysatorbetts eine zweite Vorrichtung mit einem zweiten Regelventil zum Zudosieren von NH_3 in das Abgas angeordnet ist, mit der weiteres NH_3 in das Abgas zudosiert wird;

wobei sowohl das erste Katalysatorbett als auch das zweite Katalysatorbett jeweils einen mit Eisen beladenen Zeolith-Katalysator enthalten; wobei

(i) im ersten Katalysatorbett
   - (d_1) der Gehalt an N_2O im Abgas durch katalytische Zersetzung von N_2O vermindert wird; und
   - (e) der Gehalt an NO_X im Abgas durch katalytische chemische Reduktion von NO_X mit NH_3 unvollständig vermindert wird, wobei zumindest ein Teil des NH_3 aus einer unvollständigen Verbrennung von NH_3 in Schritt (a) stammt (NH_3-Schlupf); und

(ii) im zweiten Katalysatorbett
   - (d_2) der Gehalt an restlichem N_2O durch katalytische chemische Reduktion von N_2O mit NH_3 vermindert wird;
   - (d1*) optional der Gehalt an restlichem N_2O durch katalytische Zersetzung von N_2O vermindert wird; und
   - (e*) der Gehalt an restlichem NO_X durch katalytische chemische Reduktion von NO_X mit NH_3 vermindert wird.

64. Das Verfahren nach Anspruch 63, wobei im ersten Katalysatorbett die katalytische Zersetzung von N_2O co-katalysiert durch im Abgas vorhandenes NO_X erfolgt.

65. Das Verfahren nach Anspruch 63 oder 64, wobei die unvollständige chemische Reduktion von NO_X mit NH_3 im ersten Katalysatorbett bis zu einem vorgegebenen Restgehalt an NO_X führt, welche ausreichend ist, um einen co-katalytischen Effekt auf die Zersetzung von N_2O im ersten Katalysatorbett zu bewirken.

66. Das Verfahren nach einem der Ansprüche 63 bis 65, wobei über die erste Vorrichtung zusätzliches NH_3 in das Abgas zudosiert wird; bevorzugt unter *Feedback*-Regelung; wobei bevorzugt ein bestimmter Wert für die Konzentration an NO_X am Austritt des ersten Katalysatorbetts als Zielwert (Sollwert) vorgegeben und die tatsächliche Konzentration an NO_X am Austritt des ersten Katalysatorbetts gemessen (Istwert) wird; und wobei im Falle einer Differenz aus Sollwert und Istwert (Regeldifferenz) der Stellgrad des ersten Regelventils verändert wird, um die Differenz zu minimieren.

67. Das Verfahren nach Anspruch 66, wobei die Menge an zusätzlichem NH_3 so gewählt wird, dass die Restkonzentration an NO_X am Austritt des ersten Katalysatorbetts höchstens 1000 ppmv beträgt, bevorzugt höchstens 500 ppmv, bevorzugter höchstens 100 ppmv.

68. Das Verfahren nach Anspruch 66 oder 67, wobei die Menge an zusätzlichem NH_3 so gewählt wird, dass die Restkonzentration an NO_X am Austritt des ersten Katalysatorbetts mindestens 10 ppmv beträgt, bevorzugt mindestens 20 ppmv, bevorzugter mindestens 40 ppmv.

69. Das Verfahren nach einem der Ansprüche 63 bis 68, wobei im zweiten Katalysatorbett restliches N_2O bis zu einer Restkonzentration an N_2O am Austritt des zweiten Katalysatorbetts von höchstens 20 ppmv abgebaut wird, bevorzugter höchstens 10 ppmv, noch bevorzugter höchstens 5 ppmv, am bevorzugtesten höchstens 2 ppmv.

70. Das Verfahren nach einem der Ansprüche 63 bis 69, wobei im zweiten Katalysatorbett restliches NO_X bis zu einer Restkonzentration an NO_X am Austritt des zweiten Katalysatorbetts von höchstens 20 ppmv abgebaut wird, bevorzugter höchstens 10 ppmv, noch bevorzugter höchstens 5 ppmv, am bevorzugtesten höchstens 2 ppmv.

71. Das Verfahren nach einem der Ansprüche 63 bis 70, wobei das weitere NH_3 mit der zweiten Vorrichtung unter *Feedforward*-Regelung zudosiert wird; wobei bevorzugt die Konzentration an NO_X und an N_2O am Austritt des ersten Katalysatorbetts gemessen wird; unter Berücksichtigung der in das zweite Katalysatorbett eintretenden Menge an Abgas die erforderliche Menge an NH_3 berechnet wird; und mit dem berechneten Ergebnis (Stellgröße) der Stellgrad des zweiten Regelventils verändert wird, um die erforderliche Menge an NH_3 zuzudosieren.

72. Das Verfahren nach einem der Ansprüche 63 bis 71, wobei das molare Verhältnis von $NH_3/(NO_X+N_2O)$ am Eintritt in das zweite Katalysatorbett im Bereich von 1,7 bis 6,0 liegt; bevorzugt 2,1 bis 4,6; bevorzugter 2,7 bis 3,9.

73. Das Verfahren nach einem der Ansprüche 63 bis 72, wobei das molare Verhältnis von NH_3/NO_X am Eintritt in das zweite Katalysatorbett im Bereich von 1,0 bis 2,0 liegt; bevorzugt 1,1 bis 1,6; bevorzugter 1,2 bis 1,4.

74. Das Verfahren nach einem der Ansprüche 63 bis 73, wobei das molare Verhältnis von NH_3/N_2O am Eintritt in das zweite Katalysatorbett im Bereich von 0,7 bis 4,0 liegt; bevorzugt 1,0 bis 3,0; bevorzugter 1,5 bis 2,5.

75. Das Verfahren nach einem der Ansprüche 63 bis 74, wobei das weitere NH_3 mit der zweiten Vorrichtung nicht unter *Feedback*-Regelung zudosiert wird.

76. Das Verfahren nach einem der Ansprüche 63 bis 75, wobei die Katalysatormenge so gewählt wird, dass im ersten Katalysatorbett ein Abbau von N_2O von mindestens 50% erfolgt, bevorzugter mindestens 70%, noch bevorzugter mindestens 80%, bezogen auf die Konzentration an N_2O am Eintritt in das erste Katalysatorbett.

77. Das Verfahren nach einem der Ansprüche 63 bis 76, wobei die Katalysatormenge und die Menge an zusätzlichem NH_3 so gewählt werden, dass am Austritt des ersten Katalysatorbetts das molare Verhältnis von NO_X/N_2O mindestens 5 beträgt, bevorzugter mindestens 10, noch bevorzugter mindestens 20.

78. Das Verfahren nach einem der Ansprüche 63 bis 77, wobei die Raumgeschwindigkeit des ersten Katalysatorbetts im Bereich von 5.000 h^{-1} bis 100.000 h^{-1} liegt, bevorzugter 10.000 h^{-1} bis 50.000 h^{-1}, noch bevorzugter 15.000 h^{-1} bis 45.000 h^{-1}.

79. Das Verfahren nach einem der Ansprüche 63 bis 78, wobei das molare Verhältnis von NO_X/N_2O am Austritt des ersten Katalysatorbetts mindestens 10 beträgt und die Zudosierung von weiterem NH_3 über die zweite Vorrichtung alleinig in Relation zur Menge an eintretendem NO_X erfolgt.

80. Das Verfahren nach einem der Ansprüche 63 bis 79, wobei die Temperatur des Abgases bei Eintritt in das erste Katalysatorbett mindestens 400°C beträgt, bevorzugter mindestens 425°C, noch bevorzugter mindestens 450°C.

81. Das Verfahren nach einem der Ansprüche 63 bis 80, wobei die Temperatur des Abgases bei Eintritt in das erste Katalysatorbett höchstens 550°C beträgt, bevorzugter höchstens 525°C, noch bevorzugter höchstens 500°C.

82. Das Verfahren nach einem der Ansprüche 63 bis 81, wobei abhängig von der Wärmetönung der im ersten Katalysatorbett und im zweiten Katalysatorbett ablaufenden chemischen Reaktionen die Eintrittstemperatur des Abgases in das erste Katalysatorbett so gewählt wird, dass die Temperatur des Abgases am Austritt des zweiten Katalysatorbetts höchstens 600°C beträgt, bevorzugter höchstens 550°C, noch bevorzugter höchstens 520°C.

83. Das Verfahren nach einem der Ansprüche 63 bis 82, wobei die Raumgeschwindigkeit des zweiten Katalysatorbetts im Bereich von 5.000 h^{-1} bis 100.000 h^{-1} liegt, bevorzugter 10.000 h^{-1} bis 50.000 h^{-1}, noch bevorzugter 15.000 h^{-1} bis 45.000 h^{-1}.

84. Das Verfahren nach einem der Ansprüche 63 bis 83, wobei das Verhältnis der Katalysatorvolumina ($V1_{kat}/V2_{kat}$) vom ersten Katalysatorbett $V1_{kat}$ zum zweiten Katalysatorbett $V2_{kat}$ im Bereich von 1/2 bis 20/1 liegt, bevorzugter 1/2 bis 10/1, noch bevorzugter 1/1 bis 4/1.

85. Das Verfahren nach einem der Ansprüche 63 bis 84, wobei mindestens eine, mehrere oder alle der nachfolgenden Bedingungen erfüllt sind:
    - der Druck des Abgases bei Eintritt in das erste Katalysatorbett beträgt höchstens 5 bara, bevorzugter höchstens 4 bara, noch bevorzugter höchstens 1,3 bara, am bevorzugtesten höchstens 1,2 bara und insbesondere höchstens 1,1 bara;
    - der Gehalt an H_2O im Abgas bei Eintritt in das erste Katalysatorbett beträgt mindestens 5 Vol.-%, bevorzugter mindestens 10 Vol.-%, noch bevorzugter mindestens 15 Vol.-%, am bevorzugtesten mindestens 20 Vol.-% und insbesondere mindestens 25 Vol.-%;
    - der Gehalt an NO_X im Abgas bei Eintritt in das erste Katalysatorbett beträgt mindestens 500 ppmv, bevorzugter mindestens 1000 ppmv, noch bevorzugter mindestens 1500 ppmv, am bevorzugtesten mindestens 2000 ppmv, und insbesondere mindestens 2500 ppmv;
    - der Gehalt an N_2O im Abgas bei Eintritt in das erste Katalysatorbett beträgt höchstens < 500 ppmv, bevorzugter höchstens 200 ppmv, noch bevorzugter höchstens 100 ppmv, jedoch mindestens 5 ppmv, bevorzugt mindestens 10 ppmv, bevorzugter mindestens 50 ppmv;
    - das Abgas enthält bei Eintritt in das erste Katalysatorbett nicht verbrannte Reste an NH_3 aus der Verbrennung von NH_3;
    - der N_2O-Zersetzungskatalysator und/oder der N_2O-Reduktionskatalysator liegt als Wabenkörper vor;
    - der NO_X-Reduktionskatalysator liegt als Wabenkörper vor;
    - das erste Katalysatorbett enthält Fe-Zeolith;
    - das zweite Katalysatorbett enthält Fe-Zeolith;
    - das Abgas durchströmt vor Eintritt in das erste Katalysatorbett einen Wärmetauscher und wird darin aufgeheizt;

- der Gehalt an NO_X am Austritt des ersten Katalysatorbetts beträgt höchstens 1000 ppmv, bevorzugter höchstens 500 ppmv, noch bevorzugter höchstens 300 ppmv, am bevorzugtesten höchstens 100 ppmv; jedoch bevorzugt mindestens 10 ppmv, bevorzugter mindestens 20 ppm, noch bevorzugter mindestens 40 ppmv, am bevorzugtesten mindestens 100 ppmv, und insbesondere mindestens 250 ppmv;
- der Gehalt an N_2O am Austritt des ersten Katalysatorbetts beträgt höchstens 20 ppmv, bevorzugter höchstens 15 ppmv, noch bevorzugter höchstens 10 ppmv, am bevorzugtesten höchstens 5 ppmv und insbesondere höchstens 2 ppmv;
- nach Verlassen des ersten Katalysatorbetts und bis zum Eintritt in das zweite Katalysatorbett erfolgt keine Zwischenkühlung des Abgases;
- das molare Verhältnis von N_2O : NO_X beim Eintritt in das erste Katalysatorbett beträgt höchstens 0,5, bevorzugter höchstens 0,2, noch bevorzugter höchstens 0,1;
- das molare Verhältnis von N_2O : NO_X am Austritt aus dem ersten Katalysatorbett beträgt höchstens 0,20, bevorzugter höchstens 0,1, noch bevorzugter höchstens 0,05;
- die Einspeisung von NH_3 in das Abgas in Strömungsrichtung des Abgases stromaufwärts des ersten Katalysatorbetts erfolgt optional; sofern eine Einspeisung erfolgt, ist diese bevorzugt unterstöchiometrisch im Hinblick auf den Gehalt an NO_X am Eintritt in das erste Katalysatorbett; und/oder
- die Einspeisung von NH_3 in das Abgas in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Katalysatorbetts und stromaufwärts des zweiten Katalysatorbetts erfolgt zwingend, bevorzugt überstöchiometrisch im Hinblick auf den Gesamtgehalt an NO_X und N_2O am Eintritt in das zweite Katalysatorbett.

86. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei der N_2O-Zersetzungskatalysator und/oder der N_2O-Reduktionskatalysator sowie der NO_X-Reduktionskatalysator unabhängig voneinander als von parallelen Kanälen durchzogene monolithische Katalysatorelemente, bevorzugt als monolithische Wabenkörper vorliegen

87. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas die Abgasbehandlungsanlage verlässt und einen Restgehalt an NO_X von höchstens 20 ppmv aufweist, bevorzugt höchstens 15 ppmv, bevorzugter höchstens 10 ppmv, noch bevorzugter höchstens 7,5 ppmv, am bevorzugtesten höchstens 5,0 ppmv, und insbesondere höchstens 2,5 ppmv.

88. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das Abgas die Abgasbehandlungsanlage verlässt und einen Restgehalt an N_2O von höchstens 20 ppmv aufweist, bevorzugt höchstens 15 ppmv, bevorzugter höchstens 10 ppmv, noch bevorzugter höchstens 7,5 ppmv, am bevorzugtesten höchstens 5,0 ppmv, und insbesondere höchstens 2,5 ppmv.

89. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei in Schritt (f) das Abkühlen des Abgases in dem mindestens einen Wärmetauscher durch Abgabe von Wärme aus dem Abgas an ein Wärmeträgermedium erfolgt; wobei das Wärmeträgermedium bevorzugt ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Wasser, Wasserdampf, Verbrennungsluft, NH_3 und deren Kombinationen.

90. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei in Schritt (f) das Abkühlen des Abgases in einem ersten Abgas/H_2O-Wärmetauscher erfolgt, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist.

91. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei in Schritt (f) das Abkühlen des Abgases in einem ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher erfolgt, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist

92. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei in Schritt (f) das Abkühlen des Abgases erfolgt
    - in einem ersten Abgas/H_2O-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist, sowie
    - in einem ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher ebenfalls in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist; bevorzugt stromabwärts des ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers

93. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei in Schritt (f) das Abkühlen des Abgases erfolgt
    - in einem ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist, sowie
    - in einem zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers angeordnet ist.

94. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei in Schritt (f) das Abkühlen des Abgases erfolgt
    - in einem ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist,
    - in einem ersten Abgas/H_2O-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers angeordnet ist, sowie
    - in einem zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers angeordnet ist.

95. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei in Schritt (f) das Abkühlen des Abgases in mindestens einem Abgas/Verbrennungsgas-Wärmetauscher erfolgt, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist, bevorzugt stromabwärts des ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers, des ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers, und/oder des zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers.

96. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei in Schritt (f) das Abkühlen des Abgases in mindestens einem Abgas/Verbrennungsgas-Wärmetauscher erfolgt, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist, bevorzugt stromabwärts des ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers, des ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers, und/oder des zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers.

97. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei in Schritt (f) das Abkühlen des Abgases in mindestens einem zweiten Abgas/H_2O-Wärmetauscher erfolgt, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist, bevorzugt stromabwärts des ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers, des ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers, und/oder des zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers.

98. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei in Schritt (f) Verfahrens das Abkühlen des Abgases erfolgt
- in einem ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist,
- in einem ersten Abgas/H_2O-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers angeordnet ist,
- in einem zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers angeordnet ist, sowie
- in einem Abgas/Verbrennungsgas-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers angeordnet ist.

99. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei in Schritt (f) das Abkühlen des Abgases erfolgt
- in einem ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist,
- in einem ersten Abgas/H_2O-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers angeordnet ist,

- in einem zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers angeordnet ist, sowie
- in einem zweiten Abgas/H_2O-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers angeordnet ist.

100. Das Verfahren nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei in Schritt (f) das Abkühlen des Abgases erfolgt
- in einem ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts der Abgasbehandlungsanlage angeordnet ist,
- in einem ersten Abgas/H_2O-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers angeordnet ist,
- in einem zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des ersten Abgas/H_2O-Wärmetauschers angeordnet ist,
- in einem Abgas/Verbrennungsgas-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des zweiten Abgas/Verbrennungsluft-Wärmetauschers angeordnet ist, sowie
- in einem zweiten Abgas/H_2O-Wärmetauscher, welcher in Strömungsrichtung des Abgases stromabwärts des Abgas/Verbrennungsgas-Wärmetauschers angeordnet ist.

101. Eine Vorrichtung umfassend

(i) eine mit NH_3 betriebene Feuerungsanlage, bevorzugt umfassend eine Verbrennungseinrichtung zum Verbrennen von NH_3 und eine NH_3-Zersetzungseinrichtung zum Spalten von NH_3 in N_2 und H_2; und

(ii) eine Abgasbehandlungsanlage;

wobei die Vorrichtung konfiguriert ist zur Durchführung des Verfahrens nach einem der vorstehenden Ansprüche.