



**Industria y Comercio**  
SUPERINTENDENCIA

Delegatura de Propiedad Industrial  
División de Nuevas Creaciones

**PCT**  
SOLICITUD  
**PATENTE DE INVENCION**

21. EXPEDIENTE No.

04-123479

54. TITULO

Proceso y aparato para reducir el  
contenido de  $\text{CO}_2$  y  $\text{CH}_4$  en gases.

51. CLASIFICACION INTERNACIONAL B 01D 53/86

71. SOLICITANTE W HDE GMBH

DOMICILIO Dortmund, Alemania

74. APODERADO Gustavo Hollmann Restrepo

22. BOGOTA, D.C., 9 de diciembre de 2004

**FORMULARIO ÚNICO DE SOLICITUD DE PATENTE**  
**PCT**  
**ENTRADA EN FASE NACIONAL**

①

**SOLICITUD DE :**



Patente de Invención.



Patente de Modelo de Utilidad.



Capítulo I.



Capítulo II.

②

**SOLICITANTE**  
**(71)**

Nombre: **UHDE GMBH**

Dirección: **Friedrich-Uhde-Strasse 15**  
**44141 Dortmund, Alemania**

Nacionalidad o Domicilio: **Dortmund, Alemania**

Lugar de Constitución: **Alemania**

Teléfono:

Fax:

E-mail:

**IDENTIFICACION**

C.C.



NIT



C.E.



Otro



Cual

Número

③

**REPRESENTANTE**  
**O APODERADO**

Nombre: **GUSTAVO HOLLMANN RESTREPO**

Dirección **Cra. 11ª No. 94-76 - Of. 308**

Teléfono: **6161948**

Fax: **6163976**

E-mail:

**IDENTIFICACION**

C.C.



NIT



C.E.



Otro



Cual

Número **2.878.023** TP **5903**

④

**INVENTOR (ES)**  
**(72)**

Nombre: **SCHWEFER Meinhard**

Dirección **Auf'm Ufer 12,**

Nacionalidad o Domicilio: **59872 Meschede, Alemania**

⑤ **PCT (86)**

Solicitud Internacional No. **PCT/EP03/06051**

Fecha **Junio 10 de 2003**

Publicación Internacional No. **WO 03/105998 A1**

Fecha **Diciembre 24 de 2003**

⑥

**Título (54) PROCESO Y APARATO PARA REDUCIR EL CONTENIDO DE NO<sub>x</sub> Y N<sub>2</sub>O EN GASES.**

⑦

**Clasificación Internacional (51) B01D 53/86**

⑧

**PRIORIDAD:**

SI ☒ NO ☐

(33) País de Origen

**Alemania**

(32) Fecha

**Junio 13, 2002**

(31) Numero de Solicitud

**102 26 461.9**

Comprobante de pago No. \_\_\_\_\_

Fecha \_\_\_\_\_

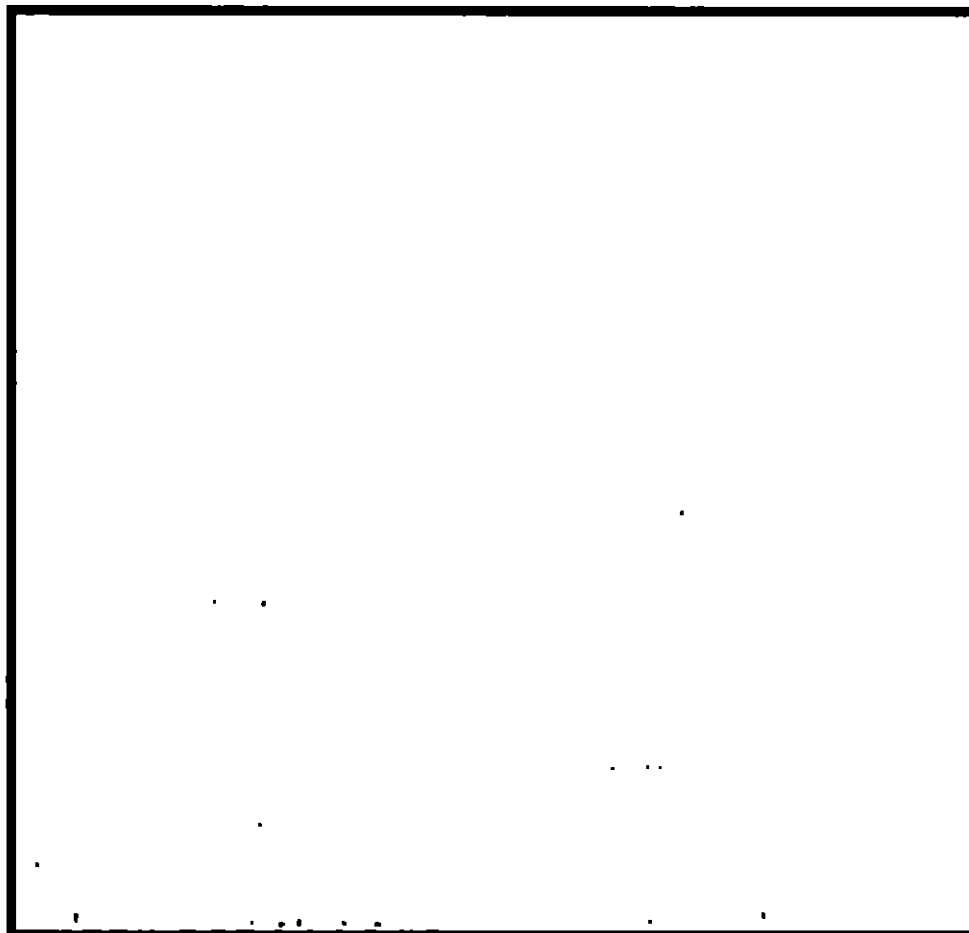
Instrucciones para el diligenciamiento del presente formulario , ver reverso de esta página.

56568

## ANEXOS

- ☒ Comprobante de pago de la tasa de presentación de la solicitud
- ☐ Documento que acredite existencia y representación legal cuando el solicitante sea persona jurídica.
- ☐ Poderes, si fuere el caso.
- ☐ Documento de cesión del inventor al solicitante o a su causante.
- ☐ Declaraciones
- ☒ Copia de la solicitud internacional. (Resumen, descripción, reivindicaciones, dibujos)
- ☒ Traducción de la solicitud internacional al castellano. (Resumen, descripción, reivindicaciones, dibujos)
- ☒ Copia del examen preliminar internacional efectuado por la Autoridad Internacional de Examen Preliminar (IPEA).
- ☒ Traducción del examen preliminar internacional efectuado por la IPEA.
- ☐ De ser el caso, copia del contrato de acceso.
- ☐ De ser el caso, documento que acredite la licencia o autorización de uso de conocimientos tradicionales de las comunidades indígenas
- ☐ De ser el caso, certificado de depósito del material biológico
- ☐ Arte final 12x12.
- ☐ De ser el caso, información sobre otras solicitudes de patente o títulos obtenidos en el extranjero por el mismo titular o su causante, relacionadas parcial o totalmente con la invención de esta solicitud.
- ☐ De ser el caso, modificaciones efectuadas a la solicitud internacional.
- ☒ Otros Reporte de Búsqueda Internacional.

### (11) FIGURA CARACTERISTICA



(12) Solicito la concesión de la patente,

NOMBRE: GUSTAVO HOLLMANN RESTREPO

FIRMA:

  
C.E. 2.878.023 Bogotá T.P. 5903

Instrucciones para el diligenciamiento del presente formulario, ver reverso de esta página.

**Continuación nombre, dirección y domicilio de inventores:**

| <u>Nombre</u>  | <u>Dirección</u>      | <u>Domicilio</u>                     |
|----------------|-----------------------|--------------------------------------|
| GROVES Michael | Isenberger Weg 12,    | 45529 Hattingen, Alemania            |
| SIEFERT Rolf   | Wartenbergstrasse 18, | 33378 Rheda-Wiedenbrück,<br>Alemania |
| MAURER Rainer  | Martinstrasse 14,     | 58332 Schwelm, Alemania              |

**Otros anexos que se acompañan a la solicitud.**

Copia formulario PCT/RO/101 correspondiente a la presentación de la solicitud internacional.

Capítulo Reivindicatorio corregido y Resumen.

4  
4

SUPERINDUSTRIA Y COMERCIO  
Radicacion : 04123479 00000000 Folios: 06  
Fecha (AMD): 2004-12-09 15:57:18  
Tramite : 011 PCT-PATENT 379 FASE INICI 411 PRESENTAC  
Dependencia: 2829 DIVISION DE NUEVAS CREACIONES

NIT : 800176089-2

RECIBO OFICIAL DE CAJA : 04 - 94,799  
FECHA : DICIEMBRE 7 DE 2004

\*\*\*\*\* CONSIGNACION \*\*\*\*\*

| DEPOSITANTE     | TIPO PAGO    | BANCO         | CUENTA      | No. PAGO | FECHA PAGO | Vr. PAGO     |
|-----------------|--------------|---------------|-------------|----------|------------|--------------|
| GUSTAVO HOLLMAN | CONSIGNACION | BANCO POPULAR | 050-00110-6 | 23289971 | 06/12/2004 | 1,688,000.00 |

\*\*\*\*\* C O N C E P T O \*\*\*\*\*

| CANT. | RENTISTICO              | CONCEPTO                            | TOTAL CONCEPTO |
|-------|-------------------------|-------------------------------------|----------------|
| 1     | 50005-01-01 SOLICITUDES | 1 TRAMITES DE SOL. DE PATENTE DE IN | 422,000.00     |
|       |                         | TOTAL :                             | \$ 422,000.00  |

SON: CUATROCIENTOS VEINTIDOS MIL PESOS

Ref.: 56568

RESPONSABLE : 

RECIBO DE CAJA APLICADO AL EXPEDIENTE No. \_\_\_\_\_

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
24. Dezember 2003 (24.12.2003)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
WO 03/105998 A1

(51) Internationale Patentklassifikation: B01D 53/86.  
B01J 804. 802. 19/30. 29/06

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP03/00051

(22) Internationales Anmeldedatum:  
10. Juni 2003 (10.06.2003)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
102 26 461.9 13. Juni 2002 (13.06.2002) DE

(71) Anmelder *(für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von  
US)*: UHDE GMBH [DE/DE]; Friedrich-Uhde-Strasse 15,  
44141 Dortmund (DE).

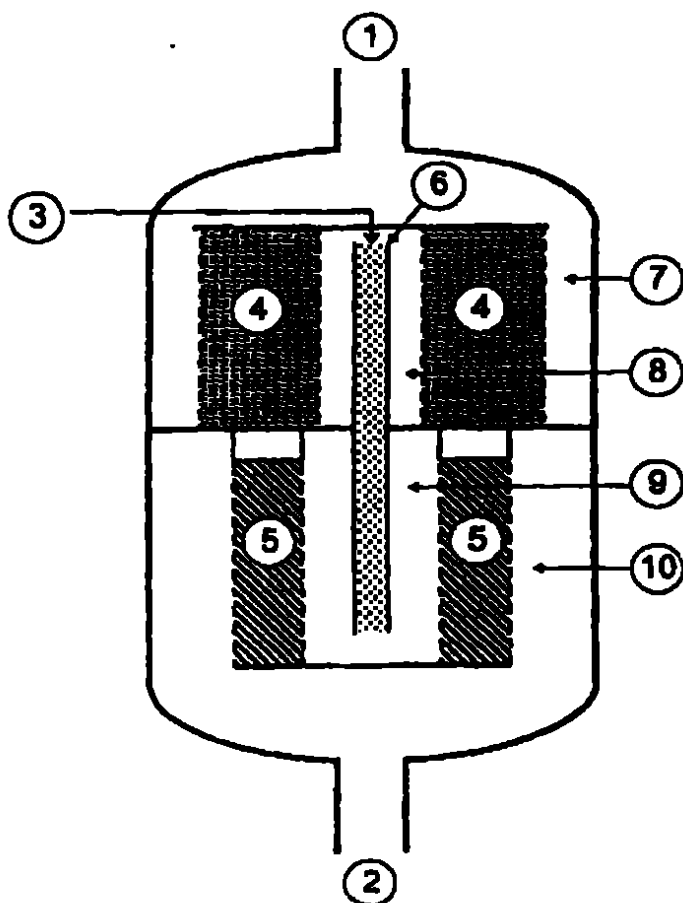
(72) Erfinder: und  
(75) Erfinder/Anmelder *(nur für US)*: SCHWEFER,  
Meinhard [DE/DE]; Auf'm Ufer 12, 59872 Meschede  
(DE). GROVES, Michael [GB/DE]; Lœnberger Weg  
12, 45529 Hattingen (DE). SIEFERT, Rolf [DE/DE];  
Wartenbergstrasse 18, 33378 Rheda-Wiedenbrück (DE).  
MAURER, Rolfier [DE/DE]; Martinstrasse 14, 58332  
Schwelm (DE).

(74) Anwalt: ACKERMANN, Joachim; Postfach 11 13 26,  
60048 Frankfurt (DE).

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: METHOD AND DEVICE FOR REDUCING THE NO<sub>x</sub> AND N<sub>2</sub>O OF GASES

(54) Bezeichnung: VERFAHREN UND VORRICHTUNG ZUR VERRINGERUNG DES GEHALTS AN NO<sub>x</sub> UND N<sub>2</sub>O IN GA-  
SEN



(57) Abstract: The method comprises the following steps: conduction of the gas containing N<sub>2</sub>O and NO<sub>x</sub> over a series of two catalyst beds consisting of one or more zeolites charged with iron; addition of a reduction agent for NO<sub>x</sub> between the catalyst beds; setting of a temperature of less than 500 °C in the first and second catalyst bed; setting of a gas pressure of at least 2 bar in the two catalyst beds; and the selection of a space velocity in the first and second catalyst bed that achieves a degradation of the N<sub>2</sub>O content of the gas in the first catalyst bed by a maximum of up to 90 %, in relation to the N<sub>2</sub>O content at the entrance to the catalyst bed and an additional degradation of the N<sub>2</sub>O content of the gas in the second catalyst bed by at least 30 % in relation to the N<sub>2</sub>O content at the entrance to the second catalyst bed. The first reaction zone is used to degrade the N<sub>2</sub>O and the second reaction zone reduces the NO<sub>x</sub> and breaks down at least part of the remaining N<sub>2</sub>O. The inventive device comprises at least one radially traversed catalyst bed.

(57) Zusammenfassung: Das Verfahren umfasst das Leiten des N<sub>2</sub>O und NO<sub>x</sub> enthaltenden Gases über eine Folge zweier Katalysatorbetten enthaltend einen oder mehrere mit Eisen beladene Zeolithe, die Zugabe eines Reduktionsmittels für NO<sub>x</sub> zwischen den Katalysatorbetten, das Einstellen einer Temperatur von weniger als 500 °C im ersten und zweiten Katalysatorbett, das Einstellen eines Gasdruckes von mindestens 2 bar in den beiden Katalysatorbetten, und die Auswahl einer solchen Raumgeschwindigkeit im ersten und zweiten Katalysatorbett, so dass im ersten

Katalysatorbett ein Abbau des N<sub>2</sub>O-Gehalts des Gases um höchstens bis zu 90 %, bezogen auf den N<sub>2</sub>O

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

WO 03/105998 A1



(81) **Bestimmungsstaaten (national):** AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

**Veröffentlicht:**

— mit internationalem Recherchenbericht

(84) **Bestimmungsstaaten (regional):** ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ,

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

Gehalt am Eingang des ersten Katalysatorbettes, erfolgt, und dass im zweiten Katalysatorbett ein weiterer Abbau des  $N_2O$ -Gehalts des Gases um mindestens 30 %, bezogen auf den  $N_2O$  Gehalt am Eingang des zweiten Katalysatorbettes, erfolgt. Die erste Reaktionszone dient zum Abbau von  $N_2O$  und in der zweiten Reaktionszone wird das  $NO_x$  reduziert und zumindest ein Teil des verbliebenen  $N_2O$  wird zersetzt. Die beschriebene Vorrichtung umfasst mindestens ein radial durchströmtes Katalysatorbett.

6

**Beschreibung**

5

**Verfahren und Vorrichtung zur Verringerung des Gehaltes an  $\text{NO}_x$  und  $\text{N}_2\text{O}$  in Gasen**

10

**Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Verringerung Gehaltes an Stickoxiden in Gasen, insbesondere in Prozess- und Abgasen, sowie eine daran angepasste Vorrichtung.**

15

**Bei vielen Prozessen, wie z.B. Verbrennungsprozessen oder bei der industriellen Herstellung von Salpetersäure resultiert ein mit Stickstoffmonoxid  $\text{NO}$ , Stickstoffdioxid  $\text{NO}_2$  (zusammen bezeichnet als  $\text{NO}_x$ ) sowie Lachgas  $\text{N}_2\text{O}$  beladenes Abgas. Während  $\text{NO}$  und  $\text{NO}_2$  seit langem als Verbindungen mit ökotoxischer Relevanz bekannt sind (Saurer Regen, Smog-Bildung) und weltweit Grenzwerte für deren maximal zulässige Emissionen festgelegt sind, rückt in den letzten Jahren in zunehmenden Maße auch Lachgas in den Focus des Umweltschutzes, da dieses in nicht unerheblichem Maße zum Abbau von stratosphärischem Ozon und zum Treibhauseffekt beiträgt. Es besteht daher aus Gründen des Umweltschutzes ein dringender Bedarf an technischen Lösungen, die Lachgasemissionen zusammen mit den  $\text{NO}_x$ -Emissionen zu beseitigen.**

20

25

**Zur separaten Beseitigung von  $\text{N}_2\text{O}$  einerseits und andererseits sind bereits zahlreiche Möglichkeiten bekannt.**

30

**Bei der  $\text{NO}_x$ -Reduktion ist die selektive katalytische Reduktion (SCR) von  $\text{NO}_x$  mittels Ammoniak in Gegenwart vanadiumhaltiger  $\text{TiO}_2$ -Katalysatoren hervorzuheben (vgl. etwa G. Ertl, H. Knözinger J. Weitkamp: Handbook of Heterogeneous Catalysis, Vol. 4, Seiten 1633-1668, VCH Weinheim (1997)). Diese kann je nach Katalysator bei Temperaturen von ca.  $150^\circ\text{C}$  bis ca.  $450^\circ\text{C}$  ablaufen und ermöglicht einen  $\text{NO}_x$ -Abbau von mehr als 90%. Sie ist die meist genutzte Variante der  $\text{NO}_x$ -Minderung aus Abgasen industrieller Prozesse.**

35

**BESTÄTIGUNGSKOPIE**

Auch auf Basis von Zeolith-Katalysatoren finden sich Verfahren zur Reduktion von  $\text{NO}_x$ , die unter Verwendung verschiedenster Reduktionsmittel ablaufen. Neben Cu-ausgetauschten Zeolithen (vergl. z.B. EP-A-0914866) scheinen vor allem eisenhaltige Zeolithe für praktische Anwendung von Interesse.

5

So beansprucht US-A- 4,571,329 ein Verfahren zur Reduktion von  $\text{NO}_x$  in einem Gas, welches zu mindestens 50% aus  $\text{NO}_2$  besteht, mittels Ammoniak in Gegenwart eines Fe-Zeolithen. Das Verhältnis von  $\text{NH}_3$  zu  $\text{NO}_2$  beträgt mindestens 1,3. Gemäß des hier beschriebenen Verfahrens sollen  $\text{NO}_x$ -enthaltende Gase mit Ammoniak reduziert werden, ohne dass es zur Bildung von  $\text{N}_2\text{O}$  als Nebenprodukt kommt.

10

US 5,451,387 beschreibt ein Verfahren zur selektiven katalytischen Reduktion von  $\text{NO}_x$  mit  $\text{NH}_3$  über eisenausgetauschten Zeolithen, welches bei Temperaturen um  $400^\circ\text{C}$  arbeitet.

15

Im Unterschied zur  $\text{NO}_x$ -Minderung in Abgasen, die seit vielen Jahren in der Technik etabliert ist, existieren zur  $\text{N}_2\text{O}$ -Beseitigung nur wenige technische Prozesse, die zumelst auf einen thermischen oder katalytischen Abbau des  $\text{N}_2\text{O}$  abzielen. Eine Übersicht über die Katalysatoren, deren prinzipielle Eignung zum Abbau und zur Reduktion von Lachgas nachgewiesen wurde, gibt Kapteijn et al. (Kapteijn F. et al., Appl. Cat. B: Environmental 9 (1996) 25-64).

20

Als besonders geeignet erscheinen wiederum Fe- und Cu-Zeolith-Katalysatoren, die entweder eine reine Zersetzung des  $\text{N}_2\text{O}$  in  $\text{N}_2$  und  $\text{O}_2$  bewirken (US-A-5,171,553), oder auch zur katalytischen Reduktion des  $\text{N}_2\text{O}$  mit Hilfe von  $\text{NH}_3$  oder Kohlenwasserstoffen zu  $\text{N}_2$  und  $\text{H}_2\text{O}$  bzw.  $\text{CO}_2$  dienen.

25

So wird in JP-A-07 060 126 ein Verfahren zur Reduktion von  $\text{N}_2\text{O}$  mit  $\text{NH}_3$  in Gegenwart von eisenhaltigen Zeolithen vom Pentasil-Typ bei Temperaturen von  $450^\circ\text{C}$  beschrieben. Der mit diesem Verfahren erreichbare  $\text{N}_2\text{O}$ -Abbau liegt bei 71%.

30

Mauvezin et al. geben in Catal. Lett. 62 (1999) 41-44 eine diesbezügliche Übersicht über die Eignung verschiedener, eisenausgetauschter Zeolithe vom Typ MOR, MFI,

BEA, FER, FAU, MAZ und OFF. Danach kann eine mehr als 90%ige  $N_2O$ -Reduktion durch  $NH_3$ -Zugabe unterhalb von  $500^\circ C$  nur im Falle von Fe-BEA erreicht werden.

5 Neben den zuvor genannten Verfahren zur separaten Beseitigung von  $N_2O$  und  $NO_x$  existieren aber auch Verfahren zur kombinierten Beseitigung, die unter Verwendung eines einzigen Katalysators ablaufen können.

10 Aus der WO-A-00/48715 ist ein Verfahren bekannt, bei dem ein  $NO_x$  und  $N_2O$  enthaltendes Abgas bei Temperaturen zwischen  $200$  und  $600^\circ C$  über einen Eisen-Zeolith-Katalysator vom Typ Beta (= Typ BEA) geleitet wird, wobei das Abgas außerdem  $NH_3$  in einem Mengenverhältnis zwischen  $0,7$  und  $1,4$  bezogen auf die Gesamtmenge an  $NO_x$  und  $N_2O$  enthält.  $NH_3$  dient hier als Reduktionsmittel sowohl für  $NO_x$  als auch für  $N_2O$ . Das Verfahren arbeitet zwar bei Temperaturen von kleiner als  $500^\circ C$ , besitzt aber wie das vorgenannte Verfahren den prinzipiellen Nachteil, dass zur Beseitigung des  $N_2O$  Gehaltes eine in etwa äquimolare Menge an Reduktionsmittel (hier  $NH_3$ ) benötigt wird.

20 Aus der WO-A-01/51,181 ist ein Verfahren zur Beseitigung von ein  $NO_x$  und  $N_2O$  bekannt, worin ein Prozess- oder Abgas durch zwei Reaktionszonen geleitet, die mit Eisen beladene Zeolithe als Katalysatoren enthalten. In der ersten Reaktionszone wird dabei  $N_2O$  abgebaut, zwischen der ersten und der zweiten Reaktionszone wird dem Gasgemisch Ammoniak zugesetzt und in der zweiten Reduktionszone wird  $NO_x$  reduziert.

25 Es wurde jetzt überraschenderweise gefunden, dass die Effektivität des oben genannten Verfahrens deutlich gesteigert werden kann, wenn die Minderung des  $N_2O$ -Gehaltes bis zum gewünschten Abbaugrad nicht allein in der ersten Reaktionszone erfolgt, sondern auch die Reaktionszone der  $NO_x$ -Reduktion zur  $N_2O$ -Minderung genutzt werden kann. Dieses wurde möglich, seitdem überraschend  
30 festgestellt wurde, dass bei Verwendung von Eisen-beladenen Zeolith-Katalysatoren eine simultane  $NO_x$ -Reduktion (z.B. mittels  $NH_3$ ) und  $N_2O$ -Zersetzung möglich ist. Der Beitrag zur  $N_2O$ -Zersetzung in der zweiten Reaktionsstufe ist dann besonders

groß, wenn das Verfahren bei erhöhten Drucken, d.h. bei Drucken oberhalb von 2 bar, vorzugsweise oberhalb von 4 bar betrieben wird.

5 Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es, ein einfaches, aber wirtschaftliches Verfahren zur Verfügung zu stellen, das gute Umsätze sowohl für den  $\text{NO}_x$ - als auch für den  $\text{N}_2\text{O}$ -Abbau liefert, sich durch minimale Betriebs- und Investitionskosten auszeichnet. Zu ersteren zählen neben der Energie zur Einstellung der notwendigen Betriebstemperatur der Verbrauch an Reduktionsmittel sowie Energieverluste durch Strömungswiderstände im Katalysatorbett (Druckverluste). Die Investitionskosten  
10 werden wesentlich bestimmt durch die benötigten Mengen an Katalysator und die damit verbundenen Apparatvolumina.

Zusätzlich besteht das Problem der Einbringung des Reduktionsmittels, welches mit dem zu behandelnden Gasstrom innig gemischt werden muss, um einem möglichst hohen Wirkungsgrad des Reduktionsmittels zu gewährleisten (Vermeidung von Schlupf und Nebenreaktionen). Der hierzu notwendige Mischer sollte aus aufstellungstechnischen und wirtschaftlichen Erwägungen möglichst platzsparend angeordnet sein.

20 Diese Aufgaben werden durch das erfindungsgemäße Verfahren und die erfindungsgemäße Vorrichtung gelöst.

Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Minderung des Gehalts von  $\text{NO}_x$  und  $\text{N}_2\text{O}$  in Gasen, insbesondere in Prozessgasen und Abgasen, umfassend die  
25 Massnahmen:

- a) Leiten des  $\text{N}_2\text{O}$  und  $\text{NO}_x$  enthaltenden Gases über eine Folge zweier Katalysatorbetten enthaltend einen oder mehrere mit Eisen beladene Zeolithe,
- 30 b) Zugabe eines Reduktionsmittels für  $\text{NO}_x$  zwischen den Katalysatorbetten,
- c) Einstellen einer Temperatur von weniger als  $500^\circ\text{C}$  im ersten Katalysatorbett und zweiten Katalysatorbett,

- d) Einstellen eines Gasdruckes von mindestens 2 bar in den beiden Katalysatorbetten,
- e) Auswahl einer solchen Raumgeschwindigkeit im ersten und zweiten Katalysatorbett, so dass im ersten Katalysatorbett ein Abbau des  $\text{N}_2\text{O}$ -Gehalts des Gases um höchstens bis zu 90%, bezogen auf den  $\text{N}_2\text{O}$ -Gehalt am Eingang des ersten Katalysatorbettes, erfolgt, und dass im zweiten Katalysatorbett ein weiterer Abbau des  $\text{N}_2\text{O}$ -Gehalts des Gases um mindestens 30%, bezogen auf den  $\text{N}_2\text{O}$ -Gehalt am Eingang des zweiten Katalysatorbettes, erfolgt.

Im ersten Katalysatorbett zur reinen  $\text{N}_2\text{O}$ -Zersetzung beschleunigt dabei das noch im Gas vorhandene  $\text{NO}_x$  erwartungsgemäß die gewünschte  $\text{N}_2\text{O}$ -Zersetzung durch eine aktivierende Wirkung, wie diese für unterschiedliche  $\text{N}_2\text{O}/\text{NO}_x$ -Verhältnisse von Kögel et al. in Catal. Comm. 2 (2001)273-6 beschrieben wurde.

Aber auch im zweiten Katalysatorbett kann ein merklicher  $\text{N}_2\text{O}$ -Abbau durch Zersetzung in Stickstoff und Sauerstoff erreicht werden. Dies war überraschend, da zum einen der  $\text{NO}_x$ -Gehalt, welcher die  $\text{N}_2\text{O}$ -Zersetzung aktiviert, durch Zugabe des Reduktionsmittels reduziert wird und zum anderen erwartet wurde, dass das zugesetzte Reduktionsmittel intermediär auf der Katalysatoroberfläche adsorbiert und damit die aktiven Zentren zur  $\text{N}_2\text{O}$ -Zersetzung blockiert.

Unter den gewählten Verfahrensbedingungen, also den erhöhten Drücken und insbesondere einem reduzierten Verhältnis  $\text{NH}_3/\text{NO}_x$  kommen diese Einflüsse aber offenbar nicht zum Tragen.

Das erfindungsgemäße Verfahren ermöglicht es damit, sowohl die Zersetzung von  $\text{N}_2\text{O}$ , als auch die Reduktion von  $\text{NO}_x$  bei einer niedrigen Betriebstemperatur und wirtschaftlichen Raumgeschwindigkeiten durchzuführen und gleichzeitig hohe Abbauraten von  $\text{N}_2\text{O}$  und  $\text{NO}_x$  zu erzielen.

Unter dem Begriff Raumgeschwindigkeit ist dabei der Quotient aus Volumenanteilen Gasgemisch (gemessen bei 0 °C und 1,014 bara) pro Stunde bezogen auf einen

Volumenanteil Katalysator zu verstehen. Die Raumgeschwindigkeit kann somit über den Volumenstrom des Gases und/oder über die Katalysatormenge eingestellt werden.

- 5 Das mit Stickstoffoxiden beladene Gas wird üblicherweise mit einer Raumgeschwindigkeit von 200 bis 200.000 h<sup>-1</sup>, vorzugsweise von 5.000 bis 100.000 h<sup>-1</sup>, insbesondere von 5.000 bis 50.000 h<sup>-1</sup>, bezogen auf das addierte Katalysatorvolumen beider Katalysatorbetten, über den Katalysator geleitet.
- 10 Nach Verlassen des ersten Katalysatorbettes liegt der Gehalt an N<sub>2</sub>O nach dem erfindungsgemäßen Verfahren vorzugsweise oberhalb von 200 ppm, insbesondere oberhalb von 300 ppm. Im ersten Katalysatorbett erfolgt eine höchstens 90 %ige, vorzugsweise höchstens 80%ige Minderung des zu Beginn des ersten Katalysatorbettes vorhandenen N<sub>2</sub>O-Gehaltes.
- 15 Nach dem Verlassen des ersten Katalysatorbettes wird das N<sub>2</sub>O und NO<sub>x</sub> enthaltende Gas zunächst mit einem gasförmigen Reduktionsmittel, vorzugsweise mit NH<sub>3</sub>, gemischt und anschließend zum gleichzeitigen Abbau von N<sub>2</sub>O (durch Zersetzung) und NO<sub>x</sub> (durch Reduktion) bei einer Temperatur von vorzugsweise
- 20 weniger als 450°C mit der ausgewählten Raumgeschwindigkeit über den Katalysator geleitet.
- Im zweiten Katalysatorbett erfolgt eine zusätzliche mindestens 30 %ige, vorzugsweise mindestens 40%ige Minderung des zu Beginn des zweiten
- 25 Katalysatorbettes vorhandenen N<sub>2</sub>O-Gehaltes.
- Bei dem erfindungsgemäßen Verfahren kommen im ersten und zweiten Katalysatorbett eisenhaltige Zeolithe zum Einsatz. Dabei kann es sich um unterschiedliche Katalysatoren in den jeweiligen Katalysatorbetten oder bevorzugt
- 30 um den gleichen Katalysator handeln.
- Bei einer räumlichen Trennung der Katalysatorbetten ist es möglich, die Temperatur des zweiten Katalysatorbettes bzw. des hierin eintretenden Gastromes durch

Wärmeabfuhr oder -zufuhr so einzustellen, dass sie niedriger oder höher als die des ersten Katalysatorbettes ist.

Die Temperatur des Gasstromes im ersten Katalysatorbett, in dem nur das  $N_2O$  abgebaut wird, sowie im zweiten Katalysatorbett, in dem  $N_2O$  und  $NO_x$  abgebaut werden, liegt erfindungsgemäß unterhalb von 500 °C, vorzugsweise im Bereich von 250 bis 500°C, insbesondere bei 300 bis 450°C, und ganz besonders bevorzugt bei 350 bis 450°C. Die Temperatur im zweiten Katalysatorbett entspricht bevorzugt der Temperatur im ersten Katalysatorbett. Die Temperatur im Katalysatorbett lässt sich zweckmässigerweise als arithmetischer Mittelwert der Temperatur des Gasstromes am Ein- und Austritt des Katalysatorbettes bestimmen.

Die Wahl der Betriebstemperatur ist dabei ebenso wie gewählten Raumgeschwindigkeiten bestimmt durch den gewünschten Abbaugrad an  $N_2O$ .

Vorzugsweise erfolgen die Auswahl von Temperatur, Volumenstrom und Katalysatormenge im ersten Katalysatorbett derart, dass dort höchstens 90 %, vorzugsweise höchstens 80% und ganz besonders bevorzugt höchstens 70% des zu Beginn des ersten Katalysatorbettes vorhandenen  $N_2O$  zersetzt werden.

Vorzugsweise erfolgen die Auswahl von Temperatur, Volumenstrom und Katalysatormenge im zweiten Katalysatorbett derart, dass dort ein weiterer Abbau des  $N_2O$ -Gehalts des Gases um mindestens 30%, bezogen auf den  $N_2O$  Gehalt am Eingang des zweiten Katalysatorbettes, erfolgt.

Das erfindungsgemäße Verfahren wird bei einem erhöhten Druck von mindestens 2 bar, vorzugsweise mindestens 3 bar, ganz besonders bevorzugt von 4 bis 25 bar durchgeführt. Die Einspeisung des Reduktionsmittels zwischen dem ersten und dem zweiten Katalysatorbett, d.h. hinter dem ersten und vor dem zweiten Katalysatorbett, erfolgt durch eine geeignete Vorrichtung, wie z.B. einem entsprechenden Druckventil oder entsprechend ausgestalteten Düsen.

In der ersten Reaktionszone wird im allgemeinen eine relativ niedrige Wasserkonzentration bevorzugt, da ein sehr hoher Wassergehalt hohe Betriebstemperaturen (z.B.  $>500^{\circ}\text{C}$ ) erforderlich machen würde. Diese könnte je nach eingesetztem Zeolithtyp und Betriebsdauer die hydrothermalen Stabilitätsgrenzen des Katalysators überschreiten. Allerdings spielt hier der  $\text{NO}_x$ -Gehalt eine entscheidende Rolle, da dieser die Deaktivierung durch Wasser aufheben kann.

Für die  $\text{NO}_x$ -Reduktion in der zweiten Reaktionszone spielt ein hoher Wassergehalt eine untergeordnete Rolle, da hier bereits bei relativ niedrigen Temperaturen hohe  $\text{NO}_x$ -Abbauraten erzielt werden.

Das Reduktionsmittel wird in einer solchen Menge zugesetzt, wie zur Reduktion des  $\text{NO}_x$  benötigt wird. Darunter wird im Rahmen dieser Beschreibung diejenige Menge an Reduktionsmittel verstanden, die notwendig ist, um den Anteil des  $\text{NO}_x$  im Gasgemisch vollständig oder bis zur gewünschten Endkonzentration zu reduzieren, ohne dass eine merkliche Reduktion des  $\text{N}_2\text{O}$  stattfindet.

Als Reduktionsmittel im Sinne der Erfindung können solche Stoffe eingesetzt werden, die eine hohe Aktivität und Selektivität zur Reduktion von  $\text{NO}_2$  aufweisen und deren Selektivität und Aktivität unter den gewählten Reaktionsbedingungen größer ist als zur möglichen Reduktion von  $\text{N}_2\text{O}$ .

Als Reduktionsmittel im Sinne der Erfindung sind beispielsweise Kohlenwasserstoffe, Wasserstoff, Kohlenmonoxid, Ammoniak oder deren Gemische, wie z.B. Synthesegas, einsetzbar. Besonders bevorzugt wird Ammoniak oder Stoffe, die bei Einbringung Ammoniak freisetzen, wie Harnstoff oder Ammoniumcarbamat.

Die zugesetzte Menge an Reduktionsmittel darf dabei nicht nennenswert größer sein, als bei den gewählten Reaktionsbedingungen zur Reduktion von  $\text{NO}_x$  erforderlich ist.

Im Fall von Ammoniak als Reduktionsmittel verwendet man, je nach dem gewünschten Grad des Abbaus des  $\text{NO}_x$ -Gehaltes, bis zu maximal 1,2,

vorzugsweise 1,0 bis 1,2 molare Anteile an Ammoniak, bezogen auf einen molaren Anteil an  $\text{NO}_x$ . Ist ein geringerer Abbaugrad von  $\text{NO}_x$  gewünscht, so beträgt die Menge an molaren Anteilen von Ammoniak maximal  $1,2 \cdot y$ , bezogen auf einen molaren Anteil an  $\text{NO}_x$ ; dabei ist  $y$  der prozentuale Anteil des  $\text{NO}_x$  der in der Reduktion verbraucht werden soll.

Bei Auswahl geeigneter Katalysatoren und Verfahrensbedingungen wirkt das zugesetzte  $\text{NH}_3$  nicht als Reduktionsmittel für  $\text{N}_2\text{O}$ , sondern reduziert selektiv das im Abgas enthaltene  $\text{NO}_x$ .

Das erfindungsgemäße Verfahren ermöglicht es damit, die Beseitigung von  $\text{N}_2\text{O}$  und von  $\text{NO}_x$  bei einer niedrigen Betriebstemperatur mit geringem Verbrauch an gasförmigen Reduktionsmittel, wie  $\text{NH}_3$ , durchzuführen, was mit den im Stand der Technik beschriebenen Verfahren bis dahin nicht möglich war.

Dieses ist insbesondere dann von großem Vorteil, wenn große Mengen an  $\text{N}_2\text{O}$  beseitigt werden sollen.

Auch die Art der Einbringung des gasförmigen Reduktionsmittels in den zu behandelnden Gasstrom ist im Sinne der Erfindung frei gestaltbar, solange dieses in Stromrichtung vor dem zweiten Katalysatorbett erfolgt. Sie kann zum Beispiel in der Eintrittsleitung vor dem Behälter für das zweite Katalysatorbett oder unmittelbar vor dem Katalysatorbett erfolgen. Das Reduktionsmittel kann in Form eines Gases oder auch einer Flüssigkeit bzw. wässrigen Lösung eingebracht werden, die im zu behandelnden Gasstrom verdampft.

Erfindungsgemäß verwendete 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 MFI-, oder FER-Typs, in dem erfindungsgemäß verwendeten Katalysator enthalten sein.

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

Erfindungsgemäß verwendete Katalysatoren basieren vorzugsweise auf Zeolithen, in die durch einen Festkörper-Ionenaustausch Eisen eingebracht wurde. Üblicherweise ght man hierfür von den kommerziell erhältlichen Ammonium-Zeolithen (z.B.  $\text{NH}_4\text{-ZSM-5}$ ) und den entsprechenden Eisensalzen (z.B.  $\text{FeSO}_4 \times 7 \text{ H}_2\text{O}$ ) aus und mischt diese auf mechanischem Wege intensiv miteinander in einer Kugelmühle bei Raumtemperatur. (Turek et al.; Appl. Catal. 184, (1999) 249-256; EP-A-0 955 080).

Auf diese Literaturstellen wird hiermit ausdrücklich Bezug genommen. Die erhaltenen Katalysatorpulver werden anschließend in einem Kammerofen an der Luft bei Temperaturen im Bereich von 400 bis 600°C kalzinert. Nach dem Kalzinieren werden die eisenhaltigen Zeolithe in destilliertem Wasser intensiv gewaschen und nach Abfiltrieren des Zeolithen getrocknet. Abschließend werden die so erhaltenen eisenhaltigen Zeolithe mit den geeigneten Bindemitteln versetzt und gemischt und beispielsweise zu zylindrischen Katalysatorkörpern extrudiert. Als Bindemittel eignen sich alle üblicherweise verwendeten Binder, die gebräuchlichsten sind hierbei Aluminumsilikate wie z.B. Kaolin.

Gemäß der vorliegenden Erfindung sind die verwendbaren Zeolithe mit Eisen beladen. Der Eisengehalt kann dabei bezogen auf die Masse an Zeolith bis zu 25% betragen, vorzugsweise jedoch 0,1 bis 10%.

Vorzugsweise handelt es sich um mit Eisen beladene Zeolithe vom Typ MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder MEL, insbesondere vom Typ ZSM-5.

In einer bevorzugten Ausführungsform werden zumindest im zweiten Katalysatorbett mit Eisen beladene Zeolithe verwendet, deren Kristallstruktur keine Poren bzw. Kanäle mit kristallographischen Durchmessern größer gleich 7,0 Ångstrom aufweist.

Dazu zählen mit Eisen beladene Zeolithe vom Typ MFI, FER und/oder MEL, insbesondere vom Typ ZSM-5.

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 eingesetzten Zeolithe werden im Atlas of Zeolite Structure Types, Elsevier, 4<sup>th</sup> revised Edition 1996, gegeben, auf den hiermit ausdrücklich Bezug genommen wird.

Ganz besonders bevorzugt kommen im erfindungsgemäßen Verfahren die weiter oben definierten 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. Überraschenderweise zeichnen sich diese hydrothermal behandelte Zeolith-Katalysatoren 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.

Der Wassergehalt des Reaktionsgases liegt vorzugsweise im Bereich von <25 Vol.%, insbesondere im Bereich <15 Vol.%. Ein niedriger Wassergehalt ist im allgemeinen zu bevorzugen.

Im allgemeinen wird eine relativ niedrige Wasserkonzentration bevorzugt, da höhere Wassergehalte höhere Betriebstemperaturen erforderlich machen würden. Diese könnte je nach eingesetztem Zeolithtyp und Betriebsdauer die hydrothermalen Stabilitätsgrenzen des Katalysators überschreiten und ist somit dem jeweils gewählten Einzelfall anzupassen.

Auch die Anwesenheit von  $\text{CO}_2$  sowie von anderen desaktivierenden Bestandteilen des Reaktionsgases, die dem Fachmann bekannt sind, sollten nach Möglichkeit minimiert werden, da sich diese negativ auf den  $\text{N}_2\text{O}$ -Abbau auswirken würden.

- 5 Das erfindungsgemäße Verfahren arbeitet auch in Gegenwart von  $\text{O}_2$ , da die erfindungsgemäß verwendeten Katalysatoren entsprechende Selektivitäten aufweisen, die bei Temperaturen  $<500^\circ\text{C}$  eine Reaktion des gasförmigen Reduktionsmittels, wie  $\text{NH}_3$ , mit  $\text{O}_2$  unterdrücken.
- 10 All diese Einflussfaktoren, sowie die gewählte Katalysatorbelastung d.h. Raumgeschwindigkeit sind bei der Wahl der geeigneten Betriebstemperatur der Reaktionszone zu berücksichtigen.

- 15 Das erfindungsgemäße Verfahren kann besonders bei der Salpetersäureproduktion, bei Kraftwerksabgasen oder bei Gasturbinen zum Einsatz kommen. In diesen Prozessen fallen stickoxidhaltige Prozeß- und Abgase an, die mit Hilfe des hier aufgezeigten Verfahrens kostengünstig entsorgt werden können. Das erfindungsgemäße Verfahren wird zweckmäßigerweise im Restgas der Salpetersäureproduktion nach dem Absorptionsturm eingesetzt.

- 20 Die Ausführung der Katalysatorbetten ist im Sinne der Erfindung frei gestaltbar. So kann beispielsweise der Katalysator oder die Katalysatoren in einem axial oder vorzugsweise radial durchströmten Katalysatorbett angeordnet sein, die in einem oder mehreren Behältern untergebracht sind.

- 25 Gegenstand der Erfindung ist weiterhin eine Vorrichtung zur Minderung des Gehalts von  $\text{NO}_x$  und  $\text{N}_2\text{O}$  in Gasen, insbesondere in Prozessgasen und Abgasen, umfassend:

- 30 A) zwei hintereinander geschaltete Katalysatorbetten enthaltend einen oder mehrere mit Eisen beladene Zeolithe, welche von dem  $\text{NO}_x$  und  $\text{N}_2\text{O}$  enthaltenden Gas durchströmt werden,

B) eine zwischen den Katalysatorbetten angeordnete Vorrichtung zur Einbringung eines gasförmigen Reduktionsmittels in den Strom des  $\text{NO}_x$  und  $\text{N}_2\text{O}$  enthaltenden Gases, wobei

C) mindestens eines der Katalysatorbetten von dem  $\text{NO}_x$  und  $\text{N}_2\text{O}$  enthaltenden Gas radial durchströmt wird.

In einer bevorzugten Ausführungsform sind beide Katalysatorbetten in einem Behälter angeordnet, was die Apparatkosten deutlich senkt.

Erfindungsgemäß wird mindestens ein Katalysatorbett, bevorzugt beide Katalysatorbetten, vom zu reinigenden Gas radial durchströmt, was einen deutlich geminderten Druckverlust verursacht.

Die radial durchströmten Katalysatorbetten sind beispielsweise in der Form von Hohlzylindern ausgestaltet, können aber auch andere Formen aufweisen. Die radial durchströmten Katalysatorbetten können übereinander angeordnet sein oder es kann eine Kombination von axial und radial durchströmten Katalysatorbetten gewählt werden. Dabei ist durch geeignet angebrachte Trennflächen zwischen den Katalysatorbetten der Weg des Gases so vorzugeben, dass zunächst das erste und sodann das zweite Katalysatorbett durchströmt wird.

Im Fall von radial durchströmten Katalysatorbetten können diese auch in Form von konzentrisch ineinander angeordneten Hohlzylindern vorliegen. Auch bei dieser Ausführungsform ist darauf zu achten, dass durch geeignet angebrachte Trennflächen zwischen den Katalysatorbetten der Weg des Gases so vorgegeben wird, dass zunächst das erste und sodann das zweite Katalysatorbett durchströmt wird.

Die Strömungsrichtung des Gases kann im Radialkorbreaktor von innen nach außen oder von außen nach innen verlaufen.

In einer bevorzugten Ausführungsform liegen zwei radial durchströmte Katalysatorbetten, beispielsweise in Form von zwei Hohlzylindern, mit

verschiedenen Abmessungen vor, wobei das Außenmaß des einen Katalysatorbettes kleiner ist als das Innenmaß des anderen Katalysatorbettes und beide Katalysatorbetten konzentrisch zueinander angeordnet sind, und wobei durch geeignet angebrachte Trennflächen zwischen den Katalysatorbetten der Weg des Gases so vorgegeben wird, dass zunächst das erste und sodann das zweite Katalysatorbett durchströmt wird.

In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform der erfindungsgemäßen Vorrichtung wird das Gas nach Durchströmung des ersten Katalysatorbettes in einen Mischer geleitet, der vorzugsweise im Zentrum der Vorrichtung angeordnet ist, und bei der eine Zuleitung für Reduktionsmittel vorgesehen ist, die in den Raum hinter dem ersten Katalysatorbett und vor oder vorzugsweise in den Mischer mündet, und wobei das zu reinigende Gas nach Verlassen des Mixers durch das zweite Katalysatorbett geleitet wird.

Der Mischer dient zur innigen Verteilung des Reduktionsmittels im Gasstrom. Der Mischer ist im Sinne der Erfindung frei gestaltbar, beispielsweise als statischer Mischer mit entsprechenden Einbauten oder als dynamischer Mischer. Auch die einfachste Form eines vorzugsweise turbulent durchströmten Rohres ist als Mischer im Sinne der Erfindung anzusehen.

Figuren 1 bis 6 beschreiben bevorzugte Ausführungsformen der erfindungsgemäßen Vorrichtung im Längsschnitt.

Figur 1 stellt eine erfindungsgemäße Vorrichtung mit Gaseintritt (1) und Gasaustritt (2) dar. Im oberen, dem Gaseintritt (1) zugewandten Innenraum ist das erste Katalysatorbett in Form eines Hohlzylinders (4) angeordnet und befindet sich auf einer Trennwand, die den Raum der Vorrichtung in zwei Hälften aufteilt. Ferner ist die obere Seitenfläche des Hohlzylinders (4) durch eine Trennwand verschlossen. Das zu reinigende Gas strömt durch den Gaseintritt (1) und über den Ringspalt des Eintritts (7) des ersten Katalysatorbettes in den Ringspalt des Austritts (8) des ersten Katalysatorbettes radial durch das erste Katalysatorbett. Von dort strömt es in den Mischer (6), an dessen Eintrittsseite eine Eintrittsleitung (3) für das Reduktionsmittel

18  
13

mündet. Mischer (6) wird durch die Trennwand geführt und das Gas strömt sodann durch den Ringspalt des Eintritts (9) des unter dem ersten Katalysatorbett (4) angeordneten zweiten Katalysatorbettes (5) in den Ringspalt des Austritts (10) des zweiten Katalysatorbettes (5) radial durch das zweite Katalysatorbett. Von dort verlässt das gereinigte Gas die Vorrichtung über den Gasaustritt (2).

Figur 2 beschreibt eine ähnliche Ausführungsform wie Figur 1 mit der Abänderung, dass das erste Katalysatorbett (4) unterhalb des zweiten Katalysatorbettes (5) angeordnet ist und dass Gaseintritt (1) und Gasaustritt (2) seitlich in der Vorrichtung angeordnet sind. Die übrigen Bezugszeichen haben die bei der Beschreibung von Figur 1 aufgeführte Bedeutung.

Figur 3 stellt eine weitere Ausführungsform der erfindungsgemäße Vorrichtung mit Gaseintritt (1) und Gasaustritt (2) dar. Erstes Katalysatorbett (4) und zweites Katalysatorbett (5) sind hier in Form von zwei konzentrisch ineinander angeordneten Hohlzylindern ausgestaltet. Das erste Katalysatorbett (4) befindet sich außerhalb einer konzentrischen Trennwand (11), die die untere Seitenfläche des Katalysatorbettes (4), die Ringspalte (7) und (8) sowie den Innenraum der Vorrichtung und die obere Seitenfläche des zweiten Katalysatorbettes (5) abschließt. Das zu reinigende Gas tritt durch den Gaseintritt (1) in die Vorrichtung ein, durchströmt das erste Katalysatorbett vom Ringspalt Eintritt (7) radial von außen nach innen in den Ringspalt Austritt (8). Von dort strömt es in den Mischer (6), an dessen Eintrittsseite eine Eintrittsleitung (3) für das Reduktionsmittel mündet. Mischer (6) mündet in den Innenraum des zweiten Katalysatorbettes (5), das nach unten durch eine Trennwand verschlossen ist. Das Gas strömt sodann durch den Ringspalt des Eintritts (9) des zweiten Katalysatorbettes (5) in den Ringspalt des Austritts (10) des zweiten Katalysatorbettes (5) radial nach außen durch das zweite Katalysatorbett. Von dort verlässt das gereinigte Gas die Vorrichtung über den Gasaustritt (2).

Figur 4 beschreibt eine ähnliche Ausführungsform wie Figur 3 mit der Abänderung, dass das erste Katalysatorbett (4) den inneren Hohlzylinder bildet und das zweite

Katalysatorbett (5) den äußeren Hohlzylinder bildet. Die übrigen Bezugszeichen haben die bei der Beschreibung von Figur 3 aufgeführte Bedeutung.

Figur 5 beschreibt eine Ausführungsform, in der ein axial und ein radial durchströmtes Katalysatorbett vorgesehen sind. Das Gas strömt über den Gaseintritt (1) axial durch das erste Katalysatorbett (4) und in den Mischer (6). In der Vorrichtung befindet sich eine Trennwand, die den Raum der Vorrichtung in zwei Hälften aufteilt. An der Eintrittsseite des Mixers (6) mündet eine Eintrittsleitung (3) für das Reduktionsmittel. Von Mischer (6) strömt das Gas in den Ringspalt des Eintritts (9) des zweiten Katalysatorbettes (5) und durch dieses radial in den Ringspalt des Austritts (10). Von dort verlässt das gereinigte Gas die Vorrichtung über den Gasaustritt (2).

Figur 6 beschreibt eine ähnliche Ausführungsform wie Figur 5 mit der Abänderung, dass das erste Katalysatorbett (4) radial und das zweite Katalysatorbett (5) axial durchströmt werden. Die übrigen Bezugszeichen haben die bei der Beschreibung von Figur 3 aufgeführte Bedeutung.

Das erfindungsgemäße Verfahren wird durch das nachfolgende Beispiel erläutert.

Als Katalysator wurde ein mit Eisen beladener Zeolith vom Typ ZSM-5 eingesetzt. Die Herstellung des Fe-ZSM-5-Katalysators erfolgte durch Festkörper-Ionentausch ausgehend von einem kommerziell verfügbaren Zeolith in Ammonium-Form (ALSI-PENTA, SM27). Detaillierte Angaben zur Präparation können entnommen werden aus: M. Rauscher, K. Kesore, R. Mönning, W. Schwieger, A. Tißler, T. Turek: "Preparation of highly active Fe-ZSM-5 catalyst through solid state ion exchange for the catalytic decomposition of  $N_2O$ " in Appl. Catal. 184 (1999) 249-256.

Die Katalysatorpulver wurden an der Luft für 6h bei 823K kalziniert, gewaschen und über Nacht bei 383K getrocknet. Nach Zusatz entsprechender Binder folgte die Extrusion zu zylindrischen Katalysatorkörpern.

Als Vorrichtung zur Minderung des  $\text{NO}_x$ - und  $\text{N}_2\text{O}$ -Gehaltes kamen zwei hintereinander geschaltete Rohrreaktoren zum Einsatz, welche jeweils mit einer solchen Menge an obigem Katalysator befüllt waren, dass bezogen auf den eintretenden Gasstrom jeweils eine Raumgeschwindigkeit von  $15.000 \text{ h}^{-1}$  resultierte.

5 Zwischen den beiden Reaktionszonen erfolgt die Zugabe von  $\text{NH}_3$ -Gas. Die Betriebstemperatur der Reaktionszonen wurde durch Beheizung eingestellt. Die Analyse der in die Reaktoren ein- und austretenden Gasströme erfolgte mit Hilfe eines FTIR-Gasanalysators.

10 Bei Eingangskonzentrationen von 1.500 ppm  $\text{N}_2\text{O}$ , 350 ppm  $\text{NO}_x$ , 3.000 ppm  $\text{H}_2\text{O}$  und 1,2 %vol  $\text{O}_2$  in  $\text{N}_2$  und einer intermediären Zugabe von  $\text{NH}_3$  resultierten bei einer einheitlichen Betriebstemperatur von  $425^\circ\text{C}$  und einem Betriebsdruck von 6,5 bar die in der folgenden Tabelle aufgelisteten Umsatzergebnisse für  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{NO}_x$  und  $\text{NH}_3$

15 Tabelle

|                       | Eingangskonzentration             | Austrittskonzentration | Umsatz |
|-----------------------|-----------------------------------|------------------------|--------|
| $\text{N}_2\text{O}$  | 1.500 ppm (Reaktor 1)             | 540 ppm (Reaktor 1)    | 64 %   |
| $\text{NO}_x$ (x=1-2) | 360 ppm (Reaktor 2)               | 80 ppm (Reaktor 2)     | 78 %   |
| $\text{NH}_3$         | 310 ppm <sup>1)</sup> (Reaktor 2) | 0 ppm (Reaktor 2)      | 100 %  |
| $\text{N}_2\text{O}$  | 540 ppm (Reaktor 2)               | 190 ppm (Reaktor 2)    | 65 %   |

<sup>1)</sup> zugegeben zwischen erstem und zweiten Reaktor

**Patentansprüche:**

1. Verfahren zur Minderung des Gehalts von  $\text{NO}_x$  und  $\text{N}_2\text{O}$  in Gasen,  
insbesondere in Prozessgasen und Abgasen, umfassend die Massnahmen:
  - a) Leiten des  $\text{N}_2\text{O}$  und  $\text{NO}_x$  enthaltenden Gases über eine Folge zweier Katalysatorbetten enthaltend einen oder mehrere mit Eisen beladene Zeolithe,
  - b) Zugabe eines Reduktionsmittels für  $\text{NO}_x$  zwischen den Katalysatorbetten,
  - c) Einstellen einer Temperatur von weniger als  $500^\circ\text{C}$  im ersten Katalysatorbett und zweiten Katalysatorbett,
  - d) Einstellen eines Gasdruckes von mindestens 2 bar in den beiden Katalysatorbetten,
  - e) Auswahl einer solchen Raumgeschwindigkeit im ersten und zweiten Katalysatorbett, so dass im ersten Katalysatorbett ein Abbau des  $\text{N}_2\text{O}$ -Gehalts des Gases um höchstens bis zu 90%, bezogen auf den  $\text{N}_2\text{O}$ -Gehalt am Eingang des ersten Katalysatorbettes, erfolgt, und dass im zweiten Katalysatorbett ein weiterer Abbau des  $\text{N}_2\text{O}$ -Gehalts des Gases um mindestens 30%, bezogen auf den  $\text{N}_2\text{O}$  Gehalt am Eingang des zweiten Katalysatorbettes, erfolgt.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass im ersten und zweiten Katalysatorbett der gleiche Katalysator verwendet wird.
3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der oder die mit Eisen beladenen Zeolithe vom Typ MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder MEL sind.
4. Verfahren nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, dass der mit Eisen beladene Zeolith vom Typ MFI ist.
5. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Zeolith ein Fe-ZSM-5 ist.

6. Verfahren nach Anspruche 1, dadurch gekennzeichnet, dass das Verfahren bei einem Druck im Bereich von 4 bis 25 bar durchgeführt wird.
- 5 7. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass als Reduktionsmittel für  $\text{NO}_x$  Ammoniak verwendet wird, das in einer Menge von 1,0 bis 1,2 molaren Anteilen, bezogen auf einen molaren Anteil an abzubauenem  $\text{NO}_x$ , eingesetzt wird.
- 10 8. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das  $\text{NO}_x$  und  $\text{N}_2\text{O}$  enthaltende Gas mit einer Raumgeschwindigkeit von 5.000 bis 50.000  $\text{h}^{-1}$ , bezogen auf das addierte Katalysatorvolumen beider Katalysatorbetten über diese geleitet wird.
- 15 9. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Temperatur in der ersten und in der zweiten Reaktionszone zwischen 350 bis 450°C liegt.
- 20 10. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass in mindestens einem Katalysatorbett mit Eisen beladene Zeolithe eingesetzt werden, die mit Wasserdampf behandelt worden sind.
- 25 11. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass als Katalysatoren in mindestens einem Katalysatorbett mit Eisen beladene Zeolithe eingesetzt werden, bei denen das Verhältnis von Extra-Gitter-Aluminium zu Gitter-Aluminium mindestens 0,5 beträgt.
- 30 12. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass dieses in den Prozeß der Salpetersäureproduktion integriert ist.
13. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass dieses in den Prozeß des Betriebes einer Gasturbine integriert ist.
14. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass dieses in den Prozeß des Betriebes eines Kraftwerks integriert ist.

15. Vorrichtung zur Minderung des Gehalts von  $\text{NO}_x$  und  $\text{N}_2\text{O}$  in Gasen, insbesondere in Prozessgasen und Abgasen, umfassend:

- 5 A) zwei hintereinander geschaltete Katalysatorbetten enthaltend einen oder mehrere mit Eisen beladene Zeolithe, welche von dem  $\text{NO}_x$  und  $\text{N}_2\text{O}$  enthaltenden Gas durchströmt werden,
- B) eine zwischen den Katalysatorbetten angeordnete Vorrichtung zur Einbringung eines gasförmigen Reduktionsmittels in den Strom des  $\text{NO}_x$  und  $\text{N}_2\text{O}$  enthaltenden Gases, wobei
- 10 C) mindestens eines der Katalysatorbetten von dem  $\text{NO}_x$  und  $\text{N}_2\text{O}$  enthaltenden Gas radial durchströmt wird.

- 15 16. Vorrichtung nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, dass beide Katalysatorbetten in einem Behälter angeordnet sind.

17. Vorrichtung nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, dass beide Katalysatorbetten vom  $\text{NO}_x$  und  $\text{N}_2\text{O}$  enthaltenden Gas radial durchströmt werden.

- 20 18. Vorrichtung nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, dass das radial durchströmte Katalysatorbett in der Form eines Hohlzylinders ausgestaltet ist.

- 25 19. Vorrichtung nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, dass zwei radial durchströmte Katalysatorbetten übereinander angeordnet sind oder dass eine Kombination von übereinander angeordneten axial und radial durchströmten Katalysatorbetten vorliegt, wobei durch geeignet angebrachte Trennflächen zwischen den Katalysatorbetten der Weg des Gases so vorgegeben wird, dass zunächst das erste und sodann das zweite Katalysatorbett durchströmt wird.

- 30 20. Vorrichtung nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, dass zwei radial durchströmte Katalysatorbetten mit verschiedenen Abmessungen vorliegen, wobei das Außenmaß des einen Katalysatorbettes kleiner ist als das

Innenmaß des anderen Katalysatorbettes und beide Katalysatorbetten konzentrisch zueinander angeordnet sind, und wobei durch geeignet angebrachte Trennflächen zwischen den Katalysatorbetten der Weg des Gases so vorgegeben wird, dass zunächst das erste und sodann das zweite Katalysatorbett durchströmt wird.

5

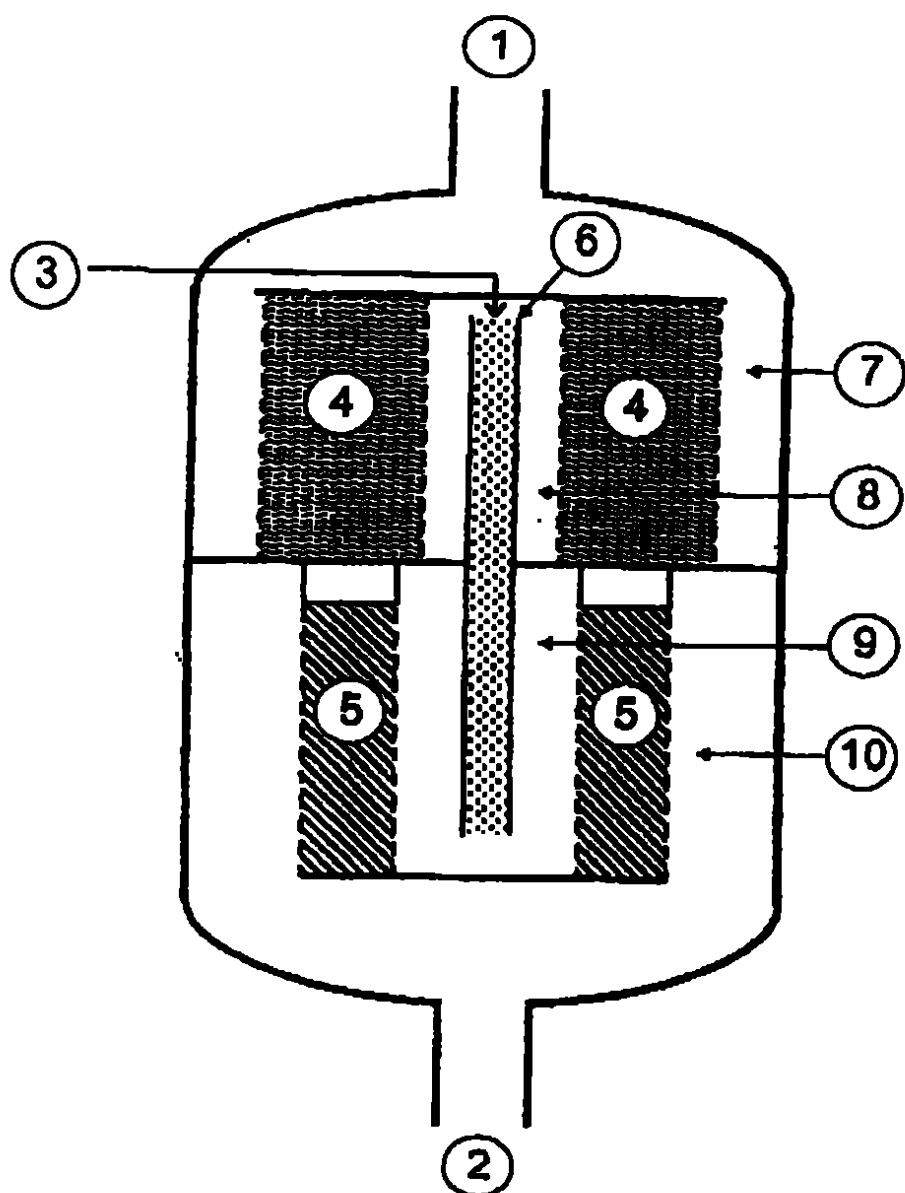
21. Vorrichtung nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, dass das Gas nach Durchströmung des ersten Katalysatorbettes in einen, vorzugsweise im Zentrum der Vorrichtung angeordneten, Mischer geleitet wird, und bei der eine Zuleitung für Reduktionsmittel vorgesehen ist, die in den Raum hinter dem ersten Katalysatorbett und vor oder vorzugsweise in den Mischer mündet, und wobei das zu reinigende Gas nach Verlassen des Mixers durch das zweite Katalysatorbett geleitet wird.

10

22. Vorrichtung nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, dass der Mischer als statischer Mischer oder als dynamischer Mischer ausgestaltet ist, vorzugsweise in Form eines durchströmten Rohres.

15

17  
17



Figur 1

18  
B

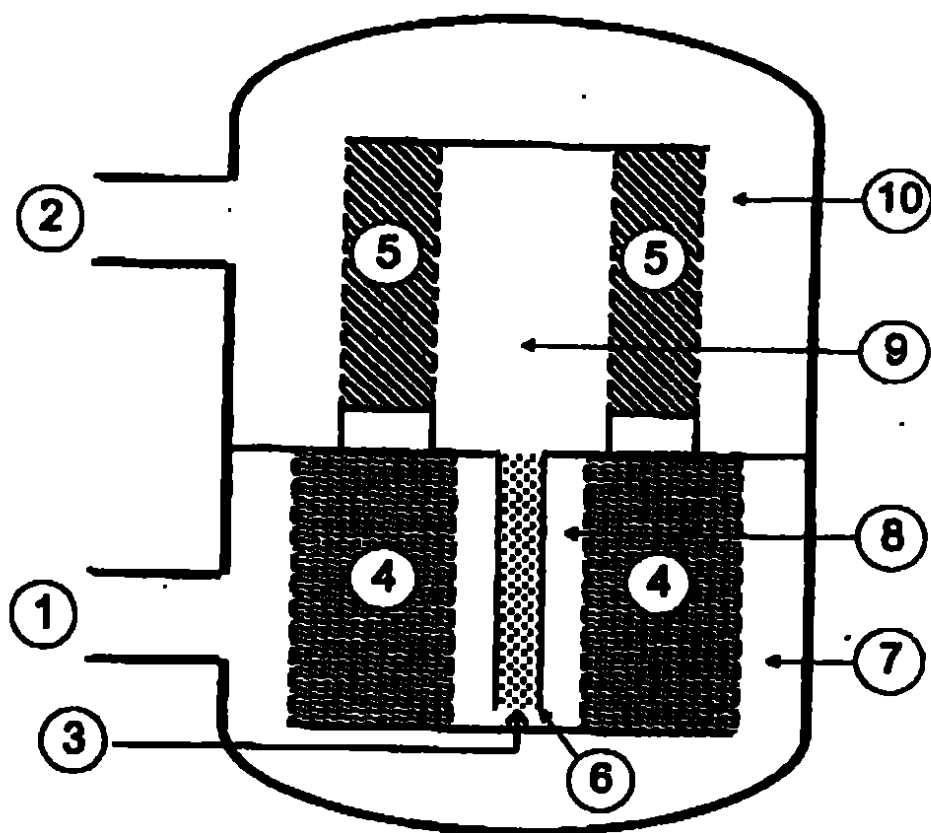
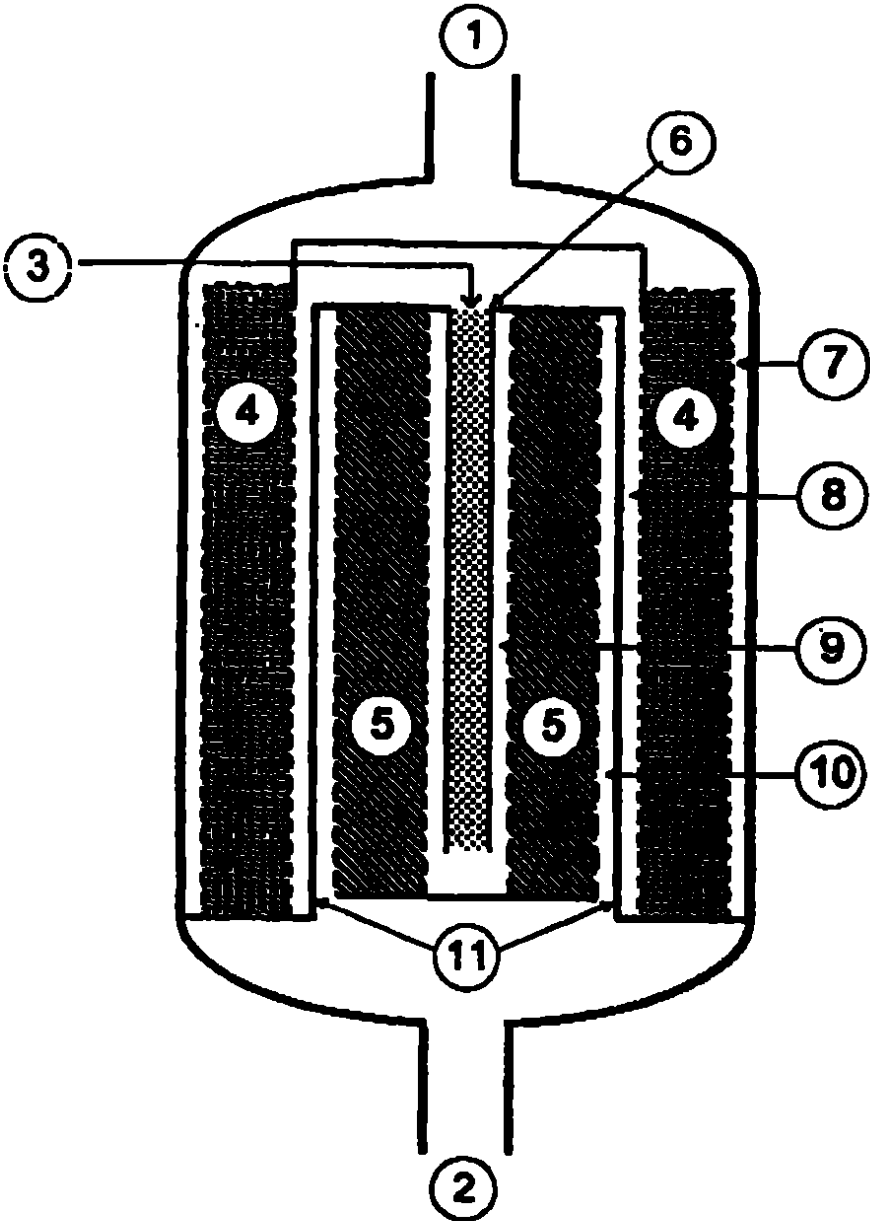


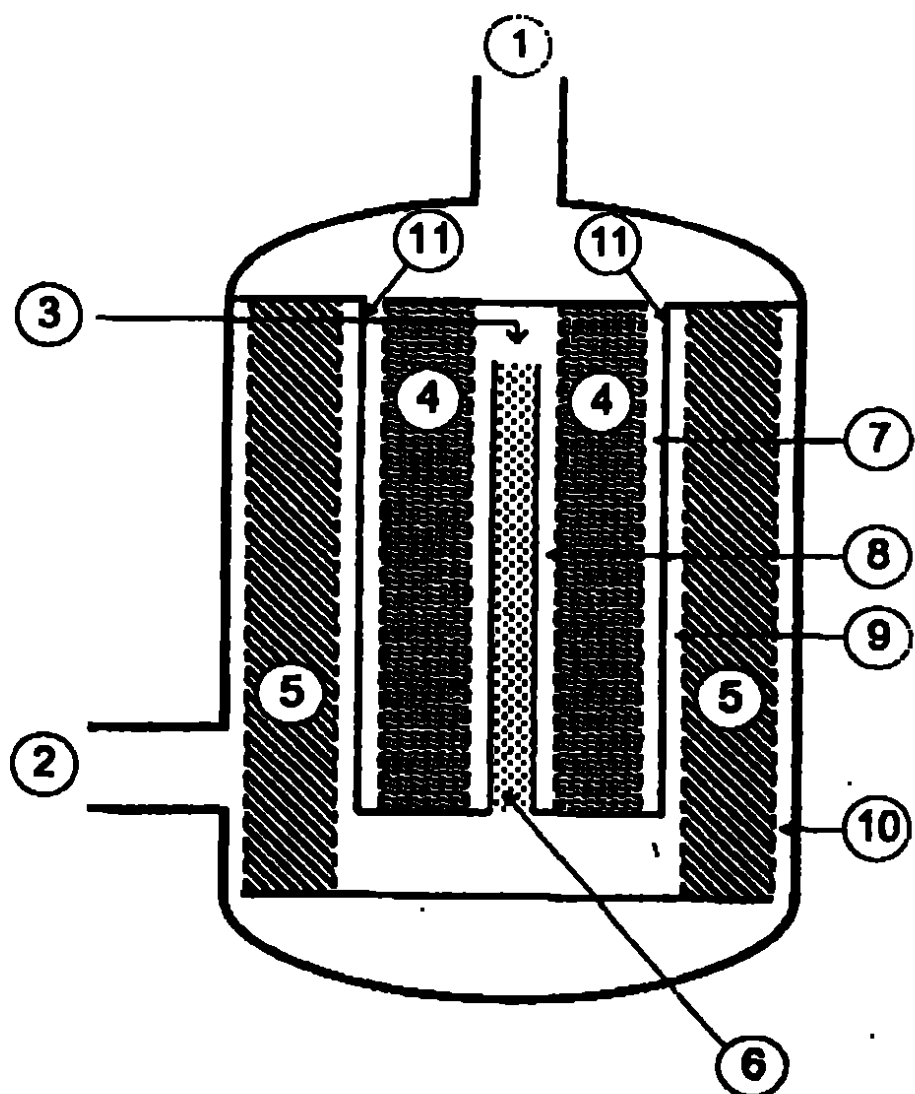
Figure 2

19  
1-1



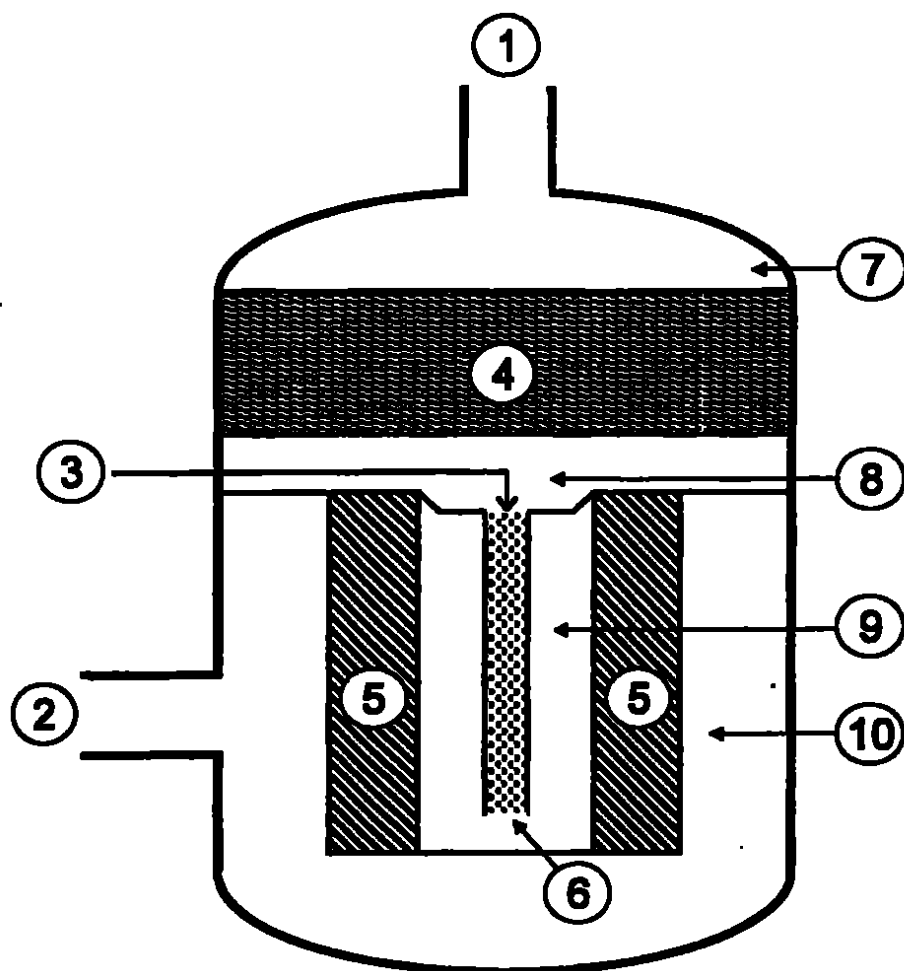
Figur 3

20  
70



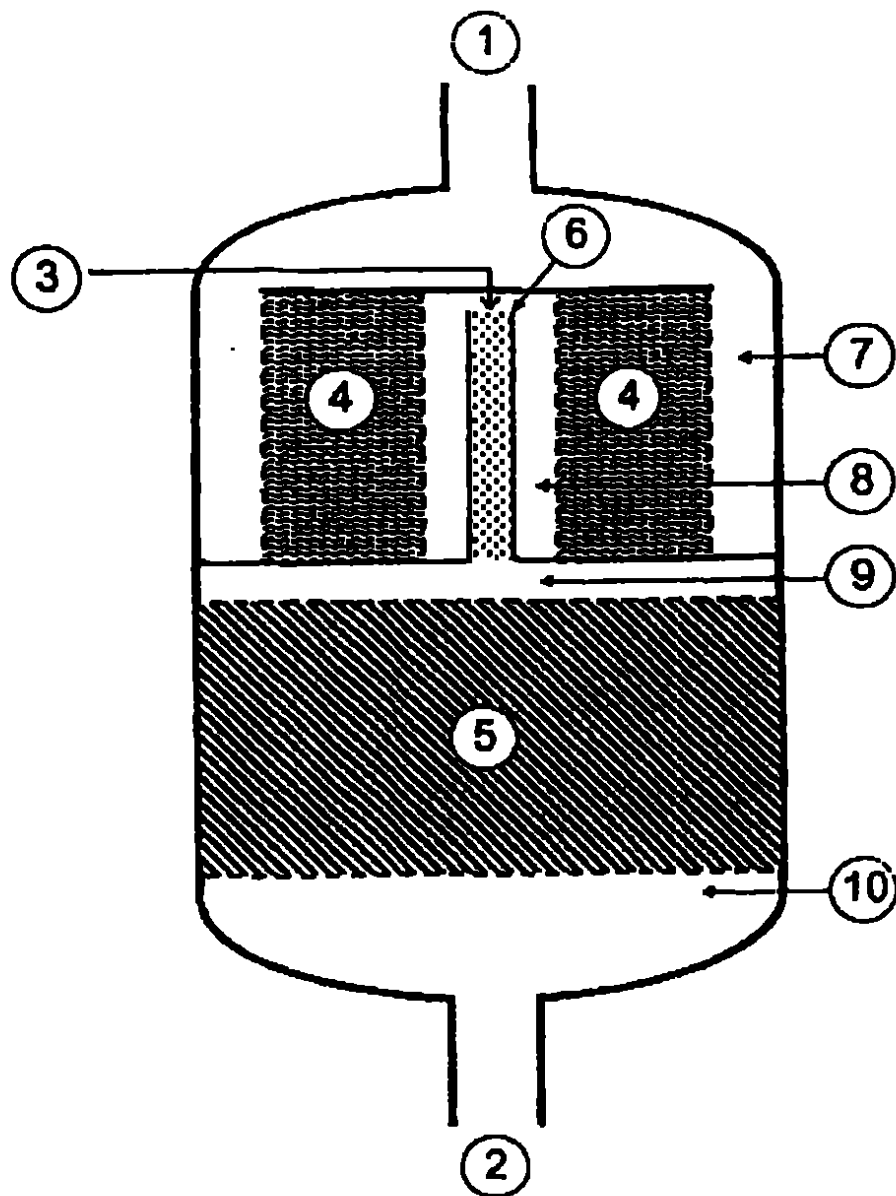
Figur 4.

21



Figur 5

22  
-22



Figur 6

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/EP 03/06051

25  
73

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 B01D53/86 B01J8/04 B01J8/02 B01J19/30 B01J29/06

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 B01D B01J

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category * | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                          | Relevant to claim No. |
|------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| X          | WO 01 51181 A (SCHWEFER MEINHARD ;SZONN ERICH (DE); KRUPP UHDE GMBH (DE); TUREK T)<br>19 July 2001 (2001-07-19)<br>cited in the application | 1-17                  |
| Y          | the whole document                                                                                                                          | 18-22                 |
| Y          | US 3 733 181 A (VILLIERS FISHER J ET AL)<br>15 May 1973 (1973-05-15)<br>figures 1,2                                                         | 18,20-22              |
| Y          | EP 0 967 006 A (KRUPP UHDE GMBH)<br>29 December 1999 (1999-12-29)<br>figure 2                                                               | 18,19                 |
| X          | US 5 516 497 A (BYRNE JOHN W ET AL)<br>14 May 1996 (1996-05-14)<br>claims                                                                   | 1-17                  |
|            | —<br>-/-                                                                                                                                    |                       |

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

### \* Special categories of cited documents:

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document relating to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- "Z" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

19 September 2003

Date of mailing of the international search report

01/10/2003

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-8040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Gruber, M

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/EP 03/06051

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category * | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                  | Relevant to claim No. |
|------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| X          | WO 01 51182 A (SCHWEFER MEINHARD ;KOEGL<br>MARKUS (DE); MAURER RAINER (DE); KRUPP U)<br>19 July 2001 (2001-07-19)<br>claims; figure | 1-17                  |
| P,A        | WO 02 068098 A (ABB LUMMUS GLOBAL INC)<br>6 September 2002 (2002-09-06)<br>figures 2B-2I                                            | 1-22                  |
| A          | US 5 053 210 A (PIETZARKA<br>FRIEDRICH-WILHELM ET AL)<br>1 October 1991 (1991-10-01)<br>claims; figures                             | 1                     |
| A          | EP 1 022 056 A (AIR LIQUIDE)<br>26 July 2000 (2000-07-26)<br>the whole document                                                     | 18-22                 |
| A          | US 2 475 855 A (PETERS HARRY F)<br>12 July 1949 (1949-07-12)<br>the whole document                                                  | 18-22                 |
| A          | US 4 372 920 A (ZARDI UMBERTO)<br>8 February 1983 (1983-02-08)<br>the whole document                                                | 18-22                 |

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP 03/06051

| Patent document<br>cited in search report |   | Publication<br>date | Patent family<br>member(s) | Publication<br>date |
|-------------------------------------------|---|---------------------|----------------------------|---------------------|
| WO 0151181                                | A | 19-07-2001          | DE 10001539 A1             | 02-08-2001          |
|                                           |   |                     | AU 3368801 A               | 24-07-2001          |
|                                           |   |                     | CA 2397250 A1              | 19-07-2001          |
|                                           |   |                     | CN 1395501 T               | 05-02-2003          |
|                                           |   |                     | CZ 20022433 A3             | 18-06-2003          |
|                                           |   |                     | WO 0151181 A1              | 19-07-2001          |
|                                           |   |                     | EP 1259307 A1              | 27-11-2002          |
|                                           |   |                     | HU 0204088 A2              | 28-04-2003          |
|                                           |   |                     | NO 20023342 A              | 05-09-2002          |
|                                           |   |                     | US 2003143141 A1           | 31-07-2003          |
| US 3733181                                | A | 15-05-1973          | DE 2306471 A1              | 29-08-1974          |
|                                           |   |                     | FR 2217061 A1              | 06-09-1974          |
|                                           |   |                     | GB 1366061 A               | 11-09-1974          |
|                                           |   |                     | NL 7301678 A               | 08-08-1974          |
| EP 0967006                                | A | 29-12-1999          | DE 19828777 A1             | 30-12-1999          |
|                                           |   |                     | AT 246038 T                | 15-08-2003          |
|                                           |   |                     | DE 59906415 D1             | 04-09-2003          |
|                                           |   |                     | EP 0967006 A2              | 29-12-1999          |
|                                           |   |                     | JP 2000033258 A            | 02-02-2000          |
| US 5516497                                | A | 14-05-1996          | US 5024981 A               | 18-06-1991          |
|                                           |   |                     | AT 125461 T                | 15-08-1995          |
|                                           |   |                     | CA 2012039 A1              | 20-10-1990          |
|                                           |   |                     | DE 69021115 D1             | 31-08-1995          |
|                                           |   |                     | DE 69021115 T2             | 14-03-1996          |
|                                           |   |                     | DK 393905 T3               | 11-12-1995          |
|                                           |   |                     | EP 0393905 A2              | 24-10-1990          |
|                                           |   |                     | ES 2075151 T3              | 01-10-1995          |
|                                           |   |                     | GR 3017607 T3              | 31-01-1996          |
|                                           |   |                     | JP 2293022 A               | 04-12-1990          |
| WO 0151182                                | A | 19-07-2001          | DE 10001541 A1             | 02-08-2001          |
|                                           |   |                     | AU 2845801 A               | 24-07-2001          |
|                                           |   |                     | CA 2397265 A1              | 19-07-2001          |
|                                           |   |                     | CN 1395502 T               | 05-02-2003          |
|                                           |   |                     | CZ 20022435 A3             | 14-05-2003          |
|                                           |   |                     | WO 0151182 A1              | 19-07-2001          |
|                                           |   |                     | EP 1268040 A1              | 02-01-2003          |
|                                           |   |                     | HU 0204148 A2              | 28-05-2003          |
|                                           |   |                     | NO 20023341 A              | 27-08-2002          |
|                                           |   |                     | US 2003143142 A1           | 31-07-2003          |
| WO 02068098                               | A | 06-09-2002          | US 2002159923 A1           | 31-10-2002          |
|                                           |   |                     | WO 02068098 A2             | 06-09-2002          |
| US 5053210                                | A | 01-10-1991          | DE 3604204 A1              | 13-08-1987          |
|                                           |   |                     | AT 65934 T                 | 15-08-1991          |
|                                           |   |                     | EP 0232731 A2              | 19-08-1987          |
|                                           |   |                     | JP 62193632 A              | 25-08-1987          |
| EP 1022056                                | A | 26-07-2000          | FR 2788450 A1              | 21-07-2000          |
|                                           |   |                     | EP 1022056 A1              | 26-07-2000          |
| US 2475855                                | A | 12-07-1949          | NONE                       |                     |
| US 4372920                                | A | 08-02-1983          | IT 1132092 B               | 25-06-1986          |

|                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            |                                                                                                                                               |                                                                         |
|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------|
| <b>A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES</b><br>IPK 7 B01D53/86 B01J8/04 B01J8/02 B01J19/30 B01J29/06                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                               |                                                                                                                                               |                                                                         |
| Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    |                                                                                                                                               |                                                                         |
| <b>B. RESEARCHIERTE GEBIETE</b>                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            |                                                                                                                                               |                                                                         |
| Researchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)<br>IPK 7 B01D B01J                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                      |                                                                                                                                               |                                                                         |
| Researchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die researchierten Gebiete fallen                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                           |                                                                                                                                               |                                                                         |
| Während der Internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)<br>EPO-Internal                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          |                                                                                                                                               |                                                                         |
| <b>C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN</b>                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                             |                                                                                                                                               |                                                                         |
| Kategorie*                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                 | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile                                            | Betr. Anspruch Nr.                                                      |
| X                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          | WO 01 51181 A (SCHWEFER MEINHARD ; SZONN ERICH (DE); KRUPP UHDE GMBH (DE); TUREK T)<br>19. Juli 2001 (2001-07-19)<br>in der Anmeldung erwähnt | 1-17                                                                    |
| Y                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          | das ganze Dokument                                                                                                                            | 18-22                                                                   |
| Y                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          | US 3 733 181 A (VILLIERS FISHER J ET AL)<br>15. Mai 1973 (1973-05-15)<br>Abbildungen 1,2                                                      | 18,20-22                                                                |
| Y                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          | EP 0 967 006 A (KRUPP UHDE GMBH)<br>29. Dezember 1999 (1999-12-29)<br>Abbildung 2                                                             | 18,19                                                                   |
| X                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          | US 5 516 497 A (BYRNE JOHN W ET AL)<br>14. Mai 1996 (1996-05-14)<br>Ansprüche                                                                 | 1-17                                                                    |
|                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            | ---<br>-/-                                                                                                                                    |                                                                         |
| <input checked="" type="checkbox"/> Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen <input checked="" type="checkbox"/> Siehe Anhang Patentfamilie                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                 |                                                                                                                                               |                                                                         |
| <p>* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :</p> <p>*A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist</p> <p>*E* Älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist</p> <p>*L* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)</p> <p>*O* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht</p> <p>*P* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist</p> <p>*T* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist</p> <p>*X* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden</p> <p>*Y* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist</p> <p>*Z* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist</p> |                                                                                                                                               |                                                                         |
| Datum des Abschlusses der Internationalen Recherche<br><br>19. September 2003                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                              |                                                                                                                                               | Abschließdatum des internationalen Recherchenberichts<br><br>01/10/2003 |
| Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde<br>Europäisches Patentamt, P.B. 5618 Patentamt 2<br>NL - 2280 HV Rijswijk<br>Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,<br>Fax (+31-70) 340-3016                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                              |                                                                                                                                               | Bevollmächtigter Beauftragter<br><br>Gruber, M                          |

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

| Kategorie* | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile                                         | Betr. Anspruch Nr. |
|------------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------|
| X          | WO 01 51182 A (SCHWEFER MEINHARD ;KOEGL<br>MARKUS (DE); MAURER RAINER (DE); KRUPP U)<br>19. Juli 2001 (2001-07-19)<br>Ansprüche; Abbildung | 1-17               |
| P,A        | WO 02 068098 A (ABB LUMMUS GLOBAL INC)<br>6. September 2002 (2002-09-06)<br>Abbildungen 2B-2I                                              | 1-22               |
| A          | US 5 053 210 A (PIETZARKA<br>FRIEDRICH-WILHELM ET AL)<br>1. Oktober 1991 (1991-10-01)<br>Ansprüche; Abbildungen                            | 1                  |
| A          | EP 1 022 056 A (AIR LIQUIDE)<br>26. Juli 2000 (2000-07-26)<br>das ganze Dokument                                                           | 18-22              |
| A          | US 2 475 855 A (PETERS HARRY F)<br>12. Juli 1949 (1949-07-12)<br>das ganze Dokument                                                        | 18-22              |
| A          | US 4 372 920 A (ZARDI UMBERTO)<br>8. Februar 1983 (1983-02-08)<br>das ganze Dokument                                                       | 18-22              |

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationaler Abdruck

PCT/EP 03/06051

| Im Recherchenbericht<br>angeführtes Patentedokument |   | Datum der<br>Veröffentlichung | Mitglied(er) der<br>Patentfamilie | Datum der<br>Veröffentlichung |
|-----------------------------------------------------|---|-------------------------------|-----------------------------------|-------------------------------|
| WO 0151181                                          | A | 19-07-2001                    | DE 10001539 A1                    | 02-08-2001                    |
|                                                     |   |                               | AU 3368801 A                      | 24-07-2001                    |
|                                                     |   |                               | CA 2397250 A1                     | 19-07-2001                    |
|                                                     |   |                               | CN 1395501 T                      | 05-02-2003                    |
|                                                     |   |                               | CZ 20022433 A3                    | 18-06-2003                    |
|                                                     |   |                               | WO 0151181 A1                     | 19-07-2001                    |
|                                                     |   |                               | EP 1259307 A1                     | 27-11-2002                    |
|                                                     |   |                               | HU 0204088 A2                     | 28-04-2003                    |
|                                                     |   |                               | NO 20023342 A                     | 05-09-2002                    |
|                                                     |   |                               | US 2003143141 A1                  | 31-07-2003                    |
| US 3733181                                          | A | 15-05-1973                    | DE 2306471 A1                     | 29-08-1974                    |
|                                                     |   |                               | FR 2217061 A1                     | 06-09-1974                    |
|                                                     |   |                               | GB 1366061 A                      | 11-09-1974                    |
|                                                     |   |                               | NL 7301678 A                      | 08-08-1974                    |
| EP 0967006                                          | A | 29-12-1999                    | DE 19828777 A1                    | 30-12-1999                    |
|                                                     |   |                               | AT 246038 T                       | 15-08-2003                    |
|                                                     |   |                               | DE 59906415 D1                    | 04-09-2003                    |
|                                                     |   |                               | EP 0967006 A2                     | 29-12-1999                    |
|                                                     |   |                               | JP 2000033258 A                   | 02-02-2000                    |
| US 5516497                                          | A | 14-05-1996                    | US 5024981 A                      | 18-06-1991                    |
|                                                     |   |                               | AT 125461 T                       | 15-08-1995                    |
|                                                     |   |                               | CA 2012039 A1                     | 20-10-1990                    |
|                                                     |   |                               | DE 69021115 D1                    | 31-08-1995                    |
|                                                     |   |                               | DE 69021115 T2                    | 14-03-1996                    |
|                                                     |   |                               | DK 393905 T3                      | 11-12-1995                    |
|                                                     |   |                               | EP 0393905 A2                     | 24-10-1990                    |
|                                                     |   |                               | ES 2075151 T3                     | 01-10-1995                    |
|                                                     |   |                               | GR 3017607 T3                     | 31-01-1996                    |
|                                                     |   |                               | JP 2293022 A                      | 04-12-1990                    |
| WO 0151182                                          | A | 19-07-2001                    | DE 10001541 A1                    | 02-08-2001                    |
|                                                     |   |                               | AU 2845801 A                      | 24-07-2001                    |
|                                                     |   |                               | CA 2397265 A1                     | 19-07-2001                    |
|                                                     |   |                               | CN 1395502 T                      | 05-02-2003                    |
|                                                     |   |                               | CZ 20022435 A3                    | 14-05-2003                    |
|                                                     |   |                               | WO 0151182 A1                     | 19-07-2001                    |
|                                                     |   |                               | EP 1268040 A1                     | 02-01-2003                    |
|                                                     |   |                               | HU 0204148 A2                     | 28-05-2003                    |
|                                                     |   |                               | NO 20023341 A                     | 27-08-2002                    |
|                                                     |   |                               | US 2003143142 A1                  | 31-07-2003                    |
| WO 02068098                                         | A | 06-09-2002                    | US 2002159923 A1                  | 31-10-2002                    |
|                                                     |   |                               | WO 02068098 A2                    | 06-09-2002                    |
| US 5053210                                          | A | 01-10-1991                    | DE 3604204 A1                     | 13-08-1987                    |
|                                                     |   |                               | AT 65934 T                        | 15-08-1991                    |
|                                                     |   |                               | EP 0232731 A2                     | 19-08-1987                    |
|                                                     |   |                               | JP 62193632 A                     | 25-08-1987                    |
| EP 1022056                                          | A | 26-07-2000                    | FR 2788450 A1                     | 21-07-2000                    |
|                                                     |   |                               | EP 1022056 A1                     | 26-07-2000                    |
| US 2475855                                          | A | 12-07-1949                    | KEINE                             |                               |
| US 4372920                                          | A | 08-02-1983                    | IT 1132092 B                      | 25-06-1986                    |

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Informationssymbole

PCT/EP 03/06051

| Im Recherchenbericht<br>angeführtes Patentdokument | Datum der<br>Veröffentlichung | Mitglied(er) der<br>Patentfamilie | Datum der<br>Veröffentlichung |
|----------------------------------------------------|-------------------------------|-----------------------------------|-------------------------------|
| US 4372920 A                                       |                               | IT 1123468 B                      | 30-04-1986                    |
|                                                    |                               | AR 223885 A1                      | 30-09-1981                    |
|                                                    |                               | BR 8004275 A                      | 27-01-1981                    |
|                                                    |                               | CH 643752 A5                      | 29-06-1984                    |
|                                                    |                               | DE 3026199 A1                     | 29-01-1981                    |
|                                                    |                               | ES 8105580 A1                     | 01-09-1981                    |
|                                                    |                               | FR 2460707 A1                     | 30-01-1981                    |
|                                                    |                               | GB 2055606 A ,B                   | 11-03-1981                    |
|                                                    |                               | IN 157234 A1                      | 15-02-1986                    |
|                                                    |                               | MX 155877 A                       | 06-01-1988                    |
|                                                    |                               | NL 8004046 A ,C                   | 15-01-1981                    |
|                                                    |                               | JP 1050452 B                      | 30-10-1989                    |
|                                                    |                               | JP 1568046 C                      | 10-07-1990                    |
|                                                    |                               | JP 56081129 A                     | 02-07-1981                    |
|                                                    |                               | SU 1058487 A3                     | 30-11-1983                    |

27-27

## (12) SOLICITUD INTERNACIONAL PUBLICADA BAJO EL TRATADO DE COOPERACIÓN DE PATENTES (PCT)

- (19) Organización Mundial de la Propiedad Intelectual  
Oficina Internacional  
OMPI
  - (43) Fecha de Publicación Internacional  
24 Diciembre 2003 (24.12.2003)  
PCT
  - (10) Número de Publicación Internacional  
WO 03/105998 A1
- 

- (51) Clasificación Internacional de Patentes<sup>7</sup>: B01D 53/86, B01J 8/04, 8/02, 19/30, 29/06
- (21) Número de Solicitud Internacional: PCT/EP03/06051
- (22) Fecha de Presentación Internacional: 10 Junio 2003 (10.06.2003)
- (25) Idioma de Presentación: Alemán
- (26) Idioma de Publicación: Alemán
- (30) Datos de relacionados con la prioridad: 102 26 461.9                      13 Junio 2002 (13.06.2002) DE
  
- (71) Solicitantes para todos los Estados designados excepto US: UHDE GMBH (DE/DE); Friedrich-Uhde-Strasse 15, 44141 Dortmund (DE).
  
- (72) Inventores: y
- (74) Inventores/Solicitantes (solo para US): SCHWEFER, Meinhard (DE/DE); Aufin Ufer 12, 59872 Merschede (DE); GROVES, Michael (GB/DE); Isenberger Weg 12, 45529 Hattingen (DE); SIEFERT, Rolf (DE/DE); Wartenbergstrasse 18, 33378 Rheda-Wiedenbrück (DE); MAURER, Rainer (DE/DE); Martinstrasse 14, 58332 Schwelm (DE).
  
- (74) Agente: Ackermann, Joachim; Postfach 11 13 26, 60048 Frankfurt (DE).
  
- (81) Estados Designados (nacional): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, UZ, VN, YU, ZA, ZM, ZW
  
- (84) Estados Designados (regional): ARIPO patente (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), Patente Euroasiática (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), Patente Europea (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR), patente OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG)

Publicada:

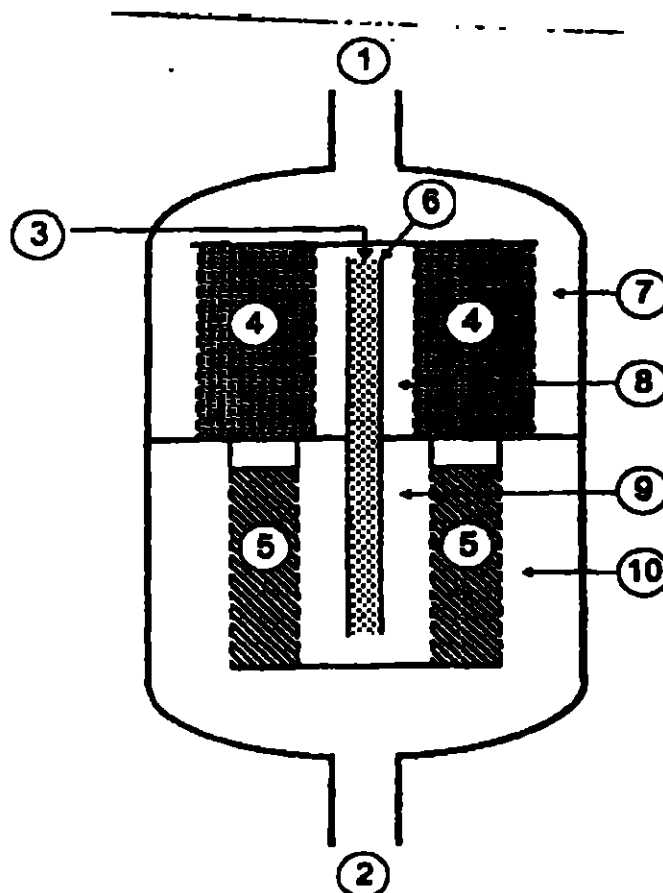
- con reporte de búsqueda internacional

Para códigos de dos letras y otras abreviaturas, referirse a la "Notas de Guía sobre Códigos y Abreviaturas" que aparece al comienzo de cada número regular de la Gaceta del PCT.

---

Como se imprimió

(54) Título: MÉTODO Y DISPOSITIVO PARA LA REDUCCIÓN DE GASES  $\text{NO}_x$  y  $\text{N}_2\text{O}$ .



(57) Extracto: El método comprende los siguientes pasos: a) conducción del gas que contiene  $\text{N}_2\text{O}$  y  $\text{NO}_x$  sobre una serie de dos lechos de catalizador que consisten de una o más zeolitas cargadas de hierro, adición de un agente de reducción para  $\text{NO}_x$  entre los lechos catalizadores, establecimiento de una temperatura de menos de  $500^\circ\text{C}$  en el primer lecho catalizador y el segundo lecho catalizador, establecimiento de una presión de gas de por lo menos 2 bar en los dos lechos catalizadores, y la selección de una velocidad de espacio en los primer y segundo lechos catalizadores en forma tal que una reducción en el contenido de  $\text{N}_2\text{O}$  del gas en no más del 90%, basado en el contenido de  $\text{N}_2\text{O}$  a la entrada al primer lecho catalizador, ocurre en el primer lecho catalizador y que una adicional reducción en el contenido de  $\text{N}_2\text{O}$  de gas en por lo menos 30%, basado en el contenido de  $\text{N}_2\text{O}$  a la entrada al segundo lecho catalizador, ocurre en el segundo lecho catalizador. La primera zona de reacción se usa para degradar  $\text{N}_2\text{O}$  y la segunda zona de reacción reduce  $\text{NO}_x$  y rompe por lo menos parte del  $\text{N}_2\text{O}$  remanente. El dispositivo de la invención comprende por lo menos un lecho catalizador radialmente transversal.

WO 03/105998

PCT/EP03/06051

## Descripción

### Proceso y aparato para reducir el contenido de $\text{NO}_x$ y $\text{N}_2\text{O}$ en gases

La presente invención se relaciona con un proceso para reducir el contenido de óxidos de nitrógeno en gases, en particular en gases de proceso y gases libres, y además un aparato adecuado para llevar a cabo este proceso.

Muchos procesos, por ejemplo procesos de combustión o en la preparación industrial de ácido nítrico, producen un gas libre cargado con monóxido de nitrógeno  $\text{NO}$ , dióxido de nitrógeno  $\text{NO}_2$  (conjuntamente referidos como  $\text{NO}_x$ ) y óxido nitroso  $\text{N}_2\text{O}$ .

Aunque el  $\text{NO}$  y el  $\text{NO}_2$  se han conocido durante largo tiempo como compuestos que tienen relevancia ecológicamente tóxica (lluvia ácida, formación de polución) y valores límites para las máximas emisiones permisibles de éstos se han establecido mundialmente, el óxido nitroso ha sido movido en forma incrementada hacia el foco de la protección ambiental en años recientes, puesto que contribuye en una no despreciable extensión a la degradación del ozono estratosférico y al efecto de invernadero. Por razones de protección ambiental, hay una urgente necesidad de soluciones técnicas que permitan la eliminación de las emisiones de óxido nitroso conjuntamente con las emisiones de  $\text{NO}_x$ .

Numerosas vías posibles de retirar en forma separada primero  $\text{N}$  y en segundo lugar  $\text{NO}_x$  son conocidas.

En el caso de reducción de  $\text{NO}_x$ , se puede hacer particular mención de la reducción catalítica selectiva (SCR) de  $\text{NO}_x$  por medio de amonio en

presencia de catalizadores de  $\text{TiO}_2$  que contienen vanadio (ver, por ejemplo, G. Ertl, H. Knözinger J. Weitkamp: Manual de Catálisis Heterogénea, Volumen 4, páginas 1633-1668, VCH Weinheim (1997)). Esto puede, dependiendo del catalizador, proceder a temperaturas de desde alrededor de  $150^\circ\text{C}$  hasta alrededor de  $450^\circ\text{C}$  y hace posible decrecer la concentración de  $\text{NO}_x$  en más del 90%. Esta es la variante más ampliamente utilizada del retiro de  $\text{NO}_x$  de gases libres de los procesos industriales.

Los procesos para la reducción de  $\text{NO}_x$  que están basados en catalizadores de zeolita y proceden usando una variedad de agentes de reducción son también conocidos. Aparte de las zeolitas de intercambio de Cu (ver, por ejemplo, EP—A—0914866), las zeolitas que contienen hierro parecen en particular ser de interés para el uso práctico.

Consecuentemente, la US A 4, 571,329 reivindica un proceso para reducir  $\text{NO}_x$  en un gas que comprende por lo menos 50% de  $\text{NO}_2$  mediante amonio en presencia de una zeolita de Fe. La relación de  $\text{NH}_3$  con respecto a  $\text{NO}_2$  es por lo menos de 1,3. De acuerdo con el proceso descrito en esta patente, se dice que los gases que contienen  $\text{NO}_x$  se reducen mediante amonio sin formación de  $\text{N}_2\text{O}$  como producto colateral que ocurre.

La US 5, 451,387 describe un proceso para la reducción catalítica selectiva de  $\text{NO}_x$  mediante  $\text{NH}_3$  sobre zeolitas de intercambio de hierro a temperaturas de alrededor de  $400^\circ\text{C}$ .

En contraste con el retiro de  $\text{NO}_x$  de gases libres, que se ha establecido industrialmente durante muchos años, hay solo pocos procesos industriales para eliminar  $\text{N}_2\text{O}$ . Éstos usualmente están basados en la

degradación térmica o catalítica del  $N_2O$ . Una visión de catalizadores cuya capacidad de adecuación en principio para la degradación y el retiro de óxido nitroso se ha demostrado, se ha proporcionado por Kapteijn y otros (Kapteijn F. y otros, Appl. Cat. E: Environmental 9 (1966) 25-64).

Los catalizadores de zeolita de Fe y Cu los cuales ya sea efectúan una descomposición pura del  $N_2O$  en  $N_2$  y  $O_2$  (US A 5, 171,553) o reducen en forma catalítica el  $N_2O$  con la ayuda de  $NH_3$  o hidrocarburos a  $N_2$  y  $H_2O$  o  $CO_2$  parecen particularmente útiles.

Así, la JP A 07 060 126 describe un proceso para reducir  $N_2O$  mediante  $NH_3$  en presencia de zeolitas que contienen hierro del tipo de pentasil a temperaturas de  $450^\circ C$ .

La reducción en la concentración de  $N_2O$  que puede lograrse mediante este proceso es del 71%.

En Catal. Lett. 62 (1999) 41-44, Mauvezin y otros proporcionan una visión de la capacidad de adecuación de varias zeolitas de intercambio de hierro de los tipos MOR, MFI, BEA, FER, FAU, MAZ y OFF para este propósito. De acuerdo con esta referencia, la reducción de más del 90% del  $N_2O$  puede lograrse mediante la adición de  $NH_3$  a por debajo de  $500^\circ C$  solo en el caso de Fe-BEA.

Aparte de los procesos anteriormente mencionados o el retiro separado de  $NO_x$  y  $NO_x$  también hay procesos para el retiro combinado el cual puede llevarse a cabo usando un solo catalizador.

La WO A 00/48715 divulga un proceso en el cual un gas libre que contiene  $NO_x$  y  $N_2O$  se pasa a temperaturas de desde  $200$  a  $600^\circ C$  sobre un catalizador de zeolita de hierro del tipo beta (= tipo BEA), con el gas

libre que contiene adicionalmente  $\text{NH}_3$  en una proporción de desde 0,7 a 1,4 basado en la cantidad total de  $\text{NO}_x$  y  $\text{N}_2\text{O}$ . Aquí, el  $\text{NH}_3$  sirve como agente de reducción tanto para  $\text{NO}_x$  como para  $\text{N}_2\text{O}$ . Aunque el proceso opera a temperaturas de menos de  $500^\circ\text{C}$ , éste sufre, como el proceso arriba mencionado, de la desventaja en principio de una cantidad aproximadamente equimolar de agente de reducción (aquí  $\text{NH}_3$ ) se requiere para eliminar el contenido de  $\text{N}_2\text{O}$ .

La WO-A-01/51,181 divulga un proceso para el retiro de  $\text{NO}_x$  y  $\text{N}_2\text{O}$  donde un gas de proceso o gas libre se pasa a través de dos zonas de reacción que contienen zeolitas cargadas de hierro como catalizadores. En la primera zona de reacción, se retira  $\text{N}_2\text{O}$ , se agrega amonio a la mezcla de gas entre la primera y segunda zonas de reacción y  $\text{NO}_x$  se reduce en la segunda zona de reducción.

Se ha encontrado ahora sorprendentemente que la efectividad del proceso arriba mencionado puede incrementarse significativamente cuando la reducción en el contenido de  $\text{N}_2\text{O}$  al grado deseado de retiro ocurre no solamente en la primera zona de reacción, sino en vez de la zona de reacción para la reducción de  $\text{NO}_x$  puede también utilizarse para reducir el contenido de  $\text{N}_2\text{O}$ . Esto se ha vuelto posible puesto que se ha establecido sorprendentemente que la reducción simultánea de  $\text{NO}_x$  (por ejemplo mediante  $\text{NH}_3$ ) y la descomposición de  $\text{NH}_2$  es posible cuando se usan catalizadores de zeolita cargados de hierro. La contribución del segundo paso de reacción a la descomposición de  $\text{N}_2\text{O}$  es particularmente grande cuando el proceso se opera a elevadas presiones, es decir, a presiones por encima de 2 bar, preferiblemente por encima de 4 bar.

Es un objetivo de la presente invención proporcionar un proceso simple pero económico que proporciona buenas conversiones tanto para retiro de

$\text{NO}_x$  como para retiro de  $\text{N}_2\text{O}$  y tenga mínimos costos de operación y capital. Lo anterior incluye no solamente la energía para establecer la necesaria temperatura de operación sino también el consumo del agente de reducción y las pérdidas de energía debidas a las resistencias al flujo en el lecho catalizador (caídas de presión). Los costos de capital son determinados esencialmente mediante las cantidades requeridas de catalizador y los volúmenes del aparato allí asociado.

Adicionalmente, existe el problema de introducir el agente de reducción que tiene que mezclarse íntimamente con la corriente de gas a ser tratada con el fin de asegurar una muy alta eficiencia del agente de reducción (evitar las reacciones secundarias y el paso sin reacción). El mezclador necesario para este propósito debe tomar tan poco espacio como sea posible debido a consideraciones de instalación y economía.

Estos objetivos son logrados mediante el proceso de la invención y el aparato de la invención.

La invención proporciona un proceso para reducir el contenido de  $\text{NO}_x$  y  $\text{N}_2\text{O}$  en gases, en particular en gases de proceso y gases libres, el cual comprende las etapas:

- a) pasar el gas que contiene  $\text{N}_2\text{O}$  y  $\text{NO}_x$  sobre una secuencia de dos lechos de catalizador que comprenden una o más zeolitas cargadas de hierro,
- b) agregar un agente de reducción para  $\text{NO}_x$  entre los lechos de catalizador,
- c) establecer una temperatura de menos de  $500^\circ\text{C}$  en el primer lecho catalizador y el segundo lecho catalizador,
- d) establecer una presión de gas de por lo menos 2 bar en los dos lechos de catalizador,

- e) seleccionar una velocidad de espacio en los primer y segundo lechos de catalizador tal que una reducción en el contenido de  $N_2O$  del gas de no más de 90%, basada en el contenido de  $N_2O$  a la entrada al primer lecho catalizador, ocurre en el primer lecho catalizador y que una adicional reducción en el contenido de  $N_2O$  del gas en por lo menos 30%, basado en el contenido de  $N_2O$  a la entrada al segundo lecho catalizador, ocurre en el segundo lecho catalizador.

En el primer lecho catalizador para la descomposición pura de  $N_2O$ , el  $N_2O$  que está aún presente en el gas acelera, como se esperaba, la deseada descomposición de  $N_2O$  mediante una acción de activación como se ha descrito para varias proporciones de  $N_2O/NO_x$  por Kögel y otros, en Catal. Comm. 2 (2001) 273-6.

Sin embargo, una disminución apreciable en la concentración de  $N_2O$  por la descomposición en nitrógeno y oxígeno puede lograrse en el segundo lecho catalizador, también. Lo anterior fue sorprendente, en primer lugar, puesto que el contenido de  $NO_x$  que activa la descomposición de  $N_2O$  se reduce mediante la adición del agente de reducción y, en segundo lugar, se esperaba que el agente de reducción agregado podría ser adsorbido temporalmente en la superficie del catalizador y bloquear así los lugares activos para la descomposición de  $N_2O$ .

Bajo las condiciones escogidas del proceso, es decir, las elevadas presiones y en particular una reducida proporción  $N_2O/NO_x$ , estas influencias obviamente no entran en consideración.

El proceso de la invención hace así posible llevar a cabo tanto la descomposición de  $N_2O$  como la reducción de  $NO_x$  a una baja

temperatura de operación y económicas velocidades de espacio y al mismo tiempo lograr altos grados de retiro de  $\text{N}_2\text{O}$  y  $\text{NO}_x$ .

Para los propósitos de la presente invención, la velocidad de espacio es el volumen de la mezcla de gas (medida a  $0^\circ\text{C}$  y 1,014 bar) por hora dividido por el volumen de catalizador. La velocidad de espacio puede así establecerse vía el volumen de flujo del gas y/o vía la cantidad de catalizador.

El gas cargado con óxidos de nitrógeno se pasa usualmente sobre el catalizador a una velocidad de espacio de desde 200 a 200 000  $\text{h}^{-1}$ , preferiblemente desde 5 000 a 100 000  $\text{h}^{-1}$ , en particular desde 5 000 hasta 50 000  $\text{h}^{-1}$  basadas sobre el volumen total del catalizador de los dos lechos del catalizador.

Después de dejar el primer lecho catalizador, el contenido de  $\text{N}_2\text{O}$  está, de acuerdo con el proceso de la invención, preferiblemente por encima de 200 ppm, en particular por encima de 300 ppm. Una reducción de no más de 90%, preferiblemente no más de 80%, en el contenido de  $\text{N}_2\text{O}$  presente al inicio del primer lecho catalizador ocurre en el primer lecho catalizador.

Después de dejar el primer lecho catalizador, el gas que contiene  $\text{N}_2\text{O}$  y  $\text{NO}_x$  se mezcla primero con un agente de reducción gaseoso, preferiblemente con  $\text{NH}_3$  y subsecuentemente se pasa sobre el catalizador a una temperatura de preferiblemente menos de  $450^\circ\text{C}$  y a la escogida velocidad de espacio para lograr el retiro simultáneo de  $\text{N}_2\text{O}$  (por descomposición) y  $\text{NO}_x$  (por reducción).

En el segundo lecho catalizador, una reducción adicional de por lo menos 30%, preferiblemente por lo menos 40%, en el contenido de  $N_2O$  presente al inicio del segundo lecho catalizador ocurre.

En el proceso de la invención, las zeolitas que contienen hierro se usan en los primer y segundo lechos catalizadores. Los catalizadores usados en los respectivos lechos catalizadores pueden ser diferentes o pueden ser preferiblemente el mismo catalizador.

La separación física de los lechos catalizadores hace posible establecer la temperatura del segundo lecho catalizador o de la corriente de gas que entra mediante el retiro o introducción de calor en forma tal que sea menor o mayor del primer lecho catalizador.

La temperatura de la corriente de gas en el primer lecho catalizador donde solo se retira  $N_2O$  y además en el segundo lecho catalizador donde  $N_2O$  y  $NO_x$  se retiran está, de acuerdo con la invención, por debajo de  $500^{\circ}C$ , preferiblemente en el rango de desde  $250$  a  $500^{\circ}C$ , en particular desde  $300$  a  $450^{\circ}C$  y muy particularmente, preferiblemente desde  $350$  a  $450^{\circ}C$ . La temperatura en el segundo lecho catalizador preferiblemente corresponde a la temperatura en el primero lecho catalizador. La temperatura en el lecho catalizador puede determinarse ventajosamente como la media aritmética de la temperatura de la corriente de gas a la entrada a y salida desde el lecho catalizador.

La escogencia de la temperatura de operación está, como la velocidad espacial seleccionada, determinada por el grado deseado del retiro de  $N_2O$ .

La temperatura, el flujo de volumen y la cantidad de catalizador en el primer lecho catalizador se seleccionan preferiblemente en forma tal que no más del 90%, preferiblemente no más del 80% y muy particularmente, preferiblemente no más del 70%, del  $N_2O$  presente al inicio de que el primer lecho catalizador sea descompuesto en el primer lecho catalizador.

La temperatura, el flujo de volumen y la cantidad de catalizador en el segundo lecho catalizador se seleccionan preferiblemente en forma tal que una adicional reducción en el contenido de  $N_2O$  del gas de por lo menos 30%, basado en el contenido de  $N_2O$  a la entrada al segundo lecho catalizador, ocurra en el segundo lecho catalizador.

El proceso de la invención se lleva a cabo a una elevada presión de por lo menos 2 bar, preferiblemente por lo menos 3 bar, muy particularmente, preferiblemente desde 4 a 25 bar. La introducción del agente de reducción entre el primer lecho catalizador y el segundo lecho catalizador, es decir, corrientes abajo del primer y corrientes arriba del segundo lecho catalizador, se lleva a cabo mediante un dispositivo adecuado, por ejemplo, una apropiada válvula de presión o boquillas apropiadamente configuradas.

En la primera zona de reacción, una relativamente baja concentración de agua se prefiere generalmente, puesto que un muy alto contenido de agua podría subir las temperaturas de operación (por ejemplo  $>500^{\circ}C$ ) necesarias. Dependiendo del tipo de zeolita usada y el tiempo de operación, ésta podría exceder los límites de estabilidad hidro-térmica del catalizador. Sin embargo, el contenido de  $N_2O$  juega un rol crítico aquí, puesto que puede detener la desactivación por agua.

En el caso de la reducción de  $N_2O$  en la segunda zona de reacción, un alto contenido de agua juega un menor rol, puesto que altos grados de retiro de  $NO_x$  se logran aún a temperaturas relativamente bajas.

El agente de reducción se usa en la cantidad requerida para la reacción del  $NO_x$ . Para los propósitos de la presente descripción, ésta es esa cantidad de agente de reducción que es necesaria para reducir el  $NO_x$  presente en la mezcla de gas ya sea completamente o a la deseada final concentración sin que tenga lugar apreciable reducción de  $N_2O$ .

Como agentes de reducción para los propósitos de la invención, es posible usar sustancias que tengan una alta actividad y selectividad para la reducción de  $N_2O$  y cuya selectividad y actividad bajo las condiciones de reacción seleccionadas sea mayor que para la posible reducción de  $N_2O$ .

Los agentes de reducción que pueden usarse para los propósitos de la invención son, por ejemplo, hidrocarburos, hidrógeno, monóxido de carbono, amonio o mezclas de ellos, por ejemplo, gas de síntesis. Particular preferencia se da al amonio o sustancias que liberan amonio cuando son introducidas, por ejemplo, urea o carbamato de amonio.

La cantidad de agente de reducción agregada no debe ser apreciablemente mayor que la requerida para la reducción de  $NO_x$  bajo las condiciones de reacción seleccionadas.

En el caso de amonio como agente de reducción, se hace uso, dependiendo del grado deseado al cual se debe disminuir el contenido de  $NO_x$ , de hasta un máximo de 1,2, preferiblemente desde 1,0 a 1,2, mol de amonio por mol de  $NO_x$ . Si un grado relativamente bajo de retiro de  $NO_x$

se desea, la máxima cantidad de amonio es de 1,2 mol de  $N_2O$  y por mol de  $NO_x$ ; y es the porcentaje de  $NO_x$  que se va a consumir en la reducción.

Cuando se escogen adecuados catalizadores y condiciones de proceso, el  $NH_3$  agregado no actúa como agente de reducción para  $N_2O$  sino que reduce selectivamente el  $NO_x$  presente en el gas libre.

El proceso de la invención hace así posible llevar a cabo el retiro de  $N_2O$  y de  $NO_x$  a una menor temperatura de operación con un pequeño consumo de agente de reducción gaseoso, por ejemplo,  $NH_3$  lo cual hasta la fecha no ha sido posible mediante los procesos descritos en el arte previo.

Ésta es una ventaja particularmente grande cuando grandes cantidades de  $N_2O$  se van a eliminar.

La vía en la cual el agente de reducción gaseoso se introduce dentro de la corriente de gas a ser tratado puede escogerse libremente para los propósitos de la invención siempre que la introducción sea corrientes arriba del segundo lecho catalizador. El agente de reducción puede introducirse, por ejemplo, en la línea de entrada corrientes arriba del recipiente para el segundo lecho catalizador o inmediatamente antes del lecho catalizador. El agente de reducción puede introducirse en forma de un gas o aún un líquido o una solución acuosa la cual se vaporiza en la corriente de gas a ser tratado.

Los catalizadores usados de acuerdo con la invención comprenden sustancialmente una o más zeolitas cargadas de hierro, preferiblemente en una cantidad de >50% en peso, en particular >70% en peso. Así, por ejemplo, no solo una zeolita Fe-ZSM-5 sino también una adicional

zeolita que contiene hierro, por ejemplo una zeolita que contiene hierro del tipo MFI o FER, puede estar presente en el catalizador usado de acuerdo con la invención. En adición, el catalizador usado de acuerdo con la invención puede comprender adicionalmente otros aditivos conocidos por aquellos expertos en el arte, por ejemplo, enlazantes.

Los catalizadores usados de acuerdo con la invención están basados preferiblemente en zeolitas dentro de las cuales se ha introducido hierro mediante intercambio de iones en estado sólido. Las zeolitas de amonio comercialmente disponibles (por ejemplo  $\text{NH}_4\text{-ZSM-5}$ ) y sales de hierro apropiadas (por ejemplo,  $\text{FeSO}_4 \times 7 \text{ H}_2\text{O}$ ) se usan usualmente como materiales de partida para este propósito y se mezclan intensivamente uno con el otro mediante medios mecánicos en un molino de bolas a temperatura ambiente. (Turek y otros; Appl. Catal. 184, (1999) 249-256; EP-A-0 955 080). Las referencias son incorporadas aquí expresamente a modo de referencia. Los polvos de catalizador obtenido son calcinados subsecuentemente en aire a temperaturas en el rango de desde 400 a 600°C en un horno de mufla. Después de la calcinación, las zeolitas que contienen hierro son lavadas intensivamente con agua destilada, sacadas por filtración y secadas. Las zeolitas que contienen hierro obtenidas en esta vía son mezcladas subsecuentemente con enlazantes adecuados y mezcladas y, por ejemplo, extruidas para formar cuerpos cilíndricos de catalizador. Enlazantes adecuados incluyen todos los enlazantes usualmente usados; los más ampliamente usados aquí son los silicatos de aluminio como la caolina.

De acuerdo con la presente invención, las zeolitas que pueden usarse son cargadas con hierro. El contenido de hierro puede ser de hasta el 25%, pero es preferiblemente desde 0,1 a 10%, basado en la masa de zeolita.

Las zeolitas cargadas de hierro son preferiblemente del tipo MFI, SEA, FER, MOR, FAO y/o MEL, en particular del tipo ZSM-5.

En una modalidad preferida, las zeolitas cargadas de hierro cuya estructura de cristal no tiene poros o canales que tengan diámetros cristalográficos mayores de o igual a 7,0 Ångstrom se usan en por lo menos el segundo lecho catalizador.

Éstos incluyen zeolitas cargadas de hierro del tipo MFI, FER y/o MEL, en particular del tipo ZSM-5.

El proceso de la invención puede también llevarse a cabo usando zeolitas donde parte de la matriz de aluminio se ha reemplazado isomórficamente por uno o más elementos, por ejemplo por uno o más elementos seleccionados entre B, Be, Ga, Fe, Cr, V, As, Sb y Si. El uso de zeolitas donde la matriz de silicona es isómera reemplazada por uno o más elementos, por ejemplo por uno o más elementos seleccionados entre Ge, Ti, Zr y Hf, se incluye similarmente.

Detalles precisos de la configuración o estructura de las zeolitas usadas de acuerdo con la invención se proporcionan en el Atlas de Tipos de Estructura de Zeolita, Elsevier, cuarta edición revisada 1996, la cual se incorpora aquí expresamente a modo de referencia.

En el proceso de la invención, se proporciona muy particular preferencia al uso de los catalizadores de zeolita anteriormente definidos que han sido tratados con vapor de agua (catalizadores vaporizados). Dicho tratamiento retira aluminio de la matriz de la zeolita, y es conocido por sí mismo por aquellos expertos en el arte. Estos catalizadores de zeolita

hidro térmicamente tratados demuestran sorpresivamente una actividad particularmente alta en el proceso de la invención.

Se otorga preferencia al uso de catalizadores de zeolita creados hidro térmicamente que han sido cargados con hierro y donde la proporción de extra matriz de aluminio con respecto a matriz de aluminio es por lo menos de 1:2, preferiblemente de 1:2 a 20:1.

El contenido de agua del gas de reacción está preferiblemente en el rango de <25% en volumen, en particular en el rango de <15% en volumen. Se prefiere generalmente un bajo contenido de agua.

En general, una relativamente baja concentración de agua se prefiere, puesto que contenidos de agua relativamente altos pueden hacer relativamente altas temperaturas de operación. Esto podría, dependiendo del tipo de zeolita usado y del tiempo de operación, exceder los límites de estabilidad hidro térmica del catalizador y esto debe emparejarse al caso particular escogido.

La presencia de  $\text{CO}_2$  y de otros constituyentes desactivadores del gas de reacción que son conocidos por aquellos expertos en el arte deben además ser minimizados si posible, puesto que éstos podrían tener un efecto adverso en el retiro de  $\text{N}_2\text{O}$ .

El proceso de la invención también trabaja en presencia de  $\text{O}_2$ , puesto que los catalizadores usados de acuerdo con la invención tienen apropiadas selectividades que suprimen la reacción del agente de reducción gaseoso, por ejemplo,  $\text{NH}_3$  con  $\text{O}_2$  a temperaturas de <500°C.

Todos estos factores de influencia y además la salida a través escogida sobre el catalizador, es decir la velocidad de espacio, deben tomarse en consideración al escoger la apropiada temperatura de operación de la zona de reacción.

El proceso de la invención puede usarse en particular en la producción de ácido nítrico, para gases libres de estaciones de potencia o para turbinas a gas. Los gases de proceso y gases libres que contienen óxido de nitrógeno y a partir de los cuales óxidos de nitrógeno pueden retirarse en forma no costosa mediante el proceso aquí divulgado se obtienen en estos procesos. El proceso de la invención se usa ventajosamente para el gas de cola de la producción de ácido nítrico corrientes debajo de la torre de absorción.

La configuración de los lechos de catalizador, pueden escogerse libremente para los propósitos de la invención. Así, por ejemplo, el catalizador o catalizadores pueden disponerse en un lecho catalizador a través del cual el gas fluye axialmente o preferiblemente en forma radial en uno o más recipientes.

La invención proporciona adicionalmente un aparato para reducir el contenido de  $\text{NO}_x$  y  $\text{N}_2\text{O}$  en gases, en particular en gases de proceso y gases libres, el cual comprende:

- A) dos lechos catalizadores que están conectados en series y que comprenden cada uno una o más zeolitas cargadas de hierro y a través de los cuales el gas que contiene  $\text{NO}_x$  y  $\text{N}_2\text{O}$  fluye,
- B) un dispositivo para introducir un agente de reducción gaseoso dentro de la corriente de gas que contiene  $\text{NO}_x$ - y  $\text{N}_2\text{O}$ - localizado entre los lechos catalizadores, donde

- C) el gas que contiene  $\text{NO}_x$ - y  $\text{N}_2\text{O}$  fluye radialmente a través de por lo menos uno de los lechos catalizadores.

En una modalidad preferida, ambos lechos catalizadores están dispuestos en un recipiente que reduce considerablemente los costos del aparato.

De acuerdo con la invención, el gas a ser purificado fluye radialmente a través de por lo menos un lecho catalizador, preferiblemente ambos lechos catalizadores, lo cual resulta en una caída de presión considerablemente reducida.

Los lechos catalizadores a través de los cuales el gas fluye radialmente están, por ejemplo, configurados en forma de cilindros huecos pero pueden tener también otras formas. Los lechos catalizadores a través de los cuales el gas fluye radialmente pueden disponerse uno encima del otro o una combinación de lechos catalizadores a través de los cuales el flujo axial y radial que ocurre puede escogerse. La trayectoria del gas se prescribe por parte de separadores adecuadamente dispuestos entre los lechos catalizadores en forma tal que el gas fluye en primer lugar a través del primer lecho catalizador y luego a través del segundo lecho catalizador.

En el caso de lechos catalizadores a través de los cuales el gas fluye radialmente, éstos también pueden estar en forma de cilindros huecos dispuestos concéntricamente uno dentro del otro. En esta modalidad también, debe asegurarse que la trayectoria del gas esté prescrita por separadores adecuadamente dispuestos entre los lechos catalizadores en forma tal que el gas fluya en primer lugar a través del primer lecho catalizador y luego a través del segundo lecho catalizador.

La dirección del flujo del gas en el reactor de pantalla radial puede ser desde el interior hacia afuera o desde adentro.

En una modalidad preferida, hay dos lechos catalizadores a través de los cuales el gas fluye radialmente, por ejemplo en forma de dos cilindros huecos, que tienen diferentes dimensiones, con la dimensión externa de un lecho catalizador que es más pequeña que la dimensión interna del otro lecho catalizador y ambos lechos catalizadores que están dispuestos concéntricamente, y con la trayectoria del gas prescrita por separadores adecuadamente dispuestos entre los lechos catalizadores en forma tal que el gas fluye en primer lugar a través del primer lecho catalizador y luego a través del segundo lecho catalizador.

En una adicional modalidad preferida del aparato de la invención, el gas que ha pasado a través del primer lecho catalizador se pasa dentro de un mezclador el cual está preferiblemente localizado en el centro del aparato y una línea de alimentación para agente de reducción que se abre dentro del espacio corrientes abajo del primer lecho catalizador y antes o preferiblemente dentro del mezclador se proporciona, con el gas a ser purificado que pasa a través del segundo lecho catalizador después de dejar el mezclador.

El mezclador sirve para distribuir el agente de reducción íntimamente en la corriente de gas. Para los propósitos de la invención, el mezclador puede configurarse libremente, por ejemplo como un mezclador estático con internos apropiados o como un mezclador dinámico. La forma más simple de un tubo a través del cual el flujo es preferiblemente turbulento es también posible como un mezclador para los propósitos de la invención.

Las Figuras 1 a 6 muestran modalidades preferidas del aparato de la invención en sección longitudinal.

La Figura 1 ilustra un aparato de acuerdo con la invención con un puerto de entrada de gas (1) y un puerto de salida de gas (2). En el espacio superior interior más cercano al puerto de entrada de gas (1), el primer lecho catalizador está dispuesto en forma de un cilindro hueco (4) y está localizado sobre una pared divisoria que divide el interior del aparato en dos mitades. En adición, la cara de extremo superior del cilindro hueco (4) está cerrada mediante una pared divisoria. El gas a ser purificado fluye a través de la entrada de gas (1) y, vía el intersticio anular de la entrada (7) hacia el primer lecho catalizador, fluye radialmente a través del primer lecho catalizador dentro del intersticio anular de la salida (8) desde el primer lecho catalizador. Desde allí fluye dentro del mezclador (6) en cuyo extremo del puerto de entrada está la abertura de una línea de puerto de entrada (3) para el agente de reducción. El mezclador (6) pasa a través de la pared divisoria y el gas fluye entonces, vía el intersticio anular de la entrada (9) hacia el segundo lecho catalizador (5) localizado bajo el primer lecho catalizador (4), radialmente a través del segundo lecho catalizador dentro del intersticio anular de la salida (10) desde el segundo lecho catalizador (5). Desde allí, el gas purificado deja el aparato vía el puerto de salida de gas (2).

La Figura 2 muestra una modalidad similar a la de la Figura 1 con las diferencias de que el primer lecho catalizador (4) está localizado por debajo del segundo lecho catalizador (5) y que el puerto de entrada de gas (1) y el puerto de salida de gas (2) están dispuestos lateralmente en el aparato. Los otros numerales de referencia tienen los significados dados en la descripción de la Figura 1.

La Figura 3 ilustra una modalidad adicional del aparato de la invención con puerto de entrada de gas (1) y puerto de salida de gas (2). Aquí, el primer lecho catalizador (4) y el segundo lecho catalizador (5) están configurados como dos cilindros huecos dispuestos concéntricamente uno dentro del otro. El primer lecho catalizador (4) está localizado al lado exterior de una pared divisoria concéntrica (11) que cierra la cara de extremo inferior del lecho catalizador (4), los intersticios anulares (7) y (8) y además el interior del aparato y la cara de extremo superior del segundo lecho catalizador (5). El gas a ser purificado entra al aparato a través de puerto de entrada de gas (1) y fluye radialmente a través del primer lecho catalizador desde la entrada del intersticio anular exterior (7) hacia el interior de la salida del intersticio anular (8). Desde allí fluye dentro del mezclador (6) en cuyo extremo de puerto de entrada hay una abertura de una línea de puerto de entrada (3) para el agente de reducción. El mezclador (6) se abre dentro del interior del segundo lecho catalizador (5) el cual está cerrado en el fondo mediante una pared divisoria. El gas fluye entonces, vía el intersticio anular de la entrada (9) hacia el segundo lecho catalizador (5), radialmente hacia fuera a través del segundo lecho catalizador dentro del intersticio anular de la salida (10) desde el segundo lecho catalizador (5). Desde allí el gas purificado deja el aparato vía el puerto de salida de gas (2).

La Figura 4 muestra una modalidad similar a la de la Figura 3 con la diferencia de que el primer lecho catalizador (4) forma el cilindro hueco interno y el segundo lecho catalizador (5) forma el cilindro hueco externo. Los otros numerales de referencia tienen los significados dados en la descripción de la Figura 3.

La Figura 5 muestra una modalidad donde se proporcionan un lecho catalizador a través del cual el gas fluye axialmente y un lecho

catalizador a través del cual el gas fluye radialmente. El gas fluye vía el puerto de entrada de gas (1) axialmente a través del primer lecho catalizador (4) y dentro del mezclador (6). El aparato tiene una pared divisoria que divide el interior del aparato en dos mitades. En el extremo del puerto de entrada del mezclador (6) está la abertura de una línea de puerto de entrada (3) para el agente de reducción. Desde el mezclador (6) el gas fluye dentro del intersticio anular de la entrada (9) al segundo lecho catalizador (5) y radialmente a través de éste dentro del intersticio anular de la salida (10). Desde allí el gas purificado deja el aparato vía el puerto de salida de gas (2).

La Figura 6 muestra una modalidad similar a la de la Figura 5 con la diferencia de que el gas fluye radialmente a través del primer lecho catalizador (4) y axialmente a través del segundo lecho catalizador (5). Los otros numerales de referencia tienen los significados dados en la descripción de la Figura 3.

El proceso de la invención se ilustra mediante el siguiente ejemplo.

El catalizador usado era zeolita cargada de hierro del tipo ZSM- 5. el catalizador Fe-ZSM-5 se preparó mediante intercambio de iones de estado sólido iniciando con una zeolita comercialmente disponible en forma de amonio (ALSI-PENTA, SM27). Los detalles respecto a la preparación pueden tomarse de : M. Rauscher, K. Kesore, R. Mdnig, W. Schwieger, A. Ti T. Turek: "Preparación de catalizador Fe ZSM-5 altamente activo a través de intercambio de iones de estado sólido para la descomposición catalítica de  $N_2O$ " en Appl. Catal. 184 (1999) 249-256.

Los polvos de catalizador fueron calcinados en aire a 823 K durante 6 horas, se lavaron y secaron durante la noche a 383 K. Después de la

adición de apropiados enlazantes, los polvos se extruyeron para formar cuerpos cilíndricos de catalizador.

Como aparato para reducir el contenido de  $\text{NO}_x$  y  $\text{N}_2\text{O}$ , se hizo uso de dos reactores de tubo que fueron conectados en series y fueron cargados cada uno con una cantidad tal del anterior catalizador que una velocidad de espacio de  $15,000 \text{ h}^{-1}$  basada en la corriente de gas que fluye hacia adentro resultó en cada caso. Se agregó gas  $\text{NH}_3$  entre las dos zonas de reacción. La temperatura de operación de las zonas de reacción se estableció mediante calentamiento. El análisis de las corrientes de gas que entran y dejan los reactores se llevó a cabo mediante un analizador de gas FTIR.

A concentraciones del puerto de entrada de 1 500 ppm de  $\text{N}_2\text{O}$ , 350 ppm de  $\text{NO}_x$ , 3 000 ppm de  $\text{H}_2\text{O}$  y 1,2% en volumen de  $\text{O}_2$  y  $\text{N}_2$  y con adición intermedia de  $\text{NH}_3$  a una temperatura de operación uniforme de  $425^\circ\text{C}$  y una presión de operación de 6,5 bar, la conversión resulta  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{NO}_x$  y  $\text{NH}_3$  usada en la siguiente tabla se obtuvieron.

Tabla

|                       | Concentración<br>puerto de entrada | Concentración<br>puerto de salida | Conversión |
|-----------------------|------------------------------------|-----------------------------------|------------|
| $\text{N}_2\text{O}$  | 1 500 ppm<br>(reactor 1)           | 540 ppm<br>(reactor 1)            | 64%        |
| $\text{NO}_x$ (x=1-2) | 360 ppm<br>(reactor 2)             | 80 ppm<br>(reactor 2)             | 78%        |
| $\text{NH}_3$         | 310 ppm*)<br>(reactor 2)           | 0 ppm<br>(reactor 2)              | 100%       |
| $\text{N}_2\text{O}$  | 540 ppm<br>(reactor 2)             | 190 ppm<br>(reactor 2)            | 65%        |

\*) agregado entre el primer reactor y el segundo reactor

**Reivindicaciones:**

1. Un proceso para reducir el contenido de  $\text{NO}_x$  y  $\text{N}_2\text{O}$  en gases, en particular en gases de proceso y gases libres, el cual comprende las etapas:
  - a) pasar el gas que contiene  $\text{N}_2\text{O}$ - y  $\text{NO}_x$ - en una secuencia de dos lechos de catalizador que comprenden una o más zeolitas cargadas de hierro,
  - b) agregar un agente de reducción para  $\text{NO}_x$  entre los lechos catalizadores,
  - c) establecer una temperatura de menos de  $500^\circ\text{C}$  en el primer lecho catalizador y el segundo lecho catalizador,
  - d) establecer una presión de gas de por lo menos 2 bar en los dos lechos catalizadores,
  - e) seleccionar una velocidad de espacio en los primer y segundo lechos catalizadores en forma tal que una reducción en el contenido de  $\text{N}_2\text{O}$  del gas en no más del 90%, basado en el contenido de  $\text{N}_2\text{O}$  a la entrada al primer lecho catalizador, ocurre en el primer lecho catalizador y que una adicional reducción en el contenido de  $\text{N}_2\text{O}$  de gas en por lo menos 30%, basado en el contenido de  $\text{N}_2\text{O}$  a la entrada al segundo lecho catalizador, ocurre en el segundo lecho catalizador.
2. El proceso como se reivindicó en la reivindicación 1, caracterizado porque el mismo catalizador se usa en los primer y segundo lechos catalizadores.

3. El proceso como se reivindicó en la reivindicación 1, caracterizado porque la zeolita o zeolitas cargada(s) de hierro es/son del tipo MFI, BEA, FER, MOR, FAU y/o MEL.
4. El proceso como se reivindicó en la reivindicación 3, caracterizado porque la zeolita cargada de hierro es del tipo MFI.
5. El proceso como se reivindicó en la reivindicación 1, caracterizado porque la zeolita es una Fe-ZSM-5.
6. El proceso como se reivindicó en la reivindicación 1, caracterizado porque el proceso se lleva a cabo a una presión en el rango de desde 4 a 25 bar.
7. El proceso como se reivindicó en la reivindicación 1, caracterizado porque se usa amonio como agente de reducción para  $\text{NO}_x$  y se emplea en una cantidad de desde 1,0 a 1,2 mol por mol de  $\text{NO}_x$  a ser retirado.
8. El proceso como se reivindicó en la reivindicación 1, caracterizado porque el gas que contiene  $\text{NO}_x$ - y  $\text{N}_2\text{O}$ - se pasa sobre cada uno de los lechos catalizadores a una velocidad de espacio de desde 5 000 a 50 000  $\text{h}^{-1}$  basada en el volumen total del catalizador de los dos lechos catalizadores.
9. El proceso como se reivindicó en la reivindicación 1, caracterizado porque la temperatura en las primera y segunda zonas de reacción es de desde 350 a 450°C.

10. El proceso como se reivindicó en la reivindicación 1, caracterizado porque las zeolitas cargadas de hierro que han sido tratadas con vapor de agua se usan en por lo menos un lecho catalizador.
11. El proceso como se reivindicó en la reivindicación 1, caracterizado porque las zeolitas cargadas de hierro donde la proporción de extra matriz aluminio con respecto a matriz aluminio es de por lo menos 0,5 se usan como catalizadores en por lo menos un lecho catalizador.
12. El proceso como se reivindicó en la reivindicación 1, caracterizado porque está integrado dentro del proceso para la producción de ácido nítrico.
13. El proceso como se reivindicó en la reivindicación 1, caracterizado porque está integrado dentro del proceso de operación de una turbina de gas.
14. El proceso como se reivindicó en la reivindicación 1, caracterizado porque está integrado dentro del proceso de operación de una estación de potencia.
15. Un aparato para reducir el contenido de  $\text{NO}_x$  y  $\text{N}_2\text{O}$  en gases, en particular en gases de proceso y gases libres, que comprende:
  - A) dos lechos catalizadores que están conectados en series y comprende cada uno una o más zeolitas cargadas de hierro y a través de los cuales fluye el gas que contiene  $\text{NO}_x$ - y  $\text{N}_2\text{O}$ -,

- B) un dispositivo para introducir un agente de reducción gaseoso dentro de la corriente del gas que contiene  $\text{NO}_x$ - y  $\text{N}_2\text{O}$ - localizada entre los lechos catalizadores, donde
- C) los gases  $\text{NO}_x$ - y  $\text{N}_2\text{O}$ - fluyen radialmente a través de por lo menos uno de los lechos catalizadores.
16. El aparato como se reivindicó en la reivindicación 15, caracterizado porque ambos lechos catalizadores están dispuestos en un recipiente.
17. El aparato como se reivindicó en la reivindicación 15, caracterizado porque los gases  $\text{NO}_x$ - y  $\text{N}_2\text{O}$ - fluyen radialmente a través de ambos lechos catalizadores.
18. El aparato como se reivindicó en la reivindicación 15, caracterizado porque the lecho catalizador a través del cual el gas fluye radialmente está configurado como un cilindro hueco.
19. El aparato como se reivindicó en la reivindicación 15, caracterizado porque dos lechos catalizadores a través de los cuales el gas fluye radialmente están dispuestos encima uno del otro o en que una combinación de lechos catalizadores a través de los cuales el gas fluye axial y radialmente y los cuales están dispuestos uno encima del otro está presente, con la trayectoria del gas que está prescrita por separadores adecuadamente dispuestos entre los lechos catalizadores en forma tal que el gas fluye en primer lugar a través del primer lecho catalizador y luego a través del segundo lecho catalizador.

20. El aparato como se reivindicó en la reivindicación 15, caracterizado porque dos lechos catalizadores a través de los cuales el gas fluye radialmente y los cuales tienen diferentes dimensiones están presentes, con la dimensión externa de un lecho catalizador que es más pequeña que la dimensión interna del otro lecho catalizador y ambos lechos catalizadores que están dispuestos concéntricamente, y con la trayectoria del gas que está prescrita por separadores adecuadamente dispuestos entre los lechos catalizadores en forma tal que el gas fluye en primer lugar a través del primer lecho catalizador y luego a través del segundo lecho catalizador.
21. El aparato como se reivindicó en la reivindicación 15, caracterizado porque el gas que ha pasado a través del primer lecho catalizador se pasa dentro de un mezclador que está localizado preferiblemente en el centro del aparato y una línea de alimentación para el agente de reducción la cual abre dentro del espacio corrientes abajo del primer lecho catalizador y antes o preferiblemente dentro del mezclador se proporciona, con el gas a ser purificado que se pasa a través del segundo lecho catalizador después de dejar el mezclador.
22. El aparato como se reivindicó en la reivindicación 15, caracterizado porque el mezclador está configurado como un mezclador estático como un mezclador dinámico, preferiblemente en forma de un tubo a través del cual fluye el gas.

**HOJAS CORREGIDAS****Septiembre 3, 2004****EPO306051****Reivindicaciones:**

1. Un proceso para reducir el contenido de  $\text{NO}_x$  y  $\text{N}_2\text{O}$  en gases, en particular en gases de proceso y gases libres, el cual comprende las etapas:
  - a) pasar los gases  $\text{N}_2\text{O}$ - y  $\text{NO}_x$ - durante una secuencia de dos lechos catalizadores que comprende una o más zeolitas cargadas de hierro,
  - b) agregar un agente de reducción para  $\text{NO}_x$  entre los lechos catalizadores,
  - c) establecer una temperatura de menos de  $500^\circ\text{C}$  en el primer lecho catalizador y el segundo lecho catalizador,
  - d) establecer una presión de gas de por lo menos 2 bar en los dos lechos catalizadores,
  - e) seleccionar una velocidad de espacio en los primer y segundo lechos catalizadores tal que una reducción en el contenido de  $\text{N}_2\text{O}$  del gas en nomás del 90%, basado en el contenido de  $\text{N}_2\text{O}$  a la entrada al primer lecho catalizador, que ocurre en el primer lecho catalizador y un contenido mayor de 200 ppm se establece y que una adicional reducción en el contenido de  $\text{N}_2\text{O}$  de gas en por lo menos 30%, basada en el contenido de  $\text{N}_2\text{O}$  a la entrada al segundo lecho catalizador, ocurre en el segundo lecho catalizador.
2. El proceso como se reivindicó en la reivindicación 1, caracterizado porque el mismo catalizador se usa en los primer y segundo lechos catalizadores.

3. El proceso como se reivindicó en la reivindicación 1, caracterizado porque la zeolita o zeolitas cargada(s) de hierro es/son del tipo MFI, BEA, FER, MOR, FAU y/o MEL.
4. El proceso como se reivindicó en la reivindicación 3, caracterizado porque la zeolita cargada de hierro es del tipo MFI.
5. El proceso como se reivindicó en la reivindicación 1, caracterizado porque la zeolita es un Fe-ZSM-5.
6. El proceso como se reivindicó en la reivindicación 1, caracterizado porque el proceso se lleva a cabo a una presión en el rango de desde 4 a 25 bar.
7. El proceso como se reivindicó en la reivindicación 1, caracterizado porque se usa amonio como agente de reducción para  $\text{NO}_x$  y se emplea en una cantidad de desde 1,0 a 1,2 mol por mol de  $\text{NO}_x$  a ser retirada.
8. El proceso como se reivindicó en la reivindicación 1, caracterizado porque los gases  $\text{NO}_x$ - y  $\text{N}_2\text{O}$ - se pasan sobre cada uno de los lechos catalizadores a una velocidad de espacio de desde 5 000 a 50 000  $\text{h}^{-1}$ , basado en el volumen total del catalizador de los dos lechos catalizadores.
9. El proceso como se reivindicó en la reivindicación 1, caracterizado porque la temperatura en las primer y segunda zonas de reacción es de 350 a 450°C.

10. El proceso como se reivindicó en la reivindicación 1, caracterizado porque las zeolitas cargadas de hierro que ha sido tratadas con vapor de agua se usan en por lo menos un lecho catalizador.
11. El proceso como se reivindicó en la reivindicación 1, caracterizado porque las zeolitas cargadas de hierro donde la proporción de extra matriz de aluminio con respecto a matriz aluminio de por lo menos 0,5 se usa como catalizadores en por lo menos un lecho catalizador.
12. El proceso como se reivindicó en la reivindicación 1, caracterizado porque está integrado dentro del proceso para la producción de ácido nítrico.
13. El proceso como se reivindicó en la reivindicación 1, caracterizado porque está integrado dentro del proceso de operación de una turbina a gas.
14. El proceso como se reivindicó en la reivindicación 1, caracterizado porque está integrado dentro del proceso de operación de una estación de potencia.
15. Un aparato para reducir el contenido de  $\text{NO}_x$  y  $\text{N}_2\text{O}$  en gases, en particular en gases de proceso y gases libres, que comprende:
  - A) dos lechos catalizadores que están conectados en series y cada uno comprende una o más zeolitas cargadas de hierro y a través de los cuales fluye el gas que contiene  $\text{NO}_x$ - y  $\text{N}_2\text{O}$ -,
  - B) un dispositivo para introducir un agente de reducción gaseoso dentro de la corriente de los gases que contienen

$\text{NO}_x$ - y  $\text{N}_2\text{O}$ - localizada entre los lechos catalizadores, que comprende un mezclador a través del cual el gas que ha fluido a través del primer lecho catalizador se pasa y una línea de alimentación para agente de reducción que se abre dentro del espacio corrientes abajo del primer lecho catalizador y antes o dentro del mezclador, con el gas a ser purificado que pasa a través del segundo lecho catalizador después de dejar el mezclador, donde

C) por lo menos uno de los lechos catalizadores está configurado como un cilindro hueco a través del cual los gases  $\text{NO}_x$ - y  $\text{N}_2\text{O}$ - fluyen radialmente.

16. El aparato como se reivindicó en la reivindicación 15, caracterizado porque ambos lechos catalizadores están dispuestos en un recipiente.
17. El aparato como se reivindicó en la reivindicación 15, caracterizado porque los gases  $\text{NO}_x$ - y  $\text{N}_2\text{O}$ - fluyen radialmente a través de ambos lechos catalizadores.
18. El aparato como se reivindicó en la reivindicación 15, caracterizado porque dos lechos catalizadores a través de los cuales el gas fluye radialmente están dispuestos uno encima del otro o en que una combinación de lechos catalizadores a través de los cuales el gas fluye axial y radialmente y que están dispuestos uno encima del otro está presente, con la trayectoria del gas que está prescrita por separados adecuadamente dispuestos entre los lechos catalizadores en forma tal que el gas fluye en primer lugar a través del primer lecho catalizador y luego a través del segundo lecho catalizador.

19. El aparato como se reivindicó en la reivindicación 15, caracterizado porque dos lechos catalizadores a través de los cuales el gas fluye radialmente y que tienen diferentes dimensiones están presentes, con la dimensión externa de un lecho catalizador que es más pequeña que la dimensión interna del otro lecho catalizador y ambos lechos catalizadores están dispuestos concéntricamente, y con la trayectoria del gas que está prescrita por separadores adecuadamente dispuestos entre los lechos catalizadores en forma tal que el gas fluye en primer lugar a través del primer lecho catalizador y luego a través del segundo lecho catalizador.
20. El aparato como se reivindicó en la reivindicación 15, caracterizado porque el gas que ha pasado a través del primer lecho catalizador se pasa dentro de un mezclador localizado en el centro del aparato
21. El aparato como se reivindicó en la reivindicación 15, caracterizado porque el mezclador está configurado como un mezclador estático o como un mezclador dinámico, preferiblemente en forma de un tubo a través del cual el gas fluye.

## HOJA CORREGIDA

### Extracto

#### Proceso y aparato para reducir el contenido de NO y N en gases

El proceso comprende pasar el gas que contiene  $N_2O$ - y  $NO_x$ - sobre una secuencia de dos lechos catalizadores que comprende uno o más zeolitas cargadas de hierro, agregar un agente de reducción para  $NO_x$  entre los lechos catalizadores, establecer una temperatura de menos de  $500^{\circ}C$  en el primer lecho catalizador y segundo lecho catalizador, establecer una presión de gas de por lo menos 2 bar en los dos lechos catalizadores, y seleccionar una velocidad de espacio en los primer y segundo lechos catalizadores tal que una reducción en el contenido de  $N_2O$  del gas en no más del 90%, basado en el contenido de  $N_2O$  a la entrada al primer lecho catalizador, ocurre en el primer lecho catalizador y que una adicional reducción en el contenido de  $N_2O$  del gas de por lo menos 30%, basado en el contenido de  $N_2O$ - a la entrada al segundo lecho catalizador, ocurre en el segundo lecho catalizador.

La primera zona de reacción sirve para retirar  $N_2O$  y en la segunda zona de reacción el  $NO_x$  se reduce y por lo menos parte del  $N_2O$  remanente se descompone.

El aparato descrito comprende por lo menos un lecho catalizador a través del cual el gas fluye radialmente.

PCT

ANTRAG

Der Unterzeichnete beantragt, daß die vorliegende internationale Anmeldung nach dem Vertrag über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens behandelt wird.

|                                                                                           |             |
|-------------------------------------------------------------------------------------------|-------------|
| Vom Anmeldeamt auszufüllen                                                                |             |
| PCT/EP 03 / 06051                                                                         |             |
| Internationales Anmeldeamt                                                                | 10 JUN 2003 |
| OFFICE PUBLIC DES BREVETS<br>Name des Anmeldeamts und "PCT International Application"     |             |
| Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts (falls gewünscht)<br>(max. 12 Zeichen) 202ku06.wo |             |

Feld Nr. I BEZEICHNUNG DER ERFINDUNG  
Verfahren und Vorrichtung zur Verringerung des Gehaltes an NOx und N2O in Gasen

Feld Nr. II ANMELDER ☐ Diese Person ist gleichzeitig Erfinder

Name und Anschrift: (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben. Der in diesem Feld in der Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anmelders, sofern nachstehend kein Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.)

Uhde GmbH  
Friedrich-Uhde-Strasse 15  
44141 Dortmund  
Deutschland

Telefonnr.:

Telefaxnr.:

Fernschreibnr.:

Registrierungsnr. des Anmelders beim Amt:

Staatsangehörigkeit (Staat):

DE

Sitz oder Wohnsitz (Staat):

DE

Diese Person ist Anmelder für folgende Staaten:

☐ alle Bestimmungstaaten

☒ alle Bestimmungstaaten mit Ausnahme der Vereinigten Staaten von Amerika

☐ nur die Vereinigten Staaten von Amerika

☐ die im Zusatzfeld angegebenen Staaten

Feld Nr. III WEITERE ANMELDER UND/ODER (WEITERE) ERFINDER

Name und Anschrift: (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben. Der in diesem Feld in der Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anmelders, sofern nachstehend kein Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.)

SCHWEFER, Meinhard  
Aufm Ufer 12  
59872 Meschede  
Deutschland

Diese Person ist:

☐ nur Anmelder

☒ Anmelder und Erfinder

☐ nur Erfinder (Wird dieses Kästchen angekreuzt, so sind die nachstehenden Angaben nicht nötig.)

Registrierungsnr. des Anmelders beim Amt:

Staatsangehörigkeit (Staat):

DE

Sitz oder Wohnsitz (Staat):

DE

Diese Person ist Anmelder für folgende Staaten:

☐ alle Bestimmungstaaten

☐ alle Bestimmungstaaten mit Ausnahme der Vereinigten Staaten von Amerika

☒ nur die Vereinigten Staaten von Amerika

☐ die im Zusatzfeld angegebenen Staaten

☒ Weitere Anmelder und/oder (weitere) Erfinder sind auf einem Fortsetzungsblatt angegeben.

Feld Nr. IV ANWALT ODER GEMEINSAMER VERTRETER; ODER ZUSTELLANSCHRIFT

Die folgende Person wird hiermit bestellt/ist bestellt worden, um für den (die) Anmelder vor den zuständigen internationalen Behörden in folgender Eigenschaft zu handeln als:

☒ Anwalt

☐ gemeinsamer Vertreter

Name und Anschrift: (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben.)

Ackermann, Joachim  
Postfach 11 13 26

60048 Frankfurt  
Deutschland

Telefonnr.:

(069) 92033-801

Telefaxnr.:

(069) 92033-7

Fernschreibnr.:

Registrierungsnr. des Anwalts beim Amt:

☐ Zustellanschrift: Dieses Kästchen ist anzukreuzen, wenn kein Anwalt oder gemeinsamer Vertreter bestellt ist und statt dessen im obigen Feld eine spezielle Zustellanschrift angegeben ist.

|                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                         |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                       |
|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| <b>Fortsetzung von Feld Nr. III WEITERE ANMELDER UND/ODER (WEITERE) ERFINDER</b>                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                        |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                       |
| <i>Wird keines der folgenden Felder benutzt, so sollte dieses Blatt dem Antrag nicht beigelegt werden.</i>                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                              |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                       |
| <p><b>Name und Anschrift:</b> <i>(Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben. Der in diesem Feld in der Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes der Anmelders, sofern nachstehend kein Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.)</i></p> <p>GROVES, Michael<br/>Isenberger Weg 12<br/>45529 Hattingen<br/>Deutschland</p>         | <p><b>Diese Person ist:</b></p> <p><input type="checkbox"/> nur Anmelder</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Anmelder und Erfinder</p> <p><input type="checkbox"/> nur Erfinder <i>(Wird dieses Kästchen angekreuzt, so sind die nachstehenden Angaben nicht nötig.)</i></p> <p>Registrierungs-nr. des Anmelders beim Amt:</p> |
| <p><b>Staatsangehörigkeit (Staat):</b></p> <p>GB</p>                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    | <p><b>Sitz oder Wohnsitz (Staat):</b></p> <p>DE</p>                                                                                                                                                                                                                                                                                   |
| <p>Diese Person ist Anmelder für folgende Staaten: <input type="checkbox"/> alle Bestimmungsstaaten <input type="checkbox"/> alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme der Vereinigten Staaten von Amerika <input checked="" type="checkbox"/> nur die Vereinigten Staaten von Amerika <input type="checkbox"/> die im Zusatzfeld angegebenen Staaten</p>                                                                                                                                    |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                       |
| <p><b>Name und Anschrift:</b> <i>(Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben. Der in diesem Feld in der Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anmelders, sofern nachstehend kein Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.)</i></p> <p>SIEFERT, Rolf<br/>Wartenbergstraße 18<br/>33378 Rheda-Wiedenbrück<br/>Deutschland</p> | <p><b>Diese Person ist:</b></p> <p><input type="checkbox"/> nur Anmelder</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Anmelder und Erfinder</p> <p><input type="checkbox"/> nur Erfinder <i>(Wird dieses Kästchen angekreuzt, so sind die nachstehenden Angaben nicht nötig.)</i></p> <p>Registrierungs-nr. des Anmelders beim Amt:</p> |
| <p><b>Staatsangehörigkeit (Staat):</b></p> <p>DE</p>                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    | <p><b>Sitz oder Wohnsitz (Staat):</b></p> <p>DE</p>                                                                                                                                                                                                                                                                                   |
| <p>Diese Person ist Anmelder für folgende Staaten: <input type="checkbox"/> alle Bestimmungsstaaten <input type="checkbox"/> alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme der Vereinigten Staaten von Amerika <input checked="" type="checkbox"/> nur die Vereinigten Staaten von Amerika <input type="checkbox"/> die im Zusatzfeld angegebenen Staaten</p>                                                                                                                                    |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                       |
| <p><b>Name und Anschrift:</b> <i>(Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben. Der in diesem Feld in der Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anmelders, sofern nachstehend kein Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.)</i></p> <p>MAURER, Rainer<br/>Martinstraße 14<br/>58332 Schwelm<br/>Deutschland</p>              | <p><b>Diese Person ist:</b></p> <p><input type="checkbox"/> nur Anmelder</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Anmelder und Erfinder</p> <p><input type="checkbox"/> nur Erfinder <i>(Wird dieses Kästchen angekreuzt, so sind die nachstehenden Angaben nicht nötig.)</i></p> <p>Registrierungs-nr. des Anmelders beim Amt:</p> |
| <p><b>Staatsangehörigkeit (Staat):</b></p> <p>DE</p>                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    | <p><b>Sitz oder Wohnsitz (Staat):</b></p> <p>DE</p>                                                                                                                                                                                                                                                                                   |
| <p>Diese Person ist Anmelder für folgende Staaten: <input type="checkbox"/> alle Bestimmungsstaaten <input type="checkbox"/> alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme der Vereinigten Staaten von Amerika <input checked="" type="checkbox"/> nur die Vereinigten Staaten von Amerika <input type="checkbox"/> die im Zusatzfeld angegebenen Staaten</p>                                                                                                                                    |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                       |
| <p><b>Name und Anschrift:</b> <i>(Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben. Der in diesem Feld in der Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anmelders, sofern nachstehend kein Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.)</i></p>                                                                                          | <p><b>Diese Person ist:</b></p> <p><input type="checkbox"/> nur Anmelder</p> <p><input type="checkbox"/> Anmelder und Erfinder</p> <p><input type="checkbox"/> nur Erfinder <i>(Wird dieses Kästchen angekreuzt, so sind die nachstehenden Angaben nicht nötig.)</i></p> <p>Registrierungs-nr. des Anmelders beim Amt:</p>            |
| <p><b>Staatsangehörigkeit (Staat):</b></p>                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                              | <p><b>Sitz oder Wohnsitz (Staat):</b></p>                                                                                                                                                                                                                                                                                             |
| <p>Diese Person ist Anmelder für folgende Staaten: <input type="checkbox"/> alle Bestimmungsstaaten <input type="checkbox"/> alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme der Vereinigten Staaten von Amerika <input type="checkbox"/> nur die Vereinigten Staaten von Amerika <input type="checkbox"/> die im Zusatzfeld angegebenen Staaten</p>                                                                                                                                               |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                       |
| <p><input type="checkbox"/> Weitere Anmelder und/oder (weitere) Erfinder sind auf einem zusätzlichen Fortsetzungsblatt angegeben.</p>                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                       |

Feld Nr. V BESTIMMUNG VON STAATEN Bitte die entsprechenden Kästchen ankreuzen; wenigstens ein Kästchen muß angekreuzt werden.

Die folgenden Bestimmungen nach Regel 4.9 Absatz a werden hiermit vorgenommen:

Regionales Patent

- ☒ AP ARIPO-Patent: GH Ghana, GM Gambia, KE Kenia, LS Lesotho, MW Malawi, MZ Mosambik, SD Sudan, SL Sierra Leone, SZ Swasiland, TZ Vereinigte Republik Tansania, UG Uganda, ZM Sambia, ZW Simbabwe und jeder weitere Staat, der Vertragsstaat des Harare-Protokolls und des PCT ist (falls eine andere Schutzrechtsart oder ein sonstiges Verfahren gewünscht wird, bitte auf der gepunkteten Linie angeben) .....
- ☒ EA Eurasisches Patent: AM Armenien, AZ Aserbaidschan, BY Belarus, KG Kirgisistan, KZ Kasachstan, MD Republik Moldau, RU Russische Föderation, TJ Tadschikistan, TM Turkmenistan und jeder weitere Staat, der Vertragsstaat des Eurasischen Patentübereinkommens und des PCT ist .....
- ☒ EP Europäisches Patent: AT Österreich, BE Belgien, BG Bulgarien, CH & LI Schweiz und Liechtenstein, CY Zypern, CZ Tschechische Republik, DE Deutschland, DK Dänemark, EE Estland, ES Spanien, FI Finnland, FR Frankreich, GB Vereinigtes Königreich, GR Griechenland, IE Irland, IT Italien, LU Luxemburg, MC Monaco, NL Niederlande, PT Portugal, SE Schweden, SI Slowenien, SK Slowakei, TR Türkei und jeder weitere Staat, der Vertragsstaat des Europäischen Patentübereinkommens und des PCT ist **NI RO** .....
- ☒ OA OAPI-Patent: BF Burkina Faso, BJ Benin, CF Zentralafrikanische Republik, CG Kongo, CI Côte d'Ivoire, CM Kamerun, GA Gabun, GN Guinea, GQ Äquatorialguinea, GW Guinea-Bissau, ML Mali, MR Mauretanien, NE Niger, SN Senegal, TD Tschad, TG Togo und jeder weitere Staat, der Vertragsstaat der OAPI und des PCT ist (falls eine andere Schutzrechtsart oder ein sonstiges Verfahren gewünscht wird, bitte auf der gepunkteten Linie angeben) .....

Nationales Patent (falls eine andere Schutzrechtsart oder ein sonstiges Verfahren gewünscht wird, bitte auf der gepunkteten Linie angeben):

- |                                                                       |                                                                                        |                                                                       |
|-----------------------------------------------------------------------|----------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------|
| <input checked="" type="checkbox"/> AE Vereinigte Arabische Emirate   | <input checked="" type="checkbox"/> GM Gambia                                          | <input checked="" type="checkbox"/> NZ Neuseeland                     |
| <input checked="" type="checkbox"/> AG Antigua und Barbuda            | <input checked="" type="checkbox"/> HR Kroatien                                        | <input checked="" type="checkbox"/> OM Oman                           |
| <input checked="" type="checkbox"/> AL Albanien                       | <input checked="" type="checkbox"/> HU Ungarn                                          | <input checked="" type="checkbox"/> PH Philippinen                    |
| <input checked="" type="checkbox"/> AM Armenien                       | <input checked="" type="checkbox"/> ID Indonesien                                      | <input checked="" type="checkbox"/> PL Polen                          |
| <input checked="" type="checkbox"/> AT Österreich                     | <input checked="" type="checkbox"/> IL Israel                                          | <input checked="" type="checkbox"/> PT Portugal                       |
| <input checked="" type="checkbox"/> AU Australien                     | <input checked="" type="checkbox"/> IN Indien                                          | <input checked="" type="checkbox"/> RO Rumänien                       |
| <input checked="" type="checkbox"/> AZ Aserbaidschan                  | <input checked="" type="checkbox"/> IS Island                                          | <input checked="" type="checkbox"/> RU Russische Föderation           |
| <input checked="" type="checkbox"/> BA Bosnien-Herzegowina            | <input checked="" type="checkbox"/> JP Japan                                           |                                                                       |
| <input checked="" type="checkbox"/> BB Barbados                       | <input checked="" type="checkbox"/> KE Kenia                                           | <input checked="" type="checkbox"/> SC Seychellen                     |
| <input checked="" type="checkbox"/> BG Bulgarien                      | <input checked="" type="checkbox"/> KG Kirgisistan                                     | <input checked="" type="checkbox"/> SD Sudan                          |
| <input checked="" type="checkbox"/> BR Brasilien                      | <input checked="" type="checkbox"/> KP Demokratische Volksrepublik Korea               | <input checked="" type="checkbox"/> SE Schweden                       |
| <input checked="" type="checkbox"/> BY Belarus                        | <input checked="" type="checkbox"/> KR Republik Korea                                  | <input checked="" type="checkbox"/> SG Singapur                       |
| <input checked="" type="checkbox"/> BZ Belize                         | <input checked="" type="checkbox"/> KZ Kasachstan                                      | <input checked="" type="checkbox"/> SK Slowakei                       |
| <input checked="" type="checkbox"/> CA Kanada                         | <input checked="" type="checkbox"/> LC Saint Lucia                                     | <input checked="" type="checkbox"/> SL Sierra Leone                   |
| <input checked="" type="checkbox"/> CH & LI Schweiz und Liechtenstein | <input checked="" type="checkbox"/> LK Sri Lanka                                       | <input checked="" type="checkbox"/> TJ Tadschikistan                  |
| <input checked="" type="checkbox"/> CN China                          | <input checked="" type="checkbox"/> LR Liberia                                         | <input checked="" type="checkbox"/> TM Turkmenistan                   |
| <input checked="" type="checkbox"/> CO Kolumbien                      | <input checked="" type="checkbox"/> LS Lesotho                                         | <input checked="" type="checkbox"/> TN Tunesien                       |
| <input checked="" type="checkbox"/> CR Costa Rica                     | <input checked="" type="checkbox"/> LT Litauen                                         | <input checked="" type="checkbox"/> TR Türkei                         |
| <input checked="" type="checkbox"/> CU Kuba                           | <input checked="" type="checkbox"/> LU Luxemburg                                       | <input checked="" type="checkbox"/> TT Trinidad und Tobago            |
| <input checked="" type="checkbox"/> CZ Tschechische Republik          | <input checked="" type="checkbox"/> LV Lettland                                        |                                                                       |
| <input checked="" type="checkbox"/> DE Deutschland                    | <input checked="" type="checkbox"/> MA Marokko                                         | <input checked="" type="checkbox"/> TZ Vereinigte Republik Tansania   |
| <input checked="" type="checkbox"/> DK Dänemark                       | <input checked="" type="checkbox"/> MD Republik Moldau                                 | <input checked="" type="checkbox"/> UA Ukraine                        |
| <input checked="" type="checkbox"/> DM Dominica                       |                                                                                        | <input checked="" type="checkbox"/> UG Uganda                         |
| <input checked="" type="checkbox"/> DZ Algerien                       | <input checked="" type="checkbox"/> MG Madagaskar                                      | <input checked="" type="checkbox"/> US Vereinigte Staaten von Amerika |
| <input checked="" type="checkbox"/> EC Ecuador                        | <input checked="" type="checkbox"/> MK Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien |                                                                       |
| <input checked="" type="checkbox"/> EE Estland                        | <input checked="" type="checkbox"/> MN Mongolei                                        | <input checked="" type="checkbox"/> UZ Usbekistan                     |
| <input checked="" type="checkbox"/> ES Spanien                        | <input checked="" type="checkbox"/> MW Malawi                                          | <input checked="" type="checkbox"/> VC St. Vincent und die Grenadinen |
| <input checked="" type="checkbox"/> FI Finnland                       | <input checked="" type="checkbox"/> MX Mexiko                                          | <input checked="" type="checkbox"/> VN Vietnam                        |
| <input checked="" type="checkbox"/> GB Vereinigtes Königreich         | <input checked="" type="checkbox"/> MZ Mosambik                                        | <input checked="" type="checkbox"/> YU Jugoslawien                    |
| <input checked="" type="checkbox"/> GD Grenada                        | <input checked="" type="checkbox"/> NO Norwegen                                        | <input checked="" type="checkbox"/> ZA Südafrika                      |
| <input checked="" type="checkbox"/> GE Georgien                       |                                                                                        | <input checked="" type="checkbox"/> ZM Sambia                         |
| <input checked="" type="checkbox"/> GH Ghana                          |                                                                                        | <input checked="" type="checkbox"/> ZW Simbabwe                       |

Kästchen für die Bestimmung von Staaten, die dem PCT nach der Veröffentlichung dieses Formblatts beigetreten sind.

- ☒ NI Nicaragua ☐ ..... ☐ .....
- ☐ ..... ☐ .....

Erklärung bzgl. vorsorglicher Bestimmungen: Zusätzlich zu den oben genannten Bestimmungen nimmt der Anmelder nach Regel 4.9 Absatz b auch alle anderen nach dem PCT zulässigen Bestimmungen vor mit Ausnahme der im Zusatzfeld genannten Bestimmungen, die von dieser Erklärung ausgenommen sind. Der Anmelder erklärt, daß diese zusätzlichen Bestimmungen unter dem Vorbehalt einer Bestätigung stehen und jede zusätzliche Bestimmung, die vor Ablauf von 15 Monaten ab dem Prioritätsdatum nicht bestätigt wurde, nach Ablauf dieser Frist als vom Anmelder zurückgenommen gilt. (Die Bestätigung (einschließlich der Gebühren) muß beim Anmeldeamt innerhalb der Frist von 15 Monaten eingehen.)

| Feld Nr. VI PRIORITÄTSANSPRUCH                                                        |                                        |                                                     |                                          |                                         |
|---------------------------------------------------------------------------------------|----------------------------------------|-----------------------------------------------------|------------------------------------------|-----------------------------------------|
| Die Priorität der folgenden früheren Anmeldung(en) wird hiermit in Anspruch genommen: |                                        |                                                     |                                          |                                         |
| Anmeldedatum<br>der früheren Anmeldung<br>(Tag/Monat/Jahr)                            | Aktenzeichen<br>der früheren Anmeldung | Ist die frühere Anmeldung eine:                     |                                          |                                         |
|                                                                                       |                                        | nationale Anmeldung:<br>Staat oder Mitglied der WTO | regionale Anmeldung: *<br>regionales Amt | internationale Anmeldung:<br>Anmeldeamt |
| Zeile (1)<br>(13.06.2002) *<br>13 JUN 2002 *                                          | 102 26 461.9                           | DE                                                  |                                          |                                         |
| Zeile (2)                                                                             |                                        |                                                     |                                          |                                         |
| Zeile (3)                                                                             |                                        |                                                     |                                          |                                         |
| Zeile (4)                                                                             |                                        |                                                     |                                          |                                         |
| Zeile (5)                                                                             |                                        |                                                     |                                          |                                         |

☐ Weitere Prioritätsansprüche sind im Zusatzfeld angegeben.

Das Anmeldeamt wird ersucht, eine beglaubigte Abschrift der oben bezeichneten früheren Anmeldung(en) zu erstellen und dem internationalen Büro zu übermitteln (nur falls die frühere Anmeldung(en) bei dem Amt eingereicht worden ist (sind), das für die Zwecke dieser internationalen Anmeldung Anmeldeamt ist):

☐ sämtliche Zeilen    ☐ Zeile (1)    ☐ Zeile (2)    ☐ Zeile (3)    ☐ Zeile (4)    ☐ Zeile (5)    ☐ weitere, siehe Zusatzfeld

\* Falls es sich bei der früheren Anmeldung um eine ARIPO-Anmeldung handelt, geben Sie mindestens einen Staat an, der Mitgliedstaat der Pariser Verbandsübereinkunft zum Schutz des gewerblichen Eigentums oder Mitglied der Welthandelsorganisation ist und für den oder den die frühere Anmeldung eingereicht wurde: .....

| Feld Nr. VII INTERNATIONALE RECHERCHENBEHÖRDE                                                                                                                                                                                                                                 |              |                             |  |
|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------|-----------------------------|--|
| Wahl der internationalen Recherchenbehörde (ISA) (falls zwei oder mehr als zwei internationale Recherchenbehörden für die Ausführung der internationalen Recherche zuständig sind, geben Sie die von Ihnen gewählte Behörde an; der Zweibuchstaben-Code kann benutzt werden): |              |                             |  |
| ISA / .....                                                                                                                                                                                                                                                                   |              |                             |  |
| Antrag auf Nutzung der Ergebnisse einer früheren Recherche; Bezugnahme auf diese frühere Recherche (falls eine frühere Recherche bei der internationalen Recherchenbehörde beantragt oder von ihr durchgeführt worden ist):                                                   |              |                             |  |
| Datum (Tag/Monat/Jahr)                                                                                                                                                                                                                                                        | Aktenzeichen | Staat (oder regionales Amt) |  |

| Feld Nr. VIII ERKLÄRUNGEN                                                                                                                                                                       |                                                                                                                                                                |                        |
|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------|
| Die Felder Nr. VIII (i) bis (v) enthalten die folgenden Erklärungen (Kreuzen Sie unten die entsprechenden Kästchen an und geben Sie in der rechten Spalte für jede Erklärung deren Anzahl an) : |                                                                                                                                                                | Anzahl der Erklärungen |
| <input type="checkbox"/> Feld Nr. VIII (i)                                                                                                                                                      | Erklärung hinsichtlich der Identität des Erfinders                                                                                                             | :                      |
| <input type="checkbox"/> Feld Nr. VIII (ii)                                                                                                                                                     | Erklärung hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, zum Zeitpunkt des internationalen Anmeldedatums, ein Patent zu beantragen und zu erhalten               | :                      |
| <input type="checkbox"/> Feld Nr. VIII (iii)                                                                                                                                                    | Erklärung hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, zum Zeitpunkt des internationalen Anmeldedatums, die Priorität einer früheren Anmeldung zu beanspruchen | :                      |
| <input type="checkbox"/> Feld Nr. VIII (iv)                                                                                                                                                     | Erfindererklärung (nur im Hinblick auf die Bestimmung der Vereinigten Staaten von Amerika)                                                                     | :                      |
| <input type="checkbox"/> Feld Nr. VIII (v)                                                                                                                                                      | Erklärung hinsichtlich unschädlicher Offenbarungen oder Ausnahmen von der Neuheitsschädlichkeit                                                                | :                      |

| Feld Nr. IX KONTROLLISTE; EINREICHUNGSSPRACHE                                                                                                                                                                                                            |    |         |
|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|---------|
| Diese internationale Anmeldung enthält:                                                                                                                                                                                                                  |    | Anzahl  |
| (a) auf Papier, die folgende Anzahl Blätter:                                                                                                                                                                                                             |    |         |
| Antrag (inklusive Erklärungsblätter) :                                                                                                                                                                                                                   | 5  |         |
| Beschreibung (ohne Sequenzprotokolle und/oder diesbezügliche Tabellen) :                                                                                                                                                                                 | 17 |         |
| Ansprüche :                                                                                                                                                                                                                                              | 4  |         |
| Zusammenfassung :                                                                                                                                                                                                                                        | 1  |         |
| Zeichnungen :                                                                                                                                                                                                                                            | 6  |         |
| Teilanzahl :                                                                                                                                                                                                                                             | 33 |         |
| Sequenzprotokolle :                                                                                                                                                                                                                                      |    |         |
| diesbezügliche Tabellen :                                                                                                                                                                                                                                |    |         |
| (für beide, Anzahl der Blätter, soweit auf Papier eingereicht wird, unabhängig davon, ob zusätzlich auch in computerlesbarer Form eingereicht wird; siehe unter (c))                                                                                     |    |         |
| Gesamtanzahl :                                                                                                                                                                                                                                           | 33 |         |
| (b) <input type="checkbox"/> ausschließlich in computerlesbarer Form (Abschnitt 801(a)(i))                                                                                                                                                               |    |         |
| (i) <input type="checkbox"/> Sequenzprotokolle                                                                                                                                                                                                           |    |         |
| (ii) <input type="checkbox"/> diesbezügliche Tabellen                                                                                                                                                                                                    |    |         |
| (c) <input type="checkbox"/> auch in computerlesbarer Form (Abschnitt 801(a)(ii))                                                                                                                                                                        |    |         |
| (i) <input type="checkbox"/> Sequenzprotokolle                                                                                                                                                                                                           |    |         |
| (ii) <input type="checkbox"/> diesbezügliche Tabellen                                                                                                                                                                                                    |    |         |
| Art und Anzahl der Datenträger (Diskette, CD-ROM, CD-R oder sonstige) auf denen sich befinden                                                                                                                                                            |    |         |
| (i) <input type="checkbox"/> Sequenzprotokolle: .....                                                                                                                                                                                                    |    |         |
| (ii) <input type="checkbox"/> diesbezügliche Tabellen: .....                                                                                                                                                                                             |    |         |
| (zusätzliche eingereichte Kopien unter Punkt 9(II) und/oder 10(II) in der rechten Spalte angeben)                                                                                                                                                        |    |         |
| Abbildung der Zeichnungen, die mit der Zusammenfassung veröffentlicht werden soll (Nr.):                                                                                                                                                                 |    |         |
| Dieser internationalen Anmeldung liegen die folgenden Unterlagen bei (kreuzen Sie die entsprechenden Kästchen an und geben Sie in der rechten Spalte jeweils die Anzahl der beiliegenden Exemplare an)                                                   |    |         |
| 1. <input checked="" type="checkbox"/> Blatt für die Gebührenberechnung                                                                                                                                                                                  |    |         |
| 2. <input type="checkbox"/> Original einer gesonderten Vollmacht                                                                                                                                                                                         |    |         |
| 3. <input type="checkbox"/> Original einer allgemeinen Vollmacht                                                                                                                                                                                         |    |         |
| 4. <input type="checkbox"/> Kopie der allgemeinen Vollmacht; Aktenzeichen (falls vorhanden): .....                                                                                                                                                       |    |         |
| 5. <input type="checkbox"/> Begründung für das Fehlen einer Unterschrift                                                                                                                                                                                 |    |         |
| 6. <input checked="" type="checkbox"/> Prioritätsbeleg(e), in Feld Nr. VI durch folgende Zeilennummer(n) gekennzeichnet: .....                                                                                                                           |    |         |
| 7. <input type="checkbox"/> Übersetzung der internationalen Anmeldung in die folgende Sprache: .....                                                                                                                                                     |    |         |
| 8. <input type="checkbox"/> Gesonderte Angaben zu hinterlegten Mikroorganismen oder anderem biologischen Material                                                                                                                                        |    |         |
| 9. <input type="checkbox"/> Sequenzprotokolle in computerlesbarer Form (Art und Anzahl der Datenträger)                                                                                                                                                  |    |         |
| (i) <input type="checkbox"/> Kopie ausschließlich für die Zwecke der internationalen Recherche nach Regel 13ter (und nicht als Teil der internationalen Anmeldung)                                                                                       |    |         |
| (ii) <input type="checkbox"/> (nur falls Felder (b)(i) oder (c)(i) in der linken Spalte angekreuzt wurden) zusätzliche Kopien einschließlich, soweit zutreffend, einer Kopie für die Zwecke der internationalen Recherche nach Regel 13ter               |    |         |
| (iii) <input type="checkbox"/> zusammen mit entsprechender Erklärung, daß die Kopie(n) mit dem in der linken Spalte aufgeführten Sequenzprotokollen identisch ist (sind)                                                                                 |    |         |
| 10. <input type="checkbox"/> Tabellen in computerlesbarer Form im Zusammenhang mit Sequenzprotokollen (Art und Anzahl der Datenträger)                                                                                                                   |    |         |
| (i) <input type="checkbox"/> Kopie ausschließlich für die Zwecke der internationalen Recherche nach Abschnitt 802(b-quater) (und nicht als Teil der internationalen Anmeldung)                                                                           |    |         |
| (ii) <input type="checkbox"/> (nur falls Felder (b)(ii) oder (c)(ii) in der linken Spalte angekreuzt wurden) zusätzliche Kopien einschließlich, soweit zutreffend, einer Kopie für die Zwecke der internationalen Recherche nach Abschnitt 802(b-quater) |    |         |
| (iii) <input type="checkbox"/> zusammen mit entsprechender Erklärung, daß die Kopie(n) mit dem in der linken Spalte aufgeführten Tabellen identisch ist (sind)                                                                                           |    |         |
| 11. <input type="checkbox"/> Sonstige (einzeln auflisten): .....                                                                                                                                                                                         |    |         |
| Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht wird:                                                                                                                                                                                           |    | Deutsch |
| Feld Nr. X UNTERSCHRIFT DES ANMELDERS, DES ANWALTS ODER DES GEMEINSAMEN VERTRETERS                                                                                                                                                                       |    |         |
| Der Name jeder unterzeichnenden Person ist neben der Unterschrift zu wiederholen, und es ist anzugeben, sofern sich dies nicht eindeutig aus dem Antrag ergibt, in welcher Eigenschaft die Person unterzeichnet.                                         |    |         |
|                                                                                                                                                                       |    |         |
| Dr. Joachim Ackermann                                                                                                                                                                                                                                    |    |         |

| Vom Anmeldeamt auszufüllen                                                                                                                                               |                                                                                                                   |
|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 1. Datum des tatsächlichen Eingangs dieser internationalen Anmeldung:                                                                                                    | 10 JUN 2003 (10.06.2003)                                                                                          |
| 3. Geändertes Eingangsdatum aufgrund nachträglich, jedoch fristgerecht eingegangener Unterlagen oder Zeichnungen zur Vervollständigung dieser internationalen Anmeldung: |                                                                                                                   |
| 4. Datum des fristgerechten Eingangs der angeforderten Richtigstellungen nach Artikel 11(2) PCT:                                                                         |                                                                                                                   |
| 5. Internationale Recherchenbehörde (falls zwei oder mehr zuständig sind): ISA /                                                                                         | 6. <input type="checkbox"/> Übermittlung des Recherchenexemplars bis zur Zahlung der Recherchegebühr aufgeschoben |

2. Zeichnungen:

☒ eingegangen:

☐ nicht eingegangen:

| Vom Internationalen Büro auszufüllen                             |
|------------------------------------------------------------------|
| Datum des Eingangs des Aktenexemplars beim Internationalen Büro: |

# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

## PCT

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

56563 66  
66

|                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                        |                                                                                                                                        |                                                                                                                                                                  |
|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts<br>202ku06.wo                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                  | <b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/PEA416) |                                                                                                                                                                  |
| Internationales Aktenzeichen<br>PCT/EP 03/06051                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                        | Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr)<br>10.06.2003                                                                            | Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr)<br>13.06.2002                                                                                                                   |
| Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK<br>B01D53/86                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                           |                                                                                                                                        |                                                                                                                                                                  |
| Anmelder<br>UHDE GmbH et Al.                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                           |                                                                                                                                        |                                                                                                                                                                  |
| <p>1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.</p> <p>2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 6 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).</p> <p>Diese Anlagen umfassen insgesamt 4 Blätter.</p>                                                                                                                                                                       |                                                                                                                                        |                                                                                                                                                                  |
| <p>3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:</p> <p>I <input checked="" type="checkbox"/> Grundlage des Bescheids</p> <p>II <input type="checkbox"/> Priorität</p> <p>III <input type="checkbox"/> Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit</p> <p>IV <input type="checkbox"/> Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung</p> <p>V <input checked="" type="checkbox"/> Begründete Feststellung nach Regel 66.2 a)II) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung</p> <p>VI <input type="checkbox"/> Bestimmte angeführte Unterlagen</p> <p>VII <input type="checkbox"/> Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung</p> <p>VIII <input type="checkbox"/> Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung</p> |                                                                                                                                        |                                                                                                                                                                  |
| Datum der Einreichung des Antrags<br><br>08.12.2003                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    |                                                                                                                                        | Datum der Fertigstellung dieses Berichts<br><br>18.10.2004                                                                                                       |
| Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde<br> Europäisches Patentamt - Gitschiner Str. 103<br>D-10858 Berlin<br>Tel. +49 30 25801 - 0<br>Fax: +49 30 25801 - 840                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                              |                                                                                                                                        | Bevollmächtigter Bediensteter<br><br>Gruber, M<br>Tel. +49 30 25801-336<br> |

**I. Grundlage des Berichts**

1. Hinsichtlich der Bestandteile der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):

**Beschreibung, Seiten**

1-17 in der ursprünglich eingereichten Fassung

**Ansprüche, Nr.**

1-21 eingegangen am 03.09.2004 mit Schreiben vom 01.09.2004

**Zeichnungen, Blätter**

1/6-6/6 in der ursprünglich eingereichten Fassung

2. Hinsichtlich der Sprache: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um:

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung,      Seiten:
- ☐ Ansprüche,      Nr.:
- ☐ Zeichnungen,      Blatt:

68  
53

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER  
PRÜFUNGSBERICHT**

Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/06051

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

*(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen.)*

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

**V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

- |                                |                                             |
|--------------------------------|---------------------------------------------|
| 1. Feststellung                |                                             |
| Neuheit (N)                    | Ja: Ansprüche 1-21<br>Nein: Ansprüche       |
| Erfinderische Tätigkeit (IS)   | Ja: Ansprüche 15-21<br>Nein: Ansprüche 1-14 |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) | Ja: Ansprüche 1-21<br>Nein: Ansprüche:      |

2. Unterlagen und Erklärungen:

**siehe Beiblatt**

68  
69

**Zu Punkt V**

**Begründete Feststellung hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

Es wird auf das folgende Dokument verwiesen:

D1: WO 01/51181 A (SCHWEFER MEINHARD ;SZONN ERICH (DE); KRUPP  
UHDE GMBH (DE); TUREK T) 19. Juli 2001 (2001-07-19)

**1 Die vorliegende Anmeldung erfüllt nicht die Erfordernisse des Artikels 33(1) PCT, weil der Gegenstand der Ansprüche 1 bis 14 nicht auf einer erfinderischen Tätigkeit im Sinne von Artikel 33(2) PCT beruht.**

**1.1 Dokument D1 offenbart ein Verfahren (siehe Ansprüche und Seite 7, Zeilen 22 bis 34) zur Minderung des Gehalts an NO<sub>x</sub> und N<sub>2</sub>O in Prozessgasen, bei dem**

- a) das zu behandelnde Gas über eine Folge zweier Katalysatorzonen I und II (kann als zwei aneinander grenzende Katalysatorbetten verstanden werden) geleitet wird, die einen oder mehrere mit Eisen beladene Zeolithe aufweisen (z.B. Fe-ZSM-5),**
- b) die Zugabe von Ammoniak zwischen den Reaktionszonen erfolgt,**
- c) die Temperatur in beiden Zonen auf einen Wert <500°C eingestellt wird,**
- d) der Gasdruck zwischen 1 und 25 bar eingestellt wird und**
- e) eine Raumgeschwindigkeit zwischen 5.000 und 100.000 h<sup>-1</sup> gewählt wird (im Ausführungsbeispiel: 10.000 h<sup>-1</sup>).**

**Der Gegenstand des Anspruchs 1 unterscheidet sich von der Offenbarung in D1 dadurch, dass das die erste Katalysatorstufe verlassende Gas einen Gehalt an N<sub>2</sub>O von mindestens 200 ppm aufweist. In D1 liegt dieser Wert bei maximal 200 ppm.**

**Die "deutlich gesteigerte Effektivität" des Verfahrens, die aus diesem technischen Unterschied resultieren soll, bleibt jedoch unklar (keine Beispiele oder Gegenbeispiele, um die Verbesserung gegenüber D1 zu demonstrieren). Auch wird in Anspruch 1 nicht erwähnt, unter welchen (sich von denen in D1 unterscheidenden) Reaktionsbedingungen eine simultane NO<sub>x</sub>-Reduktion und**

70  
70

N<sub>2</sub>O-Zersetzung in der zweiten Reaktionsstufe erfolgt (z.B. erhöhter Druck: >2 bar; siehe Seite 4, Zeilen 1,2 der Beschreibung).

Erfinderische Tätigkeit im Sinne des Artikels 33(3) kann dem Gegenstand des Anspruchs 1 nicht zuerkannt werden.

**1.2** Derzeitig ist nicht ersichtlich, inwiefern die Ansprüche 2 bis 14 Merkmale enthalten, die in Kombination mit den Merkmalen irgendeines Anspruchs, auf den sie sich beziehen, die Erfordernisse des PCT in Bezug auf erfinderische Tätigkeit erfüllen.

**2** Der Gegenstand der Ansprüche 15 bis 21 erfüllt die Erfordernisse des Artikels 33(1) PCT.

**2.1** D1 offenbart eine Vorrichtung zur Durchführung zur Minderung des Gehalts von NO<sub>x</sub> und N<sub>2</sub>O in Gasen, die zwei Katalysatorzonen I und II (kann als zwei aneinander grenzende Katalysatorbetten verstanden werden) und eine zwischen den Zonen angeordnete Vorrichtung zur Einbringung eines gasförmigen Reduktionsmittels in den Strom des zu behandelnden Gases umfasst.

Der Gegenstand des Anspruchs 15 unterscheidet sich von der Vorrichtung in D1 dadurch, dass mindestens eines der Katalysatorbetten in der Form eines Hohlzylinders ausgestaltet ist, der von dem NO<sub>x</sub> und N<sub>2</sub>O enthaltenden Gas radial durchströmt wird.

**2.2** Die Form eines Hohlzylinders von mindestens einem der Katalysatorbetten in Kombination mit der radialen Gasführung führt zu einem deutlich vermindertem Druckverlust und somit zu einer einfacheren Steuerung des Verfahrens.

**2.3** Die Ansprüche 16 bis 21 sind von Anspruch 15 abhängig und erfüllen auch die Erfordernisse des Artikels 33 PCT.

**3** Beide unabhängigen Ansprüche (Verfahren und Vorrichtung) sind ohne Bezug zueinander formuliert. Das Verfahren nach Anspruch 1 kann offenbar mit vergleichbarer Wirkung in jeder geeigneten Vorrichtung mit zwei Katalysatorbetten (z.B. D1), durchgeführt werden, egal welche geometrische Form die

31  
71

Katalysatorbetten aufweisen. Aus den Ansprüchen geht nicht hervor, warum zur Durchführung des Verfahrens nach Anspruch 1 vorteilhaft die Vorrichtung nach Anspruch 15 verwendet werden soll.

Ferner ist nicht ersichtlich, dass die Unterscheidungsmerkmale der unabhängigen Ansprüche zum Stand der Technik (D1) identisch sind, und die zu lösende Aufgabe beider Ansprüche dieselbe ist.

Die beiden Ansprüche 1 und 15 verstossen deshalb in ihrer derzeitigen Fassung formal gegen Regel 13.1 PCT, d.h. sie erfüllen (formal) nicht das Erfordernis der Einheitlichkeit der Erfindung.

Abhilfe kann durch einen expliten Bezug auf die Vorrichtung nach Anspruch 15 im auf das Verfahren gerichteten Anspruch geschaffen werden.

## Patentansprüche:

202ku06.wo

1. Verfahren zur Minderung des Gehalts von  $\text{NO}_x$  und  $\text{N}_2\text{O}$  in Gasen,  
5 insbesondere in Prozessgasen und Abgasen, umfassend die Massnahmen:
- a) Leiten des  $\text{N}_2\text{O}$  und  $\text{NO}_x$  enthaltenden Gases über eine Folge zweier  
Katalysatorbetten enthaltend einen oder mehrere mit Eisen beladene  
Zeolithe,
- 10 b) Zugabe eines Reduktionsmittels für  $\text{NO}_x$  zwischen den Katalysatorbetten,  
c) Einstellen einer Temperatur von weniger als  $500^\circ\text{C}$  im ersten  
Katalysatorbett und zweiten Katalysatorbett,  
d) Einstellen eines Gasdruckes von mindestens 2 bar in den beiden  
Katalysatorbetten,
- 15 e) Auswahl einer solchen Raumgeschwindigkeit im ersten und zweiten  
Katalysatorbett, so dass im ersten Katalysatorbett ein Abbau des  $\text{N}_2\text{O}$ -  
Gehalts des Gases um höchstens 90%, bezogen auf den  $\text{N}_2\text{O}$  Gehalt am  
Eingang des ersten Katalysatorbettes, erfolgt und sich ein  $\text{N}_2\text{O}$  Gehalt von  
größer als 200 ppm einstellt und dass im zweiten Katalysatorbett ein  
20 weiterer Abbau des  $\text{N}_2\text{O}$ -Gehalts des Gases um mindestens 30%,  
bezogen auf den  $\text{N}_2\text{O}$  Gehalt am Eingang des zweiten Katalysatorbettes,  
erfolgt.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass im ersten und  
25 zweiten Katalysatorbett der gleiche Katalysator verwendet wird.
3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der oder die mit  
Eisen beladenen Zeolithe vom Typ MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder  
MEL sind.
- 30 4. Verfahren nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, dass der mit Eisen  
beladene Zeolith vom Typ MFI ist.

GEAENDERTES BLATT

5. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Zeolith ein Fe-ZSM-5 ist.
- 5 6. Verfahren nach Anspruche 1, dadurch gekennzeichnet, dass das Verfahren bei einem Druck im Bereich von 4 bis 25 bar durchgeführt wird.
- 10 7. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass als Reduktionsmittel für  $\text{NO}_x$  Ammoniak verwendet wird, das in einer Menge von 1,0 bis 1,2 molaren Anteilen, bezogen auf einen molaren Anteil an abzubauenem  $\text{NO}_x$ , eingesetzt wird.
- 15 8. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das  $\text{NO}_x$  und  $\text{N}_2\text{O}$  enthaltende Gas mit einer Raumgeschwindigkeit von 5.000 bis 50.000  $\text{h}^{-1}$ , bezogen auf das addierte Katalysatorvolumen beider Katalysatorbetten über diese geleitet wird.
- 20 9. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Temperatur in der ersten und in der zweiten Reaktionszone zwischen 350 bis 450°C liegt.
- 25 10. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass in mindestens einem Katalysatorbett mit Eisen beladene Zeolithe eingesetzt werden, die mit Wasserdampf behandelt worden sind.
- 25 11. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass als Katalysatoren in mindestens einem Katalysatorbett mit Eisen beladene Zeolithe eingesetzt werden, bei denen das Verhältnis von Extra-Gitter-Aluminium zu Gitter-Aluminium mindestens 0,5 beträgt.
- 30 12. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass dieses in den Prozeß der Salpetersäureproduktion integriert ist.
13. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass dieses in den Prozeß des Betriebes einer Gasturbine integriert ist.

14. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass dieses in d n  
Prozeß des Betriebes eines Kraftwerks integriert ist.
- 5 15. Vorrichtung zur Minderung des Gehalts von  $\text{NO}_x$  und  $\text{N}_2\text{O}$  in Gasen,  
insbesondere in Prozessgasen und Abgasen, umfassend:
- 10 A) zwei hintereinander geschaltete Katalysatorbetten enthaltend einen oder  
mehrere mit Eisen beladene Zeolithe, welche von dem  $\text{NO}_x$  und  $\text{N}_2\text{O}$   
enthaltenden Gas durchströmt werden,
- 15 B) eine zwischen den Katalysatorbetten angeordnete Vorrichtung zur  
Einbringung eines gasförmigen Reduktionsmittels in den Strom des  $\text{NO}_x$   
und  $\text{N}_2\text{O}$  enthaltenden Gases, umfassend einen Mischer, durch den das  
Gas nach Durchströmung des ersten Katalysatorbettes geleitet wird, und  
umfassend eine Zuleitung für Reduktionsmittel, die in den Raum hinter  
dem ersten Katalysatorbett und vor oder in den Mischer mündet, wobei  
das zu reinigende Gas nach Verlassen des Mixers durch das zweite  
Katalysatorbett geleitet wird und wobei
- 20 C) mindestens eines der Katalysatorbetten in der Form eines Hohlzylinders  
ausgestaltet ist, der von dem  $\text{NO}_x$  und  $\text{N}_2\text{O}$  enthaltenden Gas radial  
durchströmt wird.
16. Vorrichtung nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, dass beide  
Katalysatorbetten in einem Behälter angeordnet sind.
- 25 17. Vorrichtung nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, dass beide  
Katalysatorbetten vom  $\text{NO}_x$  und  $\text{N}_2\text{O}$  enthaltenden Gas radial durchströmt  
werden.
- 30 18. Vorrichtung nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, dass zwei radial  
durchströmte Katalysatorbetten übereinander angeordnet sind oder dass eine  
Kombination von übereinander angeordneten axial und radial durchströmten  
Katalysatorbetten vorliegt, wobei durch geeignet angebrachte Trennflächen

zwischen den Katalysatorbetten der Weg des Gases so vorgegeben wird, dass zunächst das erste und sodann das zweite Katalysatorbett durchströmt wird.

- 5 19. Vorrichtung nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, dass zwei radial durchströmte Katalysatorbetten mit verschiedenen Abmessungen vorliegen, wobei das Außenmaß des einen Katalysatorbettes kleiner ist als das Innenmaß des anderen Katalysatorbettes und beide Katalysatorbetten konzentrisch zueinander angeordnet sind, und wobei durch geeignet angebrachte Trennflächen zwischen den Katalysatorbetten der Weg des Gases so vorgegeben wird, dass zunächst das erste und sodann das zweite Katalysatorbett durchströmt wird.
- 10
20. Vorrichtung nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, dass das Gas nach Durchströmung des ersten Katalysatorbettes in einen im Zentrum der Vorrichtung angeordneten Mischer geleitet wird.
- 15
21. Vorrichtung nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, dass der Mischer als statischer Mischer oder als dynamischer Mischer ausgestaltet ist, vorzugsweise in Form eines durchströmten Rohres.
- 20

**TRATADO DE COOPERACION EN PATENTES**

**PCT**

**REPORTE DEL EXAMEN INTERNACIONAL PRELIMINAR**

(Artículo 36 y Norma 70 PCT)

Referencia del solicitante o abogado: 202ku06.wo

PROCEDIMIENTO ADICIONAL: Ver Notificación sobre el envío del reporte de examen internacional provisional (Formato PCT/IPEA/416)

No. de referencia internacional: PCT/EP 03/06051

Fecha de solicitud internacional: 10.06.2003

Fecha de prioridad: 13.06.2002

Clasificación Internacional de Patentes (IPC) o Clasificación Nacional e IPC: B01D53/86

Solicitante: UHDE GmbH y colaboradores

1. La autoridad encargada del examen internacional provisional elaboró el reporte del examen internacional provisional y lo envió al solicitante de conformidad con el Artículo 36.

2. Este REPORTE comprende en total 6 hojas incluyendo esta hoja de cubierta

X Además se adjuntan a este reporte ANEXOS; se trata de hojas con descripciones, reivindicaciones y/o dibujos que fueron modificados y son fundamento de este reporte, y/u hojas con correcciones efectuadas por esta autoridad (ver Norma 70.16 y Sección 607 de las Pautas Administrativas del PCT).

Estos Anexos comprenden en total 4 hojas.

3. Este reporte contiene informaciones y las correspondientes páginas respecto a los siguientes puntos:

I X Base del reporte

II    Prioridad

III    Ninguna elaboración de un reporte sobre la novedad, la actividad inventiva y la aplicabilidad industrial

IV    Falta de unidad de la invención

V X Verificación fundamentada conforme el artículo 35(2) respecto a la novedad, la actividad inventiva y la aplicabilidad industrial; documentos y explicaciones para apoyar dicha verificación

77  
77

- VI \_ Determinados documentos citados
- VII \_ Determinadas deficiencias de la solicitud internacional
- VIII \_ Determinadas observaciones a la solicitud internacional

Fecha de entrega de la solicitud de examen preliminar internacional:

08.12.2003

Fecha de elaboración de este reporte:

18.10.2004

Nombre y dirección postal de la autoridad encargada del examen internacional de provisional:

Oficina Europea de Patentes - Gitschiner Str. 103  
D-10958 Berlín

Funcionario autorizado:

Gruber, M

78  
78**REPORTE DEL EXAMEN INTERNACIONAL PROVISIONAL**

No. de referencia internacional PCT/EP 03/06051

**I. Base del reporte****1. Respecto a los elementos de la solicitud internacional:**

Descripción, páginas

1-17 en la versión originalmente presentada

Reivindicaciones, No.

1-21 recibidas el 03.09.2004 con escrito del 01.09.2004

Dibujos, hojas

1/6 - 6/6 en la versión originalmente presentada

**2. Respecto al idioma, todos los elementos marcados arriba fueron suministrados a esta Autoridad en el idioma en que fue presentada la solicitud internacional, a menos que se indique otra cosa distinta en este punto.**

Los elementos estuvieron disponibles para la Autoridad en el idioma \_\_\_\_\_ o fueron presentados en dicho idioma, que es

- ☐ el idioma de una traducción suministrado para fines de la búsqueda internacional (Norma 23.1(b))
- ☐ el idioma de publicación de la solicitud internacional (Norma 48.3(b))
- ☐ el idioma de la traducción entregada para fines de el examen preliminar internacional (Norma 55.2 y/o 55.3)

**3. Respecto a la secuencia nucleótida y/o de aminoácidos revelada en la solicitud internacional, el examen internacional provisional se llevó a cabo sobre la base del protocolo de secuencia que:**

- ☐ está contenido en forma escrita en la solicitud internacional.
- ☐ fue entregado junto con la solicitud internacional en forma legible por computadora.
- ☐ fue entregado posteriormente a la autoridad en forma escrita.
- ☐ fue entregado posteriormente a la autoridad en forma legible por computadora.
- ☐ Se presentó la declaración de que el protocolo de secuencia escrito entregado posteriormente no va más allá del contenido revelado en la solicitud internacional.
- ☐ Se presentó la declaración de que las informaciones registradas en forma legible por computadora corresponden al protocolo de secuencia escrito.

**4. ☐ Las enmiendas han resultado en la cancelación de:**

- ☐ la descripción, páginas:
- ☐ las reivindicaciones, No.:
- ☐ los dibujos hoja:

79  
79

18. Dispositivo de acuerdo con la reivindicación 15, caracterizado por el hecho de que dos lechos de catalizadores que son atravesados radialmente están colocados uno sobre el otro o que se presenta una combinación de lechos de catalizadores colocados uno sobre el otro que son atravesados axial y radialmente, para lo cual mediante superficies de separación dispuestas apropiadamente entre los lechos de catalizadores se determina el camino del gas de tal manera que primero es atravesado el primer lecho de catalizadores y después el segundo.

19. Dispositivo de acuerdo con la reivindicación 15, caracterizado por el hecho de que se presentan dos lechos de catalizadores de distintas dimensiones que son atravesados radialmente, para lo cual la dimensión exterior de uno de los lechos de catalizadores es menor que la dimensión interna del otro lecho de catalizadores y ambos catalizadores están colocados concéntricamente entre sí, y para lo cual mediante superficies de separación dispuestas apropiadamente entre los lechos de catalizadores se determina el camino del gas de tal manera que primero es atravesado el primer lecho de catalizadores y después el segundo.

20. Dispositivo de acuerdo con la reivindicación 15, caracterizado por el hecho de que después de atravesar el primer lecho de catalizadores el gas es conducido a un mezclador colocado en el centro del dispositivo.

21. Dispositivo de acuerdo con la reivindicación 15, caracterizado por el hecho de que el mezclador está configurado como mezclador estático o como mezclador dinámico, preferiblemente en forma de una tubo que es atravesado por el gas.



5. \_ Este reporte se ha establecido como si (algunas de) las enmiendas no se hubieran hecho, ya que se considera que ellas van más allá de la revelación presentada, como se indica en la Casilla Suplementaria (Norma 70.2(c)).

6. Eventuales observaciones adicionales: -

**V. Verificación fundamentada de conformidad con el Artículo 35(2) respecto a novedad, actividad inventiva y aplicabilidad industrial; documentos y explicaciones para sustentar esta verificación**

**1. Verificación**

|                          |     |                  |       |
|--------------------------|-----|------------------|-------|
| Novedad                  | Sí: | Reivindicaciones | 1-21  |
|                          | No: | Reivindicaciones |       |
| Actividad inventiva      | Sí: | Reivindicaciones | 15-21 |
|                          | No: | Reivindicaciones | 1-14  |
| Aplicabilidad industrial | Sí: | Reivindicaciones | 1-21  |
|                          | No  | Reivindicaciones |       |

**2. Documentos y explicaciones**

**ver Hoja Adjunta**

**REPORTE DEL EXAMEN INTERNACIONAL PROVISIONAL**

No. de referencia internacional PCT/EP 03/06051

**Hoja Adjunta****Respecto al Punto V**

**Verificación fundamentada respecto a novedad, a la actividad inventiva y a la aplicabilidad industrial; documentos y explicaciones para sustentar esta verificación**

Se hace referencia a los siguientes documentos:

D1: WO 01/51181 A (SCHWEFER MEINHARD; SZONN ERICH (DE);  
KRUPP UHDE GMBH (DE); TUREK T) 19 Julio 2001

1 La presente solicitud no cumple con los requisitos del Artículo 33(1) PCT, puesto que el objeto de las reivindicaciones 1 a 14 no está basado en una actividad inventiva en el sentido del Artículo 33(2) PCT.

1.1 El documento D1 revela un procedimiento (ver reivindicaciones y página 7, líneas 22 a 34) para la reducción del contenido de NO<sub>x</sub> y N<sub>2</sub>O en los gases del proceso, en el cual

- a) el gas a ser tratado es conducido por una sucesión de dos zonas de catalizadores I y II (se pueden entender como dos lechos de catalizadores colindantes entre sí) que muestran una o varias zeolitas cargadas con hierro (por ejemplo Fe-ZSM-5),
- b) la adición de amoníaco se efectúa entre las zonas de reacción,
- c) la temperatura en ambas zonas se ajusta en un valor < 500°C,
- d) la presión del gas se ajusta entre 1 y 25 bar,
- e) se selecciona una velocidad espacial entre 5.000 y 100.000 h<sup>-1</sup> (en el ejemplo de realización: 10.000 h<sup>-1</sup>).

El objeto de la reivindicación 1 se diferencia de la revelación en D1 por el hecho de que el gas que abandona el nivel

82  
82

del primer catalizador muestra un contenido de  $N_2O$  de al menos 200 ppm. En D1 este valor es de máximo 200 ppm.

Sin embargo la "eficiencia claramente aumentada" del procedimiento, la cual ha de ser el resultado de esta diferencia técnica, sigue siendo poco clara (no se presentan ejemplos o contraejemplos para demostrar este mejoramiento con respecto a D1). En la reivindicación 1 tampoco se menciona bajo qué condiciones de reacción (diferentes a las de D1) tiene lugar una reducción de  $NO_x$  y una descomposición de  $N_2O$  en el segundo nivel de reacción (por ejemplo presión aumentada > 2 bar; ver página 4, líneas 1, 2 de la descripción).

Al objeto de la reivindicación 1 no se le puede reconocer actividad inventiva en el sentido del Artículo 33(3).

1.2 Actualmente no está claro en qué medida las reivindicaciones 2 a 14 contienen características que combinadas con las características relacionadas de cualquier otra reivindicación cumplan los requisitos del PCT con respecto a una actividad inventiva.

2 El objeto de las reivindicaciones 15 a 21 cumple con los requisitos del Artículo 33(1) PCT.

2.1 D1 revela un dispositivo para efectuar la disminución del contenido de  $NO_x$  y  $N_2O$  en gases, el cual comprende dos zonas de catalizadores I y II (que pueden ser entendidas como dos lechos de catalizadores colindantes entre sí) y un dispositivo colocado entre las zonas para introducir un producto de reducción en forma de gas a la corriente del gas que ha de ser tratado.

El objeto de la reivindicación 15 ~~se diferencia~~ del dispositivo de D1 por el hecho de que al menos uno de los dos lechos de catalizadores se ha configurado en forma de un cilindro hueco que es atravesado radialmente por el gas que contiene  $NO_x$  y  $N_2O$

2.2 La forma de cilindro hueco de al menos uno de los dos lechos de catalizadores en combinación con la circulación radial de gas da lugar a una pérdida de presión claramente dis-

minuida y por consiguiente a una manejo más sencillo del procedimiento.

2.3 Las reivindicaciones 16 a 21 dependen de la reivindicación 15 y también cumplen los requisitos del Artículo 33 PCT.

3 Las dos reivindicaciones independientes (procedimiento y dispositivo) están formuladas sin relación entre una y otra. El procedimiento de acuerdo con la reivindicación 1 puede evidentemente ser realizado con efecto comparable en cualquier dispositivo adecuado con dos lechos de catalizadores (por ejemplo D1), sin importar la forma geométrica que presenten los lechos de catalizadores. De las reivindicaciones no se desprende porque para la realización del procedimiento de la reivindicación 1 se ha usar ventajosamente el dispositivo de la reivindicación 15.

Además tampoco es claro que las características diferenciadoras de las reivindicaciones independientes sean idénticas al estado de la técnica (D1), y la tarea a resolver de ambas reivindicaciones es la misma.

En su actual versión, ambas reivindicaciones 1 y 15 infringen por consiguiente formalmente la Norma 13.1 PCT, es decir no cumplen (formalmente) el requisito de homogeneidad de la invención.

Esto se puede remediar mediante una referencia explícita al dispositivo de la reivindicación 15 en la reivindicación orientada hacia el procedimiento.

Reivindicaciones de patente:

1. Procedimiento para la reducción del contenido de  $\text{NO}_x$  y  $\text{N}_2\text{O}$  en gases, en particular en gases de proceso y en gases de desecho, procedimiento que comprende las siguientes medidas:
  - a) Conducir el gas que contiene  $\text{N}_2\text{O}$  y  $\text{NO}_x$  a través de una sucesión de dos lechos de catalizadores que contienen una o varias zeolitas cargadas con hierro,
  - b) adición entre los dos lechos de catalizadores de un agente de reducción para  $\text{NO}_x$ ,
  - c) ajuste de una temperatura de mínimo  $550^\circ\text{C}$  en el primer lecho de catalizadores y en el segundo lecho de catalizadores,
  - d) ajuste de una presión de gas de mínimo 2 bar en ambos lechos de catalizadores,
  - e) selección de una velocidad espacial tal en la primera y en el segundo lecho de catalizadores que en el primer lecho de catalizadores tenga lugar una desintegración de máximo 90% del contenido de  $\text{N}_2\text{O}$  del gas con respecto al contenido de  $\text{N}_2\text{O}$  a la entrada del primer lecho de catalizadores y que se ajuste un contenido de  $\text{N}_2\text{O}$  mayor de 200 ppm, y que en el segundo lecho de catalizadores se efectúe una desintegración adicional de mínimo 30% del contenido de  $\text{N}_2\text{O}$  del gas con respecto al contenido de  $\text{N}_2\text{O}$  a la entrada del segundo lecho de catalizadores.
2. Procedimiento de acuerdo con la reivindicación 1, caracterizado por el hecho de que en el primero y en el segundo lecho de catalizadores se emplea el mismo catalizador.
3. Procedimiento de acuerdo con la reivindicación 1, caracterizado por el hecho de que la o las zeolitas cargadas con hierro son del tipo MFI, BEA, FER, MOR, FAU y/o MEL.
4. Procedimiento de acuerdo con la reivindicación 3, caracterizado por el hecho de que la zeolita cargada con hierro es del tipo MFI.

5. Procedimiento de acuerdo con la reivindicación 1, caracterizado por el hecho de que la zeolita es un Fe-ZSM-5.

6. Procedimiento de acuerdo con la reivindicación 1, caracterizado por el hecho de que el procedimiento se lleva a cabo a una presión entre 4 y 25 bar.

7. Procedimiento de acuerdo con la reivindicación 1, caracterizado por el hecho de que como agente de reducción para  $\text{NO}_x$  se emplea amoníaco, que se usa en una cantidad de 1,0 a 1,2 partes molares con respecto a una parte molar de  $\text{NO}_x$  que se ha de desintegrar.

8. Procedimiento de acuerdo con la reivindicación 1, caracterizado por el hecho de que a través de ambos lechos de catalizadores se conduce gas que contiene  $\text{NO}_x$  y  $\text{N}_2\text{O}$  con una velocidad espacial de 5.000 a 50.000  $\text{h}^{-1}$  con respecto al volumen de catalizador añadido a ambos lechos de catalizadores.

9. Procedimiento de acuerdo con la reivindicación 1, caracterizado por el hecho de que la temperatura en la primera y en la segunda zonas de reacción es de 350 a 450°C.

10. Procedimiento de acuerdo con la reivindicación 1, caracterizado por el hecho de que en al menos una lecho de catalizadores se utilizan zeolitas que han sido tratadas con vapor de agua.

11. Procedimiento de acuerdo con la reivindicación 1, caracterizado por el hecho de que como catalizadores en al menos un lecho de catalizadores se utilizan zeolitas cargadas con hierro en las cuales la proporción entre aluminio de extra rejilla y aluminio de rejilla es de al menos 0,5.

12. Procedimiento de acuerdo con la reivindicación 1, caracterizado por el hecho de que este está integrado al proceso de producción de ácido nitroclorhídrico.

13. Procedimiento de acuerdo con la reivindicación 1, caracterizado por el hecho de que este está integrado en el proceso del funcionamiento de una turbina de gases.

14. Procedimiento de acuerdo con la reivindicación 1, caracterizado por el hecho de que este está integrado en el proceso del funcionamiento de una central eléctrica.

15. Dispositivo para la disminución del contenido de  $\text{NO}_x$  y  $\text{N}_2\text{O}$  en gases, en particular en gases de proceso y gases de desechos, procedimiento que comprende:

- A) dos lechos de catalizadores colocados uno tras otro que contienen una o varias zeolitas cargadas con hierro, las cuales son atravesadas por el gas que contiene  $\text{NO}_x$  y  $\text{N}_2\text{O}$ ,
- B) un dispositivo colocado entre los dos lechos de catalizadores con el fin de introducir un agente de reducción en forma de gas a la corriente del gas que contiene  $\text{NO}_x$  y  $\text{N}_2\text{O}$ , dispositivo que comprende un mezclador a través del cual es conducido el gas después de atravesar el primer lecho de catalizadores, y que comprende un conducto de alimentación para el agente de reducción, conducto que desemboca detrás del primer lecho de catalizadores y antes del mezclador o en él, para lo cual el gas que ha de ser purificado se conduce al segundo lecho de catalizadores después de abandonar el mezclador, y para lo cual
- C) por lo menos uno de los lechos de catalizadores está configurado en forma de cilindro hueco que es atravesado por el gas que contiene  $\text{NO}_x$  y  $\text{N}_2\text{O}$ .

16. Dispositivo de acuerdo con la reivindicación 15, caracterizado por el hecho de que ambos lechos de catalizadores están colocados en un recipiente.

17. Dispositivo de acuerdo con la reivindicación 15, caracterizado por el hecho de que ambos lechos de catalizadores son atravesados radialmente por el gas que contiene  $\text{NO}_x$  y  $\text{N}_2\text{O}$ .

17  
87

**SUPERINDUSTRIA Y COMERCIO**

Radicación : 04123479 00000000

Folios: 06

Fecha (AMD): 2004-12-09 15:57:18

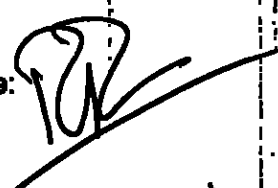
Trámite : 011 PCT-PATENT 379 FASE NACI 411 PRESENTAC

Dependencia: 2000 DIVISION DE NUEVAS CREACIONES

**REQUISITOS NECESARIOS PARA PRESENTACION Y AGILIZACION DEL TRAMITE**

|                                                                                                              | USUARIO               | RADICADOR |
|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|-----------|
| <b>PATENTE DE INVENCION</b> ✓                                                                                | ( )                   | ( ) ✓     |
| <b>MODELO DE UTILIDAD</b>                                                                                    | ( )                   | ( ) ✓     |
| - Indicación de que se solicita la concesión de una patente.                                                 | ( )                   | ( ) ✓     |
| - Datos de identificación del solicitante o de la persona que se presenta la solicitud.                      | ( )                   | ( ) ✓     |
| - Descripción de la invención.                                                                               | ( )                   | ( ) ✓     |
| - Dibujos de ser estos pertinentes.                                                                          | ( )                   | ( ) ✓     |
| - Comprobante de Pago de las tasas establecidas.                                                             | ( )                   | ( ) ✓     |
| <b>COMPLETA</b> ( ) ✓                                                                                        | <b>INCOMPLETA</b> ( ) | ( )       |
| <b>DISEÑO INDUSTRIAL</b> ( )                                                                                 | ( )                   | ( )       |
| - Indicación de que se solicita el registro de Diseño Industrial                                             | ( )                   | ( )       |
| - Datos de identificación del solicitante o de la persona que presenta la solicitud.                         | ( )                   | ( )       |
| - Representación gráfica o fotográfica del Diseño Industrial o muestra del Material que incorpora el diseño. | ( )                   | ( )       |
| - Comprobante de pago de las tasas establecidas                                                              | ( )                   | ( )       |
| <b>COMPLETA</b> ( )                                                                                          | <b>INCOMPLETA</b> ( ) | ( )       |
| <b>ESQUEMA DE TRAZADO</b> ( )                                                                                | ( )                   | ( )       |
| - Indicación de que solicita el registro de un Esquema de trazado.                                           | ( )                   | ( )       |
| - Datos de identificación del solicitante o de la persona que presenta la solicitud.                         | ( )                   | ( )       |
| - Representación gráfica del esquema de trazado                                                              | ( )                   | ( )       |
| - Comprobante de pago de las tasas establecidas.                                                             | ( )                   | ( )       |
| <b>COMPLETA</b> ( )                                                                                          | <b>INCOMPLETA</b> ( ) | ( )       |

Firma Responsable:



Fecha:

2020  
Bogotá, D.C.,

**Doctor:**  
**GUSTAVO HOLLMAN RESTREPO**

**Oficio N° 11955**

|                |                            |                |
|----------------|----------------------------|----------------|
| <b>ASUNTO:</b> | Radicación N°              | 04-123479      |
|                | Solicitud internacional    | PCT/EP03/06051 |
|                | Fecha inicio fase nacional | 13/01/2005     |
|                | Trámite                    | 011            |
|                | Evento                     | 379            |
|                | Actuación                  | 430            |
|                | Folios                     | 001            |

Como resultado del examen de forma, realizado con fundamento en el artículo 38 de la Decisión 486 de la Comisión de la Comunidad Andina, artículo 27 del Tratado de Cooperación en Materia de Patentes (PCT), regla 51 bis del Reglamento y Circular Única de la Superintendencia de Industria y Comercio, se le comunica que:

- La solicitud no contiene la copia del documento en que consta la cesión del derecho a la patente del inventor al solicitante o a su causante. (Art. 26-k) Decisión 486).
- La solicitud no contiene el poder debidamente otorgado, con el lleno de los requisitos exigidos por los artículos 63 y subsiguientes del Código de Procedimiento Civil. Adicionalmente, deberá presentar el documento que acredita la existencia y representación legal de la sociedad solicitante, cuando ésta fuere persona jurídica.

En cumplimiento de lo dispuesto por el artículo 39 de la Decisión 486, se le requiere para que dentro del término de dos meses siguientes a la fecha de notificación del presente oficio, complete los requisitos anteriormente enunciados. En caso de no dar cumplimiento al presente requerimiento, la solicitud se considerará abandonada y perderá su prelación.

Notifíquese el presente oficio conforme a lo dispuesto en el numeral 5.2, literal e), del capítulo quinto del título primero de la Circular Única N° 10 de 2001.

  
**ALIX CARMENZA CESPEDES DE VERGEL**  
Jefe de la División de Nuevas Creaciones.

El anterior requerimiento fue notificado por fijación en lista de fecha, \_\_\_\_\_ 28 ENE. 2005