

## بررسی عملکرد زئولیت کلینوپتیلولیت ایرانی در حذف اکسیدهای نیتروژن ( $\text{NO}_x$ ) خروجی از دودکش صنایع با استفاده از سیستم احیاء کاتالیستی انتخابی

ناصر قاسمیان<sup>۱</sup>، حشمت الله نورمرادی<sup>۲\*</sup>

(۱) گروه مهندسی پلیمر، دانشکده فنی و مهندسی، دانشگاه بناب، بناب، ایران  
(۲) گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی ایلام، ایلام، ایران

تاریخ دریافت: ۹۳/۱۰/۲۳

تاریخ پذیرش: ۹۴/۱/۳۱

### چکیده

**مقدمه:** روش های مختلفی برای حذف گازهای آلاینده  $\text{NO}_x$  از هوا وجود دارد که از بین آن ها روش های کاتالیستی بیشترین کاربرد را دارد. یکی از این روش های کاتالیستی، حذف انتخابی با استفاده از یک احیاء کننده می باشد. لذا در این تحقیق برای اولین بار، عملکرد زئولیت طبیعی کلینوپتیلولیت ایرانی در حذف گازهای  $\text{NO}_x$  ( $\text{NO} + \text{NO}_2$ ) با استفاده از گاز متان به عنوان احیاء کننده مورد ارزیابی قرار گرفت.

**مواد و روش ها:** اصلاح شیمیایی زئولیت با استفاده از روش تبادل یون و کلسیناسیون انجام شد. سپس برای تست کارایی این زئولیت از یک راکتور انتگرالی با بستر ثابت استفاده شده است. در این کار، عملکرد زئولیت بین دمای ۲۰۰ تا ۵۰۰ درجه سانتی گراد و با دبی گاز ۴۰۰ میلی لیتر بر دقیقه مورد ارزیابی قرار گرفت که نتایج آن توسط نرم افزار Excel آنالیز شد.

**یافته های پژوهش:** زئولیت کلینوپتیلولیت ایرانی پروتونه شده عملکرد بسیار خوبی برای حذف  $\text{NO}_x$  در روش کاهش کاتالیستی انتخابی با متان داشت. بیشترین راندمان حذف تبدیل  $\text{NO}_x$  به گاز نیتروژن که حدود ۶۲ درصد بود، در دمای ۴۵۰ درجه سانتی گراد به دست آمد.

**بحث و نتیجه گیری:** نتایج نشان داد که این زئولیت و روش آماده سازی آن یک روش موثر و کارآمد برای حذف این گازها می باشد که در مقایسه با کارهایی که با مواد دیگر برای این کار انجام شده بسیار موثرتر و بهتر بوده است.

**واژه های کلیدی:** احیاء کاتالیستی، اکسید نیتروژن، زئولیت، کلینوپتیلولیت، راکتور بستر ثابت

\* نویسنده مسئول: گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی ایلام، ایلام، ایران

## مقدمه

باشند و استفاده از کاتالیزورها برای حذف  $\text{NO}_x$  متداول ترین است. یکی از این روش های کاتالیستی، حذف انتخابی با استفاده از یک احیاء کننده می باشد (۷-۹). در این روش از کاتالیست های مختلفی استفاده می شود. از بین کاتالیست ها، ژئولیت ها به دلیل پایداری بالا در محدوده دمایی گسترده عمده‌تاً مورد توجه قرار گرفته است. در این زمینه از ژئولیت های مختلفی استفاده شده است، ولی از آن جا که این ژئولیت ها عمده‌تاً مصنوعی هستند، فرآیند تولید آن ها هزینه بر می باشند (۱۰-۱۲). لذا در این کار برای اولین بار از ژئولیت طبیعی و ارزان قیمت کلینوپتیلولیت که معادن آن در ایران به وفور یافت می شود، استفاده می شود. در این تحقیق، این ژئولیت را با استفاده از روش شیمیایی پروتته کرده و عملکرد آن را در حذف  $\text{NO}_x$  ( $\text{NO} + \text{NO}_2$ ) در حضور گاز متان به عنوان احیاء کننده با اعمال تغییرات دما و دبی جریان گازهای آلاینده مورد بررسی قرار می دهیم به عبارتی دیگر میزان تبدیل  $\text{NO}_x$  ( $\text{NO} + \text{NO}_2$ ) به گاز نیتروژن تابعی از دما و دبی جریان گاز می باشد.

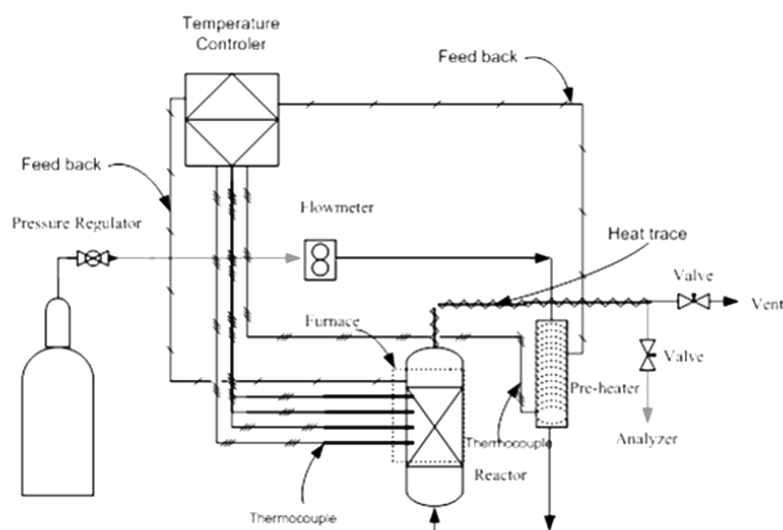
## مواد و روش ها

در این مطالعه تجربی-مداخله ای از ژئولیت کلینوپتیلولیت که از استان سمنان تهیه شد، استفاده گردید. بر اساس اطلاعات تشخیص ساختاری، خلوص این ژئولیت بیش از ۶۰ درصد وزنی است. پروتونه کردن ژئولیت شامل مرحله تبادل یون و کلسیناسیون می باشد که به صورت زیر انجام می شود: ۳۰ گرم از ژئولیت طبیعی (با اندازه مش ۳۰) با محلول ۲ مولار کلرید آمونیوم با نسبت مایع به جامد ۱۰ به ۱ در دمای ۷۰ درجه سانتی گراد بر روی یک گرم کن مغناطیسی (Hot plate) به مدت ۸ ساعت به هم زده شد. سپس نمونه فیلتر شده و با آب مقطر شست و شو داده شد. پس از آن نمونه جامد به مدت ۱ ساعت در دمای ۱۰۰ درجه سانتی گراد در یک آون خشک گردید (۹). لازم به ذکر است که به منظور تبادل یونی بهتر، مرحله فوق با فاصله زمانی ۲۴ ساعت ۲ بار تکرار شد. در مرحله کلسیناسیون، جهت تولید یون مثبت هیدروژن بر سطح ژئولیت و حذف آمونیاک، نمونه های ژئولیت در دمای ۵۰۰ درجه سانتی گراد در یک کوره

اکسیدهای ازت ( $\text{NO}_x$ ) یکی از مهم ترین آلاینده های هوا می باشد که طی واکنش های احتراق در دماهای بالا تولید می شوند. بخش عمده اکسیدهای ازت شامل اکسید نیتریک ( $\text{NO}$ ) و دی اکسید نیتروژن ( $\text{NO}_2$ ) می باشد که در کلیه فرآیندهای احتراق از طریق تبدیل نیتروژن های موجود در ساختار سوخت و هم چنین از طریق تبدیل نیتروژن موجود در اتمسفر بر اثر شرایط واکنش (وجود حرارت بالا و اکسیژن زیاد) تولید می شوند (۱). دی اکسید نیتروژن یکی از آلاینده های فعال در اتمسفر می باشد و از عوامل تولید آلاینده های دیگر مانند ازن و پراکسی استیل نیترات می باشد. دی اکسید نیتروژن یک آلاینده سمی می باشد که مخاط برونش ها را تحریک می کند و بدین طریق سبب افزایش عفونت های تنفسی می شود. بیماران مبتلا به آسم به اثرات ناشی از این گاز به شدت حساس می باشند. این گاز می تواند باعث ایجاد سوزش و تخریب ریه ها و کاهش میزان مقاومت سیستم تنفسی در مقابل بیماری های مختلف تنفسی گردد. اکسیدهای نیتروژن باعث ایجاد باران اسیدی می شوند که این پدیده جهانی اثرات منفی بر بهداشت انسان و اکوسیستم های گیاهی و آبی دارد. در برخی نواحی هم ممکن است اکسیدهای نیتروژن به عامل اصلی تجمع ذرات معلق تبدیل شوند (۲-۴). اکسید نیتریک نیز می تواند آغازگر تولید سایر انواع اکسیدهای ازت باشد. اکسید نیتریک در ابتدا طی واکنش های احتراق سریعاً تشکیل می شود، سپس به سرعت توسط ازن یا رادیکال های  $\text{OH}$  اکسید شده و اکسیدهای سنگین تر نیتروژن مانند  $\text{HNO}_2$ ،  $\text{NO}_2$ ،  $\text{HO}_2\text{NO}_2$  را تولید می کند. روش های مختلفی برای حذف  $\text{NO}_x$  وجود دارد که شامل روش های حرارتی، جذبی و کاتالیزور می باشند (۵). روش های حرارتی و جذبی به دلیل مشکلات حل نشده کمتر مورد توجه هستند. در روش حرارتی از دمای زیاد برای تجزیه  $\text{NO}$  استفاده می شود و دمای زیاد، واکنش های جانبی نامطلوبی را باعث می شود (۶). در روش جذبی، کارایی جذب به دلیل جذب  $\text{NO}_x$  روی سطح فعال آن کاهش می یابد. بنا بر این دو روش برای حذف  $\text{NO}_x$  مناسب نمی

است که یکی از این ترموکوپل ها کنترل کننده دما می باشد و با آن می توان دمای راکتور را تنظیم کرد. آنالیز گازهای خروجی بر اساس دستگاه آنالیز KANE 940 می باشد که گازهای  $CO$ ,  $NO$ ,  $NO_2$  و  $O_2$  را شناسایی و اندازه گیری می کند. برای هر آزمایش ۱ گرم از نمونه ها به مدت ۱ ساعت در دمای ۵۰۰ درجه سانتی گراد در داخل راکتور قرار گرفت تا به حالت پایدار برسد. سپس عملکرد کاتالیست در بازه دمایی ۲۰۰ تا ۵۰۰ درجه سانتی گراد مورد ارزیابی قرار گرفت (۹). برای این منظور ابتدا عملکرد زئولیت را در دمای ۲۰۰ درجه سانتی گراد مورد ارزیابی قرار می دهیم سپس با افزایش دما به ۲۵۰ درجه سانتی گراد توسط کنترلر دمایی که در شکل نشان داده شده عملکرد آن را بررسی می کنیم و این کار را تا دمای ۵۰۰ درجه سانتی گراد انجام می دهیم.

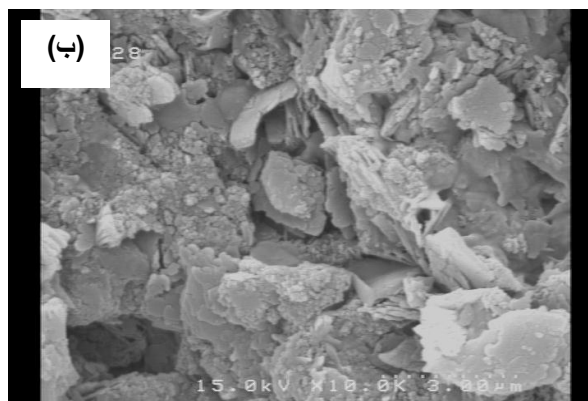
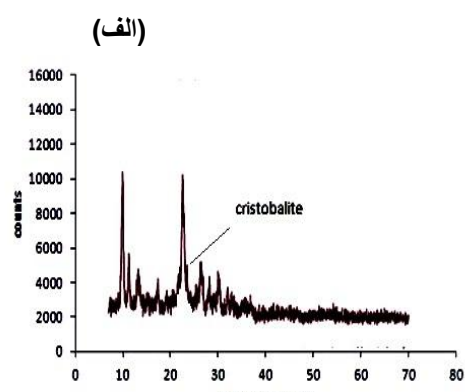
به مدت ۳ ساعت حرارت داده شده اند. برای تست کارایی این زئولیت از یک راکتور انتگرالی با بستر ثابت استفاده شده است که در شکل شماره ۱ نشان داده شده است. کپسول گاز ورودی که دارای فشار ۶۰ بار می باشد حاوی گازهای  $NO$  با غلظت ۳۰ ppm و  $NO_2$  با غلظت ۴۶۵ ppm، ۲/۵ درصد حجمی  $O_2$  و  $CH_4$  با غلظت ۱۰۰۰ ppm می باشد و از گاز آرگون به عنوان گاز بالانس استفاده شده است. بعد از رگلاتور فشار، گاز وارد فلومتر می شود که با استفاده از شیر مربوطه برای دبی های ۳۰۰ تا ۶۰۰ میلی لیتر بر دقیقه تنظیم شده است. گاز بعد از فلومتر وارد پیش گرمکن و سپس وارد راکتور بستر ثابت می شود. قطر داخلی راکتور که جنس آن از استیل ضد زنگ می باشد، ۰/۵ اینچ می باشد. ۴ ترموکوپل داخل راکتور تعبیه شده که دمای ۴ ناحیه از بستر را نشان می دهد. لازم به ذکر



شکل شماره ۱. تصویر شماتیک راکتور کاتالیستی بستر ثابت

### یافته های پژوهش

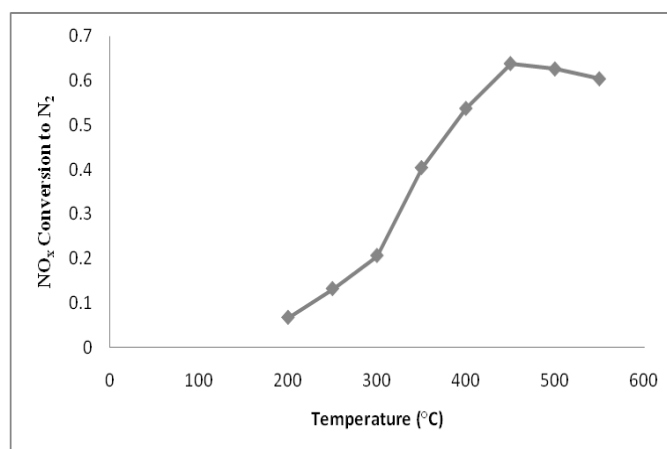
آنالیز XRD (پراش اشعه ایکس) و FESEM (تصویر میکروسکوپ الکترونی) را می توان در شکل شماره ۲ مشاهده کرد که به ترتیب برای زئولیت پروتئنه شده و زئولیت خام می باشد. همان طور که از شکل شماره ۲(الف) مشخص است، پیک مربوط به ناخالصی کریستوبالیت شناسایی شده است و شکل شماره ۲(ب) نشانگر این است که سطح زئولیت خام پوشیده از مواد آمورف و ناخالصی های کریستوبالیت و کوارتز می باشد که حفرات زئولیت را پوشانده است.



شکل شماره ۲. تصویر (الف) XRD (پراش اشعه ایکس) ژئولیت پروتونه شده و (ب) FESEM (تصویر میکروسکوپ الکترونی) ژئولیت خام

میزان تبدیل افزایش یافته و به نقطه ماکزیمم در دمای ۴۵۰ درجه سانتی گراد می رسد که نشانگر بالاترین میزان فعالیت کاتالیست است.

شکل شماره ۳ بیانگر عملکرد کاتالیستی ژئولیت کلینوپتیلولیت پروتونه شده است که اثر دمای واکنش در محدوده ۲۰۰-۵۰۰ درجه سانتی گراد بر میزان تبدیل  $\text{NO}_x$  به  $\text{N}_2$  را نشان می دهد. هم چنین با افزایش دما



شکل شماره ۳. میزان تبدیل  $\text{NO}_x$  به  $\text{N}_2$  بر حسب دما با دبی جریان گاز ۴۰۰ میلی لیتر بر دقیقه و ۱ گرم ژئولیت پروتونه شده با اندازه مش ۳۰

در دمای ۴۵۰ درجه سانتی گراید بر حسب دبی گاز ورودی در جدول شماره ۲ نشان داده شده است.

جدول شماره ۱ تغییرات غلظت  $\text{NO}$ ،  $\text{NO}_2$  و هم چنین مقدار تبدیل آن را بر حسب دما نشان می دهد. تغییرات میزان تبدیل

جدول شماره ۱. تغییرات غلظت و میزان تبدیل اکسیدهای نیتروژن به  $N_2$  بر حسب دما

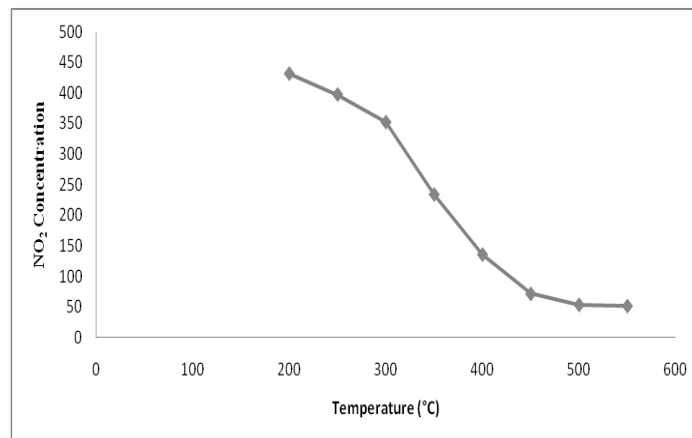
دما (°C)	غلظت NO(ppm)	غلظت $NO_2$ (ppm)	X (تبدیل $NO_x$ به $N_2$ )
۲۰۰	۳۱	۴۳۱	۰/۰۶
۲۵۰	۳۳	۳۹۷	۰/۱۳
۳۰۰	۴۱	۳۵۲	۰/۲۰
۳۵۰	۶۱	۲۳۴	۰/۴۰
۴۰۰	۹۳	۱۳۶	۰/۵۳
۴۵۰	۱۰۷	۷۲	۰/۶۳
۵۰۰	۱۳۱	۵۴	۰/۶۲
۵۵۰	۱۴۴	۵۲	۰/۶۰

جدول شماره ۲. تغییرات غلظت و میزان تبدیل بر حسب دبی جریان در دمای ۴۵۰ درجه سانتی گراد

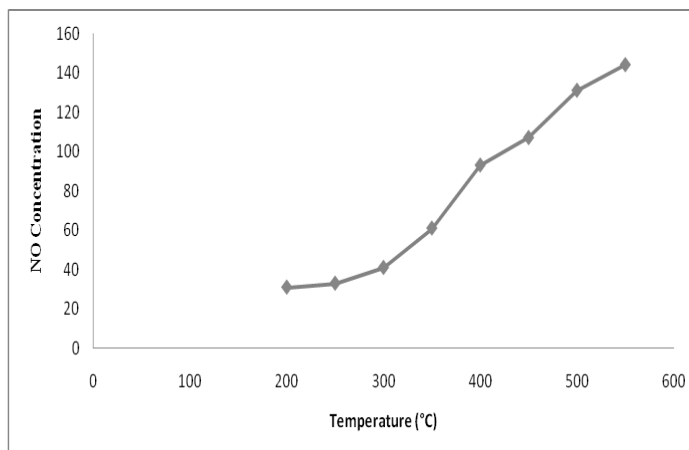
دبی جریان (ml/min)	غلظت NO(ppm)	غلظت $NO_2$ (ppm)	X (تبدیل $NO_x$ به $N_2$ )
۳۰۰	۹۰	۵۵	۰/۷۰
۴۰۰	۱۰۷	۷۲	۰/۶۴
۵۰۰	۱۲۰	۸۰	۰/۵۹
۶۰۰	۱۳۰	۹۵	۰/۵۴

تبدیل آن به گاز NO و  $N_2$  می باشد. شکل شماره ۵ تغییرات غلظت NO را بر حسب دمای واکنش نشان می دهد، که در این شکل با افزایش دما مقدار NO افزایش می یابد که به دلیل تجزیه حرارتی  $NO_2$  می باشد.

شکل شماره ۴ تغییر غلظت  $NO_2$  را بر حسب دمای واکنش در  $20280 \text{ h}^{-1}$  Gas hourly space velocity = velocity = سرعت فضایی گاز) نشان می دهد. همان طور که از این شکل مشخص است، میزان  $NO_2$  با افزایش دما کاهش می یابد که بیانگر حذف و



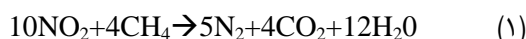
شکل شماره ۴. تغییرات غلظت  $NO_2$  بر حسب دما. با دبی جریان گاز ۴۰۰ میلی لیتر بر دقیقه و ۱ گرم زئولیت پروتونه شده با اندازه مش ۳۰



شکل شماره ۵. تغییرات غلظت NO بر حسب دما. با دبی جریان گاز ۴۰۰ میلی لیتر بر دقیقه و ۱ گرم ژئولیت پروتونه شده با اندازه مش ۳۰

### بحث و نتیجه گیری

غلظت های NO و NO<sub>2</sub> با دما به طور مجزا نشان داده شده است. از جدول شماره ۲ می توان دریافت که با افزایش دبی جریان، میزان تبدیل NO<sub>x</sub> (NO+NO<sub>2</sub>) به نیتروژن کاهش می یابد که به دلیل کم شدن زمان اقامت گاز در بستر کاتالیست می باشد. بنا بر این با کاهش دبی جریان (کاهش GHSV) مقدار تبدیل افزایش یافته به طوری که تبدیل ۷۰ درصد در دبی ۳۰۰ ml/min در دمای ۴۵۰ درجه سانتی گراد (GHSV=15210h<sup>-1</sup>) قابل حصول است. در شکل شماره ۴ مشاهده می شود که با افزایش دما، مقدار NO<sub>2</sub> کاهش می یابد به طوری که غلظت آن از ۴۵۰ ppm به ۵۴ ppm می رسد که بیانگر حذف NO<sub>2</sub> و تبدیل آن به گازهای NO و N<sub>2</sub> می باشد که طبق واکنش های (۱) و (۲) اتفاق می افتد:



شکل شماره ۵ نشان می دهد که بر خلاف شکل شماره ۴ با افزایش دما، غلظت NO افزایش می یابد که به دلیل تجزیه NO<sub>2</sub> در دمای بالاتر از ۲۰۰ درجه سانتی گراد است یعنی در دمای بالای ۲۰۰ درجه سانتی گراد گاز NO<sub>2</sub> تجزیه می شود و طبق واکنش (۲) تولید NO و O<sub>2</sub> می کند. اگر چه مقدار NO با افزایش دما، افزایش می یابد ولی مجموع غلظت NO<sub>2</sub> و NO با افزایش دما کاهش می یابد. بنا بر این با

ناخالصی ژئولیت توسط پیک که مربوط به فاز کریستوبالیت است در شکل شماره ۲(الف) شناسایی شده است. همان طور که قبلاً اشاره شده است، خلوص ژئولیت بیشتر از ۶۰ درصد می باشد که این ناخالصی ها مربوط به کریستوبالیت و کوارتز و مواد آمورف می باشد. از شکل شماره ۲(ب) می توان مشاهده کرد که بلوک های اولیه صفحه مانند ژئولیت کلینوپتیلولیت به وسیله بندهای غیر آلی به هم متصل شده اند (آمورف و کریستوبالیت). به عبارتی دیگر سطح ژئولیت و حفرات آن توسط مواد آمورف و ناخالصی هایی مانند کریستوبالیت و کوارتز پر شده است که در اثر تبادل یون و شست و شو این منافذ بازتر می شود و قسمتی از این ناخالصی ها شسته شده و از بین می روند. شکل شماره ۳ نشان می دهد که با افزایش دما، مقدار تبدیل NO<sub>x</sub> به N<sub>2</sub> افزایش یافته به طوری که در دمای ۴۵۰ درجه سانتی گراد به حداکثر مقدار خود یعنی ۶۳ درصد می رسد و بعد از این نقطه با افزایش دما، فعالیت و مقدار تبدیل کاهش می یابد که می تواند به دلیل تغییر مکانیسم واکنش و هم چنین افزایش سرعت واکنش های جانبی باشد. به این ترتیب می توان نتیجه گرفت که کاهش فعالیت کاتالیزوری در بالای دمای بهینه ناشی از بین رفتن فعالیت کاتالیزوری ژئولیت نمی باشد. چرا که اگر چنین بود با کاهش دما فعالیت اولیه مشاهده نمی شد. هم چنین در جدول شماره ۱ تغییر

افزایش دما مقدار تبدیل ( $\text{NO} + \text{NO}_2$ )  $\text{NO}_x$  افزایش یافته که در جدول شماره ۱ و شکل شماره ۳ قابل مشاهده است. در مقایسه با کار دیگران در شرایط تقریباً یکسان و اصلاح شیمیایی مشابه، مورونو و همکاران (۲۰۰۴) کاتالیست کلینوپتیلولیت کوبایی پروتته شده را برای حذف گاز  $\text{NO}$  استفاده کردند که در این مطالعه گاز آمونیاک به عنوان احیاء کننده و سرعت فضایی (GHSV)  $76000 \text{ h}^{-1}$  بوده است، که به میزان ۱۹ درصد تبدیل دست یافتند (۱۳). میثیما و همکاران (۱۹۹۸) روی ژئولیت موردنیت کار کردند که گاز آلاینده،  $\text{NO}$  بوده و از آمونیاک به عنوان احیاء کننده استفاده شده که میزان تبدیل برابر ۱۵ درصد در سرعت فضایی  $30000 \text{ h}^{-1}$  حاصل شده است (۱۴). در مطالعه کونسلو و همکاران (۲۰۰۰) از ژئولیت موردنیت پروتته شده استفاده کرده اند که بالاترین میزان تبدیل آن ها برابر ۴۸ درصد به دست آمد (۱۵). نتایج به دست آمده از تحقیق حاضر در مقایسه با مطالعات دیگران که در بالا ذکر شده است، نشان می دهد که این کاتالیست با روش اصلاح شیمیایی ذکر شده عملکرد بهتری داشته است. بنا بر این با به کار گیری کاتالیست طبیعی

ذکر شده در معرض گازهای آلوده می توان به میزان زیادی (حدود ۶۳ درصد) از ترکیبات  $\text{NO}_x$  را حذف نمود. نکته قابل توجه دیگر استفاده از گاز متان به عنوان یکی از واکنش دهنده ها می باشد که این ترکیب در بسیاری از صنایع شیمیایی و گاز موجود بوده و می توان به راحتی آن را فراهم نمود. همان طور که در بالا اشاره شد در بسیاری از تحقیقات از گاز آمونیاک استفاده شده که به دلیل سمی بودن و از لحاظ هزینه و ایمنی کار مطلوب نمی باشد. تنها مشکل احتمالی در به کار گیری این روش (احیاء کاتالیستی انتخابی) جهت حذف آلاینده ها مسائل اقتصادی و هزینه های لازم برای این کار می باشد، که با توجه به استفاده از کاتالیست طبیعی که در معادن ایران به وفور و ارزان یافت می شود این معضل نیز قابل حل می باشد. بنا بر این با به کار گیری این کاتالیست در محل خروجی گازهای وارد شده به اتمسفر در صنایع مختلف، می توان حجم قابل توجهی از آلوده کننده های محیط زیست را کاهش داد، به نحوی که مطابق با قوانین زیست محیطی روز دنیا باشد.

### References

1. Armor JN. Environmental catalysis. Appl Catal Environ 1992;1:221-56.
2. Young LJ, Gotway CA, Yang J, Kearney G, DuClos C. Linking health and environmental data in geographical analysis its so much more than centroids. Spat Spatiotemporal Epidemiol 2009;1:73-84.
3. Farshad A, Gholami H, Farzadkia M, Mirkazemi R, Kermani M. The safety of non-incineration waste disposal devices in four hospitals of Tehran. Int J Occup Environ Health. 2014;20:258-63
4. Gurjar BR, Butler TM, Lawrence MG, Lelieveld J. Evaluation of emissions and air quality in megacities. Atmos Environ 2008;42:1593-606.
5. Xia YF, Lu BH, Liu N, Li CQ, Li SJ, Li W.  $\text{NO}_x$  removal in chemical absorption-biological reduction integrated system: Process rate and rate limiting step Bioresour Technol 2013; 149:184-90.
6. Iwamoto M, Yahiro H. Novel catalytic decomposition and reduction of NO. Catal Today 1994; 22:5-18.
7. Capek L, Dedecek J, Wichterlova B. Co-beta zeolite highly active in propane-SCR- $\text{NO}_x$  in the presence of water vapor effect of zeolite preparation and Al distribution in the framework. J Catal 2004; 227:352-66.
8. Kioviski JR, Koradia PB. Catalytic reduction of oxides of nitrogen by ammonia in presence of modified clinoptilolite. US Patent 1980; 5:131-8.
9. Ghasemian N, Falamaki C, Kalbasi M, Khosravi M. Enhancement of the catalytic performance of H-clinoptilolite in propane-SCR- $\text{NO}_x$  process through controlled dealumination. Chem Eng J 2014; 252:112-9.
10. Stevenson SA, Vartuli, JC, Brooks CF. Kinetics of the selective catalytic reduction of NO over HZSM-5. J Catal 2000;190:228-39.
11. Ingelsten HH, Zhao D, Palmqvist A, Skoglundh M. Mechanistic study of the influence of surface acidity on lean  $\text{NO}_2$  reduction by propane in HZSM-5. J Catal 2005;232:68-79.
12. Li L, Zhang F, Guan N, Richter M, Fricke R. Selective catalytic reduction of NO by propane in excess oxygen over IrCu-ZSM-5. Catal Commun 2007; 8:583-8.
13. Morenotost R, Santamariagonzalez J, Rodriguezcastellon E, Jimenezlopez A, Autie MA, Gonzalez E, et al. Selective catalytic reduction of nitric oxide by ammonia over Cu-exchanged cuban natural zeolites. Appl Catal Environ 2004;50:279-88.
14. Mishima H, Hashimoto K, Takehiko O, Masakazu A. Selective catalytic reduction of NO with  $\text{NH}_3$  over natural zeolites and its application to stationary diesel engine exhaust. Appl Catal 2008;6:84-9.
15. Consuelo M, Fernando C, Felipe B. Cooperation of Pt and Pd over H-mordenite for the lean SCR of  $\text{NO}_x$  by methane. Stud Sur Sci Catal 2000;130:1469-74.



# The Study of the Performance of Iranian Clinoptilolite Zeolite in Removal of Nitrogen Oxide (NO<sub>x</sub>) from Stack of Industries by Using Selective Catalytic Reduction System (SCR)

Ghasemian N<sup>1</sup>, Nourmoradi H<sup>2\*</sup>

(Received: January 13, 2015 Accepted: April 20, 2015)

## Abstract

**Introduction:** There are various methods for NO<sub>x</sub> abatement from flue gas among which the catalytic methods are more conventional. SCR-NO<sub>x</sub> (Selective catalytic reduction of NO<sub>x</sub>) is one of the catalytic methods. In this research for the first time, natural clinoptilolite zeolite was used in order to the NO<sub>x</sub> abatement using methane as reducing agent.

**Materials & methods:** The chemical modification of the zeolite is conducted by ion-exchange and calcination methods. The catalytic behavior of the sample was investigated using the integral fixed bed catalytic reactor in flow rate of 400 ml/min at temperature range of 200-500°C.

**Findings:** The protonated Iranian clinoptilolite zeolite showed a promising performance for NO<sub>x</sub> reduction via selective catalytic reduction by Methane. The corresponding temperature of maximum activity (63% conversion of NO<sub>x</sub> to N<sub>2</sub>) was 450 °C at a low GHSV of 20,280 h<sup>-1</sup>.

**Discussion & Conclusion:** The results showed that this zeolite and its preparation method is an effective method for NO<sub>x</sub> abatement in comparison with other methods.

**Keywords:** Catalytic reduction, Nitrogen oxide, Clinoptilolite, Zeolite, Fixed bed reactor

1. Dept of Polymer Engineering, Bonab University, Bonab, Iran

2. Dept of Environmental Health Engineering, Faculty of Health, Ilam University of Medical Sciences, Ilam, Iran

\*Corresponding author: Email: Ilam\_nourmoradi@yahoo.com