

1. 用于通过氨气发生器(100)由氨前体物质的溶液连续产生氨的方法,所述氨气发生器(100)包括催化器单元(70),其包括用于将氨前体物质分解和/或水解至氨的催化器(60)和在流动方向上在催化器(60)上游的混合室(51),所述催化器(60)具有催化器体积 $V_{\text{催化器}}$,以及所述混合室(51)具有混合室体积 $V_{\text{混合室}}$,特征在于:将氨前体物质的溶液这样引入到混合室中使得催化器端面负荷为 1.0 至 $15\text{g}/(\text{h}\cdot\text{cm}^2)$,并且所述氨气发生器(100)是与废气管线分开的独立单元,其中(i)混合室的体积 $V_{\text{混合室}}$ 与催化器的体积 $V_{\text{催化器}}$ 的比率为 $1.5:1$ 至 $5:1$, (ii)将氨前体物质的溶液引入到混合室中还包括将溶液喷雾使得在碰撞到催化器端面的情况下喷雾圆锥直径为催化器端面直径的至少 80% ,并且至多 98% 。

2. 根据权利要求1所述的方法,其特征在于,将氨前体物质的溶液这样引入到混合室中使得催化器端面负荷为至少 $3.0\text{g}/(\text{h}\cdot\text{cm}^2)$ 。

3. 根据权利要求1所述的方法,其特征在于,以具有小于 $20\mu\text{m}$ 的小液滴直径 D_{32} 的小液滴形式将所述溶液施加至催化器(60)的端面(61)。

4. 根据权利要求1所述的方法,其特征在于,与所述氨前体物质的溶液分开,额外将载气引入到混合室(51)中。

5. 根据权利要求1所述的方法,其特征在于,与载气分开,将氨前体物质的溶液引入至混合室(51)中,以及将所述载气与所述氨前体物质的溶液切向地引入。

6. 根据权利要求4或5所述的方法,其特征在于,废气支流被用作载气,所述废气支流包含小于 5% 的总废气。

7. 根据权利要求中1至5任一项所述的方法,其特征在于,通过喷嘴(41)以 10 至 40° 的喷雾角度 α 将氨前体物质的溶液从储存容器(20)喷雾到混合室中。

8. 根据权利要求4或5所述的方法,其特征在于,在至少 0.5 巴的压力下喷入溶液,以及在 0.5 至 2 巴的压力下喷入喷雾空气。

9. 根据权利要求8所述的方法,其特征在于,载气与喷雾空气的比率为 $7:1$ 至 $10:1$ 。

10. 根据权利要求1至5任一项所述的方法,其特征在于,将所述溶液垂直于催化器端面(61)地喷雾至混合室(51)中。

11. 根据权利要求1至5任一项所述的方法,其特征在于,将所述溶液与载气一起引入至混合室(51)中,其中所述载气和任选的额外能量源总共具有 8000 – $50000\text{kJ}/\text{kg}$ 的比焓流 $H_{\text{TC}}/m_{\text{前体}}$,基于引入的溶液的质量流量的焓流。

12. 根据权利要求1至5任一项所述的方法用于还原来自工业设施、来自内燃机发动机、来自气体发动机、来自柴油发动机或来自汽油发动机中的氮氧化物的用途。

由氨前体物质产生用于还原废气中的氮氧化物的氨的方法

技术领域

[0001] 本发明涉及一种用于由氨前体物质产生氨的方法,以及涉及其在废气后处理系统用于还原废气中的氮氧化物的用途。

背景技术

[0002] 内燃机的废气中通常包含不希望排放到环境中的物质。因此,许多国家设定了必须遵守的关于排放这些有害物质(例如工业设施和汽车的废气)的限制。这些有害物质包含氮氧化物(NO_x),如特别是一氧化氮(NO)或二氧化氮(NO_2),以及一系列的其它有害物质。

[0003] 可以以多种方式减少来自内燃机的废气的这些氮氧化物的排放。关于这一点,要强调通过额外的废气后处理措施来还原,其特别是基于选择性催化还原(SCR)。这些方法的共同点是将对氮氧化物选择性作用的还原剂加入到废气中,而因此在相应的催化剂(SCR催化剂)的存在下使氮氧化物转化。这将氮氧化物转化为对环境危害较小的物质,例如氮气和水。

[0004] 目前已经使用的用于氮氧化物的一种还原剂为尿素($\text{H}_2\text{N}-\text{CO}-\text{NH}_2$),它以尿素水溶液的形式加入到废气中。在此,在废气流中的尿素可以分解成氨(NH_3),例如,通过热(热解)和/或通过与水的反应(水解)。由此形成的氨为氮氧化物的实际还原剂。

[0005] 汽车的废气后处理系统已经开发一段时间,并且这也是许多出版物的主题。例如,欧洲专利EP 487 886 B1公开了一种用于选择性催化在柴油发动机的含氧废气中的 NO_x 还原的方法,其中尿素及其热解产物被用作还原剂。此外,描述了一种管式蒸发器形式的用于产生氨的装置,并且所述装置包括一个喷雾装置、具有蒸发器管的蒸发器,和水解催化器。

[0006] 此外,欧洲专利EP 1 052 009 B1描述了一种用于在废气支流的协助下在反应器中实施热水解和计量添加尿素或尿素溶液的方法和装置。在该方法中,废气支流从SCR催化器上游的排气管被除去,并被引经反应器,在反应器中在水解之后负载氨的支流同样地还再次返回至SCR催化器上游的排气管。

[0007] 此外,欧洲专利EP 1 338 562 B1描述了一种利用通过氨催化还原氮氧化物的装置和方法。在此,在快速热解条件下,由固体形式的尿素得到氨,以及水解条件下由异氰酸得到氨,并供给至运输工具的废气流。

[0008] 另外,欧洲专利申请EP 1 348 840 A1公开了一种废气净化系统,其可以以20英尺的容器的形式作为一个整体结构单元运输。这样运行所述系统使得尿素或氨溶液直接通过喷入装置喷入到废气流中。将废气中所包含的氮氧化物在SCR催化器上进行还原。

[0009] 另外,德国专利申请DE 10 2006 023 147 A1描述了一种用于产生氨的装置,所述装置为废气后处理系统的部件。

[0010] 此外,在国际申请WO 2008/077 587 A1和WO 2008/077 588 A1描述了一种用于通过胍鎓盐水溶液选择性催化还原运输工具废气中的氮氧化物的方法。在该方法中使用由胍鎓盐水溶液产生氨的反应器。

[0011] 虽然已经了解氨气发生器一段时间,但是至今为止所述技术还没有在运输工具或

任何其它用途中实施。至今为止,一直追求将氨前体物质直接喷入到内燃机的废气流中的概念,这种氨前体物质通过适当的措施在排气管中被分解为实际的还原剂。然而,由于不完全的分解或分解产物在排气管中的二次反应,总是观察到沉积物,其会损坏还存在于排气管中的催化器和过滤器。

发明内容

[0012] 因此,本发明的一个目的是提供一种用于产生氨的方法,所述方法克服了现有技术的这些缺点。本发明的另一目的是提供一种通过简单装置可以实施的方法,所述方法提供了由氨前体物质至氨气的高转化率,并且允许无需维护地长期使用。

[0013] 这些目的通过本发明的权利要求1所述的方法可以实现。

[0014] 因此,根据第一实施方案,本发明的主题为用于通过氨气发生器由氨前体物质溶液连续产生氨的方法,所述氨气发生器包括催化器单元,其中所述催化器单元包括用于使氨前体物质分解和/或水解为氨的催化器和在流动方向上在催化器上游的混合室,其中催化器具有催化器体积 $V_{\text{催化器}}$,以及混合室具有混合室体积 $V_{\text{混合室}}$,在所述方法中,氨前体物质的溶液被引入到混合室中使得催化器端面负荷为 0.2 至 $15\text{g}/(\text{h}\cdot\text{cm}^2)$ 。特别是,借助喷嘴将所述氨前体物质的溶液喷入混合室中。

[0015] 关于这一点,应当强调的是,在根据本发明的方法中使用的氨气发生器是用于由氨前体物质产生氨的独立单元。例如,这种结构单元可以用于还原工业废气中的氮氧化物或用于来自内燃机(如柴油发动机)中的废气的废气后处理。这种氨气发生器可以自主地运行,或也可以借助侧废气流进行操作,然而其中在任何情况下,氮氧化物只有在随后的处理步骤中才借助氨进行氮氧化物的还原。如果根据本发明的氨气发生器被用作在内燃机(例如柴油发动机)的废气后处理系统的独立部件,因此,可以进行在废气流中的氮氧化物的还原而本身不在废气流中引入用于分解氨前体物质的催化器或其它部件。因此,可以将使用根据本发明的氨气发生器产生的氨根据需要引入到废气流中。还防止了由于由例如氨前体物质或氨前体物质的分解产物的沉积物形式的杂质导致的SCR催化器使用寿命的可能降低。

[0016] 因此,根据本发明,特别地,在作为独立单元的氨气发生器中由氨前体物质产生氨。例如,这种氨,而不是氨前体物质,随后被引入废气流中,从而实现还原其中的氮氧化物。将在根据本发明的方法中形成的氨优选在内燃机下游的位置,并且特别地在氧化催化器下游的位置供给至废气中。将在根据本发明产生的氨特别是在SCR催化器之前供给至废气流中。

[0017] 根据本发明的氨气发生器特别地包括:催化器单元,其中所述催化器单元还包括用于使氨前体物质分解和/或水解为氨的催化器和在流动方向上在催化器上游的混合室,其中催化器具有催化器体积 $V_{\text{催化器}}$,以及混合室具有混合室体积 $V_{\text{混合室}}$,用于将氨前体物质溶液引入到混合室的喷入装置和形成的氨气的出口。特别地,氨气发生器进一步包括载气的入口,所述入口特别优选关于喷入到混合室中的溶液产生切向载气流。

[0018] 在本发明范围内,对于本发明而言必要的是催化器的端面负荷为 $0.17\text{g}/(\text{h}\cdot\text{cm}^2)$ 至 $15\text{g}/(\text{h}\cdot\text{cm}^2)$,特别是 0.2 至 $15\text{g}/(\text{h}\cdot\text{cm}^2)$ 。已经特别地发现:对于氨气发生器无故障且因此无沉积运行至关重要是在限定的时期仅有一定量的溶液被允许精细地分布在给定的催

化器端面上(=流量,计量添加量)。与催化剂的最前面部分(催化器端面)的碰撞和第一次接触对于氨前体的完全分解是决定性的。在这种情况下,所述端面负荷与所使用的氨前体物质或其溶液的类型无关。

[0019] 已经进一步发现:计量添加量与催化器端面的比率必须为 0.17 至 $15\text{g}/(\text{h}\cdot\text{cm}^2)$,特别地, 0.2 至 $15\text{g}/(\text{h}\cdot\text{cm}^2)$,从而避免在催化器端面上的过快冷却,其造成向氨的过低转化率。在此,端面负荷被定义为在1小时内到达催化器端面的氨前体物质的计量质量流量和被喷雾锥润湿的催化器端面的计量质量流量的商。

[0020] 特别优选的是其中端面负荷为至少 $0.4\text{g}/(\text{h}\cdot\text{cm}^2)$,特别地至少 $1.0\text{g}/(\text{h}\cdot\text{cm}^2)$,更特别地至少 $2.0\text{g}/(\text{h}\cdot\text{cm}^2)$,更特别地至少 $3.0\text{g}/(\text{h}\cdot\text{cm}^2)$,并且还特别优选至少 $4.0\text{g}/(\text{h}\cdot\text{cm}^2)$ 的方法。同时或独立地,所述端面负荷可以特别地为至多 $14.0\text{g}/(\text{h}\cdot\text{cm}^2)$,特别地至多 $12.0\text{g}/(\text{h}\cdot\text{cm}^2)$,特别地至多 $10.0\text{g}/(\text{h}\cdot\text{cm}^2)$,特别地至多 $9.0\text{g}/(\text{h}\cdot\text{cm}^2)$,且还特别地优选至多 $8.0\text{g}/(\text{h}\cdot\text{cm}^2)$ 。

[0021] 已经发现:如果过大的质量流量的氨前体溶液与热端面接触,则由于液体的加热和蒸发,将会发生过度的局部冷却,因此不再发生完全转化。测量已经显示:在催化器端面上的过高的计量添加量而因此过大的端面负荷的情况下,润湿的端面发生超过 100K 的冷却,而因此低于在催化器端面上完全分解的温度水平,并且发生形成不想要的副产物的自发进一步反应。如果选择的催化器端面太大,则端面负荷太低,氨气发生器效率低,因为在这种情况下,使用了过大的催化器。

[0022] 由进一步的全面研究已经发现:除了每催化器端面的限定量的氨前体溶液之外,关于氨前体溶液的量的对应的能量的量也是有利的。在这种情况下,已经令人惊奇地发现用于氨前体溶液至氨的完全的、无残留的转化的总能量的量基本与所使用的氨前体溶液无关。仅仅氨前体物质的溶液的计量质量流量与以焓流形式的确定能量流(基本为热流)相关。已经发现:必须提供特定量的能量用于将氨前体溶液至氨的完全转化的吸热过程。在这种情况下,还发现不需要考虑其中发生这种分解的温度水平。已经发现所需的温度水平基本取决于所使用的水解催化剂,其可以降低所需的分解温度,而无需改变用于分解的能量的总量。

[0023] 在研究中已经发现:供给的热流可以取自热气流,例如,来自内燃机的热废气作为传输气体,并且通过额外的有源加热(电、热交换、发热管或通过热传导或辐射的其它热交换介质)还可以引入到氨气发生器。

[0024] 因此,本发明的另一主题为用于通过氨气发生器由氨前体物质连续产生氨的方法,所述氨气发生器包括催化器单元,其包括用于将氨前体物质分解和/或水解至氨的催化器和在流动方向上在催化剂上游的混合室,所述催化剂具有催化器体积 $V_{\text{催化器}}$,以及混合室具有混合室体积 $V_{\text{混合室}}$,在所述方法中,氨前体物质的溶液和载气被引入到混合室中,其中载气和任选的额外的能量源总共具有 8000 – $50000\text{kJ}/\text{kg}$ 的比焓流 $H_{\text{TG}}/m_{\text{前体}}$ (关于引入的溶液的质量流量的焓流)。

[0025] 特别优选其中比焓流为至少 $10000\text{kJ}/\text{kg}$,更特别地至少 $12000\text{kJ}/\text{kg}$,并且还特别优选至少 $15000\text{kJ}/\text{kg}$ 的方法。同时或独立地,可以设置:比焓流为至多 $45000\text{kJ}/\text{kg}$,特别地至多 $40000\text{kJ}/\text{kg}$,并且还特别优选至多 $35000\text{kJ}/\text{kg}$ 。

[0026] 在这种情况下,比焓流定义为其中输入氨气发生器的焓流和每单位时间供给至催

化剂的氨前体溶液的计量质量流量的商。在这种情况下,所需的能量主要以热的形式引入到发生器中。

[0027] 对于在给定的焓流的情况下的过大的计量质量流量,根据本发明的比焓流降低,因为供给至吸热反应的能量不足。发生氨前体的不充分转化,而因此发生沉积或形成不希望的副产物,其使得不可能连续运行发生器。同样地,已经发现:过大的比焓流导致氨气发生器的不必要的负荷,而因此导致低效运行和导致在所使用的组件的过高负荷。

[0028] 根据本发明的进一步实施方案,因而,本发明的另一主题为其中将氨前体物质的溶液和载气引入到混合室中的方法,其中所述载气和任选的额外能量源总共具有8000-50000kJ/kg的比焓流 $H_{TG}/m_{\text{前体}}$ (关于引入的溶液质量流量的焓流),其中将氨前体物质的溶液这样引入到混合室使得催化器端面负荷为0.2至15g/(h*cm²)。

[0029] 理想的情况下,换句话说,为了达到95%的氨前体物质至氨的转化率,在计量过程中必须符合根据本发明的额外的特定的计量添加条件。为了特别有利的结果,必须将氨前体物质喷入到混合室中使得对于给定的催化器端面,碰撞到催化器端面上的喷雾圆锥直径为催化器直径的至多98%,优选至多95%,且特别地至多93%。与此相反,喷雾圆锥直径应为催化器端面直径的至少80%,优选至少83%,并且特别地至少85%,从而防止在给定的面积上的过高的浓度,因此防止由前体物质造成过度的端面负荷。催化器端面的过度负荷导致与催化剂接触不充分,以及由于液体蒸发导致过度冷却,而因此同样地导致不完全的转化,以及导致与沉积相关的不希望的副反应。理想地,存在要遵守的端面负荷和/或比焓流与其它参数的组合,所述其它参数由喷入装置设定。在该背景下,特别地,必须提及待使用的喷入装置的类型,以及喷入装置的开口至给定的催化器端面的距离,喷雾圆锥直径与催化器端面的比率。

[0030] 在此背景下,关于本发明,喷入装置应该被理解为将氨前体物质的溶液,优选氨前体物质的水溶液喷雾、雾化或另外形成液滴的任何装置,其中氨前体物质的溶液形成为液滴形式,其特别地具有小于25 μm 的液滴直径 d_{32} 。在本发明的范围内,小液滴直径 d_{32} 涉及根据德国工业标准DIN 66 141的索特(Sauter)直径。

[0031] 因此,根据本发明的优选实施方式,其提供了一种喷入装置,所述喷入装置包括产生具有小于25 μm 的小液滴直径 d_{32} 的小液滴的一个或多个喷嘴。在此背景下,根据本发明,优选进一步设置为所述喷嘴产生具有小于20 μm 且还特别优选小于15 μm 的小液滴直径 d_{32} 的小液滴。同时或独立地,进一步优选喷嘴产生具有大于0.1 μm ,特别地大于1 μm 的小液滴直径 d_{32} 的小液滴。通过使用这样的喷嘴,也可以达到>95%的氨生成水平AG(见上文)。此外,可以实现溶液在催化器端面上的特别均匀地分布。在此背景下和在下文中,氨生成水平AG被定义为在所述方法中生成的NH₃的摩尔量相对于理论上在氨前体物质完全水解情况下应生成的氨的摩尔量。根据本发明,氨生成水平>95%被认为是完全转化。

[0032] 根据特别优选的变体,可以特别设置为所述喷入装置包括根据本发明所谓的双物料喷嘴。在此背景下,双物料喷嘴被理解为这样的喷嘴,其使用加压气体,通常为空气,作为用于使液相的表面破裂并因此用于形成小液滴的助推剂。此加压气体也被称为雾化空气。这种类型的喷嘴可以实现氨前体物质特别精细地分布,小液滴直径 d_{32} 小于25 μm ,特别地小于20 μm 。

[0033] 在此背景下,助推剂,特别是雾化空气,优选与氨前体物质的溶液一起通过相同的

喷嘴开口被引入混合室中。

[0034] 独立地或同时地,所述喷入装置还可以包括至少两个喷嘴,其特别地可以同时或彼此分开地开关,以将氨前体物质引入至混合室中。

[0035] 然而,可替换地,还可以设置为所述喷入装置包括所谓的闪蒸器。

[0036] 根据本发明的喷雾圆锥为可以使用具有限定的喷雾角度 α 的一个或多个喷嘴产生的待喷雾的溶液的锥,所述喷雾圆锥直径为小液滴碰撞到催化器端面上得到的直径。这是由在25℃下在被喷雾的溶液上的0.1至10巴的液体压力,以及任选地在0.5至10巴的操作范围内的雾化空气(在双物料喷嘴的情况下)设定。在使用根据本发明任选的载气的情况下,所述喷雾锥直径是在25℃下在待喷雾溶液上0.1至10巴的液体压力,以及任选地在使用载气的情况下在0.5至10巴的操作范围的雾化空气(在双物料喷嘴的情况下)设定。

[0037] 为了达到喷雾圆锥直径为催化器直径的至多98%,根据本发明的改进方案,还可以设置:喷入装置本身包括喷嘴,特别地双物料喷嘴,其具有10°至90°的理论喷雾角度 α 。特别地,同时或独立地,还可以设置为喷嘴开口至催化器端面的距离为15至2000mm。

[0038] 喷嘴,特别地,双物料喷嘴,特别地优选其具有至少10°,特别地至少20°,特别地至少25°,特别优选至少30°,特别优选至少35°,特别优选至少40°,并且还特别优选至少45°的喷雾角度 α 。同时地或独立地,所述喷嘴进一步优选具有至多90°,特别地至多80°,特别地至多75°,特别地至多70°,特别优选至多60°,特别优选至多55°,并且还特别优选至多50°的理论喷雾角度 α 。如前所述,通过有目的地使用具有限定的喷雾角度 α 的喷嘴,可以实现待喷雾的溶液的均匀分布,而没有在壁上或催化器端面上发生沉积。

[0039] 根据本发明,理论喷雾角度 α (在下文中也被称为喷雾角度 α)应被理解为在一个或多个喷嘴开口的出口处在25℃下在待喷雾的溶液上0.1至10巴的操作压力以及任选地0.5至10巴的操作范围的喷雾空气(双物料喷嘴)的情况下设定的喷雾角度,而不存在载气或喷雾溶液的任何其它影响。

[0040] 作为进一步的措施,为了使催化器单元的内壁不被氨前体物质的溶液润湿,可以根据本发明的进一步实施方案设置:所述氨发生器包括另外的用于载气的入口,所述入口关于喷入到混合室中的溶液产生切向载气流。或者,还可以设置为:在喷嘴的周围设置至少一个载气入口,其构造为使得载气在引入至混合室中的溶液周围形成外壳。以这种方式,将喷雾的溶液用载气构成的外壳包封,使得观察到内壁不被润湿。

[0041] 因此,在另一实施方式中,本发明涉及包括至少一个载气入口的氨气发生器。所述入口优选位于混合室中,并且特别是独立的或与喷嘴开口分开,通过所述喷嘴开口引入氨前体物质的溶液。因此,载气可独立于氨前体物质的溶液地引入。所述入口优选地产生关于喷入到混合室中的溶液的切向或平行的载气流。对于平行的载气流,用于载气的一个或多个入口开口优选排列在壁上,其中,用于引入氨前体物质的溶液的喷入装置也位于所述壁上。

[0042] 令人惊奇地,已经发现:通过切向或平行载气流,可以进一步抑制在混合室的区域中在催化器单元的壁上的沉积,并且可以提供载气和氨前体物质溶液的持久良好混合。因此,几乎完全抑制润湿在混合室的区域中的催化器单元的壁。通过切向载气流产生具有小液滴的以水解催化器至水解催化器端面的方向轴向地引导的涡流混沌流(**Wirbelschleierströmung**)。这种涡流混沌流可实现在所述催化器上非常良好地转化为氨。在所述发生器的头部区域在

氨前体溶液至催化器单元或至混合室中的喷雾装置的高度进行载气的切向供给。在此背景下,将气流尽可能浅地(flach)以这样的方式引向混合室的壁,使得在催化器单元中指向下游的涡流调节为催化器端面的方向。

[0043] 如果使用的喷嘴包括第一数量的用于将氨前体物质的溶液引入到催化器单元中的喷嘴开口,则产生类似的效果,所述喷嘴开口被第二数量的用于将载气或雾化空气引入至催化器单元中的喷嘴开口环形地包围。

[0044] 关于本发明,进一步设置为所述喷嘴开口到催化器端面的距离可以为特别地15至1500mm,特别优选15至1000mm,并且还特别优选15至800mm。独立地或同时地,然而,还可以设置为,所述喷嘴开口至催化器端面的距离为至少30mm,特别优选至少50mm,特别优选至少60mm,特别优选至少100mm,并且还特别优选至少为300mm,并且进一步独立地或同时地至多1500mm,特别地至多1000mm,特别地至多800mm,特别地至多500mm,特别地至多400mm,特别优选至多200mm,且还特别优选至多150mm。

[0045] 根据本发明的改进形式,还设置为使得混合室的体积 $V_{\text{混合室}}$ 与催化器的体积 $V_{\text{催化器}}$ 的比率为1.5:1至5:1。令人惊奇地,已经发现:如果溶液的小液滴已经在碰撞到催化器端面上之前部分蒸发,则喷雾的氨前体物质可以完全分解为氨(转化率>95%)。由此可以确保所述混合室的体积大于所述催化器的体积。由于小液滴的部分蒸发,而要向溶液供给足够的能量以防止由于过大的液滴导致催化器端面的过度冷却,因此消除了差的分解或副产物形成。此外,通过相应的混合室体积 $V_{\text{混合室}}$ 确保喷雾的氨前体物质作为在载气流中的气溶胶均匀分布在催化器横截面上,并碰撞到催化器上,并且避免了具有过高浓度的点,其继而将导致差的转化率。在该背景下,还特别优选设置为:混合室体积 $V_{\text{混合室}}$ 与催化器的体积 $V_{\text{催化器}}$ 的比率为2.5:1至5:1,特别优选3:1至5:1,并且还特别优选3.5:1至5:1。

[0046] 催化器的体积 $V_{\text{催化器}}$ 优选为50ml至1000l。混合室的体积 $V_{\text{混合室}}$ 优选至少10ml,优选至少50ml,更优选至少100ml,更优选至少200ml,更优选至少1000ml,更优选至少2000ml,并且更优选至少5000ml。同时或独立地,混合室的体积 $V_{\text{混合室}}$ 优选为至多2.5l,更优选至多10l,更优选至多80l,更优选至多500l,更优选至多1200l,并且更优选至多2000l。

[0047] 此外,根据本发明,催化器单元应当被理解为这样的结构单元,其包括用于容纳催化剂的壳体,从流动方向上在催化器上游的混合室,和至少一种用于将氨前体物质分解和/或水解为氨的催化剂,所述催化器具有催化器体积 $V_{\text{催化器}}$,以及所述混合室具有混合室体积 $V_{\text{混合室}}$ 。任选地,所述催化器单元可以额外包括出口室,其在流动方向上在催化器下游且用于输出形成的氨气。

[0048] 在本发明的背景中,在催化条件下,可以实现由氨前体物质释放氨的任何催化剂都可以被用作用于分解和/或水解氨前体物质的催化剂。优选的催化剂将氨前体物质水解成氨和其它无害物质,如氮气,二氧化碳和水。因此,优选水解催化剂。如果例如使用胍鎓盐溶液,特别地,甲酸胍溶液或尿素溶液或它们的混合物,则在催化活性、氧化物构成的非氧化活性涂层的存在下可以发生形成氨的催化分解,所述氧化物选自二氧化钛、氧化铝和二氧化硅,及其混合物,和/或全部或部分金属交换的水热稳定的沸石,特别地,ZSM5或BEA型的铁沸石。在此背景下,特别地,考虑副族元素,并且优选铁或铜作为金属。金属氧化物,如二氧化钛、氧化铝以及二氧化硅优选施加到金属载体材料上,如加热管合金(特别是铬铝钢)上。

[0049] 特别优选的催化剂为水解催化剂,其特别是包括选自二氧化钛、氧化铝和二氧化硅以及它们的混合物的催化活性涂层。

[0050] 或者,还可以进行氨前体物质的溶液,特别是甲酸胍溶液和剩余的组分的催化分解形成氨和二氧化碳,其中可以使用氧化物构成的催化活性涂层,所述氧化物选自二氧化钛、氧化铝和二氧化硅及其混合物和/或经全部或部分地金属交换的水液稳定的沸石,其用金和/或钯作为氧化活性组分浸渍。包含钯和/或金作为活性组分的相应的催化剂优选地具有0.001至2wt%,特别地0.01至1wt%的贵金属含量。借助这种类型的氧化催化剂可实现在产生氨的过程中在胍鎓盐的分解过程中避免不希望地形成作为副产物的一氧化碳。

[0051] 优选,具有0.001至2wt%,特别地0.01至1wt%的贵金属含量的包含钯和/或金作为活性成分的催化涂层被用于甲酸胍和任选其它组分的催化分解。

[0052] 因此,本发明的其它主题还为一种方法,其使用催化剂,其特别地为水解催化剂,所述催化剂具有使用金和/或钯浸渍的催化活性涂层,特别地具有0.001至2wt%的金和/或钯含量(基于催化涂层)。此外优选,该催化剂具有氧化物构成的催化活性涂层,所述氧化物选自二氧化钛、氧化铝和二氧化硅以及它们的混合物,和/或用金和/或钯浸渍的水热稳定的沸石,其中金和/或钯的含量进一步优选为0.001至2wt%(基于所述催化涂层)。

[0053] 在本发明的背景中,可以使用水解催化器,所述水解催化器在流动方向上由至少两段组成,包含非氧化活性的涂层的第一段和氧化活性涂层的第二段。优选地,这种催化器的5至90vol%由非氧化活性涂层组成,以及这种催化器的10至95vol%由氧化活性涂层组成。特别地,这种催化器的15至80vol%由非氧化活性涂层组成,以及这种催化器的20至85vol%由氧化活性涂层组成。或者,可以在串联排列的两种催化器(包含非氧化活性涂层的第一催化器和包含氧化活性涂层的第二催化器)的存在下进行水解。此外优选,所述第一水解催化器也可以为加热的催化器,以及第二水解催化器可以为未加热的催化器。

[0054] 此外,也可以设置为使用由至少两段组成的水解催化器,水解催化器的以流动方向排列的第一段是加热的催化器形式,以及以流动方向排列的第二段以未加热的形式。优选地,所述催化器的5至50vol%由第一段组成,以及所述催化器的50至95vol%由第二段组成。

[0055] 根据本发明特别优选的实施方式,设置为使得氨气发生器包括如下催化器单元,其包括至少两部分的,特别优选至少三部分的水解催化器,在流动方向上的第一部分为加热的催化器的形式,其优选包括直接电阻加热器和/或加热套加热器,而其第二部分为未加热的催化器的形式,还特别优选在下游具有混合器结构的未加热的催化器作为第三部分。

[0056] 还特别优选,包括催化器单元的氨气发生器,其中,所述催化器的催化器直径 $D_{\text{催化器}}$ 与催化器长度 L 的比率为1:1至1:5,特别地1:2至1:4,并且还特别优选1:3。催化器直径 $D_{\text{催化器}}$ 优选为20至2000mm,特别地30至1000mm,并且还更优选30至100mm。然而,也可以设置为使得所述直径 $D_{\text{催化器}}$ 为30至80mm,80至450mm或450至1000mm。

[0057] 在此背景下,进一步优选,所述催化器的长度 L 为30mm至2000mm,特别优选70mm至1000mm,并且还特别优选70mm至700mm。

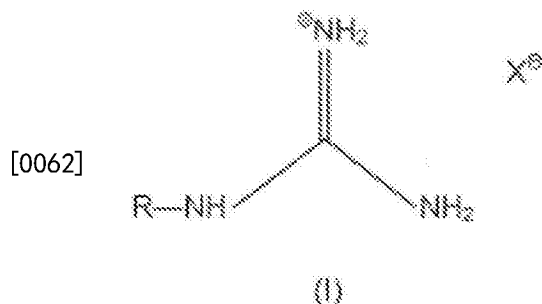
[0058] 已经发现:为了完全催化转化氨前体物质,优选使用具有至少60cpsi(cpsi:每平方英寸的孔数)的催化剂孔数且具有上述公开的催化器体积的催化器。在此背景下,对于在氨气发生器中应用,反压的增加(通过催化器的压力损失)将催化剂孔数限制在至多

800cps i。特别优选每平方英寸端面具有100至600cps i,每平方英寸端面具有100至500cps i,并且还特别优选每平方英寸催化器端面具有100至400cps i的催化剂孔数的催化器。

[0059] 至于所述催化器单元的构造,在测试中已经发现圆柱形结构形式是特别合适的。特别地,在圆柱形结构形式的情况下,任选使用的切向载气流可以充分发挥作用。与此相反,其它结构形式是不太合适的,因为在此情况下,会观察到过强的湍流。因此,本发明的另外的主题为氨气发生器,其包括构造为圆柱形形式的催化器单元。

[0060] 此外,已经证明特别有利的是氨气发生器包括催化器单元,所述催化器单元具有至少一个绝热层,特别是由微孔隔音材料制成的绝热层。

[0061] 根据本发明,氨前体物质被理解为是可以在溶液中输送且可以借助物理和/或化学过程解离或以其他方式释放氨的化学物质。根据本发明,特别地,尿素、尿素衍生物、胍、双胍和这些化合物的盐和氨的盐可被用作氨前体化合物。根据本发明,特别地,可以使用尿素和胍或其盐。特别地,可以使用由胍与有机或无机酸形成的盐。在此背景下,通式(I)的胍鎓盐应被认为是特别优选的,



[0063] 其中,

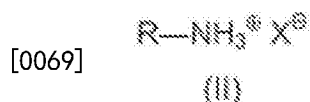
[0064] $R = H, NH_2$ 或 C_1-C_{12} 烷基,

[0065] $X^{\ominus} =$ 乙酸根、碳酸根、氰酸根、甲酸根、氢氧根、甲氧根 (Methylat) 或草酸根。

[0066] 特别优选甲酸胍。

[0067] 在本发明的背景下,这些胍鎓盐可以以单独的物质或两种或更多种的不同的胍鎓盐的混合物的形式使用。根据优选的实施方式,根据本发明使用的胍鎓盐与尿素和/或氨和/或铵盐组合。然而,或者,在根据本发明的其它实施方式中,还可以使用尿素水溶液。胍鎓盐与尿素以及氨或铵盐的混合比可在宽范围内变化。然而,已经发现特别有利的是:胍鎓盐和尿素的混合物具有5至60wt%胍鎓盐含量和5至40wt%的尿素含量,特别是5至35wt%的尿素含量。此外,具有5至60wt%的胍鎓盐含量和5至40wt%的氨或铵盐含量的胍鎓盐和氨或铵盐的混合物视为是优选的。然而,可替代地,也可以使用尿素溶液,特别是尿素水溶液。

[0068] 已经发现尤其是通式(II)的所有化合物作为铵盐特别有利。



[0070] 其中,

[0071] $R = H, NH_2$ 或 C_1-C_{12} 烷基,

[0072] $X^{\ominus} =$ 乙酸根、碳酸根、氰酸根、甲酸根、氢氧根、甲氧根或草酸根。

[0073] 根据本发明使用的氨前体物质,特别是胍鎓盐,以及任选由尿素或铵盐组成的其它组分以溶液的形式使用,尤其是水和/或C₁-C₄醇优选被用作溶剂。在此背景下,水和/或醇溶液具有5至85wt%,特别是30至80wt%的优选固含量。

[0074] 在此背景下,已经惊奇地发现:根据本发明,可以特别有利地使用浓度为20至60wt%的甲酸胍水溶液和浓度为25至40wt%的尿素水溶液,以及甲酸胍和尿素溶液的水性混合物,其中甲酸胍和尿素以浓度为5至60wt%的甲酸胍和浓度为5至40wt%的尿素包含在所述混合物中。

[0075] 在此背景下,氨前体物质的,尤其是胍鎓盐的水溶液,胍鎓盐或胍鎓盐与尿素组合在水中的混合物具有0.2至0.5kg氨/升溶液的氨生成潜力,特别地,0.25至0.35kg氨/升溶液的氨生成潜力。

[0076] 令人惊奇地,已经发现:通过切向载气流(同义词为输送气流),可以进一步抑制在混合室的区域中的催化剂单元的壁上的沉积,并且可以提供载气(同义词为输送气流)和氨前体物质溶液的持久良好混合。如果不使用这种类型的切向载气流,则可以通过将溶液喷雾至混合室中,在混合室区域中催化剂单元的壁被润湿,并且发生不想要的副反应,例如氨前体物质的聚合反应。这些副反应导致在混合室的区域中的不想要的沉积,由此不再可能实现对于发生器至关重要的载气与溶液的持久完全混合。由于载气与溶液的不完全混合,在催化剂中或催化剂上还观察到额外的沉积。通过切向载气流产生具有小液滴的以水解催化器至水解催化器端面的方向轴向地引导的涡流混沌流(**Wirbelschleierströmung**)。这种涡流混沌流可实现在所述催化器上非常良好地转化为氨。

[0077] 在所述发生器的头部区域在将氨前体溶液至催化器单元或至混合室中的喷雾装置的高度进行载气的切向供给。在此背景下,将气流尽可能浅地(flach)以这样的方式引向混合室的壁,使得在催化器单元中指向下游的涡流设定为催化器端面的方向。

[0078] 根据另一方面,因此,本发明的另一主题为借助通过氨气发生器特别是借助本文所述的氨气发生器由氨前体物质的溶液连续产生氨的方法,所述氨气发生器包括催化器单元,其中所述催化器单元包括用于使氨前体物质分解和/或水解为氨的催化器和在流动方向上在催化器上游的混合室,其中催化器具有催化器体积 $V_{\text{催化器}}$,以及混合室具有混合室体积 $V_{\text{混合室}}$,其中,在所述方法中,与载气分开,将所述氨前体物质的溶液引入至混合室中,以及所述载气进一步优选与氨前体物质的溶液切向地引入。特别是通过喷嘴将所述氨前体物质的溶液喷入到混合室中。

[0079] 还特别优选如下方法,在所述方法中,i)将氨前体物质的溶液这样引入到混合室中使得催化器端面负荷为0.2至15g/(h*cm²)和/或ii)将氨前体物质的溶液和载气引入至混合室中,其中所述载气和任选的额外的能量源总共具有8000-50000kJ/kg的比焓流 $H_{\text{H}_2\text{O}}/m_{\text{前体}}$ (基于引入的溶液的质量流量的焓流)和/或iii)与载气分开,将氨前体物质的溶液引入至混合室,以及所述载气进一步优选与氨前体物质的溶液切向地引入。

[0080] 通过与载气分开地引入氨前体物质的溶液,可以实现所需的能量或热流的有目的地计量添加以无故障地、连续地运行所述发生器。已经发现,通过对于适当的温度水平的足量的能量,可以实现所述方法而没有产生不想要的副产物。在给定量或质量流量的溶液的情况下,将可使用的氨前体溶液完全分解为氨需要对于完全分解所必需的温度水平的热形式的对应的量或质量流量的能量。在这种情况下,所述温度水平由使用的水解催化器确定。

主要地引入至过程中的能量优选来自载气流。

[0081] 根据本发明,当利用引入能量来分解氨前体的溶液时,则特别技术地和有效地运行氨气发生器,所述能量来自载气的废热。在这种情况下,载气量不会自动地与液体溶液的计量添加量相关,因为载气的可利用的能量的量随温度变化。例如,对于稍低的温度水平的载气流,与此相关的在氨气发生器中的入口或出口之间的稍低的温度差,可以例如被更高的载气质量流量平衡,而因此更高的热流输入至发生器中。

[0082] 载气,以及特别地,切向载气流,优选在至多550℃的温度下,优选在250-550℃的温度下,更优选在250-400℃的温度下,还特别优选在300-350℃的温度下被引入到混合室中。

[0083] 在此已经发现:例如废气的支流也可以被用作载气,或与其不同的载气,例如发动机增压空气的支流,借助热交换器预调节至相应的温度水平。如果要使用废气的支流,表明特别有利的是支流包含低于5%的总废气。根据本发明的改进方案,然而,还可以设置为使用包含至少0.1%的总废气的支流作为载气并更优选小于4%,且还特别优选小于2%的总废气。

[0084] 原则上,根据本发明,任何气体可以被用作载气流。由于载气流应该优选具有250℃至550℃的温度,为了良好的能量效率,优选使用已经被加热的气体,例如增压空气或部分的废气流。然而,还可以将任何载气加热至希望的温度。

[0085] 根据进一步优选的实施方案,还可以特别地设置为:通过泵和喷嘴,以10°至40°的理论喷雾角度 α 将溶液从储存容器喷雾至混合室中。

[0086] 根据所述方法的进一步有利的实施方案,已经发现:当在至少0.5巴的压力下喷入氨前体物质的溶液,并且以0.5至2巴的压力喷入喷雾空气,可以提供特别高效的方法。

[0087] 已经发现:如果将氨前体物质的溶液特别精细分布在催化器端面上是特别有利的。因此,本发明的另一主题为用于产生氨的方法,其中将氨前体物质的溶液以具有小于25 μm 的小液滴直径 D_{32} 的小液滴形式施加至催化器端面上。在此背景下,根据本发明,进一步优选设置为所述喷嘴产生具有小于20 μm 且还特别优选小于15 μm 的小液滴直径 d_{32} 的小液滴。同时或独立地,进一步优选喷嘴产生具有大于0.1 μm ,特别地大于1 μm 的小液滴直径 d_{32} 的小液滴。当使用这种类型的喷嘴时,也可以达到>95%的氨生成水平(见上文)。此外,可以实现溶液在催化器端面上的特别均匀地分布。

[0088] 已经发现进一步有利的是:将氨前体物质的溶液垂直于催化器端面喷雾至混合室。独立地或同时,在这种情况下,载气与喷雾空气的体积比可以为7:1至10:1。

[0089] 在根据本发明的氨气发生器的运行过程中,优选遵守的其它参数如下所示:

[0090] -氨前体物质的溶液每小时的计量质量流量优选为50g/h至280g/h,特别地,100g/h至200g/h。

[0091] -载气的质量流量优选为1至10kg/h,特别地,3至7kg/h。

[0092] -雾化空气的质量流量优选为0.14至1.43kg/h,特别地,0.5至1kg/h。

[0093] -额外的加热能量的量优选为0至150W,特别地50至100W。

[0094] -催化器端面温度优选设定为280至500℃,特别地设定为300至400℃。

[0095] -催化器出口温度优选设定为250至450℃,特别地设定为280至380℃。

[0096] -催化器空速优选为5000至300001/h,特别地,10000至200001/h。

[0097] -氨前体物质的液体的计量压力优选1至8巴,特别地1.5至3巴。

[0098] 由于其紧凑的结构方式,在本文公开的氨气发生器特别适合于在工业设施、内燃机(例如,柴油发动机和汽油发动机)和气体发动机中使用。因此,本发明还包括,所描述的方法用于还来自工业设施、内燃机(例如,柴油发动机和汽油发动机)和气体发动机的废气中的氮氧化物的氨气发生器的用途。

[0099] 本发明进一步包括:独立地,或与之前公开的特征的组合,以及以任何彼此组合的形式,下面的实施方式:

[0100] -用于通过氨气发生器(100)由氨前体物质的溶液连续产生氨的方法,所述氨气发生器包括催化器单元(70),其包括用于将氨前体物质分解和/或水解至氨的催化器(60)和在流动方向上在催化器(60)上游的混合室(51),其中所述催化器(60)具有催化器体积 $V_{\text{催化器}}$,以及混合室(51)具有混合室体积 $V_{\text{混合室}}$,其特征在于:将氨前体物质的溶液和载气一起引入到混合室中,其中所述载气和任选的额外的能量源总共具有8000-50000kJ/kg的 H_{rg} / $m_{\text{前体}}$ 的比焓流(基于引入的溶液的质量流量的焓流)。

[0101] -用于通过氨气发生器(100)由氨前体物质的溶液连续产生氨的方法,所述氨气发生器包括催化器单元(70),其包括用于将氨前体物质分解和/或水解至氨的催化器(60)和在流动方向上在催化器(60)上游的混合室(51),其中所述催化器(60)具有催化器体积 $V_{\text{催化器}}$,以及混合室(51)具有混合室体积 $V_{\text{混合室}}$,其特征在于:将氨前体物质的溶液以具有小于20 μm 的小液滴直径 D_{32} 的小液滴形式施加至催化器(60)的端面(61)上。

[0102] -用于通过氨气发生器(100)由氨前体物质的溶液连续产生氨的方法,所述氨气发生器包括催化器单元(70),其包括用于将氨前体物质分解和/或水解至氨的催化器(60)和在流动方向在催化器(60)上游的混合室(51),其中所述催化器(60)具有催化器体积 $V_{\text{催化器}}$,以及混合室(51)具有混合室体积 $V_{\text{混合室}}$,其特征在于:与氨前体物质的溶液分开,额外将载气引入到混合室(5)中,包含0.1至5%的总废气的废气支流作为载气。

[0103] -用于通过氨气发生器(100)由氨前体物质的溶液连续产生氨的方法,所述氨气发生器包括催化器单元(70),其包括用于将氨前体物质分解和/或水解至氨的催化器(60)和在流动方向上在催化器(60)上游的混合室(51),所述催化器(60)具有催化器体积 $V_{\text{催化器}}$,以及混合室(51)具有混合室体积 $V_{\text{混合室}}$,特征在于:与氨前体物质的溶液分开,额外地将载气与基于喷入到混合室中的氨前体物质溶液平行地引入。

[0104] -用于通过氨气发生器(100)由氨前体物质的溶液连续产生氨的方法,所述氨气发生器包括催化器单元(70),其包括用于将氨前体物质分解和/或水解至氨的催化器(60)和在流动方向在催化器(60)上游的混合室(51),所述催化器(60)具有催化器体积 $V_{\text{催化器}}$,以及混合室(51)具有混合室体积 $V_{\text{混合室}}$,其特征在于:将氨前体物质的溶液这样引入到混合室中使得在碰撞到催化器端面的情况下喷雾圆锥直径为催化器直径的至少80%,并且至多98%。

[0105] -用于通过氨气发生器(100)由氨前体物质的溶液连续产生氨的方法,所述氨气发生器包括催化器单元(70),其包括用于将氨前体物质分解和/或水解至氨的催化器(60)和在流动方向在催化器(60)上游的混合室(51),其中所述催化器(60)的具有催化器体积 $V_{\text{催化器}}$,以及混合室(51)具有混合室体积 $V_{\text{混合室}}$,其特征在于:使用具有催化涂层的催化器(60),特别是水解催化器,其使用金和/或钨浸渍。

附图说明

- [0106] 在下文中,通过附图和相关的实施例更详细地描述本发明,其中:
- [0107] 图1为第一氨气发生器的示意性轴向截面图;
- [0108] 图2显示运输工具中的废气系统的示意性结构;
- [0109] 图3在切向载气供给的区域中混合室的径向截面图(俯视图);
- [0110] 图4显示取决于端面负荷的氨前体溶液至氨的转化率的图表1;以及
- [0111] 图5显示取决于比焓流的氨前体溶液至氨的转化率的图表2。

具体实施方式

[0112] 图1显示根据本发明的第一氨气发生器(100)。所述发生器(100)为圆柱形形式,并且包括:喷入装置(40)、催化器单元(70)和形成的氨气的出口(80)。所述催化器单元(70)由多部分的水解催化器(60)、混合室(51)和出口室(55)组成。在运行状态下,来自存储容器(20)的氨前体溶液(B)通过计量泵(30)与喷雾空气流(A)一起通过具有喷嘴开口(42)的双物料喷嘴(41),以限定的喷雾角度喷雾至氨气发生器(100)的混合室(51)中,并且以细小液滴分布。热载气流(C)被额外地切向地通过入口(56)引入混合室(51)中,由此产生具有小液滴的涡流混沌流,其轴向地以水解催化器(60)的方向输送至水解催化器端面(61)。所述催化器(60)被配置为使得第一段(62)为具有水解涂层的可电加热的金属载体。接着为同样具有水解涂层的未加热的金属载体催化器(63),和具有配置为混合结构以改善径向分布的水解涂层的未加热的催化器(64)。所生成的氨气(D)与热载气流一起经由具有出口(80)和阀(81)的出口室(55)一起离开发生器(100)。所述发生器可以通过环绕催化器单元的壳(54)的夹套加热器(52)额外地加热。除了喷入装置(40)所在的头部区域之外,以微孔隔音材料构成的绝热件(53)包围氨气发生器(100)。

[0113] 图2显示对内燃机发动机(10)的废气后处理的示意性的物料流。在此背景下,来自内燃机发动机(10)的废气通过加载单元(11)输入并且在用于内燃机的逆流进气(E)中被压缩。废气(F)被引导经过氧化催化器(12),从而达到相比于NO的较高的NO₂浓度。可以在颗粒过滤器(13)的前和后供给来自氨气发生器(100)的包含氨的气流(D),并混合。在此背景下,可以使用静态混合器形式的额外的气体混合器(14),例如,文氏混合器。在SCR催化器上(15)上进行NO_x借助还原剂NH₃在SCR(SCR=选择性催化还原)催化器上的还原。在此背景下,可以使用单独的载气或者使用废气支流运行氨气发生器。

[0114] 图3为在切向载气流供给区域中混合室(51)的详细视图。在混合室(51)的区域中,所述催化器单元的壳(54)被微孔隔音材料的绝热件(53)包围。在喷嘴(41)的喷嘴开口(42)高度,在氨气发生器的头部区域或在混合室(51)的头部区域进行载气(C)的切向供给。在此背景下,这样设置载气流(C)的入口(56)使得载气流尽可能浅地这样被引至混合室的壁(54),使得在发生器中指向下游的涡流为催化器的方向,并因此在催化器单元内部设定了切向载气流。

[0115] 实施例1

[0116] 结构基本对应于在图1中示出的氨气发生器。氨气发生器被配置为10-100g/h NH₃的计量添加量,并为圆柱形管式反应器的形式。在头部区域居中设置了具有可变的气帽并

涂布有无定型Si的双物料喷嘴(Schlick公司,型号970(0.3mm))。在室温下通过该喷嘴计量加入氨前体物质,并以完整的圆锥雾化。喷雾角度 α 为 30° 。在此背景下,液体借助通过喷嘴输送的大约0.8kg/h的加压空气流(0.5-2巴)夹带并雾化。在喷嘴下方所产生的小液滴的索特直径为 $<25\mu\text{m}$ 。进行氨前体物质溶液遍布反应器截面在热输送气流中在水解催化器上游在混合室中的均匀径向分布,而在过程中没有可能导致沉积的接触反应器内壁。在混合室中,已经这样进行液滴蒸发使得在碰撞在催化器端面上的过程中,小液滴直径降低至多20%。由于小液滴仍然存在,导致催化器端面上大约 $120-150^\circ\text{C}$ 的冷却。因此,这样配置反应器使得热输送气流供给热量,其被引入集成的可加热的水解催化器,以及其他能量供给,所供给的能量的量对于计量添加量的溶液不发生低于大约 300°C 的冷却。在此背景下,通过Bosch PWM阀控制50-280g/h的计量添加量。用于输送液体的压力是通过来自储存容器中加压空气管道的过压而产生的,因此不需要额外的输送泵。

[0117] 将大约1-5kg/h的热载气流同样地切向地引入到氨气发生器的头部区域使得其以反应器壁周围的混沌流存在,并以螺旋形状引导通过混合室。通过该气体流,一方面,实现以限定的停留时间(空速的倒数值)轴向地输送通过反应器,另一方面,防止喷雾小液滴与反应器壁接触。在反应器的头部区域中混合室的直径为70mm。混合室的长度为110mm。通过电阻加热套管(加热时间最多1分钟)-型号Hewit0.8-1kW,150-200mm,额外地从外部加热混合室。关于温度调节,用设置在催化器端面上、催化器中和催化器下游的温度传感器(类型K)来进行。反应器的所有外表面都用Microtherm superG绝热件包围。在此背景下,所述Microtherm superG堆料被埋置在缠绕在反应器周围的玻璃纤维网之间。为了更好地散热,只有喷入溶液所位于的头部区域没有绝热。混合室的表面涂布有催化活性的二氧化钛载体涂层(washcoat)(锐钛矿结构)。

[0118] 直径55mm和400cpsi的可加热的金属载体催化器(Emitec Emicat,最大功率1.5kW,体积大约170ml)用法兰装配在混合室之后。所述催化器配置为水解催化器,同样,涂布有催化活性 TiO_2 (锐钛矿,大约100g/l的载体涂层,Interkat/Südchemie公司),并这样调节,使得在催化器端面的温度为 300 至 400°C 。在此背景下,仅提供足以补偿小液滴蒸发导致的冷却那么多的能量。为了达到高达至少70001/h的空速,下游连接400cpsi的水解催化器,产生大约330ml的总催化器体积。

[0119] 在热水解催化器处产生的氨在底部区域自由地、从反应器末端的出口开口中心流出。在此背景下,出口区域优选成圆锥形地形成,从而防止在边缘形成涡流,因此沉积可能的残留物。将来自氨气发生器的气体混合物优选在 $>80^\circ\text{C}$ 的温度下供给至SCR催化器的马达废气流,以防止碳酸铵沉积,以及通过静态混合器在废气流中均匀地分布。

[0120] 作为用于所有金属部件的材料,使用1.4301(V2A,DIN X5CrNi18-10)或者1.4401(V4A,DIN X2CrNiMo17-12-2),1.4767,或者其他废气催化器典型的Fe-Cr-Al合金。

[0121] 以下说明了端面负荷和比焓流对氨的连续产生的影响,其中使用实施例1中所用的氨气发生器。使用60%的甲酸胍溶液和使用32.5%的尿素水溶液,以及由两者的混合物运行这些发生器。在此背景下,这些氨前体溶液的结果大致相同($\pm 1\%$)。

[0122] 表1:取决于端面负荷的方法

[0123]

	<u>V1</u>	<u>V2</u>	<u>V3</u>	<u>V4</u>	<u>V5</u>
--	-----------	-----------	-----------	-----------	-----------

喷嘴开口至催化器端面的距离 [mm]	100	100	100	100	100
[0124]					
喷雾圆锥直径 [mm]	54	54	54	54	54
氨前体物质的溶液的计量质量流量/小时 [g/h]	50	160	280	4	400
催化器端面负荷/小时 [g/(h*cm ²)]	2.1	7.0	12.0	0.17	17.5
比焓流	8000	12000	16000	16000	16000
氨生成水平AG [%]	≥95%	≥95%	≥95%	≥95%	<90%
在催化器端面上的沉积	无	无	无	无	有
在混合室壁上的沉积	无	无	无	无	无

[0125] 通过将催化器端面负荷设定为至少0.17g/(h*cm²) (参考V4), 可以提供其中在>100h的时间段还没有形成沉积的方法。即使经由>100h的时间段端面负荷为2.1g/(h*cm²) 或7.0g/(h*cm²) 或12.0g/(h*cm²), 也没有观察到沉积, 由此确保连续的方法。如果将端面负荷设定为17.5g/(h*cm²) (参见V5) 的值, 则观察到在催化器端面上的沉积。因此, 连续的方法不再可能。

[0126] 取决于端面负荷的氨的产生显示在图4中。

[0127] 表2: 取决于比焓流的方法

[0128]

	V1	V2	V3	V4	V5
喷嘴开口至催化器端面的距离[mm]	100	100	100	100	100
喷雾圆锥直径[mm]	54	54	54	54	54
氨前体物质的溶液的计量质量流量/小时 [g/h]	160	160	160	160	160
催化器端面负荷/小时 [g/(h*cm ²)]	7.0	7.0	7.0	7.0	7.0
比焓流[kJ/kg]	8000	12000	16000	2000	20000
氨生成水平 AG [%]	≥ 95%	≥ 95%	≥ 95%	< 90%	≥ 95%
在催化器端面上的沉积	无	无	无	有	无
在混合室壁上的沉积	无	无	无	有	无

[0129] 通过将比焓设置为至少8000kJ/kg (参见V1、V2、V3和V5), 可以提供其中在>100h的时间段还没有形成沉积的方法, 由此可以提供连续的方法。如果将比焓设定为2000kJ/kg (参见V4), 则可以观察到在混合室壁和催化器端面上的沉积。取决于比焓流的氨的形成显示在图5中。

[0130] 在氨气发生器的运行过程中应该遵守的运行参数列于下表中。

[0131] 表3: 其它的运行参数概述

名称	表达式	单位	范围		
			上限	平均	下限
载气质量流量	m_{Abg}	[kg/h]	1	5	10
雾化空气质量流量	$m_{\text{喷嘴}}$	[kg/h]	0.14	0.71	1.43
加热能量	$E_{\text{加热}}$	[J/s]=[W]	0	70	150
催化器端面温度	T_{ein}	[°C]	280	350	500
催化器出口温度	$T_{\text{出口}}$	[°C]	250	320	450
催化器空速	RG	[1/h]	5000	15000	30000
液体的计量压力	P_{Red}	[巴]	1	2	8

[0132] 实施例2

[0134] 在实施例2中,这样配置反应器使得通过供给的热载气流的逆流热交换部分加热反应器。在此背景下,载气流首先在反应器头部下方通过双套管,与双套管的内部的流动方向相反输送至反应器壁,并向着反应器头部的方向在所述壁周围流动。在所述反应器头部,来自反应器双套管的主体流通过多个孔或者通过在反应器头部的喷嘴区域的环形间隙进入反应器内部。此外,在双套管内可以存在电阻加热器。

[0135] 实施例3

[0136] 在实施例3中,这样配置反应器使得从外部加热反应器不通过电阻加热器进行,而是通过用内燃机发动机、用于废气加热的单独的燃烧炉或热气流的热交换。在此背景下,热量还可以通过延伸一段距离的热管道传输至反应器。

[0137] 实施例4

[0138] 在实施例4中,这样配置反应器使得不从外部加热反应器,而通过Emitec公司的Emikat电可加热的催化器直接在反应器内部供热。或者,可以通过热线引火塞型号Champion (60W,11V)在反应器中产生热。

[0139] 实施例5

[0140] 当使用具有临界过热的喷入器(闪蒸器)时,使用预热的氨前体物质的液体溶液。

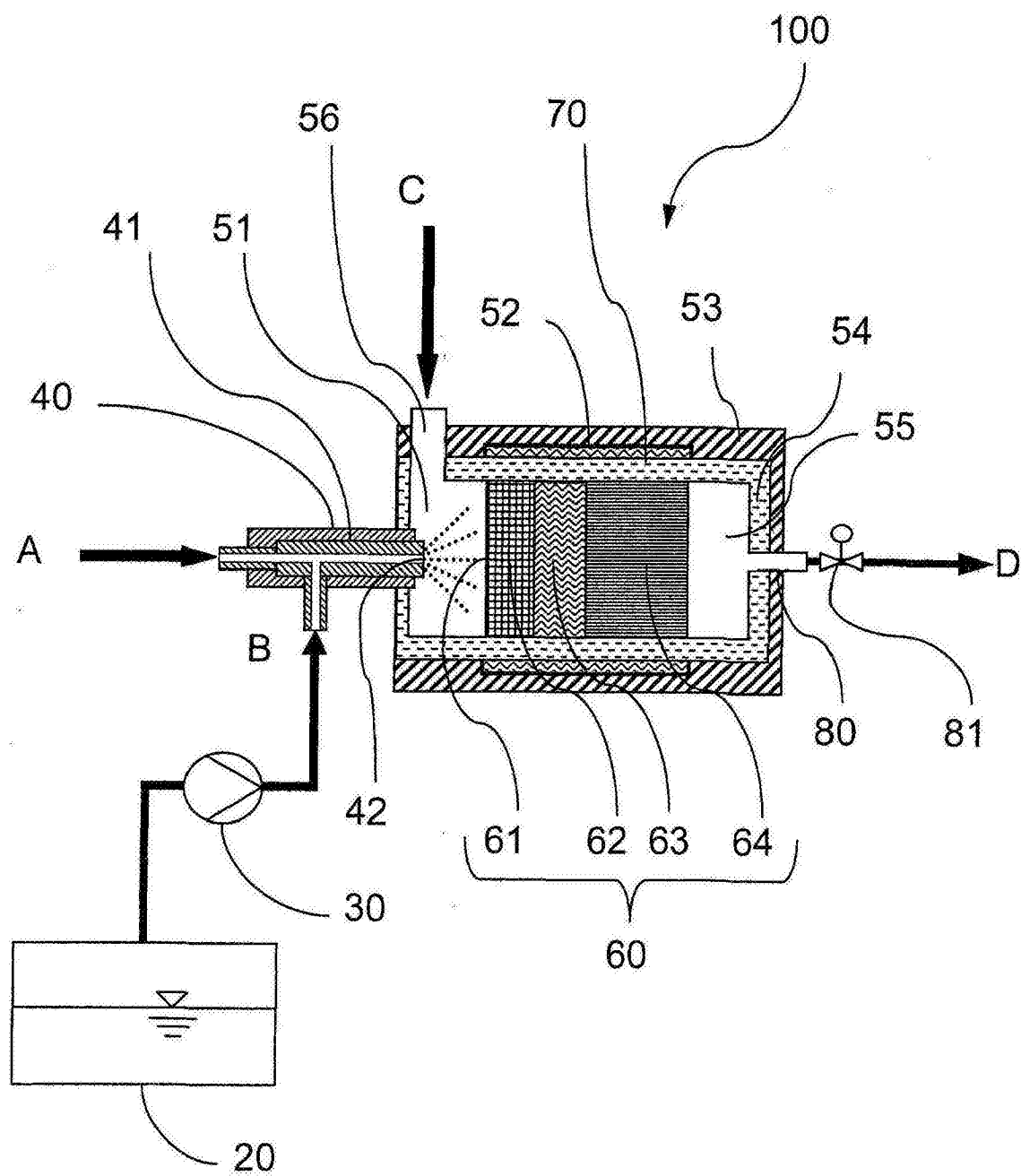


图1

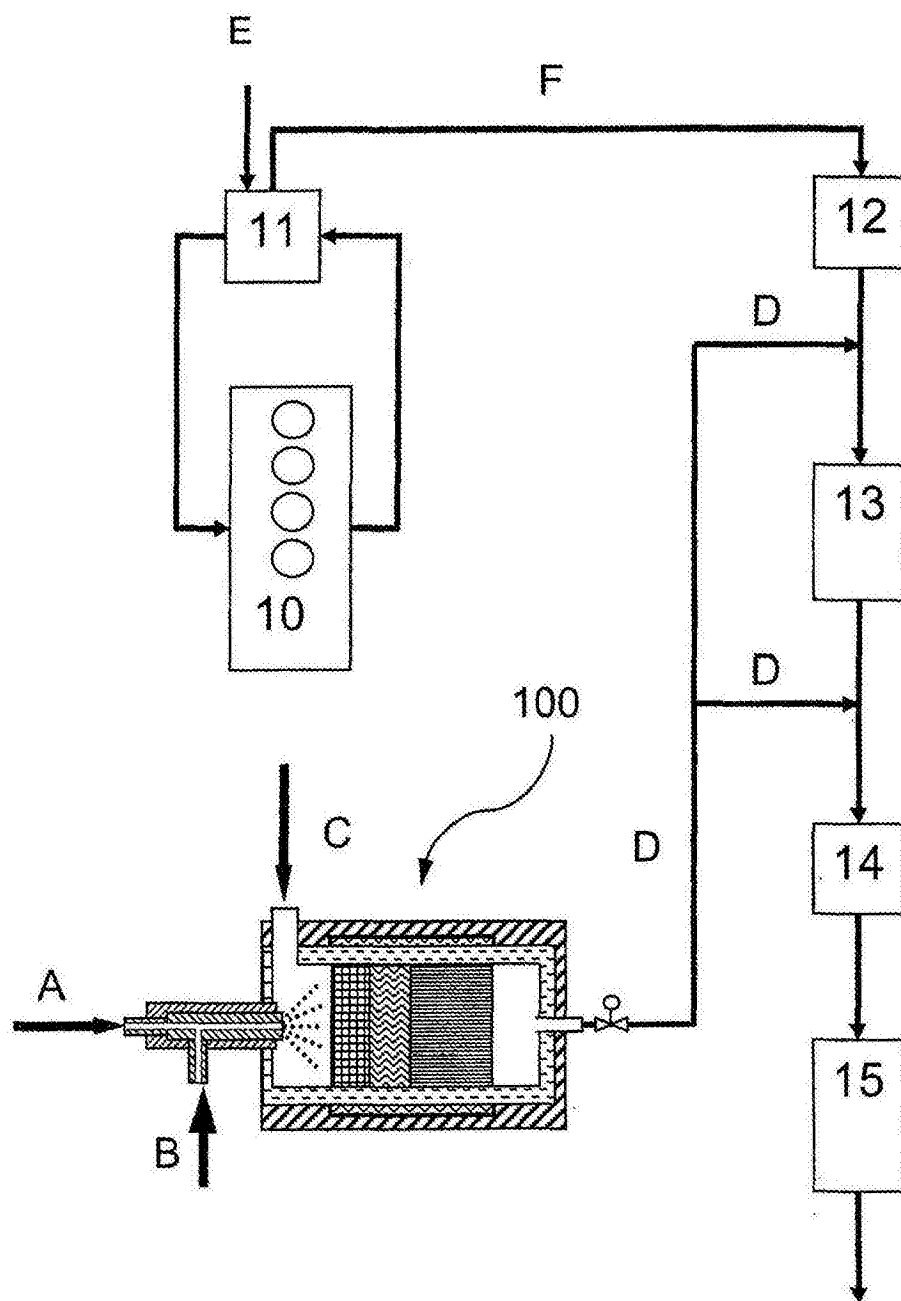


图2

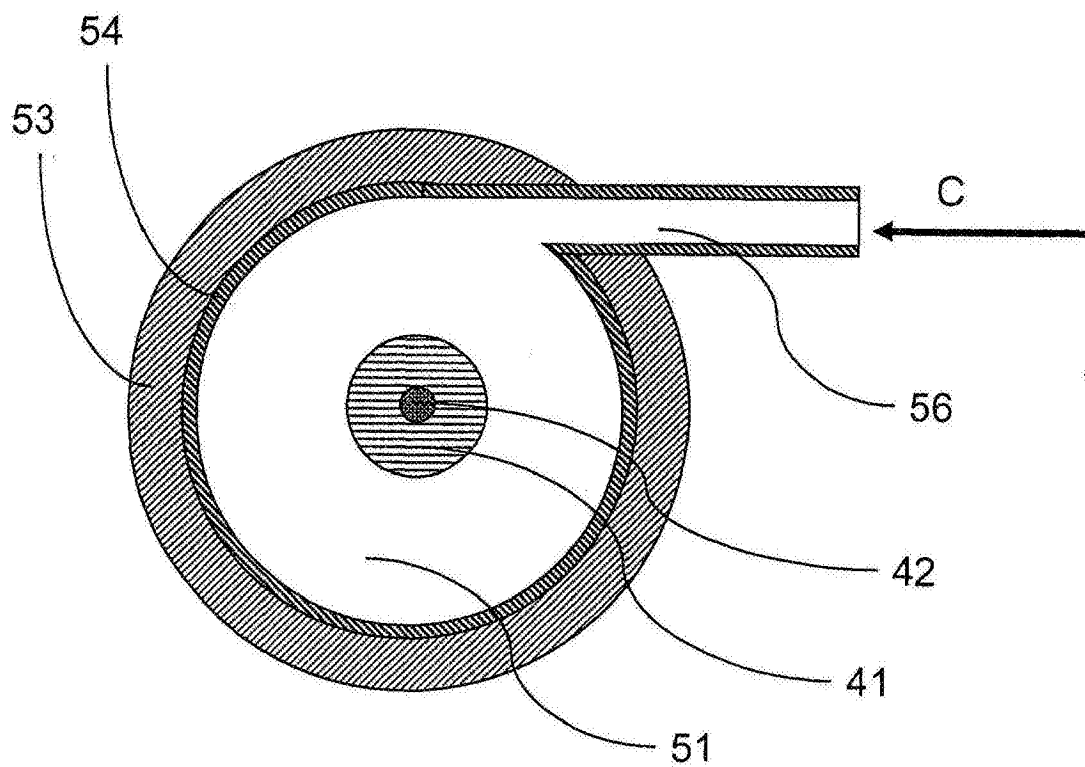


图3

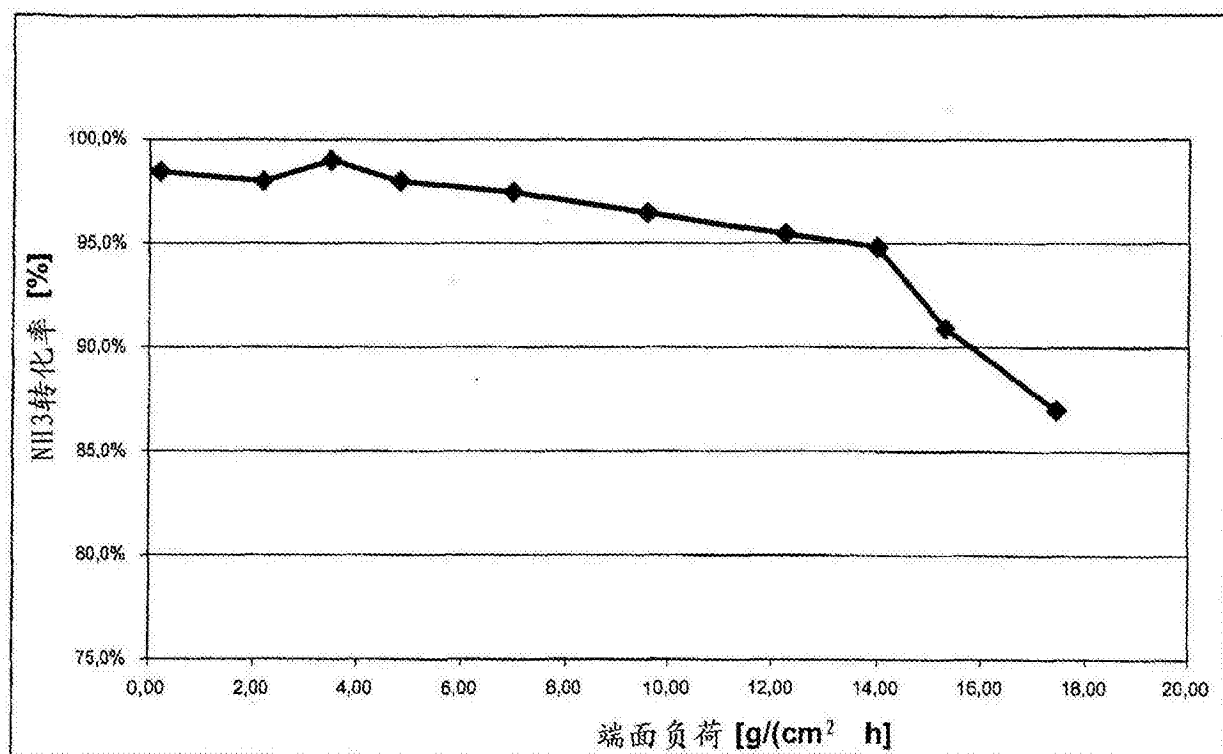


图4

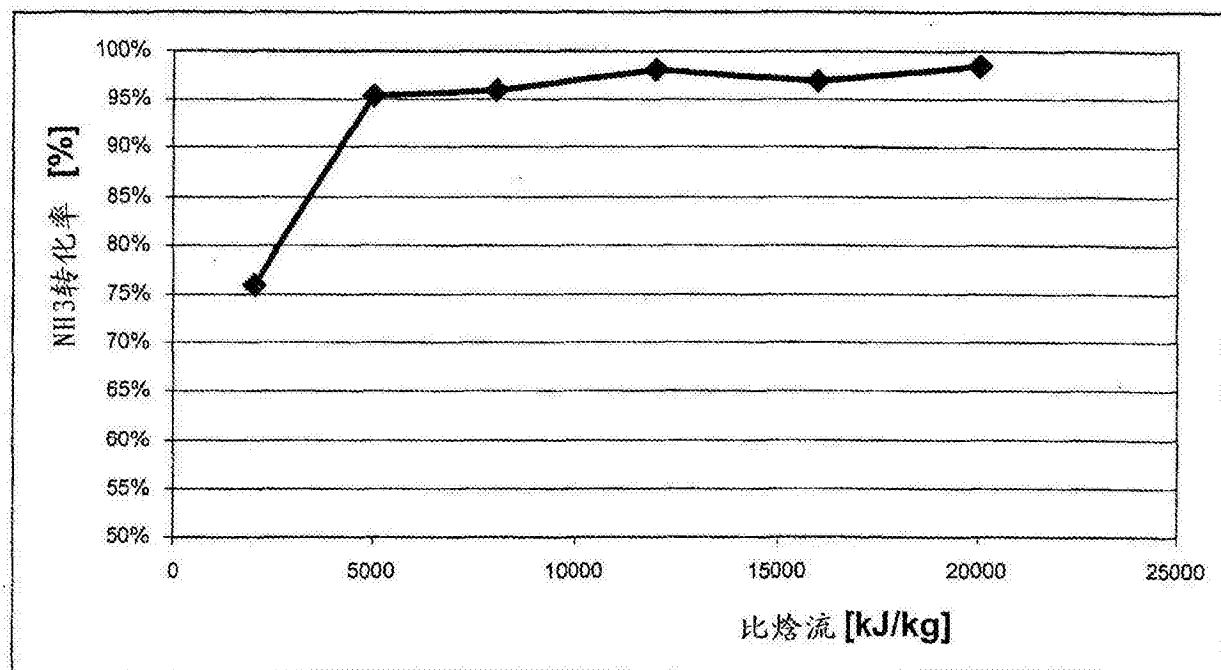


图5