



República Federativa do Brasil
Ministério da Indústria, Comércio Exterior
e Serviços
Instituto Nacional da Propriedade Industrial

(11) PI 0816155-0 B1

(22) Data do Depósito: 11/07/2008

(45) Data de Concessão: 15/08/2017



* B R P I 0 8 1 6 1 5 5 B 1 *

(54) Título: CATALISADOR PARA A DECOMPOSIÇÃO DE N₂O EM NITROGÊNIO E OXIGÊNIO NA FASE GASOSA, PROCESSO PARA A PRODUÇÃO DESTA E EMPREGO DO MESMO

(51) Int.Cl.: B01J 23/86; B01D 53/86; B01J 37/02; B01J 35/10

(30) Prioridade Unionista: 14/08/2007 DE 10 2007 038 711.5

(73) Titular(es): UHDE GMBH

(72) Inventor(es): MEINHARD SCHWEFER; ROLF SIEFERT; FRANK SEIFERT; FRANK FROELICH;
WOLFGANG BURCKHARDT

Relatório Descritivo da Patente de Invenção para
**"CATALISADOR PARA A DECOMPOSIÇÃO DE N₂O EM
NITROGÊNIO E OXIGÊNIO NA FASE GASOSA, PROCESSO PARA
A PRODUÇÃO DESTE E EMPREGO DO MESMO".**

[001] A presente invenção refere-se a catalisadores sustentados para a decomposição de óxido nitroso. Isto pode ser empregado, em particular, em processos industriais em que o óxido nitroso é formado, por exemplo, na preparação de caprolactama, ácido adípico ou ácido nítrico.

[002] Na oxidação industrial de amônia, por exemplo, durante o andamento da produção de ácido nítrico, a formação do monóxido de nitrogênio desejado NO é acompanhada por meio da formação do óxido nitroso indesejável N₂O. Isto contribui em uma não medição inconsiderável para a degradação de ozônio estratosférico e para o efeito estufa. Além disso, as fontes de óxido nitroso são oxidações industriais empregando ácido nítrico como oxidante, por exemplo, quando executados na preparação de ácido adípico.

[003] Embora a proporção relativa em volume de N₂O nos gases de traço relevante ao clima na atmosfera da terra seja menor do que 0,1% em volume (CO₂: 98,7% em volume, CH₄: 1,2% em volume), seu potencial de estufa é 310 vezes aquele de CO₂ e a proporção relativa de óxido nitroso, por esse motivo, equivale a cerca de 30% da contribuição de CO₂ para o efeito estufa adicional causado por seres humanos.

[004] As soluções técnicas para a redução de emissões de óxido nitroso, particularmente na produção de ácido nítrico uma vez que este processo é a maior fonte de emissões de óxido nitroso industrial, não são apenas requeridas por razões de proteção ambiental, porém agora são também exigidas por legisladores.

[005] Um exemplo de uma reação em fase gasosa a qual é exe-

cutada em uma grande escala na indústria e está associada a problemas com N_2O é a preparação de ácido nítrico. Isto é de modo geral executado na escala industrial pelo processo Ostwald por meio de oxidação catalítica de amônia sobre catalisadores Pt/ Rh. Neste ponto, NH_3 é oxidado muito seletivamente para NO o qual é em seguida oxidado para NO_2 durante o andamento do outro processo e o NO_2 é completamente reagido com água em uma torre de absorção para produzir ácido nítrico. Os catalisadores Pt/ Rh são configurados como redes finas e são esticadas sobre uma ampla área em um queimador. Uma mistura de gás de tipicamente cerca de 8-12% em volume de amônia no ar é passada através das redes, com uma temperatura de cerca de 850-950°C sendo estabelecida nas redes com o um resultado da reação exotérmica.

[006] Uma visão geral do andamento da produção de ácido nítrico e suas várias variantes do processo são estabelecidas em Ullmanns Encyclopedia of Industrial Chemistry, Volume A 17, VCH Weinheim (1991).

[007] Existem em princípio três diferentes processos e possibilidades de engenharia de usina para a redução de emissões de N_2O nos gases residuais das usinas industriais, tais como, usinas para a produção de ácido nítrico:

1. Medição primária

[008] Oxidação seletiva de amônia para monóxido de nitrogênio e prevenção da formação indesejável de óxido nitroso por modificação da composição química do catalisador de oxidação.

2. Medição secundária

[009] Redução do teor de N_2O do gás de processo por instalação de um catalisador que seletivamente decompõe óxido nitroso em seus componentes de N_2 e O_2 entre as redes de metal nobre as quais são normalmente empregadas na oxidação de amônia e em que a oxida-

ção ocorre e na torre de absorção, e da mesma forma a montante da primeira unidade permutadora de calor após a oxidação de amônia. A temperatura do processo e, associada a isso, a temperatura de funcionamento requerida do catalisador é comparativamente elevada neste ponto, por exemplo, na faixa de 800 a 1000°C.

3. Medição terciária

[0010] Decomposição catalítica do N_2O presente nos gases residuais saindo das torres de absorção. Isto é uma purificação de gás residual disposta a jusante do processo de produção atual. A temperatura do gás residual e, por conseguinte, também, a temperatura de funcionamento do catalisador é comparativamente baixa neste ponto e varia, dependendo do tipo de usina, na faixa, por exemplo, de 200 a 700°C. Nesta purificação de gás residual, o catalisador é disposto entre a torre de absorção e a chaminé, de preferência entre a torre de absorção e a turbina de gás de cauda e em particular exatamente antes da turbina de gás de cauda.

[0011] Ao mesmo tempo que a variante 1 pode ser obtida por variação de catalisadores de oxidação e/ ou por uma mudança na pressão e nas condições de temperatura no processo, as variantes 2 e 3 requererem o uso de catalisadores específicos para a decomposição seletiva de N_2O , e estes tem que alcançar todos os requisitos predeterminados pelo processo.

[0012] Nos processos de oxidação industrial empregando ácido nítrico como oxidante, por exemplo, na preparação de ácido adípico, grandes proporções de óxido nitroso, as quais podem equivaler a até 50% em volume do respectivo gás residual, são formadas no processo. As temperaturas do gás residual podem aumentar até cerca de 900°C como um resultado da decomposição exotérmica de óxido nitroso. Um catalisador adequado de decomposição de N_2O , por conseguinte, tem que ser ativo nesta faixa de temperatura e tem que ser

adequado como uso a longo prazo nesta faixa de temperatura.

[0013] Pesquisa intensiva dos catalisadores que fazem isto possível decompõe N_2O nos componentes não problemáticos, N_2 e O_2 têm sido executados durante anos. A faixa de possíveis materiais do catalisador estende-se dos catalisadores, os quais contêm metais nobres e têm, de preferência, sido aplicados a materiais de suporte inorgânico não metálico, através de silicatos com estrutura microporosa (zeólitos), os quais têm sido permutados por cátion ou contêm óxidos de metal para transição de óxidos de metal e óxidos misturados, tendo uma perovskita ou estrutura tipo perovskita ou uma estrutura de espinélio.

[0014] A adequabilidade em princípio de muitos dos materiais do catalisador mencionados tem sido demonstrada na técnica e literatura de patente, porém a pressão elevada, as temperaturas de funcionamento muito elevadas e as condições corrosivas colocam particularmente grandes demandas sobre os catalisadores não somente a respeito de sua seletividade e da atividade catalítica, porém em particular também em termos de sua estabilidade química e térmica durante períodos prolongados de tempo.

[0015] Os catalisadores para uso de acordo com a medição secundária (daqui em diante chamado como "catalisador secundário") nas usinas de ácido nítrico antes de mais nada têm que ter uma elevada estabilidade térmica para ser capaz de operar a longo prazo nas temperaturas elevadas de tipicamente de 800 a 1000°C as quais são requeridas. Esta estabilidade térmica não é possuída nem por catalisadores de metais nobres simples, os quais são desativados ou vaporizam nestas temperaturas, nem por estruturas de hidrotalcita ou zeólito, cuja estrutura do sistema é eliminada nestas temperaturas. Os catalisadores cerâmicos resistentes a altas temperaturas são, por esse motivo, uma alternativa possível.

[0016] Os catalisadores secundários muitas vezes compreendem

um material de suporte cerâmico resistente à alta temperatura o qual pode sozinho ter propriedades catalíticas, porém não necessariamente tem que ter tais propriedades e da mesma forma um ou mais componentes ativos. O componente cataliticamente ativo pode ser distribuído homogeneamente na matriz cerâmica ou estar presente como uma camada aplicada à superfície. Isto resulta em um requisito adicional, que um catalisador secundário tem que alcançar, em outras palavras que nenhuma reação química entre o suporte cerâmico e o componente ativo, que inevitavelmente levaria à desativação, pode ocorrer nas elevadas temperaturas de uso.

[0017] É conhecido da literatura que especialmente óxidos de metais de transição e em particular óxido de cobalto Co_3O_4 são muito bons catalisadores, isto é componentes ativos, para a decomposição de N_2O . Os óxidos misturados contendo metais de transição e tendo uma estrutura de perovskita, uma estrutura tipo perovskita ou uma estrutura de espinélio também foram descritos e examinados em detalhes muitas vezes (N. Gunasekaran e outros, Catal. Lett. (1995), 34 (3,4), pp. 373-382).

[0018] A desvantagem do preço comparativamente elevado destes catalisadores é contrariada na técnica anterior pelos componentes ativos caros ou sendo dispersos em uma matriz cerâmica não cara ou aplicados à superfície de um tal material de suporte cerâmico. De qualquer modo, na maior parte dos casos, os estudos destes catalisadores têm sido restritos a temperaturas de funcionamento na faixa de 300 a 600°C. Em temperaturas elevadas quando ocorre, por exemplo, durante o uso como catalisador secundário em usinas para a preparação de ácido nítrico, novos problemas surgem, especialmente estabilidade de sinterização insatisfatória e a tendência para que reações químicas ocorram entre o material de suporte e o componente ativo, como um resultado do qual o catalisador pode perder sua atividade

(desativação).

[0019] No caso específico do catalisador secundário (decomposição de N_2O na presença de NO_x , o produto alvo do processo), existe o outro requisito importante de seletividade da decomposição de N_2O sobre a decomposição de NO_x , que o catalisador tem que alcançar.

[0020] Um requisito adicional que o leito de catalisadores secundários tem que alcançar é um peso comparativamente baixo do leito, uma vez que somente um espaço limitado está disponível na usina e os componentes da usina podem ser tensionados para somente uma extensão limitada pelo peso do catalisador. Os pesos baixos do catalisador podem, em princípio, ser obtidos pelo uso de catalisadores tendo uma atividade elevada e/ ou densidade volumétrica baixa.

[0021] O objetivo no desenvolvimento de um catalisador secundário é, por conseguinte, descobrir um sistema material e um processo de produção, por meio dos quais, os desafios mencionados possam ser alcançados. Neste ponto, o uso de óxidos mistos contendo Co_3O_4 e/ ou Co (por exemplo, perovskitas da composição geral $La_{1-x}A_xCo_{1-y}B_yO_3$ em que $A = Sr, Ca, Ba, Cu, Ag$; $B = Fe, Mn, Cr, Cu$; $x = 0$ a 1 e $y = 0$ a $0,95$), os quais são excelentes com relação a sua atividade catalítica para a decomposição de N_2O , é particularmente problemático uma vez que a reação química irreversível de Co_3O_4 com muitos materiais de suporte, por exemplo, Al_2O_3 , quando ocorre em temperaturas acima de cerca de $900^\circ C$ conduz a uma perda de atividade catalítica.

[0022] WO-A-00/13.789 descreve um catalisador secundário compreendendo compostos de metal alcalinoterroso (de preferência MgO) como material de suporte. Isto tem a vantagem que MgO propriamente dito tem alguma atividade catalítica para a decomposição de N_2O e a proporção de componentes ativos caros pode, por esse motivo, ser reduzido. Uma desvantagem é que a seletividade não é 100% e NO_x é algumas vezes, da mesma forma, decomposto. Além disso, os testes a

longo prazo neste sistema de material sob condições realísticas mostram que, neste ponto também, íons de Co migram da fase ativa de Co_3O_4 dentro da treliça de MgO e um composto em estado sólido de $\text{Mg}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}$ é formado, o qual está associado à desativação do catalisador.

[0023] Um sistema de material similar compreendendo óxido de cobalto como componente ativo e óxido de magnésio como material de suporte é descrito em US-A-5.705.136. Neste ponto também, os problemas de estabilidade de sinterização insatisfatória na faixa de temperatura elevada são reconhecidos, a fim de que os catalisadores descritos neste documento sejam adequados para uso em temperaturas na faixa de 400 a 800°C, porém não para uso em temperatura elevada nas usinas de ácido nítrico.

[0024] As reações irreversíveis em estado sólido entre os óxidos de metais de transição e ZrO_2 são, da mesma forma, conhecidas, a fim de que o óxido de zircônio (mencionado como material de suporte em JP-A-48/089.185) seja da mesma forma excluído na faixa de temperatura elevada.

[0025] WO-A-02/02.230 reivindica um catalisador compreendendo $\text{Co}_{3-x}\text{M}_x\text{O}_4$ ($\text{M} = \text{Fe}, \text{Al}$ e $x = 0$ a 2) como componente ativo em um suporte de CeO_2 . No fato atual, a não reação entre o componente ativo e o material de suporte ocorre neste ponto em uma temperatura de uso de 900°C e a seletividade da reação catalítica é da mesma forma melhorada por CeO_2 . De qualquer modo, preço, disponibilidade e o peso tremendo são problemáticos para uso prático de um catalisador compreendendo um suporte sólido composto de CeO_2 .

[0026] Uma faixa mais ampla de materiais possíveis do catalisador está disponível para a eliminação de N_2O do gás de cauda de usinas de ácido nítrico por causa das temperaturas mais baixas do gás residual e conseqüentemente temperaturas de funcionamento. Além disso,

o requisito para a seletividade sobre outros óxidos de nitrogênio já não se aplica. De qualquer modo, existe em vez disso o novo problema da influência da desativação de NO_x na decomposição de N_2O .

[0027] Em Greenhouse Gas Control Technologies, Elsevier Science Ltd. 1999, pp. 343-348, F. Kapteijn e outros descrevem estruturas de hidrotalcita dopadas por ródio e cobalto como catalisadores ativos de N_2O em baixas temperaturas de funcionamento. Uma outra publicação muito detalhada pelo grupo de F. Kapteijn pode ser constatada em Applied Catalysis B: Environmental 23 (1999), pp. 59-72. A desvantagem das hidrotalcitas é explicitamente estabelecida em, por exemplo, EP-A-1.262.224: componentes de gás, tais como, oxigênio, água ou NO_x adversamente afetam a conversão de N_2O por catalisador. O emprego em gases residuais industriais verdadeiros é por esse motivo virtualmente excluído.

[0028] Atenção particular tem sido dada até este ponto, da mesma forma, para zeólitos. As espécies ativas, tais como, Fe, Cu ou Co, podem ser incorporadas dentro destes silicatos com estrutura microporosa por permuta de cátions ou mistura mecânica, que na combinação de componente ativo/ estrutura de poro produz muitos catalisadores ativos para a decomposição de N_2O . Por conseguinte, por exemplo, US-A-2003/0143142 descreve um zeólito contendo Fe o qual é empregado como catalisador terciário e não exhibe desativação por NO_x porém em vez disso a decomposição de N_2O sobre os catalisadores é até promovida pela presença de pequenas quantidades de NO_x . A desvantagem dos zeólitos é sua sensibilidade ao vapor de água presente no gás residual e sua limitada estabilidade térmica, a qual levando em conta a temperatura mínima requerida para a decomposição de N_2O , produz uma janela de temperatura limitada em que estes catalisadores de zeólito podem ser empregados.

[0029] Os catalisadores de metal nobre sustentados são da mes-

ma maneira adequados como catalisadores terciários, porém são muitas vezes tão caros quantos os catalisadores cerâmicos os quais são livres de metais nobres.

[0030] DE-A-100 06 103 descreve um catalisador terciário o qual é produzido por misturação mecânica de MgO e óxido de cobalto (de preferência Co_3O_4) ou por precursores destes óxidos por meio de prensagem a seco e subsequente tratamento térmico. Nas temperaturas para uso na faixa de 350 a 550°C, o problema de uma reação em estado sólido entre os dois óxidos não ocorre. De qualquer modo, estes catalisadores são constatados serem suscetíveis a NOx no gás residual. Embora a desativação a respeito da decomposição de N_2O a qual ocorre neste ponto seja reversível, esta reversão é difícil de executar sob condições industriais de uso.

[0031] É um objetivo da presente invenção fornecer catalisadores, os quais superam a maior parte dos problemas e desvantagens acima mencionadas. Os catalisadores de acordo com a invenção devem, da mesma forma, ser capazes de serem produzidos por um processo de produção muito flexível o qual torna possível que eles sejam empregados universalmente (ambos na faixa de temperatura elevada e na faixa de baixa temperatura) em usinas industriais em que os problemas com N_2O ocorrem. O uso de um material de suporte não caro deve tornar os catalisadores atrativos de um ponto de vista também econômico.

[0032] A presente invenção fornece catalisadores para a decomposição de N_2O em nitrogênio e oxigênio na fase gasosa, os quais compreendem um suporte poroso composto de policristalino ou material inorgânico vítreo compreendendo óxido de magnésio ou um óxido cerâmico misturado compreendendo pelo menos 50% em massa de óxido de magnésio, uma camada funcional de óxido de cério aplicada a este e uma camada de material contendo cobalto oxídico aplicada a

este.

[0033] Os catalisadores da invenção, por conseguinte, compreendem um suporte e uma pluralidade de camadas funcionais específicas aplicadas a estes.

[0034] Os suportes são principalmente suportes fabricados de óxidos inorgânicos, de óxidos inorgânicos misturados ou misturas de óxidos inorgânicos. Estes suportes podem ser produzidos por processos de sinterização e são, por conseguinte, porosos e policristalinos (daqui em diante também chamado de "cerâmico" ou "de cerâmica"). Os suportes podem também ser feitos de vidros porosos (fritas de vidro).

[0035] O suporte pode ser em princípio constituído por quaisquer materiais inorgânicos porosos inertes nas respectivas temperaturas de operação do catalisador ou de misturas de materiais inorgânicos porosos e inertes. Por razões de custos e pelo peso do catalisador, o óxido de cério não deve estar presente no suporte ou estar presente apenas em quantidades pequenas, por exemplo, até 10% em peso, com base no peso do suporte.

[0036] Preferência é dada para suportes cerâmicos.

[0037] Exemplos de materiais de suporte inorgânico adequados são óxidos do segundo grupo principal ou do quarto grupo de transição da tabela periódica dos elementos e também Al_2O_3 ou SiO_2 e combinações de dois ou mais destes óxidos.

[0038] O material de suporte empregado é óxido de magnésio MgO . Este pode ser óxido de magnésio puro ou um óxido misturado compreendendo pelo menos 50% em massa, de preferência pelo menos 80% em massa, de óxido de magnésio. Como contaminação natural ou como adição deliberada para melhorar as propriedades mecânicas, o óxido cerâmico misturado o qual é de preferência empregado pode compreender não somente MgO porém até 50% em massa, de preferência até 20% em massa, de outros óxidos inorgânicos, em par-

ticular SiO_2 , Al_2O_3 , CaO e/ ou Fe_2O_3 .

[0039] O óxido de magnésio é um material de suporte não caro, facilmente disponível e é por esse motivo particularmente preferido; da mesma forma tem, pelo menos na faixa de temperatura elevada, alguma atividade catalítica intrínseca para a decomposição de óxido nitroso..

[0040] O material de suporte ou o catalisador produzido a partir deste é na forma de corpos moldados de qualquer tamanho e geometria, de preferência geometrias as quais têm uma grande relação de área de superfície para volume e produzem uma queda de pressão muito pequena quando o gás sopra através dele.

[0041] Preferência é dada para os corpos moldados dos materiais de suporte e dos catalisadores em que a relação de área de superfície para volume é de $0,5$ a 10 mm^{-1} , em particular de 1 a 5 mm^{-1} .

[0042] As geometrias típicas são todas as geometrias conhecidas na catálise, por exemplo, cilindros, cilindros vazios, cilindros com multi-buracos, anéis, material esmagado, trilobulados ou estruturas em forma de favo.

[0043] Os corpos moldados de material de suporte podem ser produzidos por processos de formação conhecidos em cerâmica processando, por exemplo, prensagem a seco, granulação ou extrusão.

[0044] O uso é feito de material de suporte totalmente tratado com calor, isto é, de óxido de magnésio ou uma combinação de óxido de magnésio com outros óxidos de metal, ou de preferência um precursor deste óxido ou estes óxidos. No caso de um sal de magnésio, é possível empregar, por exemplo, carbonato de magnésio o qual é convertido dentro da forma oxídica somente durante o tratamento térmico subsequente. O uso de MgCO_3 é particularmente vantajoso na preparação de massa plástica para extrusão, uma vez que em comparação com MgO não tende a ser submetido à hidratação.

[0045] Além dos processos de produção de cerâmica, é também possível usar vidros finamente divididos e processá-los para formar corpos moldados porosos. Os processos para a produção de fritas de vidro são conhecidos por aqueles versados na técnica.

[0046] Para realizar a moldagem, a água e também os aditivos orgânicos e inorgânicos podem ser adicionados ao sólido, e no caso de processamento a seco algumas vezes, da mesma forma, pequenas quantidades de grafite.

[0047] Moldagem e qualquer secagem subsequente são seguidas pelo tratamento térmico.

[0048] O tratamento térmico dos corpos verdes para formar suportes porosos, por exemplo, suportes contendo Mg ocorre em temperaturas nas quais os constituintes inorgânicos do corpo verde sinterizam para formar o suporte poroso. As temperaturas de sinterização típica são acima de 900°C; porém as temperaturas de sinterização mais baixas são, da mesma forma, possíveis. Quando os sais de magnésio tais como carbonato de magnésio são empregados, a conversão completa em óxido de magnésio é assegurada acima de 900°C.

[0049] Preferência é dada para as temperaturas de sinterização na faixa de 1000 a 1300°C. Quando a temperatura de sinterização aumenta, a tendência do material de suporte inorgânico, em particular MgO, para suportar hidratação é reduzida e a resistência mecânica dos corpos moldados aumenta. Por outro lado, a porosidade aberta e, por conseguinte, a área de superfície interna do suporte poroso é diminuída.

[0050] A porosidade do suporte é crítica para a eficácia do catalisador. A porosidade é importante para a transferência de massa desimpedida, isto é, para o transporte de produtos e materiais de partida para e da superfície ativa, que é por sua vez um critério crítico, isto é, etapa de determinação de funcionamento, para a decomposição de

N₂O em elevadas temperaturas de funcionamento. A escolha do material de suporte pode, por conseguinte, ter uma influência crítica na atividade e na seletividade do catalisador acabado. A produção separada do suporte e da camada funcional de óxido de cério permite colocação ideal das propriedades desejadas, tal como, porosidade, morfologia e textura. Isto não é possível sem a separação do material de suporte e da camada funcional de óxido de cério.

[0051] A porosidade aberta dos suportes porosos é tipicamente na faixa de 20 a 60%, de preferência na faixa de 40 a 50%, com base no volume total do suporte cerâmico. Como uma pessoa versada na técnica saberá, a porosidade aberta é a proporção de poros no corpo moldado os quais são conectados a, pelo menos uma, superfície do corpo moldado.

[0052] O suporte poroso de preferência tem um volume total de abertura dos poros na faixa de 100 a 600 mm³/g e particularmente de preferência na faixa de 200 a 350 mm³/g.

[0053] O tamanho médio do poro do suporte poroso é tipicamente de 30 a 300 nm (determinado por porosimetria de mercúrio). A distribuição dos diâmetros do poro é de preferência bimodal, com os menores diâmetros do poro de preferência sendo na faixa de 20 a 50 nm e os maiores diâmetros do poro de preferência sendo na faixa de 200 a 400 nm.

[0054] A matriz da área de superfície específica do suporte poroso é de preferência na faixa de 1 a 200 m²/g e particularmente de preferência na faixa de 10 a 50 m²/g (medido pelo método BET).

[0055] A escolha da temperatura de sinterização em um caso individual na produção do suporte poroso é fabricada de acordo com a temperatura planejada para uso e outros requisitos os quais o catalisador tem que satisfazer no caso específico.

[0056] Além disso, o suporte cerâmico do catalisador da invenção

é revestido na superfície, primeiro com pelo menos uma camada funcional de óxido de cério e em seguida com pelo menos uma outra camada funcional compreendendo cobalto oxídico.

[0057] A estrutura de pelo menos três estágios do suporte poroso – camada funcional de óxido de cério – camada funcional compreendendo cobalto oxídico é um pré-requisito necessário para assegurar as propriedades desejadas do catalisador. A estrutura de multicamada dos catalisadores da invenção pode, por exemplo, ser estabelecida por meio de um microscópio eletrônico.

[0058] A camada intermediária de óxido de cério simultaneamente desempenha várias funções. Em primeiro lugar, quando empregada na faixa de temperatura elevada age como "barreira de difusão" para prevenir a reação em estado sólido entre o suporte poroso, em particular o suporte contendo MgO, e o componente ativo contendo Co, o qual conduziria para desativação do catalisador. Além disso, o óxido de cério propriamente dito tem uma, não obstante, pequena atividade catalítica intrínseca para a decomposição de N_2O e é da mesma forma capaz de melhorar a seletividade da decomposição de N_2O sobre a decomposição de NO_x na faixa de temperatura elevada. Na faixa de baixa temperatura (quando empregado como catalisador terciário), a camada de óxido de cério reduz a suscetibilidade do catalisador para NO_x no gás residual.

[0059] A camada funcional de óxido de cério pode ser óxido de cério puro, em particular CeO_2 , ou pode ser um óxido misturado contendo óxido de cério como condutor componente. Nos óxidos misturados típicos, até 50 % em mol, de preferência até 20 % em mol, dos íons de cério têm sido trocados por outros íons de metal, por exemplo, por íons do segundo grupo condutor da Tabela Periódica e/ ou os lantanídeos, em particular de Sr, Ca, Y, Sc, Sm, La e/ ou de Gd.

[0060] A camada funcional de óxido de cério pode de preferência

ser aplicada por impregnação.

[0061] Com esta finalidade, os suportes porosos sinterizados podem ser impregnados em uma solução aquosa de um sal de cério ou uma mistura de sal de cério e sais de outros metais, particularmente de preferência em uma solução de nitrato de Ce.

[0062] A absorção melhorada da solução pelo suporte explorando sua porosidade pode ser obtida pela aplicação de um vácuo.

[0063] A concentração e o volume das soluções de impregnação podem ser selecionados à vontade dependendo da quantidade de material a ser aplicado à camada funcional de óxido de cério.

[0064] O tempo de impregnação pode de preferência ser de 15 a 30 minutos. Tempos de impregnação mais longos ou mais curtos são da mesma maneira possíveis.

[0065] Após a impregnação, os suportes cerâmicos os quais atualmente têm sido revestidos ou infiltrados com os materiais para a formação da camada funcional de óxido de cério são ou somente secos ou então sinterizados.

[0066] Esta impregnação com materiais para a formação da camada funcional de óxido de cério pode, se necessário, ser repetida várias vezes. Os suportes, os quais anteriormente tinham sido revestidos com materiais para a formação da camada funcional de óxido de cério, podem ser submetidos ao mesmo procedimento várias vezes, por exemplo, de uma a três vezes mais. Isto aumenta a espessura da camada futura da camada funcional de óxido de cério.

[0067] Os efeitos positivos do óxido de cério na reação catalítica são aumentados, porém o custo da produção e o preço do catalisador são aumentados. No entanto, isto fornece a oportunidade de produção de um acendedor e catalisador de N_2O estável à sinterização que é em ordem de magnitude mais barato do que quando um suporte compacto de óxido de cério é empregado.

[0068] Após a produção da camada funcional de óxido de cério, o suporte cerâmico revestido é revestido por uma fase cataliticamente ativa compreendendo óxido de cobalto.

[0069] A fase compreendendo óxido de cobalto pode ser quaisquer materiais ativos compreendendo cobalto oxídico.

[0070] O composto de cobalto oxídico, ou se uma pluralidade de compostos de cobalto oxídico está presente pelo menos um destes, de preferência tem uma estrutura de espinélio ou perovskita. Os exemplos de compostos de cobalto os quais podem ser empregados de acordo com a invenção são Co_3O_4 ou óxidos misturados contendo cobalto, tal como, LaCoO_3 . O uso de compostos apropriadamente dopados, tais como, $\text{Cu}_x\text{Co}_{3-x}\text{O}_4$ ou $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CoO}_3$, em que x é um número real na faixa de 0,01 a 0,5, é da mesma forma possível de acordo com a invenção.

[0071] Em uma outra modalidade preferida, pelo menos parte do cobalto está presente no estado quimicamente trivalente. Nesta modalidade, o catalisador da invenção contém compostos de cobalto oxídico em que pelo menos 30% em peso, de preferência mais do que 50% em peso, dos átomos do Co estão presentes no estado quimicamente trivalente. O estado de oxidação do cobalto pode ser determinado por meio de espectroscopia de fotoelétrons (XPS).

[0072] Os componentes catalisadores essenciais, isto é, os materiais de suporte poroso, os compostos de óxido de cério e os compostos compreendendo cobalto oxídico, devem ter uma área de superfície específica muito elevada para obter uma atividade do catalisador muito elevada. A área de superfície específica do catalisador acabado está na faixa da área específica de superfície do suporte poroso. A área de superfície específica do catalisador acabado está de preferência na faixa de 5 a 150 m^2/g .

[0073] O revestimento com camadas compreendendo cobalto oxí-

dico é da mesma forma de preferência executado por impregnação.

[0074] Com esta finalidade, os suportes porosos os quais têm sido impregnados com sais de cério e pelo menos secos, porém de preferência calcinados, podem ser exagerados em uma solução aquosa de um sal de Co, de preferência nitrato de Co ou acetato de Co, ou em uma solução misturada contendo os cátions do óxido misturado desejado na relação estequiométrica.

[0075] A absorção melhorada da solução pelo suporte pode neste caso também ser obtida pela aplicação de um vácuo.

[0076] A concentração e o volume da solução de impregnação para os componentes ativos podem ser escolhidos livremente dependendo da quantidade de componente ativo que é para ser aplicada.

[0077] O tempo de impregnação pode de preferência ser de 15 a 30 minutos. Os tempos de impregnação mais longos ou mais curtos são da mesma maneira possíveis.

[0078] Esta impregnação com a solução de impregnação para o componente ativo pode, se necessário, ser repetida várias vezes.

[0079] Os suportes os quais tinham anteriormente sido revestidos com cobalto podem ser submetidos ao mesmo procedimento várias vezes, de preferência de uma a três outras vezes. Isto aumenta a espessura da camada futura da camada ativa compreendendo óxido de cobalto.

[0080] As camadas aplicadas de sais de Ce ou misturas de sal de Ce e sais de Co ou misturas de sal de Co podem ser aquecidas após cada impregnação.

[0081] De qualquer modo, secagem em temperaturas comparativamente baixas, por exemplo, em temperaturas de cerca de 200°C, é da mesma forma suficiente para fixar a camada aplicada.

[0082] Após a conclusão da última impregnação, o aquecimento final das camadas aplicadas pode ser executado.

[0083] A temperatura neste ponto é determinada principalmente pelo campo desejado de uso do catalisador.

[0084] No caso de um catalisador secundário, a temperatura de aquecimento tem que ser acima da temperatura de funcionamento posterior, isto é de modo geral acima 900°C.

[0085] Por outro lado, as camadas de um catalisador terciário podem ser aquecidas em temperaturas significativamente mais baixas, por exemplo, a 600°C.

[0086] O catalisador da invenção tem uma densidade volumétrica comparativamente baixa. É tipicamente até de 2 g/cm³, de preferência de 0,5 a 2 g/cm³, particularmente de preferência de 0,75 a 1,5 g/cm³. A densidade volumétrica é determinada por introduzir o catalisador dentro de um cilindro tendo um volume conhecido e determinando a massa do catalisador introduzido.

[0087] A proporção do suporte poroso, com base na massa total do catalisador, é de preferência pelo menos 85% em peso, particularmente de preferência de 90 a 95% em peso.

[0088] A proporção da camada funcional de óxido de cério, com base na massa total do catalisador, é de preferência de 2 a 14% em peso, particularmente de preferência de 5 a 10% em peso.

[0089] A proporção da camada funcional compreendendo cobalto oxídico, com base na massa total do catalisador, é de preferência de 0,1 a 5% em peso, particularmente de preferência de 1 a 5% em peso.

[0090] A invenção adicionalmente fornece um processo para a produção do catalisador acima descrito, o qual compreende as medições de:

i) produção de um suporte poroso composto de policristalino ou material inorgânico vítreo compreendendo óxido de magnésio ou um óxido cerâmico misturado compreendendo pelo menos 50% em massa de óxido de magnésio por sinterização de um corpo verde de

um modo conhecido por si próprio,

ii) impregnação única ou múltipla do suporte poroso obtida na etapa i) com uma solução contendo um sal de cério dissolvido,

iii) secagem e/ ou calcinação do suporte impregnado obtida na etapa ii) para produzir uma camada funcional de óxido de cério ou um precursor da camada funcional de óxido de cério,

iv) impregnação única ou múltipla do suporte revestido obtida na etapa iii) com uma solução contendo um sal de cobalto dissolvido e

v) secagem e/ ou calcinação do suporte impregnado obtida na etapa iv) para produzir uma camada funcional compreendendo cobalto oxídico ou um precursor de uma camada funcional compreendendo cobalto oxídico.

[0091] A composição do catalisador da invenção e a faixa de variação do processo de produção da invenção permitem uso flexível deste sistema de material como catalisador para a decomposição de N_2O em usinas ou processos em que o N_2O é formado. Estas podem ser usinas para produção industrial, usinas de incineração de resíduos, usinas de tratamento de água, turbinas de gás ou veículos a motor. No caso de usinas para a produção industrial, estas podem ser, em particular, usinas para a preparação de ácido nítrico ou de caprolactama em que o catalisador da invenção pode ser empregado ambos como catalisador secundário na faixa de temperatura elevada e como catalisador terciário na faixa de baixa temperatura; ou as usinas podem ser usinas para a preparação de ácidos carboxílicos polibásicos, em particular ácidos carboxílicos alifáticos polibásicos, muito particularmente de preferência ácido adípico, em que um precursor deste ácido é oxidado por meio de ácido nítrico.

[0092] A atividade catalítica para a decomposição de N_2O e, por conseguinte, a temperatura de funcionamento necessária do catalisa-

dor ou a temperatura de funcionamento predeterminedada pelo processo pode ser fixada através de pré-tratamento térmico do material de suporte que resulta em uma porosidade particular (= área de superfície interna), através de sua geometria (área de superfície externa) e através da variação da espessura da camada funcional de óxido de cério e/ ou da camada funcional de óxido de cobalto e por variação da temperatura de aquecimento para estas camadas.

[0093] Um dos pré-requisitos mais importantes para a estabilidade a longo prazo do catalisador da invenção é que as duas camadas funcionais de óxido de cério e óxido de cobalto sejam aplicadas em sequência e não simultaneamente (por exemplo, por impregnação com uma solução misturada de Ce-Co).

[0094] No caso de uma tal impregnação simultânea, como descrito em JP-A-48/089.185 para catalisadores com base em ZrO_2 , óxido de cério não pode agir como barreira de difusão e íons de cobalto seriam incorporados dentro do material de suporte cerâmico, por exemplo, dentro da treliça de MgO, em temperaturas relativamente elevadas, as quais conduziriam para a desativação do catalisador. A camada funcional de óxido de cério tem que ser fixada no suporte cerâmico por secagem, por exemplo, a cerca de 200°C, e/ou por aquecimento, por exemplo, a 500 - 1000°C, antes da aplicação da camada compreendendo óxido de cobalto.

[0095] Os catalisadores da invenção podem ser empregados em todos os processos em que a decomposição de óxido nitroso é necessária.

[0096] Os catalisadores da invenção são de preferência empregados em usinas industriais em que o óxido nitroso é formado, em usinas de incineração de resíduos, usinas de tratamento de água, turbinas a gás ou veículos a motor, particularmente de preferência em usinas para a preparação de caprolactama e em particular em usinas para a

preparação de ácido nítrico. Os catalisadores da invenção são muito particularmente de preferência empregados como catalisadores secundários ou como catalisadores terciários nas usinas de ácido nítrico ou em usinas para a preparação de caprolactama.

[0097] Quando empregados como catalisador terciário nas usinas de ácido nítrico ou usinas de caprolactama, os catalisadores da invenção são tipicamente empregados na faixa de temperatura de 300 a 700°C, de preferência de 400 a 700°C, em particular de 450 a 650°C. O catalisador terciário está de preferência posicionado entre torre de absorção e a turbina de gás de cauda, particularmente de preferência imediatamente a montante da turbina de gás de cauda. Em uma outra modalidade preferida de uso como catalisador terciário, o catalisador da invenção é empregado após um estágio anterior para reduzir o teor de NO₂; neste ponto, as concentrações iniciais de NO_x dentro do estágio a jusante são menores do que 200 ppm, de preferência menores do que 100 ppm e muito particularmente de preferência menores do que 50 ppm. Quando o catalisador da invenção é empregado como catalisador terciário, é de preferência empregado em pressões de 300 a 1500 KPa (3 a 15 bar) (absoluto), particularmente de preferência em pressões de 400 a 1200 KPa (4 a 12 bar) (absoluto). Quando empregado como catalisador terciário, o catalisador da invenção é de preferência empregado em velocidade de espaço de 2000 a 200 000 h⁻¹, particularmente de preferência em velocidades de espaço de 5000 a 100 000 h⁻¹ e muito particularmente de preferência em velocidades de espaço de 10 000 a 50 000 h⁻¹. Quando empregado como catalisador terciário, o catalisador da invenção é de preferência empregado em forma de favo ou empregado a fim de que o gás possa fluir através do mesmo lateralmente, por exemplo, em recipientes centrais.

[0098] Quando empregado como catalisador secundário nas usinas de ácido nítrico ou em usinas de caprolactama, os catalisadores da

invenção são tipicamente empregados na faixa de temperatura de 800 a 1000°C, de preferência de 850 a 950°C. O catalisador secundário está neste caso posicionado a jusante do catalisador para combustão de amônia e a montante da torre de absorção, particularmente de preferência entre o catalisador para combustão da amônia e o primeiro permutador de calor. Quando o catalisador da invenção é empregado como catalisador secundário, é de preferência empregado em velocidades de espaço de 10 000 a 300 000 h⁻¹, particularmente de preferência em velocidades de espaço de 20 000 a 200 000 h⁻¹, e muito particularmente de preferência em velocidades de espaço de 30 000 a 100 000 h⁻¹. Quando empregado como catalisador secundário, o catalisador da invenção é da mesma maneira de preferência empregado a fim de que ele produza uma queda de pressão muito baixa, por exemplo, na forma de um leito de cilindros vazios ou em forma de favo.

[0099] Os usos acima descritos são da mesma maneira matéria objeto da presente invenção.

[00100] Os seguintes exemplos ilustram a invenção sem restringi-los.

Produção do catalisador

Exemplo 1: Catalisador

[00101] Uma mistura de magnesita (MgCO₃) e pseudoboemita (AlO(OH)) foi plastificada e extrudada com sólido extrudado. O extrudado obtido foi cortado dentro de cilindros sólidos tendo um comprimento de 6 mm e um diâmetro de 4 mm e estes corpos verdes foram sinterizados a 1200°C durante duas horas. Isto produziu suportes cerâmicos tendo a composição de 0,95 mol de MgO e 0,05 mol de Al₂O₃. O volume do poro determinado por porosimetria de mercúrio foi de 350 mm³/g. O teor de abertura dos poros determinada por porosimetria de mercúrio foi de 58%.

[00102] 400 g destes suportes cerâmicos foram misturados com 400

ml de uma solução aquosa a 0,5 molar de nitrato de cério e tratados durante 30 minutos pela aplicação de um vácuo. Os suportes foram subsequentemente secos a 120°C durante duas horas e inflamados a 900°C durante duas horas. Isto produziu suportes cerâmicos impregnados com óxido de cério.

[00103] 400 g destes suportes cerâmicos os quais foram impregnados com óxido de cério foram misturados com 400 ml de uma solução aquosa a 0,5 molar de acetato de cobalto e tratados pela aplicação de um vácuo durante 30 minutos. A solução residual foi subsequentemente separada, os corpos moldados impregnados foram secos a 120°C durante duas horas e inflamados a 900°C durante duas horas. Isto produziu suportes cerâmicos os quais foram impregnados com óxido de cério e óxido de cobalto e cuja porosidade foi caracterizada como segue por porosimetria de mercúrio:

[00104] Volume do poro: 340 mm³/g

[00105] Teor de abertura dos poros: 52%.

Exemplo 2: Catalisador II

[00106] Uma mistura de magnesita (MgCO₃) e pseudoboemita (AlO(OH)) foi plastificada e extrudada com sólido extrudado. O extrudado obtido foi cortado dentro de cilindros sólidos tendo um comprimento de 6 mm e um diâmetro de 4 mm e estes corpos verdes foram sinterizados a 1200°C durante duas horas. Isto produziu suportes cerâmicos tendo a composição de 0,80 mol de MgO e 0,20 mol de Al₂O₃. O volume do poro determinado por porosimetria de mercúrio foi de 290 mm³/g. O teor de abertura dos poros determinada por porosimetria de mercúrio foi de 49%. Além disso, uma área de superfície BET de 19,5 m²/g foi determinada.

[00107] 400 g destes suportes cerâmicos foram misturados com 400 ml de uma solução aquosa a 0,5 molar de nitrato de cério e tratados durante 30 minutos pela aplicação de um vácuo. Os suportes foram

subsequentemente secos a 120°C durante duas horas e inflamados a 900°C durante duas horas. Isto produziu suportes cerâmicos impregnados com óxido de cério.

[00108] 400 g destes suportes cerâmicos os quais foram impregnados com óxido de cério foram misturados com 400 ml de uma solução aquosa a 0,5 molar de acetato de cobalto e tratados pela aplicação de um vácuo durante 30 minutos. A solução residual foi subsequentemente separada, os corpos moldados impregnados foram secos a 120°C durante duas horas e inflamados a 900°C durante duas horas. Isto produziu suportes cerâmicos os quais foram impregnados com óxido de cério e óxido de cobalto e cuja porosidade foi caracterizada como segue por porosimetria de mercúrio:

[00109] Volume do poro: 289 mm³/g

[00110] Teor de abertura dos poros: 42%

[00111] Além disso, uma área de superfície BET de 19,6 g/m² foi determinada.

Exemplo 3: Catalisador III

[00112] O procedimento para a produção do catalisador II foi repetido com a modificação que o suporte cerâmico, o qual foi impregnado com óxido de cério, foi impregnado duas vezes com a solução aquosa de acetato de cobalto. Com esta finalidade, os corpos moldados secos obtidos após a primeira impregnação com acetato de cobalto foram misturados mais uma vez com 400 ml da solução de acetato de cobalto a 0,5 molar e tratados durante 30 minutos pela aplicação de um vácuo. Os suportes foram subsequentemente secos a 120°C durante duas horas e inflamados a 900°C durante duas horas.

[00113] Isto produziu suportes cerâmicos os quais foram impregnados com óxido de cério e óxido de cobalto e cuja porosidade foi caracterizada como segue por porosimetria de mercúrio:

[00114] Volume do poro: 289 mm³/g

[00115] Teor de abertura dos poros: 48%.

[00116] Além disso, uma área de superfície BET de $19,6 \text{ g/m}^2$ foi determinada.

Exemplo 4: Catalisador IV

[00117] O procedimento para a produção do catalisador II foi repetido com a modificação que 400 g dos suportes cerâmicos os quais foram impregnados com óxido de cério foram misturados com 400 ml de uma solução aquosa a 0,25 molar de acetato de cobalto e tratados durante 300 minutos pela aplicação de um vácuo. A solução residual foi subsequentemente separada e os corpos moldados impregnados foram secos a 120°C durante duas horas e inflamados a 900°C durante duas horas. Isto produziu suportes cerâmicos impregnados com óxido de cério e óxido de cobalto.

Exemplo 5: Catalisador V

[00118] Uma mistura de magnesita (MgCO_3) e pseudoboemita (AlO(OH)) foi plastificada e extrudada com sólido extrudado. O extrudado obtido foi cortado dentro de cilindros sólidos tendo um comprimento de 6 mm e um diâmetro de 4 mm e estes corpos verdes foram sinterizados a 1200°C durante duas horas. Isto produziu suportes cerâmicos tendo a composição 0,8 mol de MgO e 0,2 mol de Al_2O_3 .

[00119] 400 g destes suportes cerâmicos foram misturados com 400 ml de uma solução aquosa a 0,5 molar de nitrato de cério e tratados durante 30 minutos pela aplicação de um vácuo. Os suportes foram subsequentemente secos a 120°C durante 30 minutos.

[00120] Este tratamento, em outras palavras impregnação com nitrato de cério e secagem a 120°C , foi repetido três vezes mais. De qualquer modo, no último estágio de impregnação os suportes cerâmicos foram secos a 120°C durante uma hora. Os suportes impregnados foram subsequentemente inflamados a 900°C durante duas horas. Isto produziu suportes cerâmicos impregnados com óxido de cério.

[00121] 400 g destes suportes cerâmicos, os quais foram impregnados com óxido de cério, foram misturados com 400 ml de uma solução aquosa a 0,5 molar de acetato de cobalto e tratados pela aplicação de um vácuo durante 30 minutos. A solução residual foi subsequentemente separada, os corpos moldados impregnados foram secos a 120°C durante 30 minutos.

[00122] Este tratamento, em outras palavras impregnação com acetato de cobalto e secagem a 120°C, foi repetido três vezes mais. De qualquer modo, no último estágio de impregnação os suportes foram secos a 120°C durante uma hora. O suporte impregnado foi subsequentemente inflamado a 900°C durante duas horas. Isto produziu suportes cerâmicos os quais foram impregnados com óxido de cério e óxido de cobalto e cuja porosidade foi caracterizada como segue por porosimetria de mercúrio:

[00123] Volume do poro: 204 mm³/g

[00124] Teor de abertura dos poros: 43%.

[00125] Além disso, uma área de superfície BET de 14,2 g/m² foi determinada.

Exemplo 6: Catalisador VI

[00126] Um material de suporte foi produzido como no caso do catalisador V. Os péletes sinterizados foram subsequentemente moídos para produzir um pó tendo tamanhos de partículas de menos do que ou igual a 250 µm.

[00127] 400 g deste pó de suporte cerâmico foram misturados com 400 ml de uma solução aquosa a 0,5 molar de nitrato de cério e tratados durante 30 minutos pela aplicação de um vácuo. O pó foi subsequentemente seco a 120°C durante 2 horas. Isto produziu pó de suporte cerâmico impregnado com óxido de cério.

[00128] 400 g deste pó de suporte cerâmico o qual foi impregnado com óxido de cério foram misturados com 400 ml de uma solução

aquosa a 0,5 molar de acetato de cobalto e tratados durante 30 minutos pela aplicação de um vácuo. A solução residual foi subsequentemente separada e o pó impregnado foi seco a 120°C durante 2 horas.

[00129] O pó foi prensado para produzir péletes e sinterizado a 600°C durante 2 horas. Os corpos sinterizados obtidos foram fragmentados para produzir grânulos tendo diâmetros na faixa de 2,0 a 2,5 mm. Isto produziu suportes cerâmicos os quais foram impregnados com óxido de cério e óxido de cobalto e cuja porosidade foi caracterizada como segue por porosimetria de mercúrio:

[00130] Volume do poro: 454 mm³/g

[00131] Teor de abertura dos poros: 57%.

[00132] Além disso, uma área de superfície BET de 40,3 g/m² foi determinada.

Exemplo 7: Catalisador VII

[00133] O procedimento para a produção do catalisador VI foi repetido com a modificação que o pó de suporte cerâmico o qual foi impregnado com óxido de cério foi impregnado com 400 ml de uma solução aquosa a 1,0 molar de nitrato de cobalto.

[00134] Isto produziu suportes cerâmicos os quais foram impregnados com óxido de cério e óxido de cobalto e cuja porosidade foi caracterizada como segue por porosimetria de mercúrio:

[00135] Volume do poro: 321 mm³/g

[00136] Teor de abertura dos poros: 42,5%.

[00137] Além disso, uma área de superfície BET de 31,1 g/m² foi determinada.

Exemplos de uso

Exemplos A1 a A7

[00138] A atividade dos catalisadores foi determinada em um reator de sílica fundido através do fluxo com controle programável de temperatura e com análise on-line. Com esta finalidade, um leito de, em cada

caso, 13,9 g do catalisador a ser examinado foi colocado em uma cordierita de malha fina em forma de favo e um gás de alimentação tendo as composições descritas abaixo, foi em cada caso passado através do reator em uma velocidade de espaço de $10\,000\text{ h}^{-1}$. A temperatura foi aumentada a uma taxa de aquecimento de 5 K/minuto de um valor inicial de 50°C a uma temperatura final de 900°C . A medição da temperatura foi executada no leito catalisador. Na saída do reator, o teor dos componentes seleccionados do gás foi determinado por espectroscopia IV.

[00139] As temperaturas em que 90% ou 100% da conversão (correspondente à sensibilidade do analisador IV) de N_2O foram obtidas são relatadas na seguinte tabela.

Exemplo	Catalisador	90% da conversão de N_2O em uma temperatura ($^\circ\text{C}$) de	100% da conversão de N_2O em uma temperatura ($^\circ\text{C}$) de
A1 ¹⁾	I	660	740
A2 ¹⁾	II	760	>900
A3 ¹⁾	III	810	>950
A4 ¹⁾	IV	785	>900
A5 ²⁾	V	590	680
A6 ²⁾	VI	560	600
A7 ²⁾	VII	495	560

¹⁾ Composição da alimentação: 84,66% de N_2

6,00% de O_2

0,20% de N_2O

9,0% de NO

0,14% de H_2O

²⁾ Composição da alimentação: 96,8% de N_2

2,50% de O_2

0,20% de N_2O

0,50% de H_2O

REIVINDICAÇÕES

1. Catalisador para a decomposição de N_2O em nitrogênio e oxigênio na fase gasosa, caracterizado pelo fato de que compreende um suporte poroso composto de material inorgânico policristalino ou vítreo compreendendo óxido de magnésio ou um óxido cerâmico misturado compreendendo pelo menos 50% em massa de óxido de magnésio, uma camada funcional de óxido de cério compreendendo óxido de cério ou óxidos misturados em que até 50 % em mol dos íons de cério têm sido trocados por outros íons de metal, aplicada a este e uma camada de material contendo cobalto oxídico aplicada a este.

2. Catalisador, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de que o óxido misturado cerâmico compreende, como contaminação natural ou como adição deliberada, não somente MgO , porém até 50% em massa, de preferência até 20% em massa, de outros óxidos inorgânicos, em particular SiO_2 , Al_2O_3 , CaO e/ ou Fe_2O_3 .

3. Catalisador, de acordo com a reivindicação 1 ou 2, caracterizado pelo fato de que a porosidade aberta do suporte poroso é na faixa de 20 a 60%, de preferência de 40 a 50%, com base no volume total do suporte poroso.

4. Catalisador, de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 3, caracterizado pelo fato de que o catalisador apresenta uma relação de área de superfície para volume de $0,5$ a 10 mm^{-1} , em particular de 1 a 5 mm^{-1} .

5. Catalisador de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 4, caracterizado pelo fato de que a camada de material compreendendo cobalto oxídico compreende óxido de cobalto ou óxidos misturados contendo cobalto, preferencialmente,

pelo menos um composto contendo cobalto oxídico apresentando uma estrutura de espinélio ou perovskita, ou a camada de material compreendendo cobalto oxídico compreende compostos

de cobalto em que pelo menos 30%, de preferência mais do que 50%, dos átomos de Co estão presentes no estado quimicamente trivalente.

6. Catalisador, de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 5, caracterizado pelo fato de que sua densidade volumétrica é de 0,5 a 2 g/cm³, de preferência de 0,75 a 1,5 g/cm³.

7. Catalisador, de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 6, caracterizado pelo fato de que a sua proporção de suporte poroso é pelo menos 85% em peso, sua proporção de camada funcional de óxido de cério é de 2 a 14% em peso e sua proporção de uma camada de material compreendendo cobalto oxídico é de 0,1 a 5% em peso, com as figuras sendo baseadas no peso total do catalisador.

8. Processo para a produção do catalisador, como definido na reivindicação 1, caracterizado pelo fato de que compreende as medidas de:

(i) produção de um suporte poroso composto de policristalino ou material inorgânico vítreo compreendendo óxido de magnésio ou um óxido cerâmico misturado compreendendo pelo menos 50% em massa de óxido de magnésio por sinterização de um corpo verde de um modo conhecido por si próprio,

(ii) impregnação única ou múltipla do suporte poroso obtida na etapa (i) com uma solução contendo um sal de cério dissolvido,

(iii) secagem e/ ou calcinação do suporte impregnado obtida na etapa (ii) para produzir uma camada funcional de óxido de cério ou um precursor da camada funcional de óxido de cério,

(iv) impregnação única ou múltipla do suporte revestido obtida na etapa (iii) com uma solução contendo um sal de cobalto dissolvido, e

(v) secagem e/ ou calcinação do suporte impregnado obtida na etapa (iv) para produzir uma camada funcional compreendendo cobalto oxídico ou um precursor de uma camada funcional compreen-

dendo cobalto oxídico.

9. Processo, de acordo com a reivindicação 8, caracterizado pelo fato de que óxido de magnésio ou uma combinação de óxido de magnésio com outros óxidos inorgânicos ou preferencialmente um precursor de óxido de magnésio ou outros destes óxidos inorgânicos é empregado na etapa (i), com carbonato de magnésio, ainda mais preferencialmente, sendo empregado como precursor de óxido de magnésio.

10. Processo, de acordo com a reivindicação 8 ou 9, caracterizado pelo fato de que a sinterização do corpo verde na etapa (i) é executada em temperaturas na faixa de 1000 a 1300°C .

11. Processo, de acordo com qualquer uma das reivindicações 8 a 10, caracterizado pelo fato de que o nitrato de Ce é empregado como sal de cério na etapa (ii)

12. Processo, de acordo com qualquer uma das reivindicações 8 a 11, caracterizado pelo fato de que o nitrato de Co ou acetato de Co é empregado como sal de cobalto na etapa (iv).

13. Emprego do catalisador, como definido em qualquer uma das reivindicações 1 a 7, caracterizado pelo fato de que é para a decomposição de óxido nitroso em gases, em particular em gases residuais ou gases de processo, ainda mais particularmente, em usinas para a produção industrial, em usinas de tratamento de água, em usinas de incineração de resíduos, em turbinas de gás ou em veículos a motor.

14. Emprego, de acordo com a reivindicação 13, caracterizado pelo fato de que a usina para a produção industrial é uma usina para preparação de caprolactama, uma usina para preparação de ácido nítrico ou uma usina para preparação de ácidos carboxílicos poliácidos por oxidação por meio de ácido nítrico.

15. Emprego, de acordo com a reivindicação 14, caracteri-

zado pelo fato de que o catalisador é empregado como catalisador secundário nas usinas de ácido nítrico ou em usinas de caprolactama em temperaturas de 800 a 1000°C, de preferência de 850 a 950°C.

16. Emprego, de acordo com a reivindicação 14, caracterizado pelo fato de que o catalisador é empregado como catalisador terciário nas usinas de ácido nítrico ou nas usinas de caprolactama em temperaturas de 300 a 700°C, de preferência de 400 a 700°C, em particular de 450 a 650°C.