

308550

(由本局填寫)

|           |
|-----------|
| 承辦人代碼：    |
| 大類：       |
| I P C 分類： |

A6

B6

本案已向：

日本 國(地區) 申請專利，申請日期：1994.3.7 案號：特許願6-35,816 ☒有 ☐無主張優先權

有關微生物已寄存於：

，寄存日期：

，寄存號碼：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

訂

線

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

## 五、發明說明(1)

本發明係關於可將由例如垃圾焚化爐等出來之含有一氧化二氮之氣體，有效率地予以除去之一氧化二氮之除去方法。

一氧化二氮( $N_2O$ )發生於在焚化爐或鍋爐等之燃燒時，雖與其氣體一齊被排出，但因其排出量少且不構成酸雨等之原因，故迄今並不太受注目，而一直被直接排出。但因一氧化二氮為具有150年以上壽命之安定之化合物，大氣中之一氧化二氮濃度最近數年來呈現顯著之增加，且近年之研究發現一氧化二氮為溫暖化氣體，且為臭氧層破壞之原因。因此，將焚化爐等之排放氣體中之一氧化二氮除去對於地球環境之保護具重要性。

如上述，一氧化二氮為比較安定之化合物，缺乏與其他化合物之反應性。因此，在將焚化爐等之排放氣體中之一氧化二氮除去之場合，無法如除去氯化氫( $HCl$ )或硫磺氧化物( $SO_x$ )之場合般利用投入中和劑之方式。又，使用於通常之氮氧化物( $NO_x$ )之分解的五氧化二釩( $V_2O_5$ )系脫磷觸媒，對於氧化氮( $NO$ )、二氧化氮( $NO_2$ )雖呈現優越之活性，但對一氧化二氮則不呈現活性。因此，欲除去一氧化二氮並無法利用習知技術。

因此，在日本特開昭60-22922號公報中揭示了使用氨為還原劑而將一氧化二氮還原分解之方法。而在日本特開平4-363143號公報中，揭示了使用沸石系之觸媒直接分解一氧化二氮之方法。但是，依前者之方法，由於須要過剩之氨，未反應之氨被放散至大氣中，為其問題。又，依後

## 五、發明說明(2)

者之方法，由於觸媒之活性低，必須有較高之反應溫度，此為其問題。又，不管採何一方法，均因其觸媒調製花費之成本高，故因觸媒劣化等而須更換觸媒層等之營運成本亦高，此亦為其問題。

又，在  $\text{NO}_x$  與  $\text{SO}_x$  及水分之共存下，會產生一氧化二氮，故一氧化二氮之除去宜在除去  $\text{NO}_x$  與  $\text{SO}_x$  後為之。但是，在習用之觸媒，由於須要非常高之反應溫度，故難以在例如脫硝觸媒以下游處設置一氧化二氮分解用之觸媒層。

又，在現狀之排放氣體處理系統難以完全除去  $\text{SO}_x$ 。因此，雖謂是脫硫處理後之排放氣體亦含微量之  $\text{SO}_x$ ，在眾多之沸石系觸媒，發生構造受破壞等之損害，活性降低等之問題。似此，關於排放氣體中之一氧化二氮之除去，迄今為止並無令人滿意之方法。

本發明係為解決以往之問題點，其目的在提供一種一氧化二氮之除去方法，其可不受共存物質之影響，以低成本並確實地除去氣體中之一氧化二氮。

為解決上述問題，而提出之第1之發明的特徵係在反應溫度  $250^\circ\text{C}$  以上，更佳為  $350^\circ\text{C}$  以上，使氣體和以氧化錫(IV) ( $\text{SnO}_2$ ) 為主成分之觸媒層相接觸，不必特別使用還原劑即可將氣體中所含之一氧化二氮直接分解。又，第2之發明，係為使氣體與觸媒層接觸而除去氣體中之一氧化二氮的氣體處理方法；其特徵為在以氧化錫(IV) ( $\text{SnO}_2$ ) 為主成分之觸媒中添加有鈷化合物(II) ( $\text{CoO}$ ) 作為助觸媒，

### 五、發明說明( 3 )

令此觸媒在  $200^{\circ}\text{C}$  以上，更佳為  $300^{\circ}\text{C}$  以上之反應溫度，與排放氣體相接觸，而將一氧化二氮直接分解。

依本發明，係令氣體接觸以氧化錫為主成分之觸媒層，而將一氧化二氮分解。

如前述，在  $\text{NO}_x$  與  $\text{SO}_x$  及水分共存下，會產生一氧化二氮，故宜在除去  $\text{NO}_x$  與  $\text{SO}_x$  後，再使排放氣體接觸觸媒層。在本發明中所使用之觸媒，其反應溫度為  $250^{\circ}\text{C}$  以下，更佳為  $350^{\circ}\text{C}$  以上。又，於在以氧化錫(IV)為主成分之觸媒添加鈷化合物(II)作為助觸媒之場合，在反應溫度  $200^{\circ}\text{C}$  以上，更佳為  $300^{\circ}\text{C}$  以上令其接觸，可有效地分解一氧化二氮。

又，在通常之排放氣體處理系統，於脫硫處理後仍有殘留  $\text{SO}_x$  存在，但本發明之氧化錫觸媒，則不受損害，故在  $\text{SO}_x$  濃度高之排放氣體中亦不致喪失其活性。又，作為觸媒原料，氧化錫和白金或鉑等相較，其觸媒調製成本遠更為低廉，故可使觸媒更換等之管運成本減小。

關於在氧化錫(IV)添加作為助觸媒之鈷化合物，可考慮者有醋酸鈷、硝酸鈷等，雖然在燒成溫度等有差異，但可發揮大致相同之效果。由於此觸媒此單純錫或鈷之場合，反應活性顯著提高，故吾人推測係在燒成時，由於錫和鈷的相互作用而造成原子排列發生變化等情形。又，關於鈷化合物之添加量，在以氧化錫(IV)為100重量%之場合，用  $\text{CoO}$  換算，宜為  $0.5 \sim 5$  重量%，更佳為  $1 \sim 3$  重量%。

在本發明中，成為問題之  $\text{N}_2\text{O}$ ，於低溫燃燒時，或燃

## 五、發明說明(4)

1 燒物中含有多量氮之場合經常發生。因此，含有 $N_2O$ 之排放氣體多發生於污泥焚化爐或鍋爐微碳粉燃燒爐等，本發明之一氧化二氮之除去方法特別適合於此等場合。

5 本發明之方法中所使用之觸媒層，係例如依下述方式製造。

關於觸媒之製法，於實驗室水準之小規模之場合，係僅以氧化錫形成。於此場合，利用氧化錫粉末加壓形成為小粒狀，將其粉碎後整粒成28~48網目者，於500~700℃下，將此施以燒成3至6小時，使成為既定形狀之觸媒層。在添加鈷作為助觸媒之場合，於使醋酸鈷溶解於懸浮有氧化錫粉末之水漿中後，令其乾燥，所得之粉末依同樣之步驟製成既定形狀之觸媒層。於載持於氧化鈦上之場合，在將氧化鈦粉末投入於氯化錫之乙醇溶液後，令其乾燥，利用所得之粉末依同樣步驟製成既定形狀之觸媒層。

15 在應用於實際焚化爐等之場合，係令氧化鈦製之蜂巢狀之載體沈入浸滲於氯化錫之乙醇溶液中，將令其乾燥而得之物在500~700℃下施行燒成3至6小時。在載持鈷作為助觸媒之場合，令其浸漬浸滲於氯化錫之乙醇溶液中，在使其乾燥後，令其浸漬浸滲於醋酸鈷水溶液中，將令其乾燥而得之物在500~700℃下施行燒成3至6小時。

20 依本發明，藉由令氣體與以氧化錫為主成分之觸媒層相接觸之方式，不必使用還原劑，即可以良好之效率，將包含於由各種爐排出之氣體中之一氧化二氮除去。由於氧化錫觸媒價廉且易於處理，故可降低營運成本。又，由於

## 五、發明說明( 5 )

與習用之觸媒相較，可降低反應溫度，故在除去 $\text{NO}_x$ 與 $\text{SO}_x$ 後，可除去一氧化二氮。又，若在以氧化錫為主成分之觸媒添加鈷化合物作為助觸媒，則與單純之氧化錫之場合相較，可在較低溫下得到良好之一氧化二氮除去效果。

(圖式之簡單說明)

圖1為顯示本發明之實施例中所使用之裝置之剖視圖。

圖2為顯示在實施例1中之反應溫度與一氧化二氮除去率之關係的線圖。

圖3為顯示在實施例2中之反應溫度與一氧化二氮除去率之關係的線圖。

圖4為顯示在實施例3中之反應溫度與一氧化二氮除去率之關係的線圖。

圖5為顯示在實施例4中之反應溫度與一氧化二氮除去率之關係的線圖。

圖6為顯示在實施例5中之反應溫度與一氧化二氮除去率之關係的線圖。

圖7為顯示在實施例6中之反應溫度與一氧化二氮除去率之關係的線圖。

(用以實施發明之最佳形態)

以下，顯示用以確認本發明之效果的實驗之結果。

[實施例1]

對單純之氧化錫之性能予以評價之實驗，係如圖1所示，令由氣體控制單元1所調製之氣體通過玻璃製反應管

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

## 五、發明說明( 6 )

2 中之觸媒充填層 3，然後經保溫用帶式加熱器 4，通入冰浴式水分除去閘 5，將水分除去，用裝備有熱傳導度感測器之氣體色譜裝置，以成分分析之方法施行之。受調製之氣體組成為  $N_2O: 1\%$ ， $O_2: 8\%$ ，剩下部分為 He。玻璃製反應管 2 被置於反應管加熱用砂流動層 7 之內部，在  $150 \sim 550^\circ C$  被加熱。又，分離用柱係使用充填 Porapak type Q 作為二氧化碳及一氧化二氮用，及充填 Molecular sieve 13X 作為其他之成分用者。

觸媒則使用將市販之氧化錫粉末予以加壓形成，使成小粒狀，將此粉碎，整粒成 24~48 網目者。又關於前處理則採用將裝入於玻璃製反應管 2 內之觸媒在  $500^\circ C$  施以燒成 2 小時，再自然冷卻而得者。

實驗之結果，係如圖 2 所示者，在反應溫度為  $250^\circ C$  以上可除去一氧化二氮，若反應溫度在  $300^\circ C$  以上，則一氧化二氮之除去率急劇升高，特別是在  $350^\circ C$  以上，經確認可完全除去一氧化二氮。

## [ 實施例 2 ]

對於在氧化鈦製之觸媒層載持有氧化錫的觸媒，依和實施例 1 同樣之評價方法進行評價實驗。觸媒係使用下述者，亦即將市販之氧化錫溶解於乙醇中，再加入氧化鈦粉末使作為漿狀，在減壓蒸餾除去後施以加壓形成使成小粒狀，將此弄碎，再整粒成 24~48 網目者。又，關於前處理則採用將裝入於玻璃製反應管 2 內之觸媒在  $500^\circ C$  施以燒成 2 小時，再自然冷卻而得者。

## 五、發明說明( 7 )

實驗之結果，係如圖 3 之線圖所示者，在反應溫度為 250℃ 以上可除去一氧化二氮，若反應溫度在 300℃ 以上，則一氧化二氮之除去率急劇升高，特別是在 350℃ 以上，經確認可完全除去一氧化二氮。

### [ 實施例 3 ]

對於在氧化鈦製之觸媒層載持有氧化錫之場合之評價實驗，利用由污泥焚化爐排出之氣體施行之。此排放氣體為施行濕式脫硫處理後之排放氣體，主成分為氮氣、氧氣、水分、二氧化碳等，並包含殘留 SO<sub>2</sub>、氯化氫、一氧化碳、碳氫化合物等。關於觸媒，係採用令市販之氧化錫溶解於乙醇，使此溶液浸滲於氧化鈦製之觸媒層，在 500℃ 下施以 6 小時之燒成而得者。

實驗之結果，係如圖 4 之線圖所示者，在反應溫度為 250℃ 以上可除去一氧化二氮，若反應溫度在 300℃ 以上，則一氧化二氮之除去率升高，尤其在 400℃ 以上，經確認可完全除去一氧化二氮。又，經確認採此方式並不太受排放氣體中之其他共存物質之影響。

### [ 實施例 4 ]

對於在氧化錫添加有鈷化合物之觸媒之性能評價的實驗，依和實施例 1 同樣之評價方法施行之。觸媒係使用下述者。亦即將市販之氧化錫粉末投入蒸餾水中使成漿狀，於此添加 1% 之醋酸鈷作為助觸媒，在減壓蒸餾除去後施以加壓形成使成小粒狀，將此弄碎，再整粒成 24~48 網目者。又，關於前處理係採用將裝入於玻璃製反應管 2 內之

## 五、發明說明( 8 )

觸媒在 550℃ 施以燒成 2 小時，再予以自然冷卻而得者。

實驗之結果，係如圖 5 之線圖所示者，經確認在反應溫度為 200℃ 以上，一氧化二氮之除去率升高，尤其在 300℃ 以上可將一氧化二氮完全除去。因此，藉由添加鈷化合物之方式，可提高觸媒之活性，經確認與無添加之場合相較，具有約 50℃ 之反應溫度降低效果。

### [ 實施例 5 ]

於氧化錫添加有醋酸鈷後載持於氧化鈦製的觸媒之評價實驗，依和實施例 2 同樣之評價方法施行之。觸媒係使用下述者，亦即為市販之氧化錫溶解於乙醇中，再加入氧化鈦粉末使成漿狀，將減壓蒸餾除去者再度投入蒸餾水中使成漿狀，於此添加 1% 之醋酸鈷作為助觸媒，在減壓蒸餾除去後施以加壓形成使成小粒狀，將此弄碎，再整粒成 24~48 網目者。又，關於前處理係採用將裝入於玻璃製反應管 2 內之觸媒在 550℃ 施以燒成 2 小時，再予以自然冷卻而得者。

實驗之結果，係如圖 6 之線圖所示者，經確認在反應溫度為 200℃ 以上，一氧化二氮之除去率升高，尤其在 300℃ 以上可將一氧化二氮完全除去。因此，藉由添加鈷化合物之方式，可提高觸媒之活性，經確認與無添加之場合相較，具有約 50℃ 之反應溫度降低效果。

### [ 實施例 6 ]

於氧化錫添加有醋酸鈷後載持於氧化鈦製之觸媒層之場合之評價實驗，依和實施例 3 同樣之評價方法施行之。

## 五、發明說明(9)

1 觸媒係採用下述者，亦即將市販之氯化錫溶解於乙醇，令此溶液浸滲於氧化鈦製之觸媒層，再使醋酸鈷水溶液浸滲之，在550℃施行6小時之燒成而得者。

5 實驗之結果，係如圖7所示，經確認在反應溫度為200℃以上，一氧化二氮之除去率升高，尤其在350℃以上可將一氧化二氮完全除去。因此，藉由添加鈷化合物之方式，可提高觸媒之活性，經確認與無添加之場合相較，具有約50℃之反應溫度降低效果。又經確認，採此方式，並不太受排放氣體中之其他共存物質之影響。

10 本發明之一氧化二氮之除去方法，可應用於將由污泥焚化爐或鍋爐微碳粉燃燒爐等排出之一氧化二氮有效地予以除去。

## 符號說明

1 ~ 氣體控制單元

15 2 ~ 玻璃製反應管

3 ~ 觸媒充填層

4 ~ 保溫用帶式加熱器

5 ~ 冰浴式水分除去閘

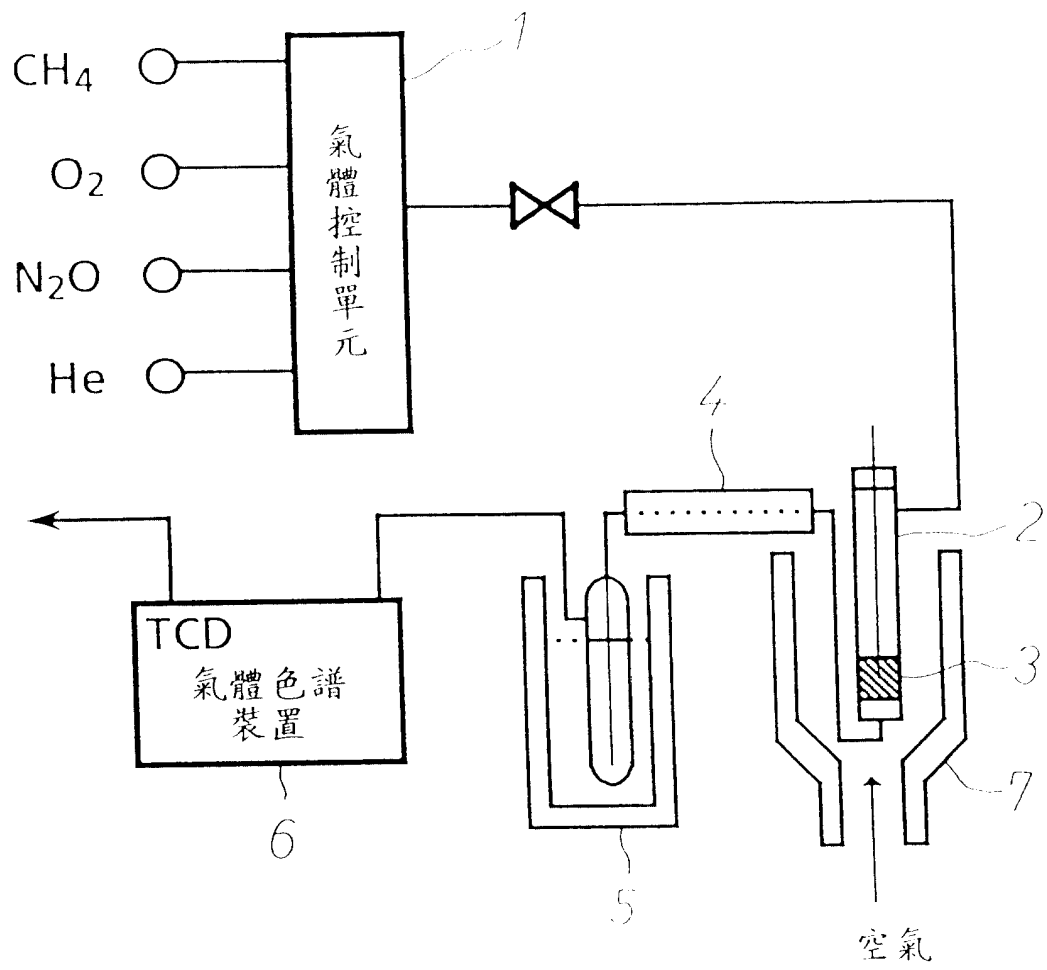
6 ~ 氣體色譜裝置

20 7 ~ 反應管加熱用砂流動層

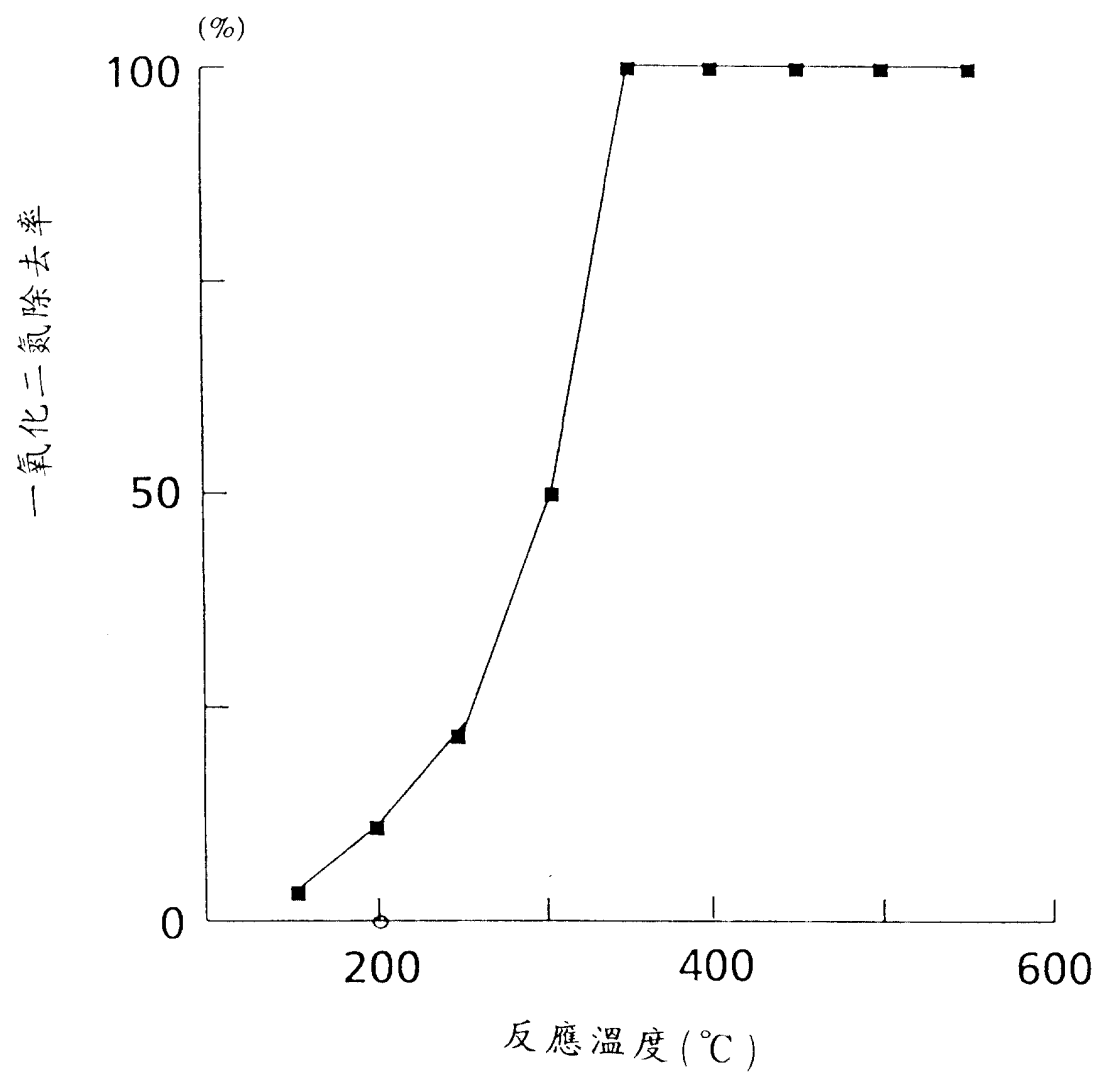
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

84102162

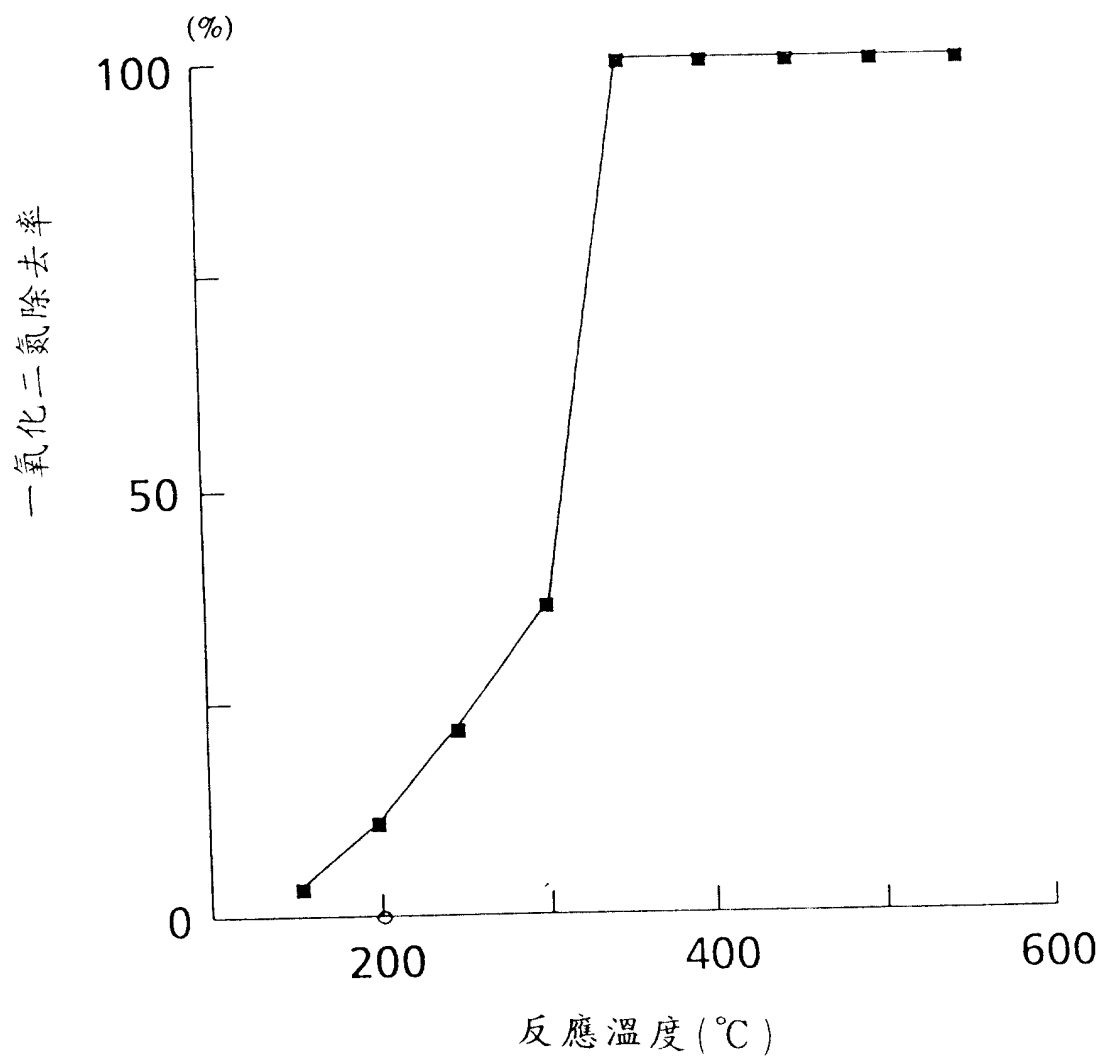


第 1 圖

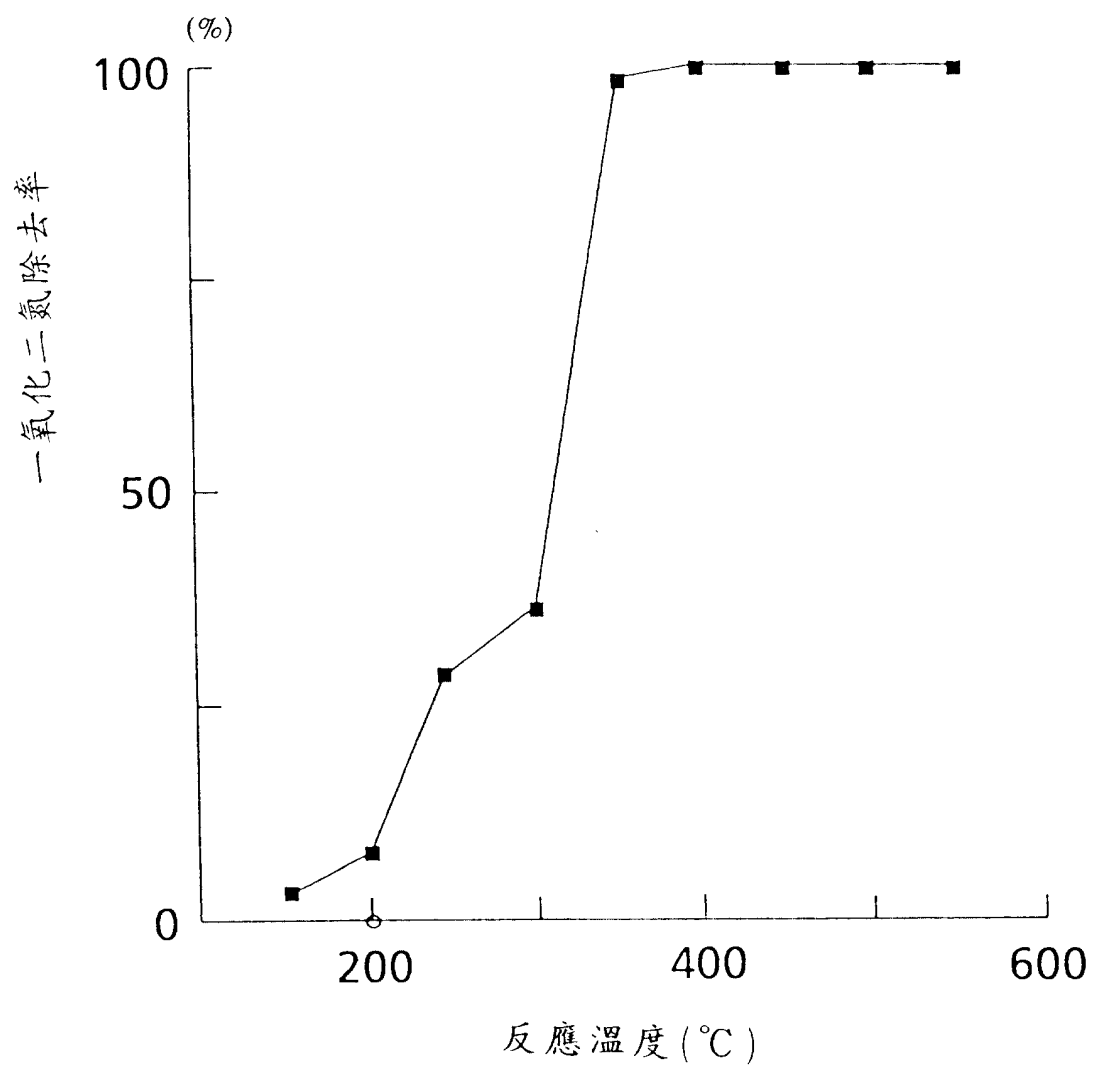


第 2 圖

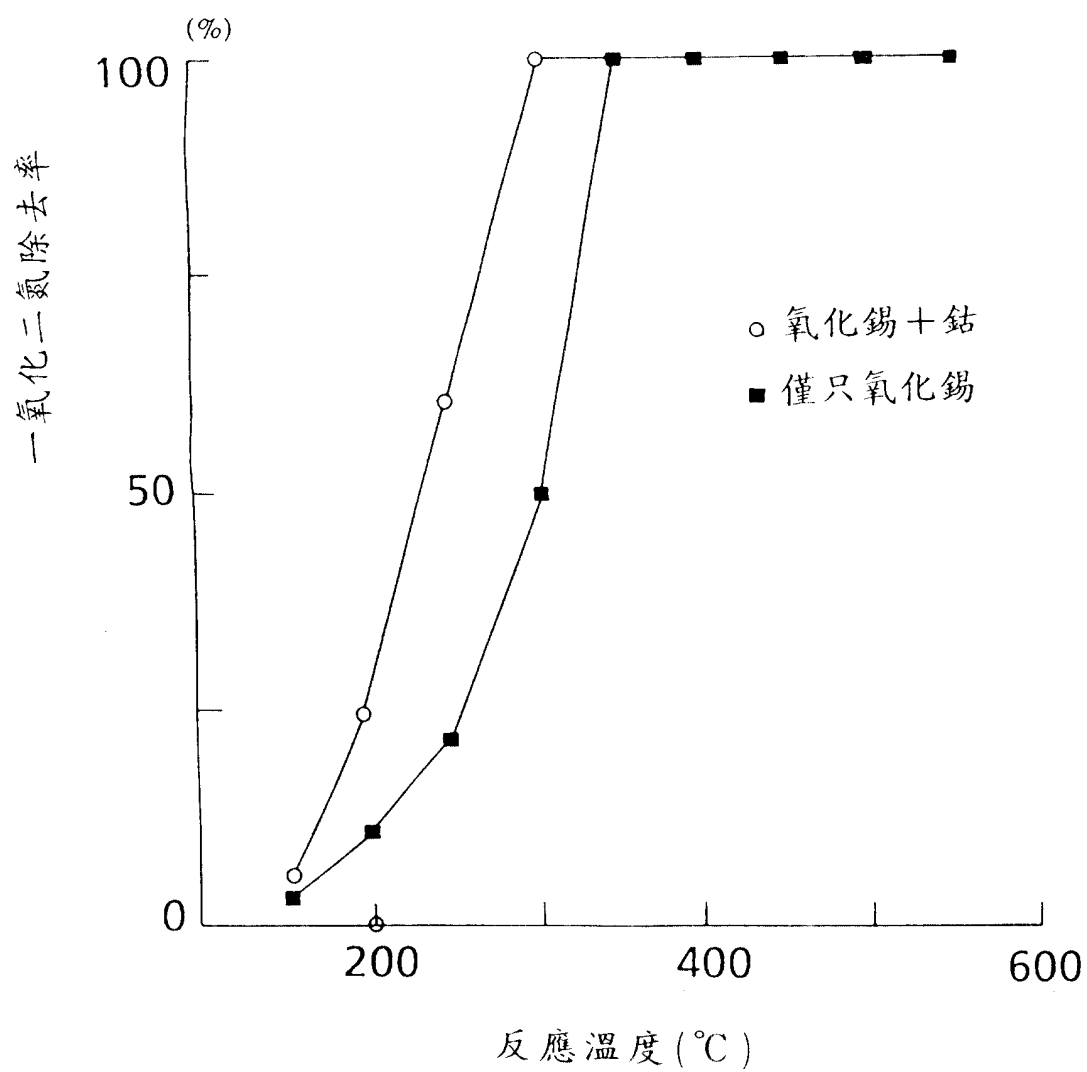
308550



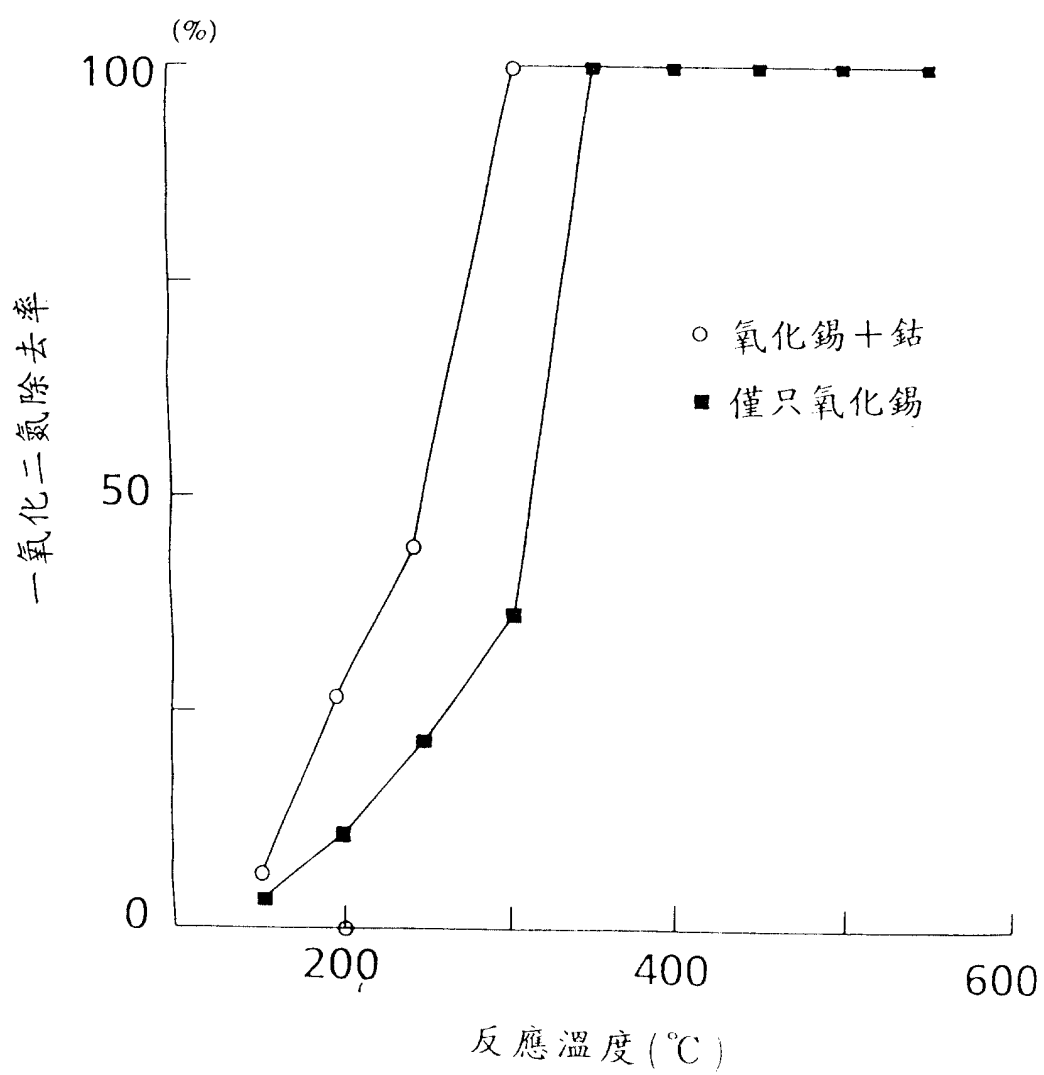
第 3 圖



第 4 圖

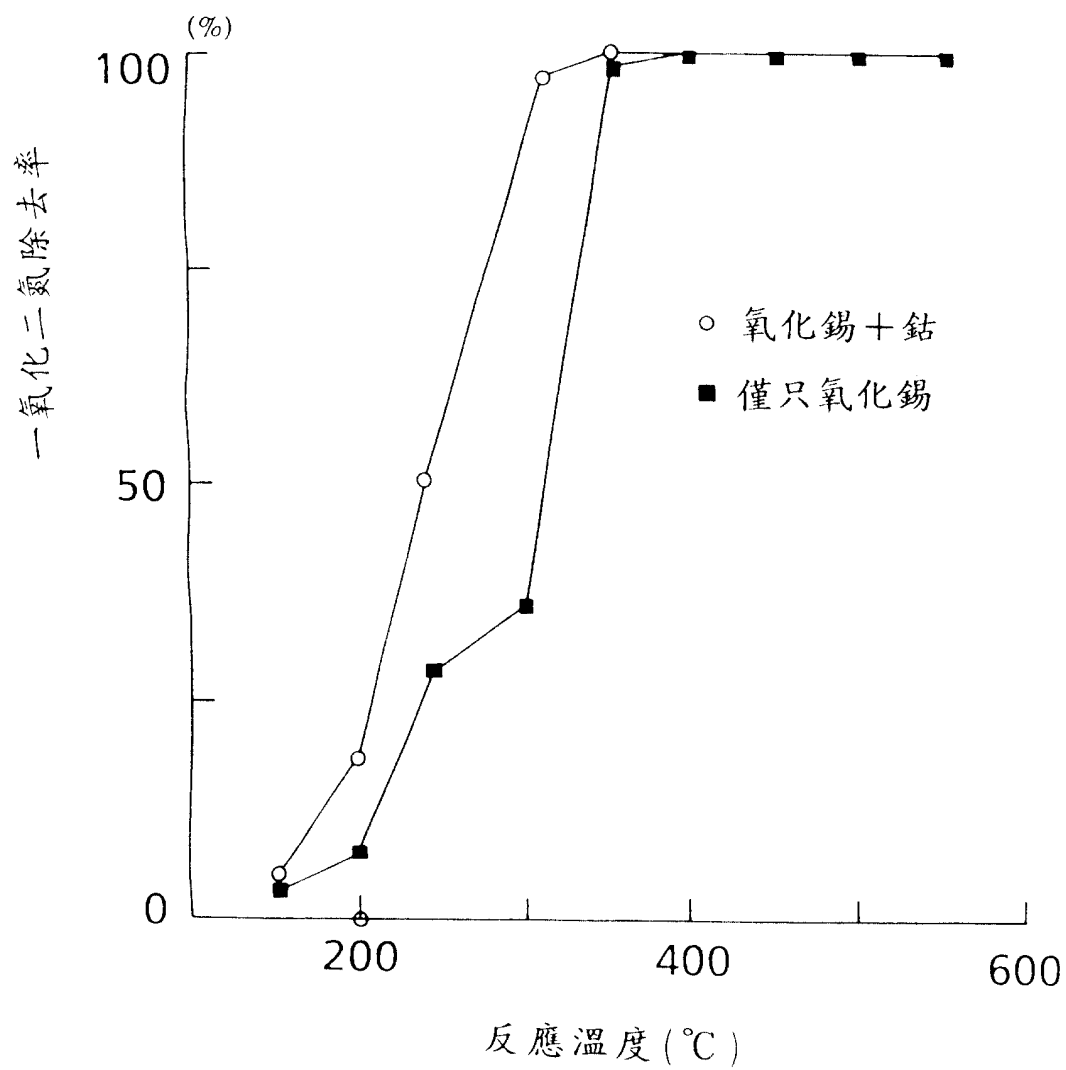


第 5 圖



第 6 圖

308550



第 7 圖

公告本

308550

修正  
84年10月3日  
補充

|      |           |
|------|-----------|
| 申請日期 | 84. 3 7   |
| 案 號  | 84102162  |
| 類 別  | B-10 5/00 |

A4  
C4 308550

Int. Cl<sup>6</sup>

(以上各欄由本局填註) 第84102162號說明書修正頁 修正日期: 84.10.23

# 發明專利說明書

|            |               |                                                                  |
|------------|---------------|------------------------------------------------------------------|
| 一、發明<br>名稱 | 中 文           | 一 氧 化 二 氮 之 直 接 分 解 方 法                                          |
|            | 英 文           |                                                                  |
| 二、發明<br>人  | 姓 名           | 1. 村上 雄一<br>2. 服部 忠                                              |
|            | 國 籍           | 日 本                                                              |
|            | 住、居所          | 1. 日本國愛知縣名古屋市天白區梅丘3丁目501番地<br>2. 日本國愛知縣名古屋市千種區若水2丁目2番地若水住宅1棟16號室 |
|            |               |                                                                  |
| 三、申請人      | 姓 名<br>(名稱)   | 1. 村上 雄一<br>2. 日本碍子股份有限公司                                        |
|            | 國 籍           | 日 本                                                              |
|            | 住、居所<br>(事務所) | 1. 日本國愛知縣名古屋市天白區梅丘3丁目501番地<br>2. 日本國愛知縣名古屋市瑞穗區須田町2番56號           |
|            | 代 表 人<br>姓 名  | 2. 柴田 昌治                                                         |

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

裝  
訂  
線

## 四、中文發明摘要(發明之名稱：一氧化二氮之直接分解方法)

本發明提供一種一氧化二氮之直接分解方法，其係在250℃以上，較佳為350℃以上之反應溫度，使氣體和以氧化錫(IV)為主成分之觸媒層接觸，將氣體中所含之一氧化二氮直接分解。特別在觸媒層中添加有鈷化合物(II)之場合，令其反應溫度在200℃以上，較佳為300℃以上，使其與氣體接觸，俾能較有效地減少一氧化二氮。依本方法，可將以往無法有效除去之一氧化二氮，以低成本確實地除去。本方法可應用於將由污泥焚化爐、鍋爐微碳粉燃燒爐等排出之排放氣體中之一氧化二氮除去。

## 英文發明摘要(發明之名稱：)

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

訂

線

## 六、申請專利範圍

1. 一種一氧化二氮之直接分解方法，其係為使氣體與觸媒層接觸而除去氣體中之一氧化二氮的氣體處理方法；

其特徵為：

在以氧化錫(IV)為主成分而構成觸媒層之觸媒，添加有鈷化合物(II)作為助觸媒，在200℃以上之反應溫度令排放氣體與該觸媒接觸，將一氧化二氮直接分解。

2. 如申請專利範圍第1項所述之一氧化二氮之直接分解方法，其中，反應溫度在300℃以上。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

封