

(19) DANMARK



(12) FREMLÆGGELSESSKRIFT (11) 145968 B

DIREKTORATET FOR
PATENT- OG VAREMÆRKEVÆSENET

(21) Ansøgning nr. 1071/76

(51) Int.Cl.³ B 01 J 8/02

(22) Indleveringsdag 12. mar. 1976

// B 01 D 53/36

(24) Løbedag 12. mar. 1976

(41) Alm. tilgængelig 22. sep. 1976

(44) Fremlagt 2. maj 1983

(86) International ansøgning nr. -

(86) International indleveringsdag -

(85) Videreførelsesdag -

(62) Stamansøgning nr. -

(30) Prioritet 21. mar. 1975, 2512409, DE

(71) Ansøger DIDIER ENGINEERING GMBH, D-43 Essen, DE: BAYER AKTIENGESSELL=
SCHAFT, D-5090 Leverkusen, DE.

(72) Opfinder Rudolf Divivier, DE: Gotthard Uckert, DE: Gunter
Erben, DE.

(74) Fuldmægtig Internationalt Patent-Bureau.

(54) Fremgangsmåde til fjernelse af
nitrogenoxider fra afgangsgasser.

Opfindelsen angår en fremgangsmåde til fjernelse af nitrogenoxider (NO_x) fra afgangsgasser med højt indhold af oxygen og/eller oxygenforbindelser, f.eks. dinitrogenoxid, specielt afgangsgasser fra nitreringsanlæg eller anlæg, der benytter salpetersyre som oxidationsmiddel, som f.eks. adipinsyreanlæg.

Afgangsgassen fra adipinsyreanlæg indeholder store mængder af nitrogenoxider. F.eks. findes der koncentrationer op til 10.000 vppm. Sådan afgangsgas må ikke ledes ud i den omgivende luft, da den frembyder betydelige ulemper for omverdenen.

Fra tysk patent nr. 1.259.298 kendes en fremgangsmåde, ved hvilken nitrogenoxider reduceres ved hjælp af ammoniak. Til dette formål anvendes en katalysator, der består af jernoxider og chrom-

DK 145968 B

oxider. Det er velkendt af fagmanden, at denne fremgangsmåde kun lader sig anvende økonomisk, når der i afgangsgassen kun findes lidt oxygen, som kan føre til en oxidation, der virker imod reduktionen.

Ved de nævnte adipinsyreanlæg foreligger der i afgangsgassen ikke blot en stor del nitrogenoxider (NO_x), men også en stor del oxygen og dinitrogenoxid. Værdierne herfor ligger altid i området fra f.eks. 16 volumen-%, således at man ikke kan regne med, at anvendelsen af den ovennævnte fremgangsmåde kan føre til tilfredsstillende resultater.

Den foreliggende opfindelse har til hensigt at tilvejebringe en fremgangsmåde til fjernelse af nitrogenoxider, som også er økonomisk anvendelig, når afgangsgassen efter sin sammensætning virker i retning af en oxidation.

Fremgangsmåden ifølge opfindelsen til fjernelse af nitrogenoxider (NO_x) fra afgangsgasser med højt indhold af oxygen og/eller oxygenforbindelser, navnlig afgangsgas fra adipinsyreanlæg, er af den kendte art, ved hvilken nitrogenoxiderne reduceres ved hjælp af ammoniak ved en temperatur på mindst 260°C under indflydelse af en jernoxid-/chromoxid-katalysator, og fremgangsmåden er ejendommelig ved, at afgangsgassen med det høje indhold af oxygen og/eller oxygenforbindelser ledes gennem den i flere lejer opdelt katalysator, idet der før hvert leje tilledes en i forhold til lejets rumfang afmålt ammoniak-delstrøm.

Ved denne fremgangsmåde kan afgangsgassen med stærkt oxyderende virkning af nitrogenoxider befries for disse indtil et meget ringe restindhold, f.eks. på 100 ppm eller derunder, men desuden viser det sig, at den specifikke maksimale belastningsevne af katalysatoren stiger særdeles uventet. D.v.s., at den mængde katalysatorvolumen, der skal anvendes til en bestemt afgangsgasstrøm, er mindre, end man havde kunnet vente. Dette fører en omkostningsbesparelse med sig, hvilket yderligere betyder, at til en bestemt produktion af afgangsgas skal der anvendes mindre katalysatorvolumen, og følgelig kan reaktoren bliver bygget mindre.

Fremgangsmåden ifølge opfindelsen forklares nærmere i følgende eksempel.

Eksempel

I et forsøgsanlæg blev 5.000 normal-liter/time ledet gennem en reaktor. Afgangsgassen fra adipinsyreanlægget havde følgende sammensætning:

O_2 - 16 volumen-%
 H_2O - 2,4 volumen-%
 N_2 - 67 volumen.-%
 NO_2 - 0,24 volumen-%
 NO - 0,36 volumen-%
 CO_2 - 0,3 volumen.-%
 N_2O - 16 volumen-%.

Dette svarer til en nitrogenoxidkoncentration på ialt 6.000 vppm, når man ikke tager det fuldstændigt uskadelige N_2O i betragtning. Påfaldende er den store andel af nitrogen og dinitrogenoxid.

Inden tilledningen til reaktoren blev afgangsgassen opvarmet til $265^{\circ}C$. I reaktoren var anbragt tre katalysatorlejer af forskellig tykkelse. Før hvert leje indlededes en ammoniakdelstrøm, der var afmålt i forhold til volumenet af lejerne.

Katalysatoren bestod af

85% Fe (III)-oxid,

10% Cr (III)-oxid,

2% Cr (VI)-oxid

samt iblandinger af kiselsyre, alkalier og jordalkalier.

Ved reaktorudgangen måltet et indhold af NO, NO_2 på 100 vppm. Man fandt en specifik maksimal katalysatorbelastningsevne på $3000 \frac{\text{normal-m}^3}{\text{time}}$. Denne værdi var overraskende høj. Erfaringsmæssigt kunne man vente en værdi på $1000 \frac{\text{normal-m}^3}{\text{time}}$.

Man foretog yderligere forsøg, ved hvilke^m afgangsgassen havde et indhold af NO, NO_2 på indtil 10000 vppm. Afgangsgasserne blev opvarmet til en temperatur på $260^{\circ}C$ - $310^{\circ}C$. NO, NO_2 -koncentrationerne ved udgang af reaktoren var af størrelsesordenen 200 vppm. Den specifikke maksimale katalysatorbelastningsevne nåede en værdi på $5000 \frac{\text{normal-m}^3}{\text{time}}$.

Forøgelsen af katalysatorbelastningsevnen lader sig forklare ved, at oxygen og dinitrogenoxid uventet virker sammen i en gunstig retning for reduktionen.

P A T E N T K R A V

Fremgangsmåde til fjernelse af nitrogenoxider (NO_x) fra afgangsgasser med et højt indhold af oxygen og/eller oxygenforbindelser, navnlig afgangsgasser fra adipinsyreanlæg, ved hvilken nitrogenoxiderne reduceres ved hjælp af ammoniak ved en temperatur på mindst 260°C under indflydelse af en jernoxid-/chromoxid-katalysator, k e n d e t e g n e t ved, at afgangsgassen ledes gennem den i flere lejer opdelte katalysator, idet der før hvert leje tilledes en i forhold til lejets rumfang afmålt ammoniak-delstrøm.

Fremdragne publikationer:

DE patent nr. 1259298

SE fremlæggeskrift nr. 313043.