



(19)  
Bundesrepublik Deutschland  
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) DE 102 49 782 A1 2004.05.06

(12)

## Offenlegungsschrift

(21) Aktenzeichen: 102 49 782.6  
(22) Anmeldetag: 24.10.2002  
(43) Offenlegungstag: 06.05.2004

(51) Int Cl.7: C01B 17/765

(71) Anmelder:  
Outokumpu Oyj, Espoo, FI

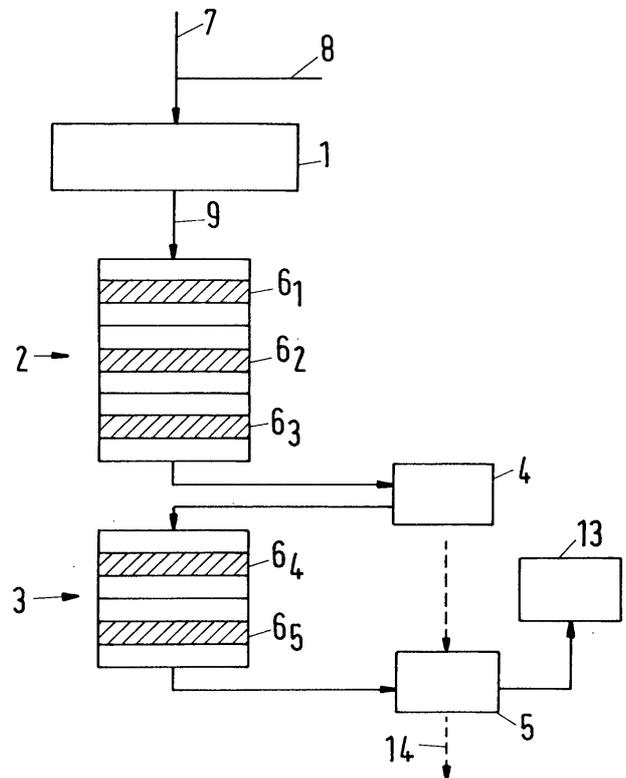
(74) Vertreter:  
Keil & Schaaflhausen Patentanwälte, 60322  
Frankfurt

(72) Erfinder:  
Daum, Karl-Heinz, 65205 Wiesbaden, DE; Müller,  
Hermann, 61462 Königstein, DE; Seitz, Ekkehard,  
64342 Seeheim-Jugenheim, DE; Anastasijevic,  
Nikola, Dr., 63674 Albstadt, DE

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

(54) Bezeichnung: Verfahren und Anlage zur Herstellung von Schwefelsäure aus schwefeldioxidreichen Gasen

(57) Zusammenfassung: Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren und eine Anlage zur Herstellung von Schwefelsäure, bei dem ein Schwefeldioxid enthaltendes Ausgangsgas mit Sauerstoff in wenigstens zwei nacheinander angeordneten Kontaktstufen von Hauptkontakten zumindest teilweise zu Schwefeltrioxid umgesetzt sowie erzeugtes schwefeltrioxidhaltiges Gas in einen Absorber geführt und dort zu Schwefelsäure umgesetzt wird. Um Ausgangsgase mit einem Schwefeldioxidgehalt von 13 bis zu 66 Vol.-% unter Verwendung konventioneller Katalysatoren kostengünstig zu Schwefelsäure verarbeiten zu können, wird vorgeschlagen, aus einer der letzten Hauptkontaktstufe vorgeschalteten Kontaktstufe einen Teilstrom des schwefeldioxid- und schwefeltrioxidhaltigen Gases abzuziehen, diesen Teilstrom mit dem Ausgangsgas zu einem Kontaktgas mit einem Schwefeloxidgehalt von mehr als 13 Vol.-% zu vermischen und in die erste Kontaktstufe zurückzuführen.



## Beschreibung

[0001] Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Schwefelsäure, bei dem ein Schwefeldioxid enthaltendes Ausgangsgas mit Sauerstoff in wenigstens zwei nacheinander angeordneten Kontaktstufen von Hauptkontakten wenigstens teilweise zu Schwefeltioxid umgesetzt wird und bei dem erzeugtes schwefeltrioxidhaltiges Gas in einen Absorber geführt und dort zu Schwefelsäure umgesetzt wird, sowie eine entsprechende Anlage.

[0002] Herkömmlicherweise erfolgt die Herstellung von Schwefelsäure nach dem sogenannten Doppelabsorptions-Verfahren, das in Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, 5. Auflage, Band A25, Seiten 635 bis 700, beschrieben ist. Zur Katalyse der Oxidation von Schwefeldioxid zu Schwefeltioxid werden üblicherweise Vanadiumpentoxid als aktive Komponente enthaltende Katalysatoren mit einem Arbeitsbereich von 380 bis 640 °C eingesetzt. Während bei Temperaturen von über 640 °C eine irreversible Schädigung des Katalysators erfolgt, ist dieser bei Temperaturen unterhalb von 380 °C inaktiv. Um eine Schädigung des Katalysators zu vermeiden, werden diesem üblicherweise Ausgangsgase mit einem Schwefeldioxidgehalt von maximal 13 Vol.-% aufgegeben, da sich bei Einsatz höher konzentrierter Gase in dem Katalysatorbett aufgrund der Exothermie der Oxidationsreaktion zu hohe Temperaturen einstellen. Dies hat zur Folge, dass höher konzentrierte Gase vor der Aufgabe auf den Katalysator zunächst mit Luft und/oder technischem Sauerstoff verdünnt und entsprechend große Gasvolumina durch den Katalysator geführt werden müssen. Insbesondere bei der Nutzung von pyrometallurgischen Abgasen als schwefeldioxidhaltigen Ausgangsgasen, welche etwa bei der Röstung und dem Schmelzen von sulfidischen Kupfer- oder Nickelkonzentraten erzeugt werden und typischerweise einen Schwefeldioxidgehalt von 20 bis 60 Vol.-% aufweisen, ist somit ein großer Verdünnungsfaktor notwendig. Dies führt zu unverhältnismäßig hohen Investitions- und Betriebskosten der Schwefelsäureanlage.

[0003] Es ist auch schon vorgeschlagen worden, anstelle von Luft teiloxidiertes Prozessgas aus einer Kontaktstufe als Verdünnungsgas einzusetzen. In der DE-AS 1 054 431 wird ein Verfahren zur katalytischen SO<sub>2</sub>-Oxidation beschrieben, bei dem ein Teil des heißen, katalytisch umgesetzten Prozessgases aus der ersten Kontaktstufe im Kreislauf geführt und den Ausgangsgasen vor der Aufgabe auf die erste Katalysatorschicht zugemischt wird, während der restliche Teil des Prozessgases nach Abkühlung durch Zumischen von kalter Luft in einer nachfolgenden Kontaktstufe weiteroxidiert wird. Dabei wird durch die Rezirkulation gleichzeitig das Ausgangsgas auf die Ansprechtemperatur des Katalysators erwärmt. Da auch bei diesem Verfahren die Gase soweit verdünnt werden müssen, dass die der ersten Katalysatorschicht aufgegebene Gasmischung weniger als 13 Vol.-% SO<sub>2</sub> enthält, sind große Mengen Verdünnungsgas notwendig. Ein ähnliches Verfahren ist auch aus der DE-PS 504 635 bekannt.

[0004] Um diesen Nachteilen zu begegnen, wurden bereits verschiedene Verfahren zur Schwefelsäureherstellung vorgeschlagen, bei denen dem Katalysator Ausgangsgase mit einem Schwefeldioxidgehalt von mehr als 13 Vol.-% zugeführt werden können.

[0005] Einige dieser Verfahren sehen einen alternativen Katalysator vor, der auch bei höheren Temperaturen als 640 °C betrieben werden kann (vgl. bspw. die WO 99/36175 A1).

[0006] In der DE-OS 20 26 818 wird ein Verfahren zur katalytischen Oxidation von Schwefeldioxid zur Schwefeltrioxid in mehreren Kontaktstufen mit einer Zwischenabsorption des gebildeten Schwefeltrioxids offenbart, bei dem die Ausgangsgase vor dem Einbringen in die erste Kontaktstufe mit Verdünnungsluft und mit aus Oleum ausgetriebenem Schwefeltrioxid auf eine Schwefeldioxidkonzentration von 10 bis 20 Gew.-% verdünnt werden. Nachteilig an diesem Verfahren ist jedoch der für die kontinuierliche Austreibung von Schwefeltrioxid aus Oleum notwendige apparative und verfahrenstechnische Aufwand und die vergleichsweise geringe Ausnutzung des Schwefeldioxids in der ersten Kontaktstufe, da nur Schwefeltrioxid, nicht aber die Reaktionspartner Schwefeldioxid und Sauerstoff, rezirkuliert werden.

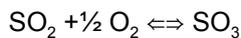
## Beschreibung der Erfindung

[0007] Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es daher, die kostengünstige Herstellung von Schwefelsäure auf der Basis konzentrierter Ausgangsgase mit einem Schwefeldioxidgehalt von bis zu 66 Vol.-% zu ermöglichen.

[0008] Erfindungsgemäß wird diese Aufgabe durch ein Verfahren der eingangs genannten Art gelöst, bei dem aus einer der letzten Hauptkontaktstufe vorgeschalteten Kontaktstufe ein Teilstrom des schwefeldioxid- und schwefeltrioxidhaltigen Gases abgezogen und dieser Teilstrom mit dem Ausgangsgas zu einem Kontaktgas mit einem Schwefeldioxidgehalt von mehr als 13 Vol.-% vermischt und in die erste Kontaktstufe zurückgeführt wird.

[0009] Bei der erfindungsgemäßen Verfahrensführung müssen den konzentrierten Ausgangsgasen im Vergleich zu den herkömmlichen Verfahren, bei denen der ersten Kontaktstufe weniger als 13 Vol.-% Schwefeldioxid enthaltende Gase aufgegeben werden, geringere Mengen an Verdünnungsgas zugeführt werden, so dass bei gleichen durch die Kontaktstufen geführten Volumenströmen eine entsprechend größere Menge an Schwe-

felsäure generiert wird. In Abhängigkeit von dem Schwefeldioxidgehalt der Ausgangsgase kann, bei gleicher Dimensionierung der Anlage, eine Kapazitätssteigerung von mehr als 50 erreicht werden. Eine Überhitzung des Katalysators in der ersten Kontaktstufe wird trotz der Aufgabe eines mehr als 13 Vol.-% Schwefeldioxid enthaltenden Kontaktgases zuverlässig vermieden, da durch das über den zurückgeführten Teilstrom eingeführte Schwefeldioxid das thermodynamische Gleichgewicht der Oxidationsreaktion



in Richtung der Edukte verschoben wird. Dies ermöglicht einen geringeren Umsatz und führt zu einer niedrigeren Gastemperatur am Austritt der Kontaktstufe.

[0010] Ein weiterer Vorteil des erfindungsgemäßen Verfahrens, insbesondere auch gegenüber den bekannten Verfahren mit Rezirkulation von Schwefeltrioxid, liegt in der besseren Energieausnutzung. Durch die Rezirkulation wird die Wärmeenergie des rezirkulierten, teilumgesetzten und heißen Prozessgases zur Vorwärmung der Ausgangsgase genutzt, so dass lediglich eine entsprechend geringere Menge an Wärmeenergie extern zugeführt werden muss. Folglich kommt das erfindungsgemäße Verfahren mit kleineren Wärmetauschern aus.

[0011] Vorzugsweise wird der ersten Kontaktstufe ein Kontaktgas mit einem Schwefeldioxidgehalt von 14 bis 25 Vol.-% zugeführt. Auf diese Weise wird zum einen eine, bezogen auf den durch die einzelnen Kontaktstufen geführten Volumenstrom, hohe Ausbeute an Schwefelsäure erzielt. Zum anderen sind bei dieser Verfahrensführung zur Vermeidung einer Überhitzung des Katalysators noch keine so großen Mengen an Schwefeltrioxid in dem Kontaktgas erforderlich, um den prozentualen Umsatz an Schwefeldioxid zu Schwefeltrioxid in der ersten Kontaktstufe ausreichend zu reduzieren.

[0012] Insbesondere bei der Verarbeitung hochprozentiger Ausgangsgase, die bspw. aus einer pyrometallurgischen Anlage stammen, mit einem Schwefeldioxidgehalt zwischen 25 und 66 Vol.-%, ist es zweckmäßig, dem Ausgangsgas vor der Zufuhr zu der ersten Kontaktstufe neben dem rezirkulierten Teilstrom Luft und/oder technischen Sauerstoff zuzuführen. Auf diese Weise kann der bevorzugte Schwefeldioxidgehalt des Kontaktgases von 14 bis 25 Vol.-% mit einem vergleichsweise geringen Teilstrom an teiloxydiertem Prozessgas aus einer nachfolgenden Kontaktstufe eingestellt werden. Dabei kann die Luft und/oder der technische Sauerstoff dem Ausgangsgas vor, gleichzeitig mit oder nach der Vermischung mit dem zurückgeführten Teilstrom zugeführt werden. Vorzugsweise wird das Verhältnis von Luft zu technischem Sauerstoff so gewählt, dass das volumetrische Verhältnis von  $\text{O}_2$  zu  $\text{SO}_2$  in dem Kontaktgas weniger als 1,2 und besonderes bevorzugt weniger als 0,8, aber mindestens 0,5 beträgt.

[0013] Zweckmäßigerweise beträgt der Volumenstrom des dem Ausgangsgas zugeführten Teilstroms an teiloxydiertem Prozessgas, bezogen auf den Volumenstrom des Kontaktgases, zwischen 10 und 50 %, bevorzugt 15 bis 35 %.

[0014] In Weiterbildung des Erfindungsgedankens wird vorgeschlagen, das Kontaktgas einem den Hauptkontakten vorgeschalteten Vorkontakt zuzuführen, aus dem Vorkontakt ein höchstens 13 Vol.-% Schwefeldioxid enthaltendes Prozessgas abzuziehen und dieses in die erste Kontaktstufe des ersten Hauptkontakts (Primärkontakt) einzuleiten. Bei dieser Verfahrensführung können die Hauptkontakte wie bei den herkömmlichen Verfahren betrieben werden. Dies ist insbesondere dann sinnvoll, wenn das erfindungsgemäße Verfahren in bereits bestehenden, konventionellen Anlagen durchgeführt werden soll. Die notwendige Nachrüstung der konventionellen Anlage beschränkt sich dabei auf die Integration einer Vorkontaktstufe und der Rezirkulation.

[0015] Der Vorkontakt kann aus einer oder mehreren Kontaktstufen bestehen. Um den apparativen Aufwand gering zu halten, wird das Ausgangsgas vorzugsweise nur durch einen eine oder zwei Stufen aufweisenden Vorkontakt geführt.

[0016] Prinzipiell kann der dem Ausgangsgas zugemischte Teilstrom aus teiloxydiertem Prozessgas (Rezirkulationsgas) aus jeder der ersten bis vorletzten Kontaktstufe abgezogen werden. Um den Volumenstrom des Rezirkulationsgases möglichst gering zu halten, wird dieses jedoch vorzugsweise aus der letzten Kontaktstufe eines der Kontakte vor der Absorption abgezogen, also aus der letzten Kontaktstufe des Vorkontakts oder des ersten Hauptkontakts (Primärkontakt), da das Prozessgas an diesen Stellen den größten Schwefeltrioxidgehalt aufweist.

[0017] Gemäß einer besonderen Ausführungsform der vorliegenden Erfindung wird das aus dem Vorkontakt austretende Prozessgas vor der Einleitung in den ersten Hauptkontakt (Primärkontakt) durch einen Vorabsorber geführt, in dem in einer dem Fachmann bekannten Weise Schwefeltrioxid wenigstens teilweise, vorzugsweise vollständig, aus dem Prozessgas entfernt und in Schwefelsäure umgewandelt wird. Des weiteren wird vorgeschlagen, alternativ oder zusätzlich dazu, das aus dem ersten Hauptkontakt (Primärkontakt) austretende Prozessgas vor der Einleitung in den zweiten Hauptkontakt (Sekundärkontakt) durch einen Zwischenabsorber zu führen, um das in dem ersten Hauptkontakt (Primärkontakt) generierte Schwefeltrioxid aus dem Prozessgas zu entfernen und in Schwefelsäure umzusetzen. Analog dazu wird das aus dem zweiten Hauptkontakt (Sekundärkontakt) austretende Prozessgas erfindungsgemäß durch einen Endabsorber geführt, bevor das im We-

sentlichen schwefeltrioxid- und schwefeldioxidfreie Prozessgas aus der Anlage abgeführt wird. Die in den einzelnen Absorbern generierte Schwefelsäure kann dann entweder einzeln oder miteinander vermischt aus der Anlage abgezogen werden.

[0018] Ein besonderer Vorteil des erfindungsgemäßen Verfahrens liegt in der Möglichkeit, neben Schwefelsäure einer herkömmlichen Qualität auch qualitativ höherwertige und damit wesentlich höherpreisigen Schwefelsäure herstellen zu können. Bei Vorsehen einer Vor-, Zwischen- und Endabsorption werden die in den Ausgangsgasen enthaltenen Verunreinigungen, welche insbesondere in pyrometallurgisch erzeugten Ausgangsgasen in nicht unbeträchtlichen Mengen enthalten sind, nahezu vollständig während der Vorabsorption aus den Prozessgasen entfernt, so dass die in der Zwischen- und Endabsorption erzeugte Schwefelsäure, welche etwa 30 % der mit dem Verfahren insgesamt produzierten Schwefelsäure entspricht, eine im Vergleich mit der in herkömmlichen Verfahren hergestellten Säure höhere Qualität aufweist.

[0019] In Weiterbildung des Erfindungsgedankens wird ferner vorgeschlagen, nur einen Teil des aus dem Vorkontakt austretenden Prozessgases vor der Einleitung in den ersten Hauptkontakt (Primärkontakt) durch einen Vorabsorber zu leiten, während der restliche Teil des  $\text{SO}_3$ -haltigen Prozessgases über eine Bypassleitung direkt in den Hauptkontakt geführt wird. Damit lässt sich der Anteil an höherwertiger Schwefelsäure auf bis zu 60 % erhöhen.

[0020] Gemäß einer weiteren Ausgestaltung der Erfindung wird das aus dem Endabsorber austretende Gas einer Gaswäsche, insbesondere mit Wasserstoffperoxid, Ammoniak oder Natronlauge als Neutralisationsmittel für das Schwefeldioxid, unterzogen. Bei dieser Ausführungsform ist es sogar möglich, auf den Vorkontakt ganz zu verzichten, da der Nachteil der zunächst höheren  $\text{SO}_2$ -Emission durch die Gaswäsche nach den jeweiligen Anforderungen ausgeglichen werden kann.

[0021] Erfindungsgemäß wird der Teilstrom vor der Absorption entnommen und vor der Rückführung in die erste Kontaktstufe auf eine Temperatur  $< 500^\circ\text{C}$  gekühlt.

[0022] Gemäß einer bevorzugten Ausgestaltung der Erfindung wird das zurückgeführte Rezirkulationsgas zur Regelung der Gasaustrittstemperatur aus der ersten Kontaktstufe verwendet. Je größer der in die erste Kontaktstufe zurückgeführte Teilstrom an teilumgesetzten Gas gewählt wird, desto mehr Schwefeltrioxid tritt in die Kontaktstufe ein, so dass entsprechend weniger Schwefeldioxid oxidiert und sich eine entsprechend niedrigere Gasaustrittstemperatur einstellt.

[0023] Des weiteren betrifft die vorliegende Erfindung eine Anlage zur Herstellung von Schwefelsäure aus schwefeldioxidreichen Gasen, welche insbesondere zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens geeignet ist.

[0024] Erfindungsgemäß weist die Anlage wenigstens zwei nacheinander angeordnete Hauptkontaktstufen (Primär- und Sekundärkontakt) und wenigstens einen Absorber auf, wobei dem ersten Hauptkontakt (Primärkontakt) ein Vorkontakt vorgeschaltet ist und wobei der Eintrittsbereich des Vorkontakts mit dem Austrittsbereich einer der letzten Kontaktstufe des zweiten Hauptkontakts (Sekundärkontakt) vorgeschalteten Kontaktstufe verbunden ist.

[0025] Nach einer bevorzugten Ausführungsform weist eine Rezirkulationsleitung zur Zurückführung des eines Teilstroms des aus dem Vorkontakt austretenden Prozessgases ein Heißgasgebläse.

[0026] Vorzugsweise führt die Rezirkulationsleitung von dem Austrittsbereich der letzten Kontaktstufe des ersten Hauptkontakts (Primärkontakt) oder von dem Austrittsbereich der letzten Kontaktstufe des Vorkontakts zu dem Eintrittsbereich des Vorkontakts.

[0027] In Weiterbildung des Erfindungsgedankens wird vorgeschlagen, dass der Vorkontakt eine oder zwei, der erste Hauptkontakt (Primärkontakt) eine bis drei sowie der zweite Hauptkontakt (Sekundärkontakt) eine oder zwei Kontaktstufen aufweist. Selbstverständlich können auch mehr als zwei Hauptkontakte vorgesehen sein und/oder die einzelnen Kontakte mehr als zwei bzw. drei Kontaktstufen aufweisen. Prinzipiell können die einzelnen Kontaktstufen jedes dem Fachmann zu diesem Zweck bekannte Katalysatormaterial aufweisen. Bevorzugt sind jedoch konventionelle Katalysatoren, bspw. solche auf Basis von Vanadiumpentoxid mit oder ohne Zusatz an Caesium oder auf Basis anderer Metalloxide, wie Eisenoxid, vorgesehen.

[0028] Des weiteren wird erfindungsgemäß vorgeschlagen, zwischen dem Vorkontakt und dem ersten Hauptkontakt (Primärkontakt) einen Vorabsorber, zwischen dem ersten und zweiten Hauptkontakt (Sekundärkontakt) einen Zwischenabsorber und nach dem zweiten Hauptkontakt (Sekundärkontakt) einen Endabsorber anzuordnen.

[0029] Gemäß einer weiteren bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung ist zwischen dem Vorkontakt und dem ersten Hauptkontakt (Primärkontakt) eine an dem Vorabsorber vorbeiführende Bypassleitung vorgesehen, über welche ein Teil des oder das gesamte aus dem Vorkontakt austretende Prozessgas an dem Vorabsorber vorbei direkt in die erste Stufe des ersten Hauptkontakts (Primärkontakt) geführt werden kann.

[0030] Ferner kann eine an dem Vorkontakt vorbeiführende Bypassleitung vorgesehen sein, durch die ein Teil des oder das gesamte Kontaktgas an dem Vorkontakt vorbei direkt in die erste Stufe des ersten Hauptkontakts (Primärkontakt) geführt werden kann.

[0031] Die Erfindung wird nachfolgend anhand von Ausführungsbeispielen und der Zeichnung näher erläutert. Dabei bilden alle beschriebenen und/oder bildlich dargestellten Merkmale den Gegenstand der Erfindung, unabhängig von ihrer Zusammenfassung in den Ansprüchen oder deren Rückbeziehung.

#### Kurzbeschreibung der Zeichnungen

[0032] **Fig. 1** zeigt ein Prozessdiagramm eines Verfahrens und einer Anlage nach dem Stand der Technik;  
 [0033] **Fig. 2** zeigt ein Prozessdiagramm eines Verfahrens und einer Anlage gemäß eines ersten Ausführungsbeispiels der vorliegenden Erfindung;  
 [0034] **Fig. 3** zeigt ein Prozessdiagramm eines Verfahrens und einer Anlage gemäß eines zweiten Ausführungsbeispiels der vorliegenden Erfindung;  
 [0035] **Fig. 4** zeigt ein Prozessdiagramm eines Verfahrens und einer Anlage gemäß eines dritten Ausführungsbeispiels der vorliegenden Erfindung;  
 [0036] **Fig. 5** zeigt ein Prozessdiagramm eines Verfahrens und einer Anlage gemäß eines vierten Ausführungsbeispiels der vorliegenden Erfindung;  
 [0037] **Fig. 6** zeigt ein Prozessdiagramm eines Verfahrens und einer Anlage gemäß eines fünften Ausführungsbeispiels der vorliegenden Erfindung;  
 [0038] **Fig. 7** zeigt ein Prozessdiagramm eines Verfahrens und einer Anlage gemäß eines sechsten Ausführungsbeispiels der vorliegenden Erfindung;  
 [0039] **Fig. 8** zeigt ein Prozessdiagramm eines Verfahrens und einer Anlage gemäß eines siebten Ausführungsbeispiels der vorliegenden Erfindung.

#### Detaillierte Beschreibung der bevorzugten Ausführungsformen

[0040] Die in **Fig. 1** dargestellte konventionelle Anlage zur Herstellung von Schwefelsäure gemäß dem Stand der Technik, wie er bspw. in Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry beschrieben ist, besteht aus einem Gastrockner **1**, zwei Hauptkontakten **2, 3**, einem Zwischenabsorber **4** und einem Endabsorber **5**. Während der erste Hauptkontakt **2** (Primärkontakt) aus drei, jeweils einen Katalysator auf Basis von Vanadiumpentoxid aufweisenden Kontaktstufen (Horden)  $6_1$  bis  $6_3$  besteht, sind in dem zweiten Hauptkontakt **3** (Sekundärkontakt) zwei Kontaktstufen  $6_4, 6_5$  vorgesehen. Zwischen den einzelnen Kontaktstufen  $6_1$  bis  $6_5$  ist jeweils ein Zwischenkühler (nicht dargestellt) angeordnet, in dem das die vorhergehende Kontaktstufe  $6_1$  bis  $6_4$  verlassende Prozessgas auf eine für den Eintritt der jeweils nächsten Kontaktstufe  $6_2$  bis  $6_5$  geeignete Temperatur heruntergekühlt wird.

[0041] Ausgangsgas mit mehr als 13 Vol.-% Schwefeldioxid, welches bspw. in einer pyrometallurgischen Anlage erzeugt wurde, wird in Leitung **7** herangeführt und mit über Leitung **8** eingeleiteter Verdünnungsluft auf eine Schwefeldioxidkonzentration von weniger als 13 Vol.-% verdünnt und dem Gastrockner **1** zugeführt. Anschließend wird die getrocknete Gasmischung aus dem Gastrockner **1** über Leitung **9** abgezogen und in einem Wärmeaustauscher (nicht dargestellt) auf die Eintrittstemperatur der ersten Kontaktstufe  $6_1$  vorgewärmt, bevor die Gasmischung zur Oxidation der Reihe nach durch die drei Kontaktstufen  $6_1$  bis  $6_3$  des ersten Hauptkontakts **2** (Primärkontakt) geführt wird. Aus dem ersten Hauptkontakt **2** (Primärkontakt) austretendes Gas wird über Leitung **10** dem Zwischenabsorber **4** zugeführt und dort mit wasserhaltiger Schwefelsäure kontaktiert, wobei ein Großteil des in dem ersten Hauptkontakt (Primärkontakt) gebildeten Schwefeltrioxids unter Bildung von Schwefelsäure absorbiert wird. Anschließend wird das restliche Gas über Leitung **11** dem zweiten Hauptkontakt **3** (Sekundärkontakt) zugeführt und der Reihe nach durch dessen zwei Kontaktstufen  $6_4$  und  $6_5$  geführt. Aus dem zweiten Kontakt **3** austretendes Gas wird über Leitung **12** dem Endabsorber **5** zugeführt, in dem das gebildete Schwefeltrioxid zu Schwefelsäure umgesetzt wird. Während das Abgas über den Kamin **13** aus der Anlage ausgetragen wird, wird die in dem Zwischenabsorber **4** und dem Endabsorber **5** erzeugte Schwefelsäure zusammengeführt und als einzelner Stoffstrom über die Produktabfuhrleitung **14** aus der Anlage ausgeschleust.

[0042] Wie aus der **Fig. 2** ersichtlich, umfasst die Anlage gemäß eines ersten Ausführungsbeispiels der vorliegenden Erfindung die Bauteile der zuvor beschriebenen konventionelle Vorrichtung, die der Einfachheit halber mit denselben Bezugszeichen versehen werden.

[0043] Ferner weist die Anlage einen den Hauptkontakten **2, 3** vorgeschalteten einstufigen Vorkontakt **15**, einen Vorabsorber **16**, eine Zuleitung **17** für technischen Sauerstoff sowie eine mit einem Heißgasgebläse **18** ausgestattete Rezirkulationsleitung **19** für teiloxidiertes Gas auf. Dabei zweigt die Rezirkulationsleitung **19** von der von dem ersten Hauptkontakt **2** (Primärkontakt) aus zu dem Zwischenabsorber **4** führenden Leitung **10** ab und mündet in die zu dem Vorkontakt **15** führende Leitung **20**. Der Vorkontakt **15** weist vorzugsweise den gleichen Katalysator auf wie die einzelnen Kontaktstufen **6** der Hauptkontakte **2, 3**.

[0044] Ausgangsgas mit mehr als 13 Vol.-% Schwefeldioxid, bspw. aus einer pyrometallurgischen Anlage, wird über Leitung **7** herangeführt, mit Luft über Leitung **8** sowie mit technischem Sauerstoff über Leitung **17**

vermischt. Daraufhin wird das Gasgemisch durch den Gastrockner **1** geführt und anschließend in einem Wärmetauscher (nicht dargestellt) vorgewärmt. Schließlich wird dem vorgewärmten Gasgemisch über die Rezirkulationsleitung **19** teiloxydiertes Gas (Teilstrom T) aus dem ersten Hauptkontakt **2** (Primärkontakt) zugeleitet, bevor die resultierende Mischung über Leitung **20** in den Vorkontakt **15** eintritt.

[0045] Die einzelnen Volumenströme der zugeführten Gase sowie die Bedingungen in dem Wärmetauscher werden dabei so eingestellt, dass das in den Vorkontakt **15** eintretende Gas einerseits eine für die Oxidationsreaktion optimale Eintrittstemperatur, welche bei Verwendung eines Vanadiumpentoxidkatalysators bei etwa 425 °C liegt, und andererseits einen Schwefeldioxid- und Schwefeltrioxidgehalt aufweist, durch den ein Temperaturanstieg in dem Vorkontakt **15** auf einen über dem für den Katalysator schädlichen Schwellenwert von 640 °C liegenden Wert verhindert wird. Gleichzeitig wird durch den Schwefeldioxid- und Schwefeltrioxidgehalt die Reaktion so gesteuert, dass das Prozessgas nach der Vorkontaktstufe einen für einen energetisch optimalen Betrieb der konventionellen Hauptkontakte **2, 3** hinreichenden, aber nicht über 13 Vol.-% hinausgehenden Gehalt an Schwefeldioxid aufweist. Die Regelung der Gasaustrittstemperatur erfolgt dabei insbesondere über die Rezirkulationsmenge. Die Gastemperatur am Austritt des Vorkontaktes wird erfasst (Istwert), mit dem Sollwert verglichen und entsprechend die Größe des rezirkulierten Teilstroms (Steilgröße) durch Betätigung eines Ventils oder dgl. (Stellglied) eingestellt. Durch Erhöhung der Rezirkulationsmenge wird der Schwefeldioxidgehalt des in den Vorkontakt **15** eintretenden Gases bei gleichzeitiger Erhöhung der Schwefeltrioxidkonzentration reduziert, so dass in der Kontaktstufe ein geringerer Umsatz an Schwefeldioxid und somit eine geringere Gasaustrittstemperatur resultiert. Um die vorgenannten Bedingungen zu erfüllen, werden die entsprechenden Volumenströme der Gase so gewählt, dass der Schwefeldioxidgehalt des verdünnten, dem Gastrockner **1** zugeführten Gases vorzugsweise zwischen 13 und 40 Vol.-%, vorzugsweise zwischen 20 und 30 Vol.-% beträgt sowie die dem Vorkontakt **15** zugeführte Mischung einen Schwefeldioxidgehalt zwischen 15 und 21 Vol.-% und einen Schwefeltrioxidgehalt zwischen 1 und 5 Vol.-% aufweist.

[0046] Aus dem Vorkontakt **15** austretendes Gas wird dann über die Leitung **21** dem Vorabsorber **16** zugeführt, in dem das in dem Vorkontakt **15** gebildete Schwefeltrioxid in konzentrierter Schwefelsäure absorbiert wird. Das von dem Vorabsorber **16** abgezogene Gas weist vorzugsweise einen Schwefeldioxidgehalt von 8 bis 12 Vol.-% auf und wird über Leitung **9** in die Hauptkontakte **2, 3** geführt, in denen das Gas, mit Ausnahme der Rückführung des Teilstroms T, wie zu **Fig. 1** beschrieben weiterverarbeitet wird. Die in den drei Absorbern **4, 5, 16** erzeugte Schwefelsäure wird zusammengeführt und aus der Anlage über die Produktabfuhrleitung **14** abgezogen.

[0047] Mit dieser Anlage kann im Vergleich zu der in **Fig. 1** dargestellten herkömmlichen Anlage bei einem jeweils etwa gleich großen durch den ersten Hauptkontakt **2** (Primärkontakt) geführten Gasstrom eine um 50 % größere Gasmenge aus der Pyrometallurgie (dies entspricht einer Erhöhung der Metallproduktion um 50 %) verarbeitet und entsprechend 50 % mehr Schwefelsäure pro Zeiteinheit produziert werden. Da sich der apparative Mehraufwand auf den Vorkontakt **15**, den Vorabsorber **16** sowie die Rezirkulationsleitung **19** mit entsprechender Regelung beschränkt, sind die Investitionskosten für eine erfindungsgemäße Nachrüstung einer konventionellen Anlage erheblich geringer als die Kosten für eine separate konventionelle Neuanlage, die für eine entsprechende 50 %ige Kapazitätssteigerung erforderlich wäre. Analog dazu sind auch die Kosten für eine erfindungsgemäße Neuanlage mit einer entsprechenden Kapazität signifikant geringer als die für eine auf gleiche Kapazität ausgelegte konventionelle Neuanlage.

[0048] Abgesehen von den geringeren Anlagekosten liegt ein weiterer Vorteil der erfindungsgemäßen Anlage darin, dass diese gegenüber einer konventionellen Anlage mit wesentlich geringeren Betriebskosten betrieben werden kann, was einerseits auf einen geringeren spezifischen Bedarf an elektrischer Energie, vor allem aber auf eine höhere spezifische zurückgewinnbare thermische Energie zurückzuführen ist.

[0049] Ein weiterer Vorteil des erfindungsgemäßen Verfahrens liegt darin, dass aufgrund der Verarbeitung von Ausgangsgasen mit hoher SO<sub>2</sub>-Konzentration und daraus resultierender hoher SO<sub>3</sub>-Konzentration nach der Oxidation eine direkte Erzeugung von Oleum mit hohem Gehalt an freiem SO<sub>3</sub> von bspw. über 35 % möglich ist. Solches Oleum kann in konventionellen Anlagen bei Konzentrationen des SO<sub>2</sub>-Eingangsgases unter 13 Vol.-% nur durch zusätzliche Einrichtungen, wie z.B. Destillations- und Kondensationsapparate hergestellt werden.

[0050] Des weiteren ermöglicht das erfindungsgemäße Verfahren eine effiziente und kostengünstige Nieder temperatur-Wärmerückgewinnung. Die Absorption von SO<sub>3</sub> und die Bildung konzentrierter Schwefelsäure ist exotherm und erfordert in der Regel die Abführung großer Wärmemengen (ca. 2 Millionen kJ pro Tonne produzierter H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>), bspw. durch Kühlwasser. Durch Einsatz von sogenannten Wärmerückgewinnungsverfahren (Heat recovery systems) kann ein wesentlicher Teil dieser Wärmemenge in Niederdruckdampf überführt werden. Dieser Anteil ist umso größer je höher die SO<sub>2</sub>-Konzentration im Eingangsgas ist, so dass das erfindungsgemäße Verfahren besondere Vorteile bietet.

[0051] Im Unterschied zu der in **Fig. 2** gezeigten Vorrichtung weist die in **Fig. 3** dargestellte Anlage einen Vorkontakt **15** mit zwei Kontaktstufen **22<sub>1</sub>, 22<sub>2</sub>** auf. Ferner zweigt die Rezirkulationsleitung **19** bei diesem Ausführungsbeispiel von der von der zweiten Vorkontaktstufe **22<sub>2</sub>** aus zu dem Vorabsorber **16** führenden Leitung **21**

- ab und mündet in die zu dem Vorkontakt **15** führende Leitung **20**. Wiederum weisen die Vorkontaktstufen **22<sub>1</sub>**, **22<sub>2</sub>** vorzugsweise den gleichen Katalysator auf wie die einzelnen Stufen **6<sub>1</sub>** bis **6<sub>5</sub>** der Hauptkontakte **2**, **3**.
- [0052] Auch mit dieser Anlage wird im Vergleich zu der in **Fig. 1** dargestellten Anlage eine Kapazitätssteigerung von etwa 50 % erreicht. Ein weiterer Vorteil dieser Anordnung liegt in der vollständigen Entkopplung der aus Vorkontakt **15**, Rezirkulationsleitung **19** und Vorabsorber **16** bestehenden Vorkontaktvorrichtung von der einer konventionellen Anlage entsprechenden, nachgeschalteten Vorrichtung. Dadurch lassen sich die Investitionskosten für eine Neuanlage bzw. für die Nachrüstung einer bestehenden Anlage weiter reduzieren. Außerdem reduziert sich bei diesem Ausführungsbeispiel auch die durch die beiden Hauptkontakte **2**, **3** zu führende Gesamtgasmenge, so dass die dadurch erzielten Einsparungen an den Hauptkontakten **2**, **3** die Mehrkosten für den Vorkontakt kompensieren.
- [0053] Die in der **Fig. 4** dargestellte Anlage unterscheidet sich von dem in **Fig. 2** gezeigten Ausführungsbeispiel dadurch, dass die in dem Vorabsorber **16** gebildete Schwefelsäure nicht mit der in den nachfolgenden Zwischen- **4** und Endabsorbieren **5** generierten Säure zusammengefasst wird, sondern davon getrennt über Leitung **23** aus der Anlage abgezogen wird. Da die in den Ausgangsgasen enthaltenden Verunreinigungen nahezu vollständig in der ersten Vorabsorptionsstufe **16** in die Schwefelsäure gelangen, weist die in dem Zwischen- **4** und Endabsorber **5** generierte Schwefelsäure, welche etwa **30** der insgesamt in der Anlage erzeugten Schwefelsäuremenge entspricht, im Vergleich zu der in den entsprechenden Absorbieren einer konventionellen Anlage erzeugten Schwefelsäure, eine höhere Qualität auf, ohne dass kostenrelevante Maßnahmen im Bereich der Gasreinigung erforderlich sind. Dadurch wird die Wirtschaftlichkeit des Verfahrens weiter erhöht.
- [0054] Bei dem Verfahren gemäß **Fig. 4** ist zudem vor dem Vorkontakt **15** eine weitere Trocknung der Gase in einem Nachrockner **24** vorgesehen, wodurch der Anteil der produzierten höherwertigen Qualitätssäure weiter erhöht werden kann.
- [0055] In der in **Fig. 5** gezeigten Anlage ist im Vergleich zu der in **Fig. 4** dargestellten zwischen dem Vorkontakt **15** und dem ersten Hauptkontakt **2** (Primärkontakt) eine über ein Stellventil **30** oder dgl. regelbare Bypassleitung **25** vorgesehen, über welche ein Teil der aus dem Vorkontakt **15** austretenden Prozessgase an dem Vorabsorber **16** vorbei in die nachfolgende Kontaktstufe **2** der konventionellen Anlage geführt werden kann. Dadurch lässt sich der Anteil der qualitativ höherwertigen Schwefelsäure im Vergleich zu dem in **Fig. 4** dargestellten Verfahren noch weiter steigern, und zwar auf bis zu 60 %. Durch den Einsatz des zweiten Gastrockners **24** wird der Anteil an qualitativ höherwertiger Säure auch hier noch weiter erhöht.
- [0056] Die in **Fig. 6** dargestellte Anlage unterscheidet sich von dem in **Fig. 2** gezeigten Ausführungsbeispiel dadurch, dass eine um den Vorkontakt **15** und den Vorabsorber **16** herumführende Bypassleitung **26** vorgesehen ist, über die ein Teil oder das gesamte Ausgangsgas nach der Vorwärmung, wie bei einer konventionellen Anlage, direkt in den ersten Hauptkontakt **2** (Primärkontakt) geleitet werden kann.
- [0057] Eine solche Verfahrensführung ist dann vorteilhaft, wenn die Anlage über eine gegebene Zeitspanne mit Ausgangsgasen unterschiedlicher Schwefeldioxidkonzentration betrieben wird. Insbesondere bei der pyrometallurgischen Konvertierung der Metallschmelze zum Metall entstehen gleichzeitig auch Abgase mit geringerer SO<sub>2</sub>-Konzentration (bspw. 5-15 Vol.-% SO<sub>2</sub>). Diese geringer konzentrierten Gase fallen je nach dem benutzten metallurgischen Verfahren entweder periodisch-diskontinuierlich ("Batch"-Prozess, bspw. Peirce-Smith-Konverter) an, oder auch kontinuierlich (bspw. Outokumpu-Flashkonverter), wobei die kontinuierlich arbeitenden metallurgischen Verfahren unter Benutzung von mit Sauerstoff angereicherter Luft ebenso stärker konzentrierte Abgase mit einem Schwefeldioxidgehalt von 20-30 Vol.-% liefern.
- [0058] Im Falle der Verarbeitung gering konzentrierter Gase, etwa lediglich 13 Vol.-% oder weniger Schwefeldioxid enthaltender Ausgangsgase, würde in der Vorkontaktstufe **15** so viel Schwefeldioxid oxidiert werden, dass das dem ersten Hauptkontakt **2** (Primärkontakt) zugeführte Prozessgas eine zu geringe SO<sub>2</sub>-Konzentration für eine autotherme Arbeitsweise aufweisen würde, d.h. die verbleibende SO<sub>2</sub>-Konzentration wäre zu gering, um die Wärmebilanz aufrecht erhalten zu können.
- [0059] Bei der Anlage gemäß der vorliegenden Ausführungsform können hingegen auch gering konzentrierte Ausgangsgase befriedigend verarbeitet werden, indem nur soviel SO<sub>2</sub>-haltiges Gas über den Vorkontakt **15** geführt wird, dass das nach Vereinigung des durch die Bypassleitung **26** und des durch den Vorkontakt **15** geführten Teilstroms gebildete Eintrittsgas für die erste Hauptkontaktstufe **6<sub>1</sub>** (Primärkontakt) noch mindestens 5-6 Vol.-% Schwefeldioxid enthält. Bei dieser Verfahrensführung wird sowohl die Gasrezirkulation aufrechterhalten als auch der Vorkontakt **15** durch Zufuhr von SO<sub>2</sub>-haltigem Gas auf der notwendigen Reaktionstemperatur gehalten, was für die ggf. nachfolgende Verarbeitung hochkonzentrierter Gase vorteilhaft ist. Dabei kann die durch die Bypassleitung **26** strömende Gasmenge über die Schwefeldioxidkonzentration des in die erste Hauptkontaktstufe (Primärkontakt) geführten Prozessgases geregelt werden, wobei die Rezirkulationsmenge auf ein Minimum reduziert wird.
- [0060] Bei der in **Fig. 7** dargestellten Anlage sind die Vorkontaktvorrichtungen, also Vorkontakt **15**, Vorabsorber **16** und Rezirkulationsleitung **19**, vollständig von der nachgeschalteten konventionellen Anlage entkoppelt. Ferner weist die Anlage ein separates Zufuhrsystem, bestehend aus Zuleitung **27**, Gastrockner **28** und Wärmetauscher (nicht dargestellt), für Ausgangsgase mit einem geringen Schwefeldioxidgehalt direkt in den ersten

Hauptkontakt **2** (Primärkontakt) auf. Bei dieser Ausführungsform ist es somit möglich, parallel ein bezüglich Schwefeldioxid hochkonzentriertes und gleichzeitig ein niedrigkonzentriertes Gas zu verarbeiten, indem das hochkonzentrierte Ausgangsgas, das bspw. aus einem Cu-Smelter kommt, zunächst durch den Vorkontakt **15** und den nachgeschalteten Vorabsorber **16** geführt wird, bevor das so generierte, schwefeldioxidarme Prozessgas zusammen mit dem über die Zufuhrleitung **29** zugeführte niedrigkonzentrierten Ausgangsgas, bspw. aus Peirce-Smith-Konvertern, dem Hauptkontakt **2** (Primärkontakt) aufgegeben wird. Durch Steuerung des Rezirkulationsstromes kann sowohl die Gasaustrittstemperatur in dem Vorkontakt auf unter 640 °C gehalten als auch die SO<sub>2</sub>-Konzentration am Eintritt in den Hauptkontakt **2** (Primärkontakt) beeinflusst werden.

[0061] Im Unterschied zu den zuvor beschriebenen Ausführungsbeispielen der vorliegenden Erfindung weist die in der **Fig. 8** dargestellten Anlage keinen Vorkontakt **15** auf, sondern unterscheidet sich von der in **Fig. 1** illustrierten herkömmlichen Anlage durch die mit einem Heißgasgebläse **18** ausgestattete Rezirkulationsleitung **19** und eine vor dem Gastrockner **1** angeordnete Zufuhrleitung **17** für technischen Sauerstoff.

[0062] Bei diesem Verfahren wird die getrocknete und vorgewärmte Mischung aus hochkonzentriertem Ausgangsgas, technischem Sauerstoff, Luft und Rezirkulationsgas, welche erfindungsgemäß mehr als 13 Vol.-% SO<sub>2</sub> enthält, direkt dem Hauptkontakt **2** (Primärkontakt) aufgegeben und durch die einzelnen Kontaktstufen **6<sub>1</sub>** bis **6<sub>5</sub>** beider Hauptkontakte **2, 3**, bei Zwischenkühlung zwischen den einzelnen Stufen **6** und Zwischenabsorption des Schwefeltrioxids in dem Zwischenabsorber **4**, geführt. Dabei werden die Gasströme vorzugsweise so eingestellt, dass das der ersten Kontaktstufe **6<sub>1</sub>** zugeführte Prozessgas einen Schwefeldioxidgehalt von 13 bis 20 Vol.-% und einen Sauerstoffgehalt von 7 bis 20 Vol.-% aufweist. Die Austrittstemperatur des Prozessgases aus der ersten Kontaktstufe **6<sub>1</sub>** kann wiederum durch die Menge an Rezirkulationsgas derart geregelt werden, dass ein Wert von 640 °C nicht überschritten wird. Zwar ist die SO<sub>2</sub>-Emission bei dieser Verfahrensführung etwas höher als bei dem in **Fig. 1** dargestellten, erfüllt aber noch immer die gängigen Umweltschutzanforderungen.

[0063] Optional kann die Anlage mit einer zusätzlichen Gaswaschanlage ausgerüstet werden, wobei dabei das aus dem Endabsorber **5** austretende Gas vor Eintritt in den Kamin **13** einer sogenannten Endgaswäsche unterzogen wird. Hierzu eignen sich Wasserstoffperoxid H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> (Peracidox-Verfahren) oder andere gängige alkalische Verfahren welche z.B. Ammoniak NH<sub>3</sub> oder Natronlauge NaOH als Neutralisationsmittel für das SO<sub>2</sub> benutzen. Damit kann dann der Nachteil der zunächst höheren SO<sub>2</sub>-Emission nach Belieben bzw. gemäß den Anforderungen ausgeglichen werden.

[0064] Mit dieser Anlage wird im Vergleich zu der in **Fig. 1** dargestellten herkömmlichen Anlage bei einem jeweils etwa gleich großen durch den Hauptkontakt **2** (Primärkontakt) geführten Gasstrom etwa 30 % mehr Schwefelsäure pro Zeiteinheit produziert. Da sich der apparative Mehraufwand auf die Rezirkulationsleitung **19** und die Zufuhrleitung **17** von technischem Sauerstoff beschränkt, sind die Investitionskosten für die entsprechende Nachrüstung einer konventionellen Anlage erheblich geringer als die Kosten für eine separate konventionelle Neuanlage mit 30 %-iger Kapazitätssteigerung.

[0065] Analog dazu sind auch die Kosten für eine erfindungsgemäße Neuanlage mit einer entsprechenden Kapazität signifikant geringer als die für eine auf gleiche Kapazität ausgelegte konventionelle Neuanlage. Setzt man für eine neue konventionelle Anlage Investitionskosten von 100 % an, lägen die Kosten für eine neue Anlage mit einer 30 % höheren Kapazität bei etwa 120 %, dieselben Kosten für eine Anlage gemäß des vorliegenden Ausführungsbeispiels hingegen nur bei ca. 110%.

[0066] Abgesehen von den geringeren Anlagekosten liegt ein weiterer Vorteil der erfindungsgemäßen Anlage in den signifikant geringeren Betriebskosten, was einerseits auf einen geringeren spezifischen Bedarf an elektrischer Energie, vor allem aber auf eine höhere spezifische zurückgewinnbare thermische Energie zurückzuführen ist. Neben den niedrigeren Betriebskosten führt das erfindungsgemäße Verfahren demnach auch zu erheblich verringerten Kapitalkosten und somit insgesamt zu wesentlich reduzierten Herstellungs- oder Verarbeitungskosten für die produzierte Schwefelsäure.

[0067] **Fig. 9** zeigt eine typische praktische Ausführung des erfindungsgemäßen Verfahrens mit Details der Zwischenkühlung und Energiemanagement der Anlage.

[0068] Nassgereinigtes Gas aus einer Gasreinigungsanlage **900** wird in den Gastrockenturm **901** geführt (80.900 Nm<sup>3</sup>/h; 22,25 Vol.-% SO<sub>2</sub>, 12,39 Vol.-% O<sub>2</sub>) mit einem Mol-Verhältnis O<sub>2</sub>/SO<sub>2</sub> von lediglich 0,557, d.h. geringfügig über dem stöchiometrischen Bedarf von 0,5. Mittels eines Hauptgebläses **902** wird das Gas auf Druck gebracht, ausreichend um den gesamten Gaswiderstand der nachgeschalteten Anlage zu überkommen. Das Gas tritt in den Wärmetauscher **903** mit 100°C ein. Dieser Wärmetauscher ist vorzugsweise als Kombination eines liegenden Verschleißapparates und des stehenden Hauptaustauschers ausgeführt. Das Gas wird darin aufgeheizt auf 154 °C bevor es über die Gasleitung **904** in den Kontaktapparat **905** (Vorkontakt **15**) gelangt. Weiter gelangt es in die Rohrseite des Wärmetauschers **906** und tritt von dort aus mit 452°C. Im unteren Teil wird nun vor Eintritt in die erste Kontakthorde rückgeführtes Gas über die Leitung **914** beigemischt, bevor das Gas zur 1. Horde (B1) des Vorkontaktes **15** gelangt. Hierdurch ergibt sich eine Gesamtgasmenge von 105.900 Nm<sup>3</sup>/h (18,45 Vol.-% SO<sub>2</sub>; 10,47 Vol.-% O<sub>2</sub>; 4,29 Vol.-% SO<sub>3</sub>) zu dieser Horde (B1).

[0069] Das Gas strömt von unten in die erste Horde (B1) und verlässt diese mit 639°C bevor es in die Man-

telseite des innenliegenden Wärmetauschers **906** eintritt. Darin wird das Gas vor Eintritt in die 2. Horde des Vorkontaktes (B2) bis auf 445°C gekühlt. In dieser Horde erwärmt sich das Gas auf 561°C und verlässt den Kontaktapparat **905** durch die Gasleitung **908** und tritt in den Verdampfer **909** ein. Darin wird ein Teil der Wärme aus dem System entfernt und zur Dampferzeugung benutzt. Aus dem Verdampfer tritt das Gas aus mit 211 °C. Ein geringer Teil dieses Gases (25.000 Nm<sup>3</sup>/h) wird mittels der Leitung 913 dem Rezirkulationsgebläse **911** zugeführt und über die Leitung 914 zum Eintritt der 1. Kontakthorde (B1) rezirkuliert.

[0070] Der Rest des Gases (74.047 Nm<sup>3</sup>/h) gelangt über die Leitung **912** in den vorgenannten Wärmetauscher **903**, wird dort auf 170 °C abgekühlt und mittels der Leitung 915 dem Vorabsorber **916** zugeführt. Das vorhandene SO<sub>3</sub> (**18,17** Vol.-%) wird darin absorbiert, wobei der Absorber wegen der hohen SO<sub>3</sub>-Konzentration vorzugsweise als Venturiabsorber ausgebildet ist. Durch die Absorption des SO<sub>3</sub> tritt eine Volumenänderung ein auf 60.595 Nm<sup>3</sup>/h (7,54 Vol.-% SO<sub>2</sub>; 5,20 Vol.-% O<sub>2</sub>). Die Gasmenge **917** beträgt nunmehr nur noch ca. 57 der vorhergehenden Gasmenge durch den Vorkontakt (B1).

[0071] Die Gase verlassen den Vorabsorber mit 80°C über die Leitung **917** zur Vorwärmung im nachfolgenden Wärmetauscher **918**, der vorzugsweise als geteilter Apparat (wie Pos. **903**) ausgeführt ist. Der Kontaktapparat **905** kann im Bereich der Horden (B3) und (B4) mit wesentlich kleinerem Durchmesser ausgeführt werden, da die Gasmenge erheblich geringer ist als bei den Horden (B1) und (B2). Das auf 282°C vorgewärmte Gas wird nun über die Leitung **919** wieder in den Kontaktapparat **905** eingeführt, um in dem innenliegenden Wärmetauscher **907** rohrseitig auf die Eintrittstemperatur von 425°C für die 1. Kontakthorde (B3) des Primärkontaktes aufgewärmt zu werden. Das Gas durchströmt diese Katalysatorhorde (B3) vorzugsweise von unten nach oben und tritt von dort aus mit 573°C. Im Weiteren wird das Gas auf der Mantelseite des Wärmetauschers **907** auf 440°C abgekühlt, geeignet für den Eintritt in die 2. Horde des Primärkontaktes (B4). Durch die fortschreitende Katalyse erwärmt sich das Gas auf 488°C und wird jetzt mit der Leitung **920** aus dem Kontaktapparat **905** herausgeleitet und dem zweiten Kontaktapparat **921** zugeführt. Dort wird das Gas in den innenliegenden Wärmetauscher **922** mantelseitig geführt, um darin auf 430°C abzukühlen, vor Eintritt in die 3. Kontakthorde des Primärkontaktes (B5). Das Gas tritt aus dieser Horde aus mit 445°C und wird mittels der Leitung **924** aus dem Kontaktapparat **921** in den Wärmetauscher **925** geleitet, der vorzugsweise als geteilter Apparat (wie Pos. **903**) ausgeführt ist.

[0072] Im Wärmetauscher **925** wird das Gas auf 237°C gekühlt, bevor es über die Leitung **926** in den Economiser **927** eingeleitet wird. Hierin wird nochmals überschüssige Wärme aus dem System entfernt und vorzugsweise an Wasser oder Dampf übertragen. Nach Abkühlung im Economiser **927** auf 170°C gelangt das Gas über die Leitung **928** in den Zwischenabsorber **929**, in dem das gebildete SO<sub>3</sub> absorbiert wird (7,35 Vol.-% SO<sub>3</sub>). Vom SO<sub>3</sub> befreit, verlässt das Gas den Zwischenabsorber **929** mit 80°C über die Leitung **930** als Volumenstrom von 54.119 Nm<sup>3</sup>/h (0,51 Vol.-% SO<sub>2</sub>; 1,77 Vol.-% O<sub>2</sub>) zum Wärmetauscher **925** zur Vorwärmung für den nachfolgenden Nach- oder Sekundärkontakt.

[0073] Den Wärmetauscher **925** verlässt das Gas mit 316°C über die Leitung **931**. Vor Wiedereintritt in den Kontaktapparat **921** wird das Gas in zwei Teilströme **932** und **933** aufgeteilt. Der erste Teilgasstrom **933** wird im innenliegenden Wärmetauscher **922** rohrseitig auf 410°C aufgewärmt, während der zweite Teilstrom **932** im innenliegenden Wärmetauscher **923** ebenso rohrseitig auf 410°C aufgeheizt wird. Im Kontaktapparat **921** werden die beiden Teilströme wieder vereinigt, bevor sie der 1. Horde des Sekundärkontaktes (B6) zugeführt werden.

[0074] Nach Durchgang durch diese Katalysestufe tritt das Gas mit 426°C in den innenliegenden Wärmetauscher mantelseitig ein und wird darin vor Eintritt in die 2. Horde des Sekundärkontaktes (B7) auf 410°C abgekühlt. Die weitere Umsetzung des verbleibenden SO<sub>2</sub> führt nur noch zu einer Temperaturerhöhung von weniger als 1 °C, so dass das Gas den Kontaktapparat **921** über die Leitung **934** mit 410°C verlässt.

[0075] Das Gas wird nun dem Wärmetauscher **918** zugeführt, in dem es auf 172°C abgekühlt wird, um danach mittels der Leitung **935** in den Endabsorber **936** zu gelangen. Hier wird das restliche SO<sub>3</sub> (**0,5** Vol.-% SO<sub>3</sub>) absorbiert und das Gas dann via die Leitung **937** und den Kamin **938** mit 80°C in die Atmosphäre abgegeben. Die Gasmenge beträgt hier noch 53.707 Nm<sup>3</sup>/h mit einem theoretischen Restgehalt an SO<sub>2</sub> von 170 ppm vol., entsprechend 0,33 t SO<sub>2</sub> pro t H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>.

[0076] Im folgenden wird die Erfindung anhand von sieben den Erfindungsgedanken demonstrierenden, diesen jedoch nicht einschränkenden Beispielen und eines Vergleichsbeispiels erläutert.

[0077] In allen Beispielen und dem Vergleichsbeispiel wurde jeweils gleiches, pyrometallurgisch erzeugtes Ausgangsgas mit folgender Zusammensetzung eingesetzt:

36 Vol.-% SO<sub>2</sub>

4.5 Vol.-% O<sub>2</sub>

2 Vol.-% CO<sub>2</sub>

57,5 Vol.-% N<sub>2</sub>.

[0078] Dabei wurde das Ausgangsgas in dem Vergleichsbeispiel 1 in einer der **Fig. 1** entsprechenden Anlage gemäß dem Stand der Technik und in den Beispielen **2** bis **8** jeweils in einer der Figur mit gleicher Nummerierung entsprechenden Anlage gemäß der vorliegenden Erfindung zu Schwefelsäure verarbeitet.

[0079] Die Volumenströme und Zusammensetzungen der relevanten Gasströme an den einzelnen Anlageteile sowie die Mengen an erzeugter Schwefelsäure und absorbiertem Schwefeltrioxid sind in der Tabelle 1 zusammengefasst. Dabei entsprechen die in Spalte 1 der Tabelle 1 für die einzelnen Stoffströme angegebenen Nummern den in den Zeichnungen verwendeten Bezugszeichen derjenigen Anlageteile, wie Leitungen, Absorbern etc., durch welche die entsprechenden Stoffströme geführt werden.

[0080] In der Tabelle 2 sind für die einzelnen Beispiele die Temperaturen in den einzelnen Kontaktschichten sowie die Umsätze der Oxidationsreaktion angegeben.

[0081] Schließlich ist in der Tabelle 3 für die einzelnen Beispiele der spezifische Verbrauch an Betriebsmitteln und Emissionen zusammengefasst.

[0082] Wie sich aus der Tabelle 1 ergibt, wird mit Ausnahme von Beispiel 6 mit allen erfindungsgemäß durchgeführten Verfahren mehr Schwefelsäure pro Zeiteinheit erhalten als mit dem Verfahren gemäß Stand der Technik. Dies liegt insbesondere daran, dass bei dem erfindungsgemäßen Verfahren aufgrund des geringeren notwendigen Verdünnungsgrades bis zu 50 % mehr Ausgangsgas pro Zeiteinheit verarbeitet werden kann als mit dem Verfahren gemäß Vergleichsbeispiel 1.

[0083] Wie der Tabelle 2 entnommen werden kann, lässt sich die Gasaustrittstemperatur in den erfindungsgemäßen Beispielen auch in der jeweils ersten Kontaktstufe, in welcher Kontaktgas mit einem Schwefeldioxidgehalt von mehr als 13 Vol.-% aufgegeben wird, mühelos unterhalb einer für den Vanadiumpentoxidkatalysator kritischen Wert regeln. Dabei erfolgt die Regelung insbesondere durch Einstellung des Mengenstromes an Rezirkulationsgas.

[0084] Schließlich zeigt Tabelle 3, dass bei fast allen erfindungsgemäßen Beispielen die Betriebskosten unterhalb derer des Vergleichsbeispiels lagen. Insbesondere konnte mit den Verfahren der Beispiele 2 bis 5 und 8 eine signifikant höhere spezifische Wärmerückgewinnung erreicht. Gleichzeitig lagen auch die spezifischen Emissionswerte unterhalb derer des Vergleichsbeispiels.

#### Bezugszeichenliste

- 1 Gastrockner
- 2 erster Hauptkontakt (Primärkontakt)
- 3 zweiter Hauptkontakt (Sekundärkontakt)
- 4 Zwischenabsorber
- 5 Endabsorber
- 6 Hauptkontaktstufe
- 7 Gasleitung zu dem Gastrockner
- 8 Zufuhrleitung für Verdünnungsluft
- 9 Zufuhrleitung zu dem ersten Hauptkontakt (Primärkontakt)
- 10 Gasleitung zu dem Zwischenabsorber
- 11 Zufuhrleitung zu dem zweiten Hauptkontakt (Sekundärkontakt)
- 12 Leitung zu dem Endabsorber
- 13 Kamin
- 14 Produktabfuhrleitung
- 15 Vorkontakt
- 16 Vorabsorber
- 17 Zuleitung für technischen Sauerstoff
- 18 Heißgasgebläse
- 19 Rezirkulationsleitung
- 20 Zufuhrleitung zu dem Vorkontakt
- 21 Gasleitung zu dem Vorabsorber
- 22 Vorkontaktstufe
- 23 Abfuhrleitung aus Vorabsorber
- 24 Nachrockner
- 25 Bypassleitung um Vorabsorber
- 26 Bypassleitung um Vorkontakt
- 27 Zuleitung für Ausgangsgas mit weniger als 13 Vol.-% SO<sub>2</sub>
- 28 zweiter Gastrockner
- 29 Zuleitung
- 30 Stellventil
- T rezirkulierter Teilstrom

Tabelle 1 (Gasdaten)

Nr.	Vergleichs- beispiel 1	Beispiel 2	Beispiel 3	Beispiel 4	Beispiel 5	Beispiel 6	Beispiel 7	Beispiel 8
	Ausgangsgas (Pyrometallurgisches Starkgas)							
	36	36	36	36	36	14	36	36
	SO <sub>2</sub> (Vol.-%)	4,5	4,5	4,5	4,5	4,5	4,5	4,5
	O <sub>2</sub> (Vol.-%)	2	2	2	2	2	2	2
	CO <sub>2</sub> (Vol.-%)	57,5	57,5	57,5	57,5	79,5	57,5	57,5
	N <sub>2</sub> (Vol.-%)	50000	75000	75000	75000	75000	50000	65000
	Volumenstrom Nm <sup>3</sup> /h							
8	Verdünnungsluft Nm <sup>3</sup> /h	25000	24000	25000	25000	24000	25000	51000
17	Techn. Sauerstoff (90% O <sub>2</sub> ) Nm <sup>3</sup> /h	7900	7300	7900	7900	0	0	5300
4	Gas nach Gastrockner							
	SO <sub>2</sub> (Vol.-%)	12,24	25,4	25,02	25,02	10,61	24	19,29
	O <sub>2</sub> (Vol.-%)	15,32	14,07	14,56	14,56	8,48	9,97	15,13
	CO <sub>2</sub> (Vol.-%)	0,68	1,41	1,39	1,39	1,52	1,33	1,07
	N <sub>2</sub> (Vol.-%)	71,75	59,11	59,03	59,03	79,4	64,7	64,51
	Nm <sup>3</sup> /h	147000	106300	107900	107900	99000	75000	121300
	O <sub>2</sub> / SO <sub>2</sub>	1,25	0,55	0,58	0,58	0,80	0,6227381	0,78
19	Rezirkulationsgas							
	SO <sub>2</sub> (Vol.-%)	-	7,15	0,7	0,7	0,42	8,54	1,67
	SO <sub>3</sub> (Vol.-%)	-	20,99	10,69	10,69	8,94	17,64	19,57
	O <sub>2</sub> (Vol.-%)	-	4,86	2,86	2,86	3,50	1,85	6,64
	CO <sub>2</sub> (Vol.-%)	-	1,56	1,97	1,97	1,63	1,45	1,18
	N <sub>2</sub> (Vol.-%)	-	65,44	83,77	83,77	85,5	70,52	70,94
	Nm <sup>3</sup> /h	-	44000	52000	52000	6000	22000	27000
20	Gas zum Vorkontakt							
	SO <sub>2</sub> (Vol.-%)	-	20,06	17,11	17,11	8,24	20,49	-
	SO <sub>3</sub> (Vol.-%)	-	6,15	3,48	3,48	2,08	4	-
	O <sub>2</sub> (Vol.-%)	-	11,38	10,75	10,75	7,32	8,13	-
	CO <sub>2</sub> (Vol.-%)	-	1,46	1,58	1,58	1,54	1,36	-
	N <sub>2</sub> (Vol.-%)	-	60,97	67,08	67,08	80,82	66,02	-
	Nm <sup>3</sup> /h	-	150300	159900	159900	25800	97000	-

	Vergleichs- beispiel 1	Beispiel 2	Beispiel 3	Beispiel 4	Beispiel 5	Beispiel 6	Beispiel 7	Beispiel 8
9 Gas zum 1. Hauptkontakt (Primärkontakt)								
SO2 (Vol.-%)	12,24	10,79	9,05	10,79	11,47	8,94	9,02	16,08
SO3 (Vol.-%)	0	0	0	0	5,46	0	0	3,56
O2 (Vol.-%)	15,32	7,89	6,15	7,89	8,05	7,72	7,76	13,59
CO2 (Vol.-%)	0,68	1,87	1,98	1,87	1,73	1,56	0,94	1,09
N2 (Vol.-%)	71,75	79,45	82,83	79,45	73,29	81,78	82,28	65,68
Nm³/h	147000	134999	75869	134999	132280	102394	106673	148300
11 Gas zum 2. Hauptkontakt (Sekundärkontakt)								
SO2 (Vol.-%)	0,58	0,79	0,65	0,79	1,51	0,47	0,48	2,07
SO3 (Vol.-%)	0	0	0	0	0	0	0	0
O2 (Vol.-%)	11,32	3,2	2,07	3,2	3,54	3,85	3,85	8,26
CO2 (Vol.-%)	0,83	2,21	2,27	2,21	2,18	1,79	1,08	1,47
N2 (Vol.-%)	87,28	93,8	95,01	93,8	92,77	93,9	94,59	88,2
Nm³/h	120852	67898	66142	67898	68656	83720	92794	88711
Abgas zum Kamin								
Nm³/h	119807	67109	65110	67109	67123	83142	92140	85967
SO2 (ppm)	145	194	201	194	306	100	102	270
Umsatz	99,91	99,95	99,95	99,95	99,92	99,92	99,96	99,90
14 H2SO4, normale Qualität								
t/d	1935	2902	2902	1973	1321	1128	2338	2514
23 H2SO4, höhere Qualität								
t/d	-	-	-	929	1580	-	-	-
16 SO3 absorbiert (Vorabsorber)								
kg/h	-	67111	73641	67111	44958	6967	44349	-
4 SO3 absorbiert (Zwischenabs.)								
kg/h	63276	29688	23537	29688	50050	30010	33586	78862
5 SO3 absorbiert (Endabsorber)								
kg/h	2529	1910	1529	1910	3711	1397	1582	6641
26 Bypass um Vorkontakt								
SO2 (Vol.-%)	-	-	-	-	-	10,61	-	-
O2 (Vol.-%)	-	-	-	-	-	8,48	-	-
CO2 (Vol.-%)	-	-	-	-	-	1,52	-	-
N2 (Vol.-%)	-	-	-	-	-	79,4	-	-
Nm³/h	-	-	-	-	-	79200	-	-

25 Bypass Vorabsorber	Vergleichs-							
	beispiel 1	Beispiel 2	Beispiel 3	Beispiel 4	Beispiel 5	Beispiel 6	Beispiel 7	Beispiel 8
Nm³/h	-	-	-	-	53498	-	-	-
Pyrometallurgisches Schwachgas Konzentrationen	-	-	-	-	-	-	7,5	-
SO2 (Vol.-%)	-	-	-	-	-	-	14	-
O2 (Vol.-%)	-	-	-	-	-	-	0	-
CO2 (Vol.-%)	-	-	-	-	-	-	78,5	-
N2 (Vol.-%)	-	-	-	-	-	-	40000	-
Volumenstrom	-	-	-	-	-	-	-	-

**Tabelle 2 (Konverter Temperaturen und Umsätze)**  
 Vergleichs-  
 beispiel 1

	Beispiel 1	Beispiel 2	Beispiel 3	Beispiel 4	Beispiel 5	Beispiel 6	Beispiel 7	Beispiel 8
<b>Vorkontakt</b>								
1. Stufe (Eingang)	T (°C)	430	425	430	430	425	425	-
	Umsatz SO2 (%)	16,9	23,4	16,9	20,6	20,1	16,3	-
1. Stufe (Ausgang)	T (°C)	640	640	640	640	577	639	-
	Umsatz SO2 (%)	55,7	56,2	55,7	56,3	71,6	49,6	-
2. Stufe (Eingang)	T (°C)	-	445	-	-	-	445	-
	Umsatz SO2 (%)	-	56,2	-	-	-	49,6	-
2. Stufe (Ausgang)	T (°C)	-	565	-	-	-	557	-
	Umsatz SO2 (%)	-	74,6	-	-	-	67,4	-
<b>Primärkontakt</b>								
1. Stufe (Eingang)	T (°C)	425	425	425	425	425	425	425
	Umsatz SO2 (%)	0	0	0	32,2	0	0	18,1
1. Stufe (Ausgang)	T (°C)	640	590	610	588	595	596	640
	Umsatz SO2 (%)	62,2	62,6	59,9	68,1	65,3	64,9	59,7
2. Stufe (Eingang)	T (°C)	445	435	440	440	440	440	445
	Umsatz SO2 (%)	62,2	62,6	59,9	68,1	65,3	64,9	59,7
2. Stufe (Ausgang)	T (°C)	534	498	517	517	501	502	556
	Umsatz SO2 (%)	87,7	86,1	84,4	84,9	88,4	88,2	81,1
3. Stufe (Eingang)	T (°C)	435	430	430	430	430	430	435
	Umsatz SO2 (%)	87,7	86,1	84,4	84,9	88,4	88,2	81,1
3. Stufe (Ausgang)	T (°C)	464	450	460	467	449	449	493
	Umsatz SO2 (%)	95,0	93,7	93,8	93,0	95,5	95,4	92,1
<b>Sekundärkontakt</b>								
4. Stufe (Eingang)	T (°C)	415	415	415	415	415	415	405
	Umsatz SO2 (%)	0	0	0	0	0	0	0
4. Stufe (Ausgang)	T (°C)	433	435	439	450	429	430	467
	Umsatz SO2 (%)	98	95,1	95,7	94,6	96,9	96,9	95,2
5. Stufe (Eingang)	T (°C)	410	410	410	410	410	410	400
	Umsatz SO2 (%)	98	95,1	95,7	94,6	96,9	96,9	95,2
5. Stufe (Ausgang)	T (°C)	411	411	411	412	410	410	402
	Umsatz SO2 (%)	98,0	97	97,6	98,0	97,9	97,9	98,7
<b>Gesamtumsatz</b>	(%)	99,91	99,95	99,95	99,92	99,92	99,96	99,90

Tabelle 3 (Spezifische Daten)

	Vergleichs- beispiel 1	Beispiel 2	Beispiel 3	Beispiel 4	Beispiel 5	Beispiel 6	Beispiel 7	Beispiel 8
Spezifischer Bedarf elektrischer Energie	55	52	45	54	52	73	49	45
	(kWh / t H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> )							
Spezifische Wärmerückgewinnung aus Gas	123	165	187	165	184	81	96	185
	(kWh / t H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> )							
Spezifischer Kühlwasserbedarf	37	32	30	32	31	42	33	31
	(m <sup>3</sup> / t H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> )							
Spezifische Emission SO <sub>2</sub>	0,63	0,65	0,32	0,32	0,32	0,50	0,52	0,28
	(kg SO <sub>2</sub> / t H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> )							
Spezifische Emission SO <sub>3</sub>	0,045	0,025	0,017	0,016	0,017	0,017	0,053	0,028
	(kg SO <sub>3</sub> / t H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> )							

## Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Schwefelsäure, bei dem ein Schwefeldioxid enthaltendes Ausgangsgas mit Sauerstoff in wenigstens zwei nacheinander angeordneten Kontaktstufen (**6<sub>1</sub>,...6<sub>n</sub>**) von Hauptkontakten (**2, 3**) wenigstens teilweise zu Schwefeltrioxid umgesetzt wird und bei dem das erzeugte schwefeltrioxidhaltige Gas in einen Absorber (**4, 5, 16**) geführt und dort zu Schwefelsäure umgesetzt wird, **dadurch gekennzeichnet**, dass aus einer der letzten Hauptkontaktstufe (**6<sub>1</sub>**) vorgeschalteten Kontaktstufe (**6<sub>1</sub>,...6<sub>n-1</sub>, 22<sub>1</sub>,...22<sub>n</sub>**) ein Teilstrom (T) des schwefeldioxid- und schwefeltrioxidhaltigen Gases abgezogen wird und dass dieser Teilstrom (T) mit dem Ausgangsgas zu einem Kontaktgas mit einem Schwefeldioxidgehalt von mehr als 13 Vol.-% vermischt und in eine erste Kontaktstufe (**6<sub>1</sub>, 22<sub>1</sub>**) zurückgeführt wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das Kontaktgas einen Schwefeldioxidgehalt von 14 bis 25 Vol.-% aufweist.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass dem Ausgangsgas vorzugsweise vor der Vermischung mit dem Teilstrom (T) Luft und/oder technischer Sauerstoff zugeführt wird und dass das Verhältnis von O<sub>2</sub> zu SO<sub>2</sub> in dem Kontaktgas, bezogen auf deren Volumenanteile, auf weniger als 1,2, vorzugsweise weniger als 0,8 eingestellt wird.
4. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass der Volumenanteil des dem Ausgangsgas zugeführten Teilstroms (T) 15 bis 35 % des Kontaktgas beträgt.
5. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass dem Hauptkontakt (**2, 3**) ein Vorkontakt (**15**) vorgeschaltet ist, dem das Kontaktgas zugeführt wird, dass aus dem Vorkontakt (**15**) ein höchstens 13 Vol.-% Schwefeldioxid enthaltendes Prozessgas abgezogen wird und dass dieses Prozessgas der ersten Kontaktstufe (**6<sub>1</sub>**) des Hauptkontakts (**2**) zugeführt wird.
6. Verfahren nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, dass der Vorkontakt (**15**) eine oder zwei Vorkontaktstufen (**22<sub>1</sub>, 22<sub>2</sub>**) aufweist.
7. Verfahren nach Anspruch 5 oder 6, dadurch gekennzeichnet, dass das aus dem Vorkontakt (**15**) austretende Prozessgas vor der Einleitung in den Hauptkontakt (**2**) durch einen Vorabsorber (**16**) geführt wird.
8. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass das aus dem ersten Hauptkontakt (**2**) austretende Prozessgas vor der Einleitung in den zweiten Hauptkontakt (**3**) einem Zwischenabsorber (**4**) zugeführt wird.
9. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass aus dem zweiten Hauptkontakt (**3**) austretende Prozessgas einem Endabsorber (**5**) zugeführt wird.
10. Verfahren nach einem der Ansprüche 5 bis 9, dadurch gekennzeichnet, dass wenigstens ein Teil des aus dem Vorkontakt (**15**) austretenden Prozessgases über eine Bypassleitung (**25**) an dem Vorabsorber (**16**) vorbei direkt in den Hauptkontakt (**2**) geführt wird.
11. Verfahren nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, dass das aus dem Endabsorber (**5**) austretende Gas einer Gaswäsche, insbesondere mit Wasserstoffperoxid, Ammoniak oder Natronlauge als Neutralisationsmittel für das Schwefeldioxid, unterzogen wird.
12. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass der Teilstrom (T) vor der Rückführung in die erste Kontaktstufe (**6<sub>1</sub>, 22<sub>1</sub>**) auf eine Temperatur < 500 °C gekühlt wird.
13. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Menge des als Teilstrom (T) rezirkulierten Gases auf der Basis der Austrittstemperatur des Gases aus der ersten Kontaktstufe (**6<sub>1</sub>, 22<sub>1</sub>**) geregelt wird.
14. Anlage zur Herstellung von Schwefelsäure, insbesondere zur Durchführung eines Verfahrens nach einem der Ansprüche 1 bis 13, mit wenigstens zwei nacheinander angeordneten Kontaktstufen (**6<sub>1</sub>,...6<sub>n</sub>**) von Hauptkontakten (**2, 3**) zur Umsetzung eines Schwefeldioxid enthaltenden Ausgangsgases mit Sauerstoff zu Schwefeltrioxid und mit wenigstens einem Absorber (**4, 5, 16**), dadurch gekennzeichnet, dass der ersten Hauptkontaktstufe (**6<sub>1</sub>**) wenigstens eine Vorkontaktstufe (**22<sub>1</sub>, 22<sub>2</sub>**) vorgeschaltet ist und dass der Austrittsbe-

reich einer der letzten Kontaktstufe ( $6_n$ ) des Hauptkontakts (**3**) vorgeschalteten Kontaktstufe ( $6_1 \dots 6_{n-1}$ ,  $22_1 \dots 22_n$ ) bspw. über eine Rezirkulationsleitung (**19**) mit dem Eintrittsbereich der ersten Vorkontaktstufe ( $22_1$ ) verbunden ist.

15. Anlage nach Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, dass die Rezirkulationsleitung (**19**) ein Heißgasgebläse (**18**) aufweist.

16. Anlage nach Anspruch 14 oder 15, dadurch gekennzeichnet, dass die Rezirkulationsleitung (**19**) von dem Austrittsbereich der letzten Kontaktstufe ( $6_3$ ) des ersten Hauptkontakts (**2**) zu dem Eintrittsbereich des Vorkontakts (**15**) führt.

17. Anlage nach einem der Ansprüche 14 bis 16, dadurch gekennzeichnet, dass die Rezirkulationsleitung (**19**) von dem Austrittsbereich der letzten Kontaktstufe ( $22_1$ ,  $22_2$ ) des Vorkontakts (**15**) zu dem Eintrittsbereich des Vorkontakts (**15**) führt.

18. Anlage nach einem der Ansprüche 14 bis 17, dadurch gekennzeichnet, dass der Vorkontakt (**15**) eine oder zwei Vorkontaktstufen ( $22_1$ ,  $22_2$ ) aufweist, dass der erste Hauptkontakt (**2**) drei ( $6_1$ ,  $6_2$ ,  $6_3$ ) aufweist und dass der zweite Hauptkontakt (**3**) zwei Hauptkontaktstufen ( $6_4$ ,  $6_5$ ) aufweist.

19. Anlage nach einem der Ansprüche 14 bis 18, dadurch gekennzeichnet, dass zwischen dem Vorkontakt (**15**) und dem ersten Hauptkontakt (**2**) ein Vorabsorber (**16**), zwischen dem ersten (**2**) sowie zweiten Hauptkontakt (**3**) ein Zwischenabsorber (**4**) und nach dem zweiten Hauptkontakt (**3**) ein Endabsorber (**5**) vorgesehen ist.

20. Anlage nach Anspruch 19 dadurch gekennzeichnet, dass zwischen dem Vorkontakt (**15**) und dem ersten Hauptkontakt (**2**) eine an dem Vorabsorber (**16**) vorbeiführende Bypassleitung (**25**) vorgesehen ist.

21. Anlage nach einem der Ansprüche 14 bis 20, dadurch gekennzeichnet, dass zwischen den Eintrittsleitungen (**20**, **9**) des Vorkontakts (**15**) und des ersten Hauptkontakts (**2**) eine an dem Vorkontakt (**15**) vorbeiführende Bypassleitung (**26**) vorgesehen ist.

Es folgen 9 Blatt Zeichnungen

Fig.1

STAND DER TECHNIK

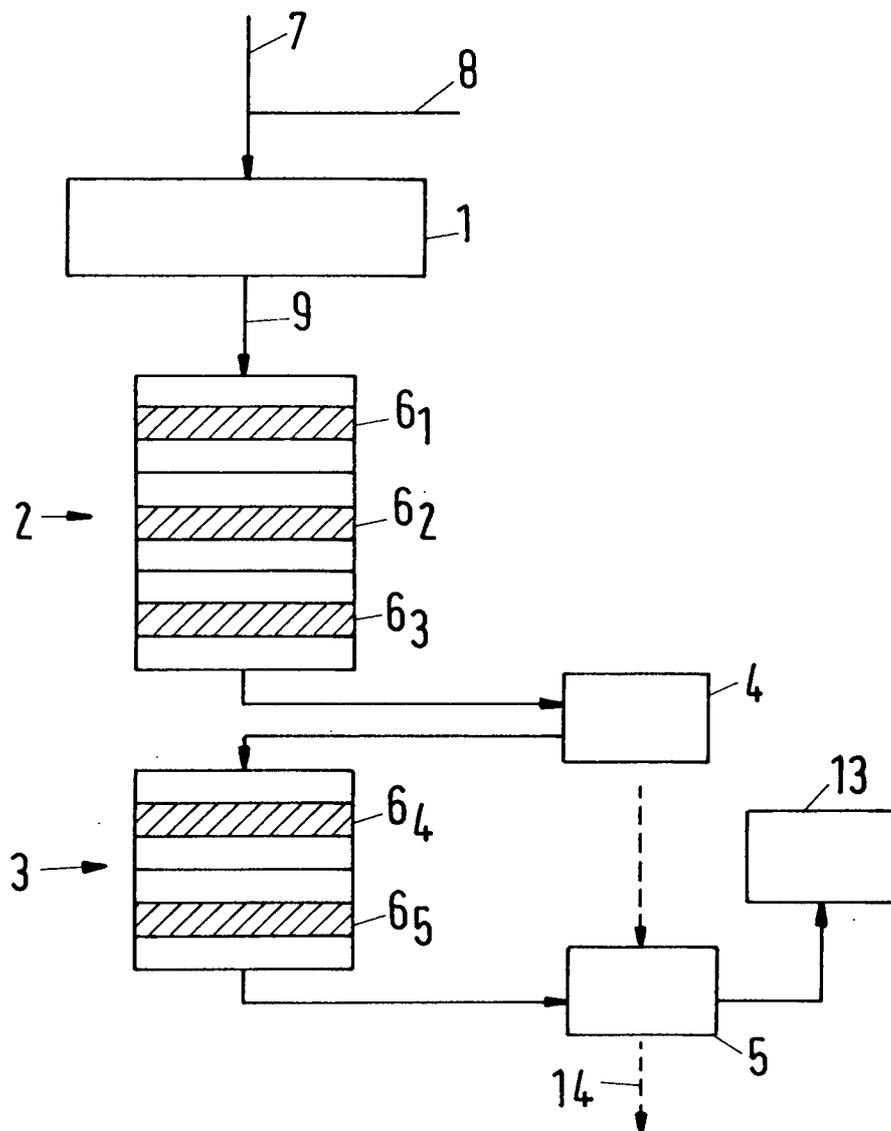


Fig. 2

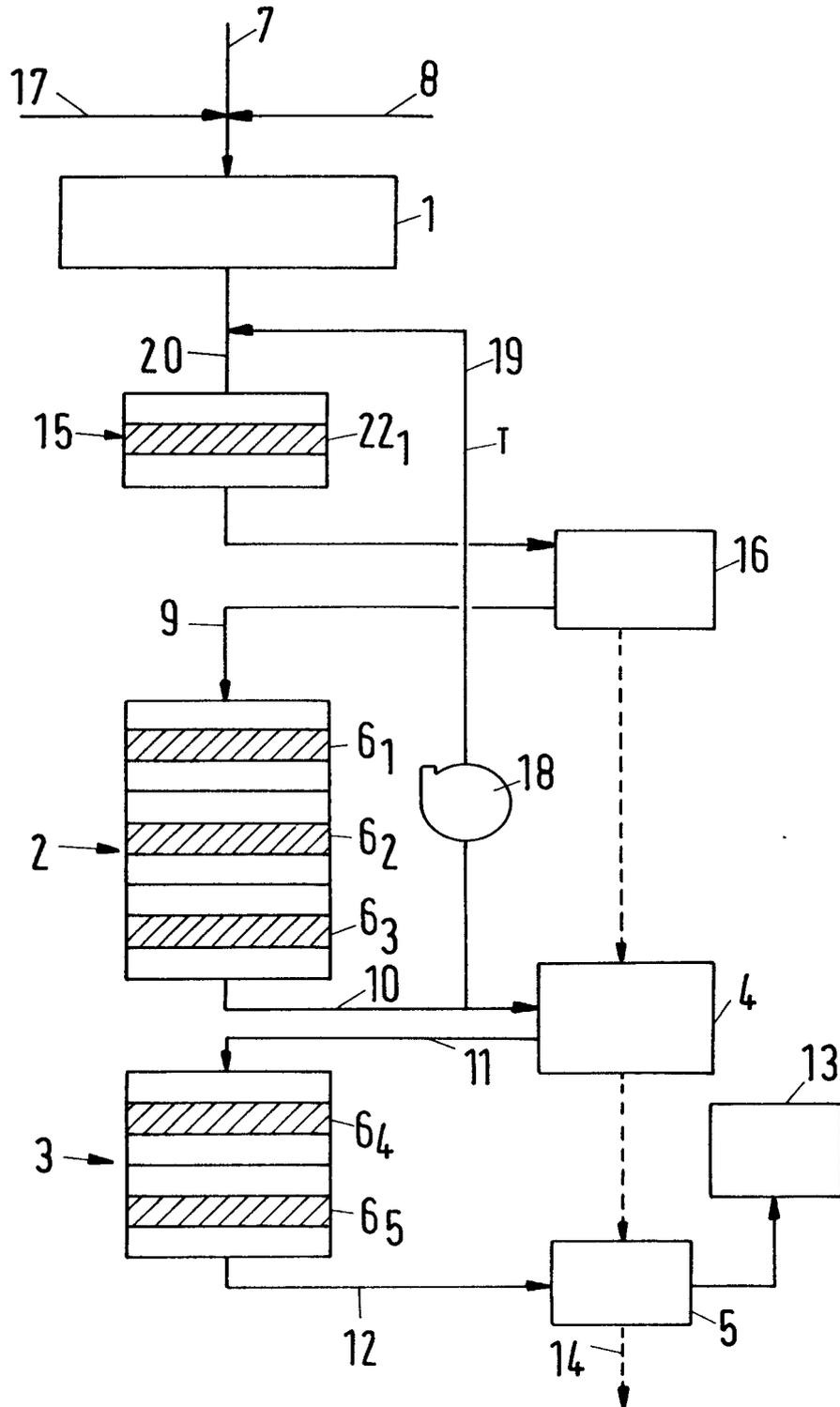


Fig.3

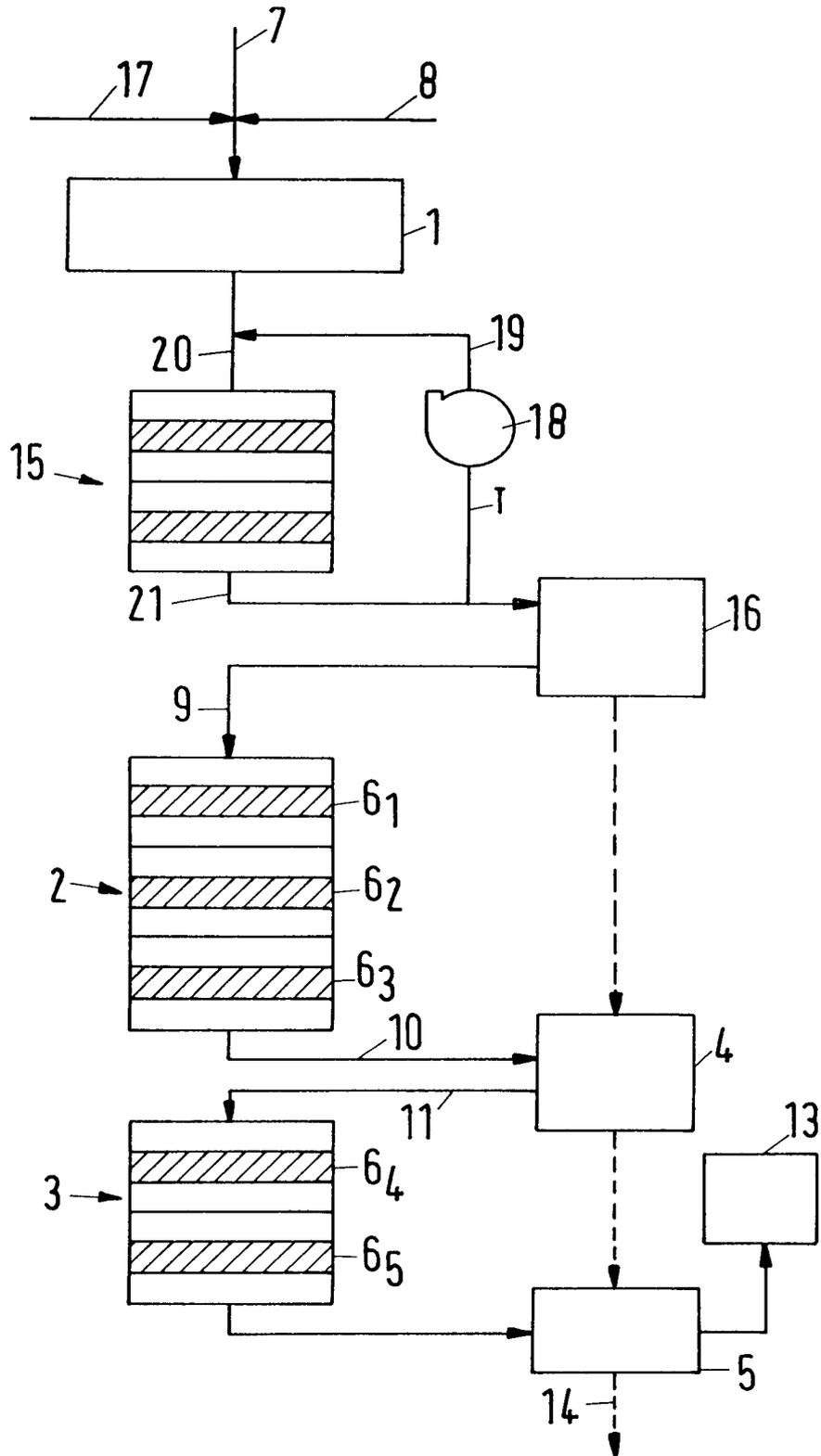


Fig.4

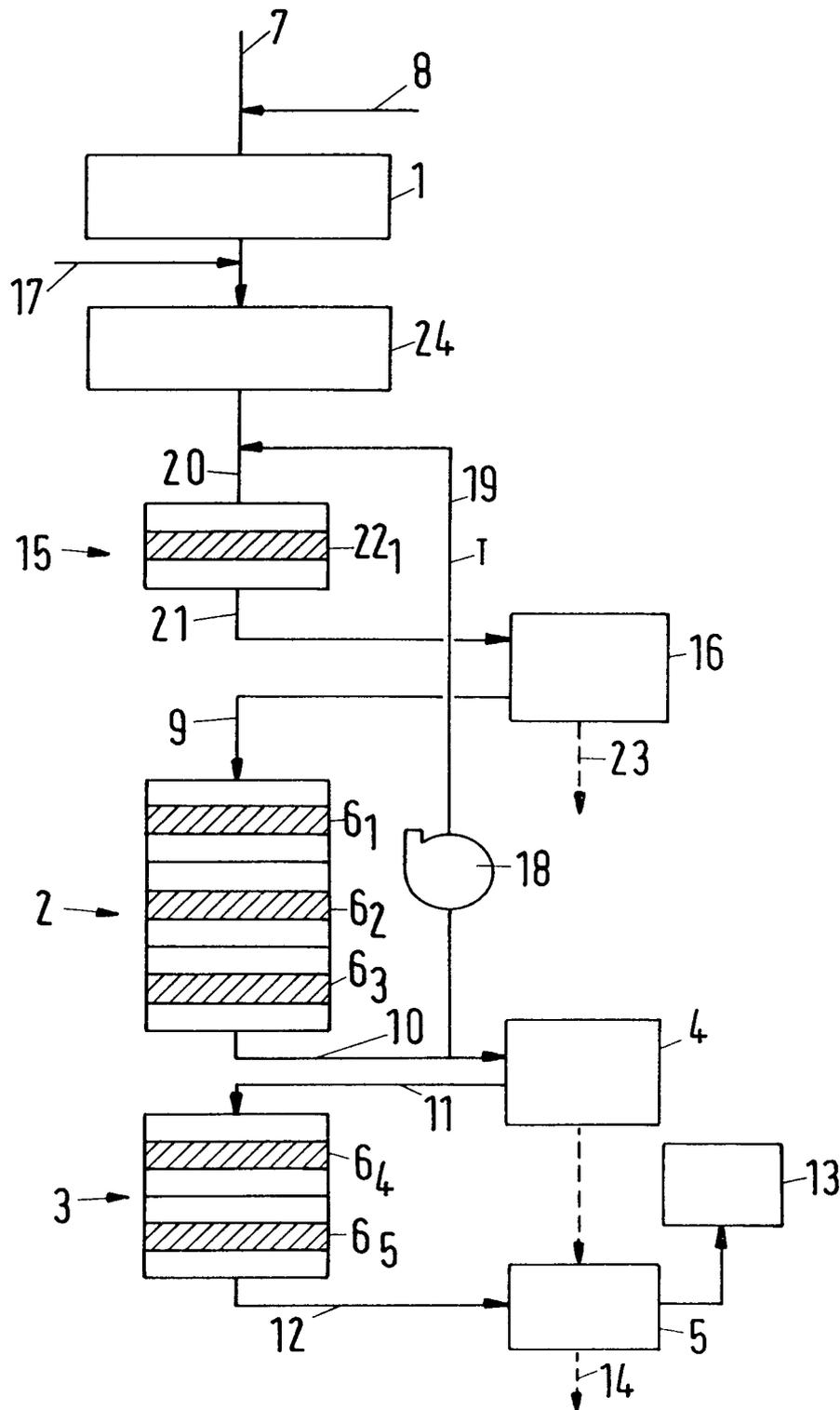


Fig. 5

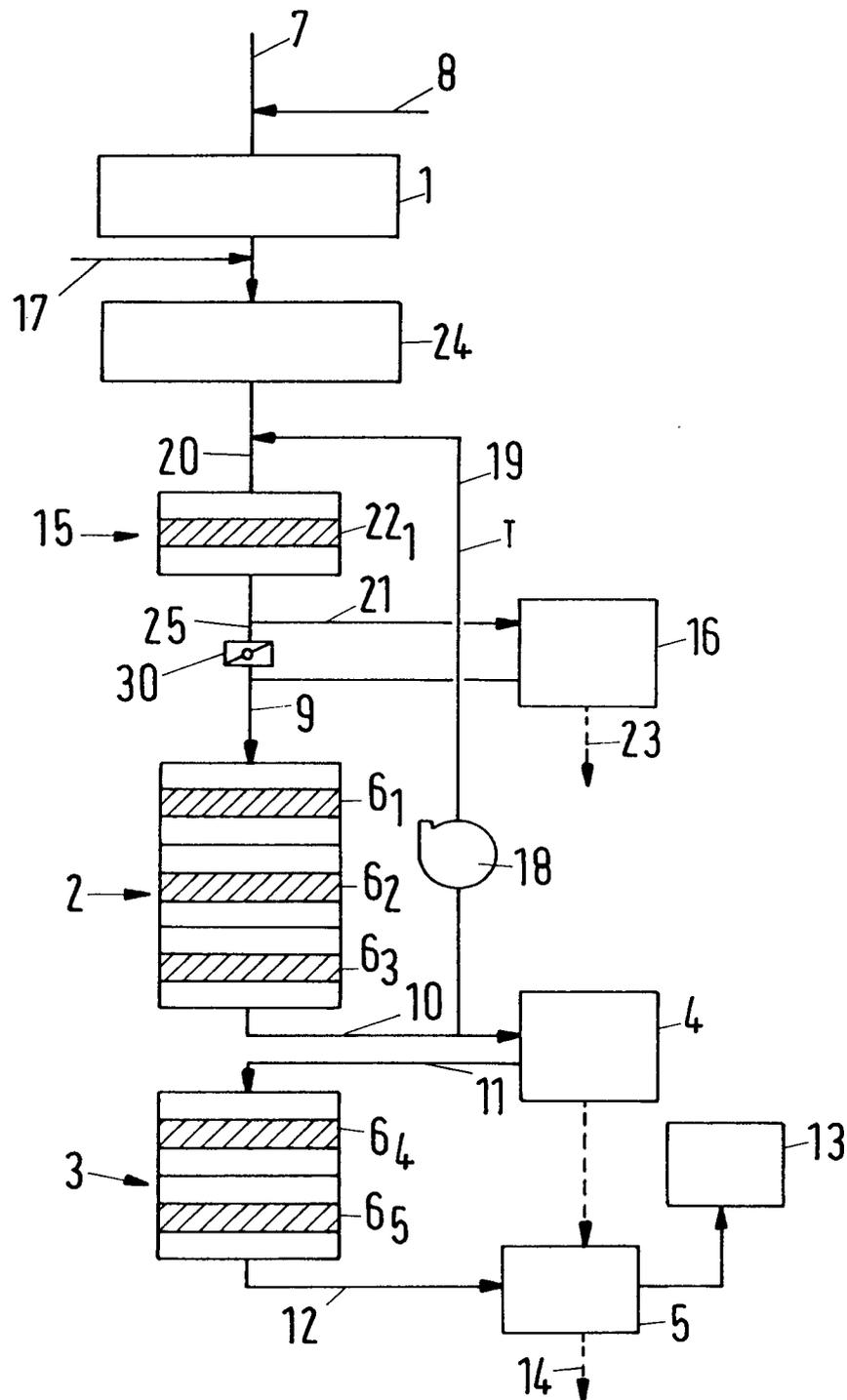


Fig. 6

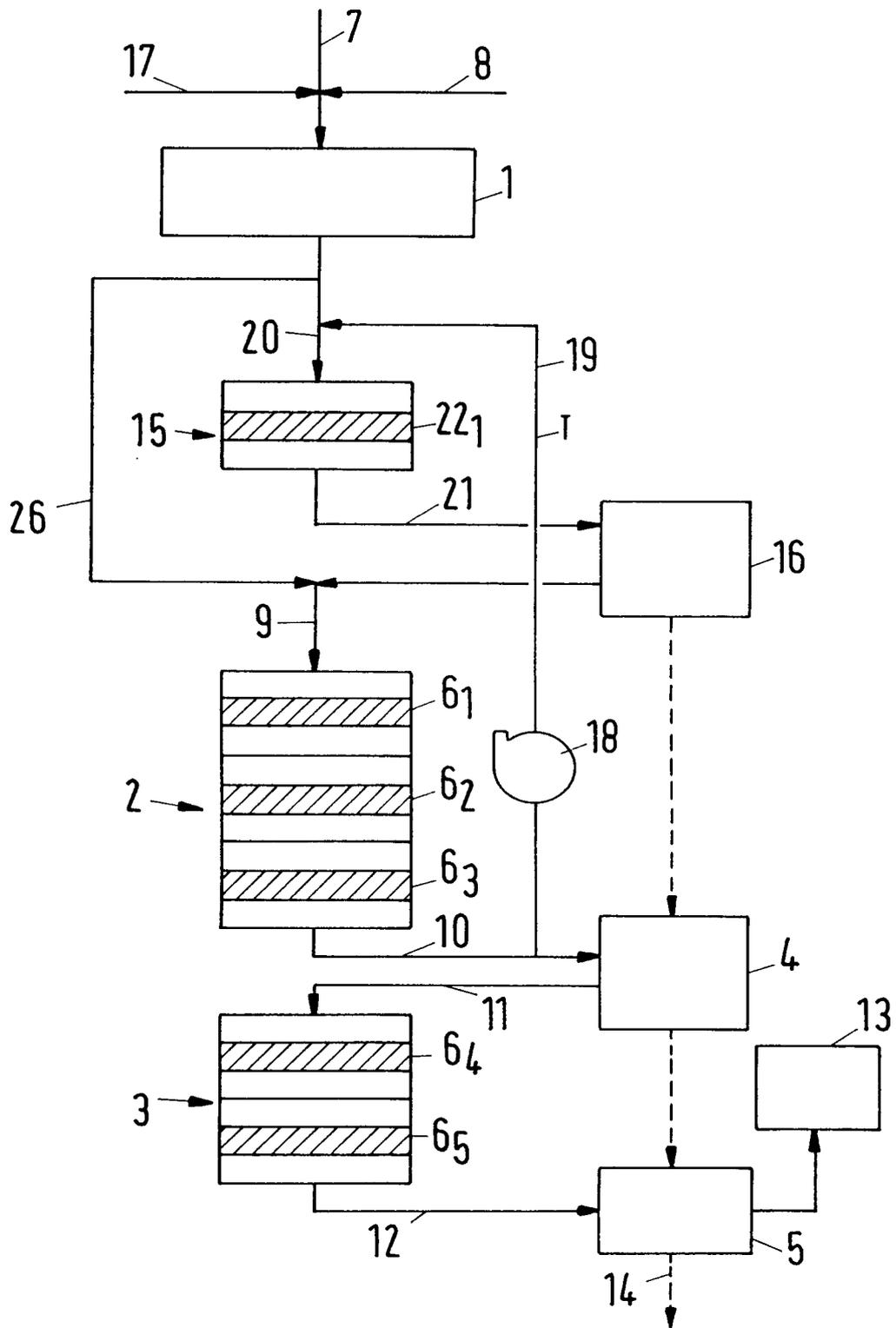


Fig.7

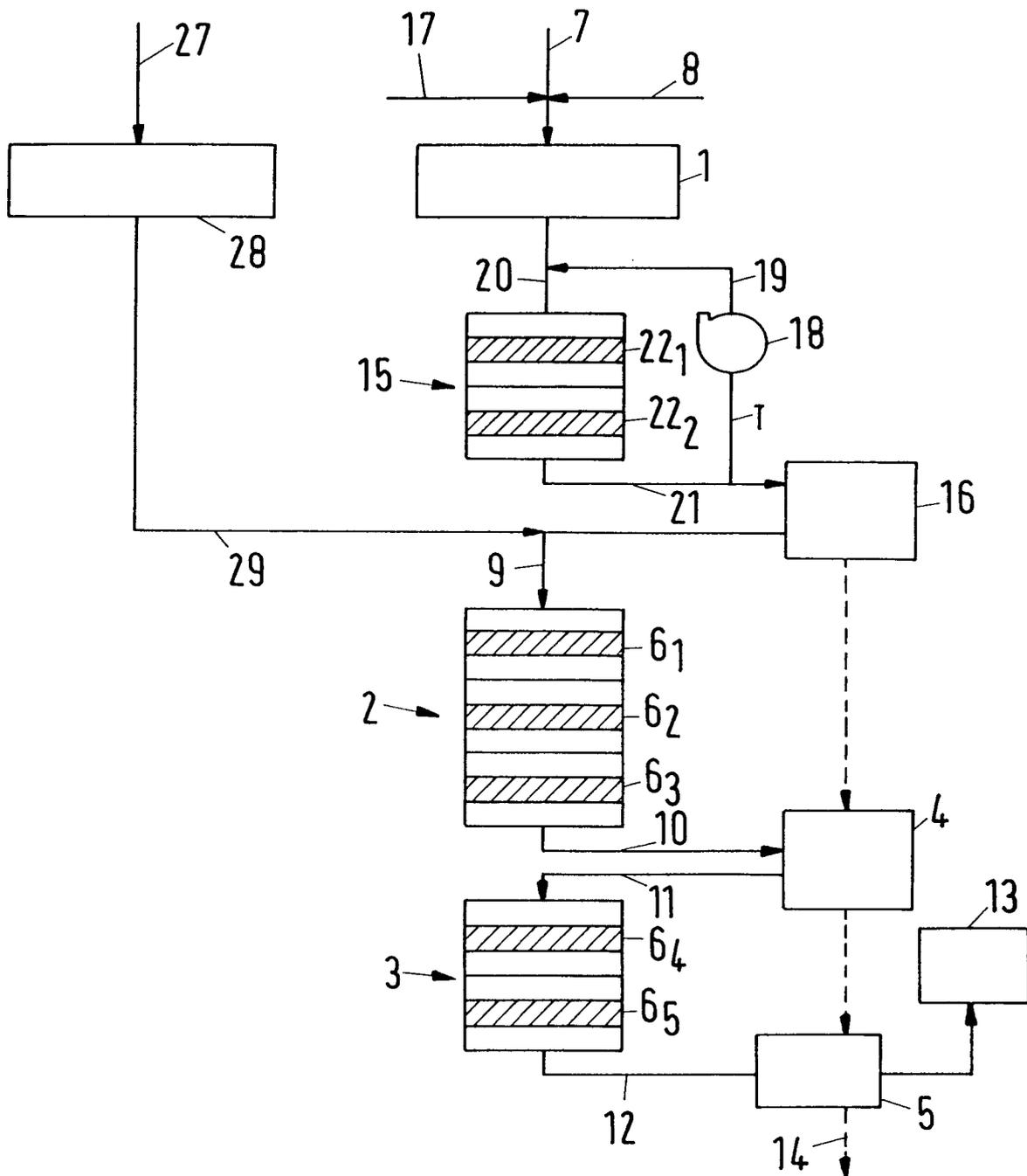


Fig. 8

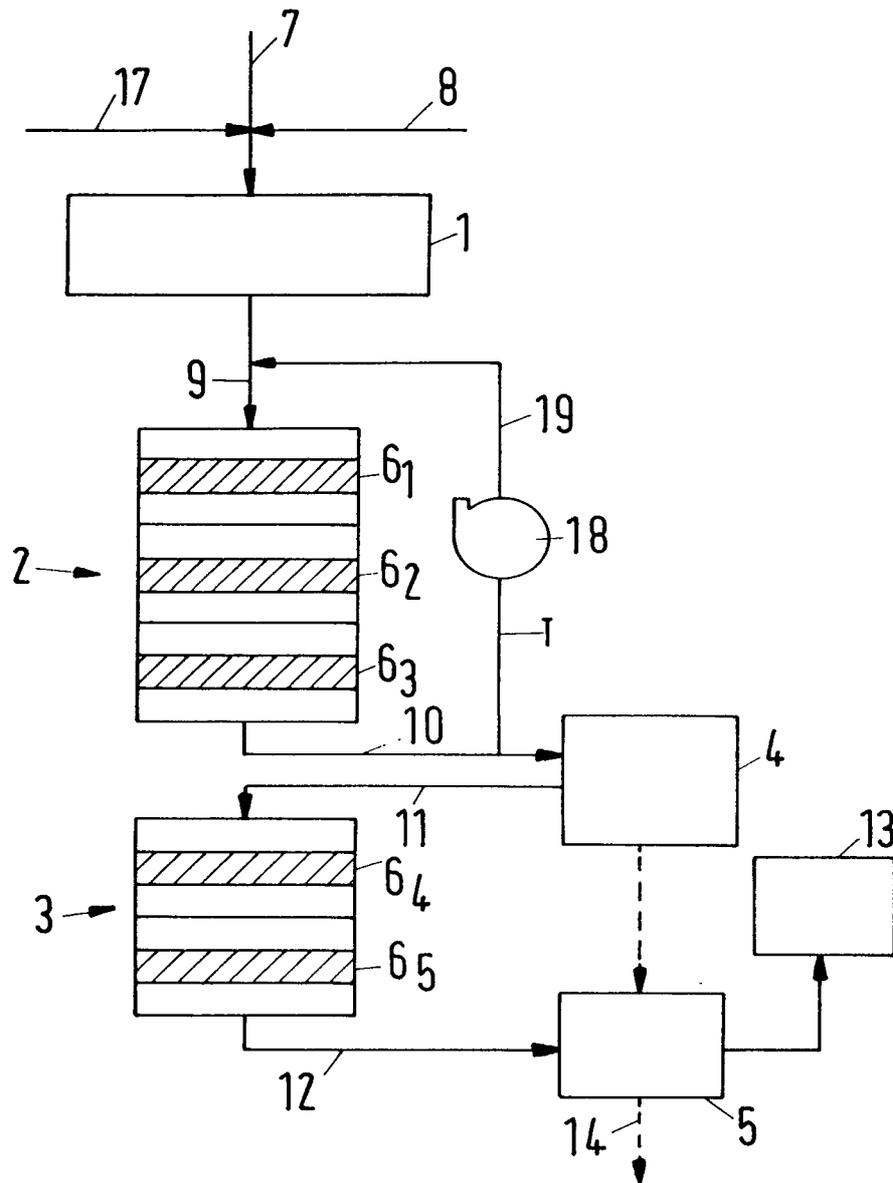


Fig.9

