



# Forschung an der Fakultät für Technische Chemie, Verfahrenstechnik und Biotechnologie

## Stoffaustausch mit chemischer Reaktion

### *Mass Transfer with Chemical Reaction*

Absorptive Abgasreinigungsverfahren stellen oftmals einen Schlüsselschritt zu Erreichung relevanter Umweltauflagen oder Produktqualitäten dar. Deshalb ist die Verbesserung bestehender Verfahren und die Entwicklung neuer Verfahren eine ständige Herausforderung im Bereich der Thermischen Trennverfahren. Durch die Überlagerung des Verfahrensschrittes der Absorption mit einer chemischen Reaktion kann eine signifikante Verbesserung der Abscheideleistung erreicht werden. Besonderes Interesse liegt im Bereich der Abscheidung von sauren Gasen, insbesondere von Stickstoffoxiden. Neben dem state of the art-Verfahren der Stickstoffoxydzerstörung, der Selektiv Katalytischen Reduktion (SCR), gibt es aus ökonomischen und ökologischen Gründen die Bestrebungen nach absorptiven Verfahren, mit denen es möglich ist, mit vertretbarem technischen Aufwand Stickstoffoxide aus Abgasen abzuscheiden. Die Forschung konzentriert sich auf den Einfluss chemischer Reaktionen in der Flüssigphase zur Verbesserung der Absorption der Stickstoffoxide. Diese

Beschleunigung kann nur durch eine Veränderung der Oxidationsstufe der schwer löslichen Stickstoffoxide – vor allem Stickstoffmonoxid – durch Oxidation der absorbierten Spezies zu Nitrat oder durch Reduktion zu elementarem Stickstoff erreicht werden. Beide Reaktionswege sind gangbar, allerdings muss bei Anwendung des Oxidationsweges ein weiterer Verfahrensschritt für den Nitratabbau gefunden werden. Die Reaktion zu elementarem Stickstoff kann auch über die Oxidation in einer ersten Stufe zu besser löslichen Spezies und anschließender Reduktion erfolgen, um so die Reaktivität der gelösten Spezies zu erhöhen. Auch Reaktionen in der Gasphase wie die Oxidation von NO zu NO<sub>2</sub> tragen zur Beschleunigung des Absorptionsvorganges bei. Es ist bekannt, dass diese Oxidation in verdünnten Medien wie Abgasen nach höherer Ordnung erfolgt. In Summe ist eine Verbesserung des Gesamtprozesses nur durch technische Maßnahmen in beiden Phasen möglich.

Als Apparat der Wahl bietet sich für die Untersuchung der Grundlagen der absorptiven Entstickung die Fallfilmkolonne an, die neben einer definierten Stoffaustauschfläche für Stofftransportuntersuchungen sehr flexibel bezüglich Durchsatz und Betriebsweise ist. In diesem Projekt werden – basierend auf den bekannten Einflüssen von UV-Strahlung auf gasförmige Stickstoffoxide – die Untersuchungen auf die Flüssigphase ausgedehnt. Ein viel versprechender Weg ist die photochemische Aktivierung der gelösten Stickstoffoxide

und zusätzlich die Zugabe eines chemischen Reduktionsmittels. Dadurch gelingt es, gelöste Stickstoffoxide in einem 2-Stufen-Prozess selektiv zu elementarem Stickstoff zu reduzieren. Die Gesamtreaktion konnte experimentell als Reaktion 0. Ordnung bestimmt werden. Für die experimentelle Untersuchung wurde eine Fallfilmkolonne mit einem zentral positionierten Strahler ausgerüstet. Als Strahlungsquelle diente ein 700 W Hg-Mitteldruckstrahler oder alternativ (abhängig von der Anwendung) ein 120 W Hg-Niederdruckstrahler.

Um die Photonenausbeute und somit die Wirtschaftlichkeit des Prozesses bestimmen zu können, wurde der Photonenfluss mit einem Spektrometer und einem chemischen Actinometer bestimmt. Idealerweise bietet der Fallfilmreaktor die Möglichkeit Gasphase und Flüssigphase getrennt voneinander untersuchen zu können, wobei in diesem Fall die UV-Strahlung nur die Flüssigphase positiv beeinflusst. Die reaktionstechnische Modellierung des Gesamtstoffaustauschvorganges ist ein wichtiger Schritt für das

Scale-Up dieser Unit Operation. Aufgrund dieser Untersuchungen sind die Grundlagen für eine Prozessauslegung gegeben, die neben einem verbesserten Abgasreinigungsverfahren auch eine alternative Nitratreduktionsmethode für stark kontaminierte Abwässer bietet.



Boden der Fallfilmkolonne im Filmbetrieb bei UV-Bestrahlung

Foto: TU Graz/VTU

### *Mass Transfer with Chemical Reaction*

*Precipitation of acidic constituents from industrial gases is an essential step in many processes of the chemical, pharmaceutical and petrochemical industry. Any improvement of the state of the art purification methods is therefore welcome. Nitrogen oxides are still a major challenge in absorptive off-gas purification due to the variety of substances and the poor absorption properties of several NO<sub>x</sub> constituents. Aim of ongoing research is the enhancement of mass transfer by chemical reaction. Improvement in absorption efficiency is expected from oxidation of poorly soluble nitrogen monoxide to nitrogen dioxide in the gas phase. Enhancement is also expected from very fast oxidation of the dissolved nitrogen species to form nitrate or by reduction of dissolved NO<sub>x</sub> to elemental nitrogen. From combination of acceleration of oxidation in the gas phase and single step or dual step reduction in the liquid phase enhancement of the overall process is achieved. Therefore focus of this work is investigation of liquid phase reactions which are expected to contribute to progress in NO<sub>x</sub> absorption.*