

Gradientenfreier Labor-Kreislaufreaktor zur Bestimmung kinetischer Daten bei der Umsetzung korrosiver Gasgemische

Werner Weisweiler und Wolfgang Schäfer*

1 Problemstellung

Zur Ermittlung kinetischer Parameter für heterogenkatalysierte Gasphasenreaktionen eignen sich besonders kontinuierlich betriebene Reaktoren, bei denen in der Katalysatorschicht weder Temperatur- noch Konzentrationsgradienten auftreten [1]. Dieser gradientenfreie Betrieb erfordert den Einsatz dünner Katalysatorschichten und hoher Strömungsgeschwindigkeiten des Gasgemisches in der Katalysatorschicht. Der Umsatz am Kontakt wird damit fast unmeßbar klein. Um dennoch meßbare Konzentrationsdifferenzen zwischen Reaktorein- und -ausgang zu erreichen, wird das Gasgemisch im Kreislauf geführt und lediglich ein geringer Teilstrom dem Reaktor entnommen sowie eine gleiche Menge als Frischgas zugeführt. Reaktoren nach diesem Prinzip werden bekanntlich als Differential-Kreislaufreaktoren oder gradientenfreie Kreislaufreaktoren bezeichnet [2].

Im Rahmen von Untersuchungen zur Stickoxid-Minderung in Rauchgasen nach dem sog. SCR-Verfahren werden unter anderem Versuche zur selektiven katalytischen Reduktion von Stickstoffmonoxid mittels Ammoniak durchgeführt [3]. Zur Gewinnung kinetischer Daten bei Verwendung verschiedener Katalysatoren ist ein solcher gradientenfreier Kreislaufreaktor wünschenswert. Allerdings dürfen keinerlei Reaktorwerkstoffe Verwendung finden, die die Reaktionen katalysieren. Als mögliche Werkstoffe sind lediglich Aluminium oder besser Glas erlaubt, aus denen dann auch die Kolbenpumpe oder Turbine zur Förderung des Gasgemisches bestehen müßte.

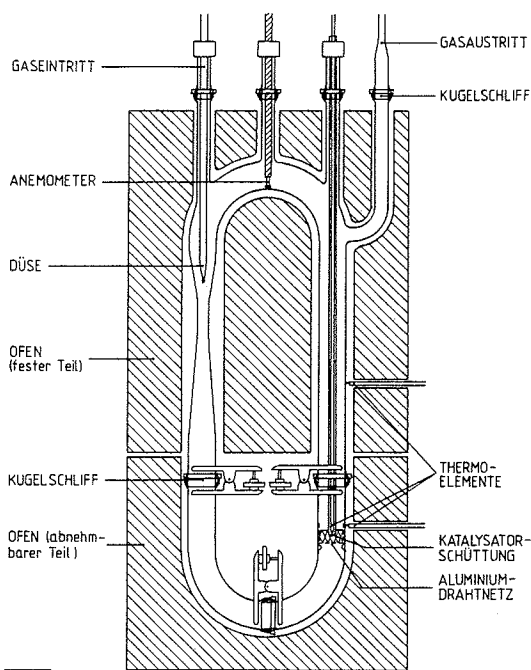


Abb. 1. Differential-Kreislaufreaktor mit Treibstrahlantrieb.

* Prof. Dr. W. Weisweiler und Dipl.-Chem. W. Schäfer, Institut für Chemische Technik der Univ. Karlsruhe, Kaiserstr. 12, 7500 Karlsruhe 1.

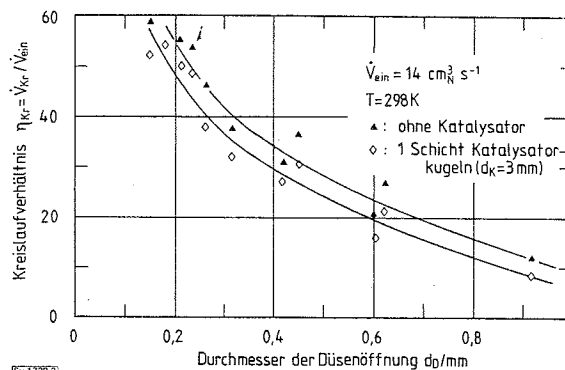
Wird jedoch das Treibstrahl-Prinzip verwendet, wie es bei der Dispergierung von Gasblasen in Flüssigkeiten bestens bekannt ist (siehe z. B. [4]), kann auf bewegte und damit stör anfällige Teile verzichtet und darüber hinaus ausschließlich in Glas gebaut werden.

2 Strahldüsen-Kreislaufreaktor

Kernstück des Reaktors ist die aus Duran-Glas bestehende Reaktorschleife (Abb. 1). Zur Vermeidung thermischer Spannungen wird der Reaktor in drei Teilen gefertigt. Die verbindenden Kugelschliffe begrenzen allerdings die Betriebstemperatur auf etwa 750 K. Zum Zwecke des Katalysatorwechsels ist der untere Reaktorbogen abnehmbar. Das Reaktorrohr im Bereich der Treibstrahldüse ist zur Intensivierung des Gaskreislaufs als Ejektorpumpe ausgebildet. Das Kreislaufverhältnis $\eta_{Kr} = \dot{V}_{Kr} / \dot{V}_{ein}$ wird mit Hilfe eines Hitzdraht-Anemometers bestimmt, welches radial im Reaktor verschiebbar ist. Die Messung der Katalysatortemperatur erfolgt mit einem bis in die Katalysatorschicht reichenden Thermoelement. Zur Wärme-Isolierung und zum mechanischen Schutz ist die mit Heizbändern umwickelte Reaktorschleife in einen ausgefrästen Ytong-Block eingebaut.

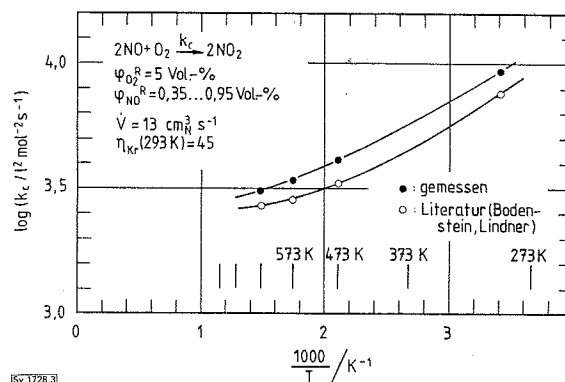
3 Test des Reaktors

Für den gradientenfreien Betrieb eines Kreislaufreaktors wird ein Kreislaufverhältnis von mindestens 25 [2,5], in Ausnahmefällen bis 40 [5] verlangt. Es konnte auch tatsächlich ein Kreislaufverhältnis von 40 durch Verwendung einer Ejektordüse mit einer 0,25-mm-Öffnung



SV 1728 2

Abb. 2. Abhängigkeit des Kreislaufverhältnisses vom Düsendurchmesser bei konstantem Durchfluß.



SV 1728 3

Abb. 3. Arrhenius-Diagramm für die nichtkatalysierte Reaktion zwischen NO und O₂ in N₂-Atmosphäre; φ^R Volumenanteil im Reaktionsraum.

erreicht werden, wobei dann die Druckdifferenz an der Düse 10^5 Pa bei Raumtemperatur und einem Gasdurchfluß von $\dot{V} = 14 \text{ cm}_N^3/\text{s}$ beträgt (Abb. 2). Bei diesem Kreislaufverhältnis zeigt der Reaktor die Verweilzeitverteilung eines idealen Durchfluß-Rührkessels, so daß dessen Stoffbilanzgleichung für die Auswertung herangezogen wird. Um die Brauchbarkeit des Reaktors für korrosive Gase zu prüfen, wurde unter anderem die Reaktionsgeschwindigkeit der homogenen Oxidation von Stickstoffmonoxid mittels Sauerstoff in Stickstoff-Atmosphäre gemessen, mit Literaturdaten [6] verglichen und gute Übereinstimmung gefunden (Abb. 3).

Die Autoren danken der Max-Buchner-Forschungstiftung für die Förderung dieser Arbeit.

Eingegangen am 1. September 1987

[1] Adler, R.; Nelles, J.; Jankowski, H.; Nagel, G.; Kubias, B.: Chem. Tech. (Leipzig) 30 (1978) Nr. 7, S. 329.

- [2] Jankowski, H.; Nelles, J.; Adler, R.; Kubias, B.; Salzer, C.: Chem. Tech. (Leipzig) 30 (1978) Nr. 9, S. 441.
[3] Weisweiler, W.; Hochstein, B.; Retzlaff, B.: Staub Reinhalt. Luft, im Druck.
[4] Weisweiler, W.; Raible, L.: Verfahrenstechnik (Mainz) 16 (1982) Nr. 11, S. 840.
[5] Dreyer, D.; Luft, G.: Chemie-Technik (Heidelberg) 11 (1982) Nr. 9, S. 1061.
[6] Gmelins Handbuch der Anorganischen Chemie, 8. Aufl., Syst. Nr. 4, S. 767, Verlag Chemie, Berlin 1934.

Schlüsselworte: Kreislaufreaktor, Treibstrahlreaktor, gradientenfreier Reaktor, Katalyse, NO-Oxidation, korrosive Gase.

Das vollständige Manuskript dieser Arbeit umfaßt 27 Seiten mit 19 Abbildungen und 12 Literaturzitate. Es ist als Fotokopie oder Mikrofiche MS 1660/88 erhältlich. Bestellkarten finden Sie am Schluß dieses Heftes.