

ESTRUCTURA GENERAL DE LA TESIS

ESTRUCTURA GENERAL DE LA TESIS.

Esta memoria de tesis está estructurada en diez capítulos. El primero (Capítulo 1) está dedicado a la presentación de una introducción general. En el segundo (Capítulo 2) se lleva a cabo una revisión bibliográfica sobre la reducción de NO_x con carbón, y en el tercero (Capítulo 3) se exponen las técnicas experimentales y materiales empleados en esta investigación. Los siguientes seis capítulos (Capítulos 4 a 9) se dedican a la presentación y discusión de resultados experimentales, y en el último capítulo de la memoria (Capítulo 10) se resumen las conclusiones más relevantes de este estudio. Los capítulos dedicados a la presentación y discusión de resultados podrían agruparse en tres bloques con cierta entidad. En el primero de ellos (Capítulos 4 y 5) se estudian principalmente variables relacionadas con la preparación de las muestras y su efecto sobre la reducción de NO_x en atmósferas $\text{NO}_x/\text{O}_2/\text{N}_2$ a diferentes temperaturas de reacción. En los Capítulos 6 y 7, que conformarían el segundo bloque, se analizan aspectos de tipo cinético y mecanístico del proceso en estas mismas atmósferas. En un tercer bloque (Capítulos 8 y 9) se emplean mezclas gaseosas multicomponentes más complejas con uno o varios de los siguientes gases: CO_2 , H_2O y SO_2 , además de NO_x y O_2 .

Más detalladamente, el contenido de cada uno de los capítulos es el que se describe a continuación:

Capítulo 1. Introducción general.

En este primer capítulo se discute la problemática medioambiental derivada de la emisión de NO_x a la atmósfera y se resumen los procesos más importante empleados hoy en día para la eliminación de estos contaminantes en corrientes gaseosas generadas en fuentes estacionarias. A continuación se realiza una retrospectiva sobre el trabajo desarrollado en el Departamento de Química Inorgánica de la Universidad de Alicante en la línea de investigación en la que se enmarca esta memoria de tesis, la reducción de NO_x con carbón, y se exponen los objetivos generales y estructura de la memoria.

Capítulo 2. Reducción de NO_x con carbón. Revisión bibliográfica.

En el segundo capítulo se presenta una revisión de la bibliografía publicada más relevante relacionada con el tema de esta memoria, asentando las bases para la posterior lectura y comprensión de los capítulos dedicados a la presentación y discusión de resultados experimentales. En esta revisión se discuten los mecanismos propuestos para la reacción NO-carbón no catalizada y catalizada, la influencia de otros

gases sobre dicha reacción y el efecto que tienen ciertas variables como la porosidad del carbón, su rango y materia mineral, su tamaño de partícula o la temperatura de pirólisis.

Capítulo 3. Materiales y técnicas experimentales.

En el tercer capítulo se describe el proceso de preparación de las principales muestras empleadas en este trabajo de investigación así como las materias primas utilizadas en su preparación (carbón mineral, hidróxido potásico y solución de ácidos húmicos), incluyéndose datos relativos a su caracterización. También se describen las diferentes técnicas y dispositivos experimentales empleados en este trabajo para la caracterización de las muestras y para el estudio de la reacción NO_x -carbón.

Capítulo 4. Reducción de NO_x con briquetas de potasio/carbón conformadas con resina de fenol formaldehído. Influencia de la presencia de aglomerantes.

En el cuarto capítulo, primero de los dedicados a la presentación y discusión de resultados experimentales, se estudia la reducción de NO_x con briquetas conformadas con un aglomerante (resina de fenol formaldehído) de uso más habitual que el ácido húmico, analizando la influencia de ciertas variables de preparación de las briquetas como la temperatura de pirólisis o el contenido en potasio. Comparando la actividad de estas briquetas con la de pellets conformados con ácido húmico así como con mezclas potasio/carbón sin aglomerante, se analiza la influencia que tienen los aglomerantes sobre la reacción NO_x -carbón catalizada por potasio.

En la revista especializada *Energy & Fuels* se ha publicado recientemente la mayor parte del contenido de este capítulo con el siguiente título y referencia:

“Low cost char briquettes potassium containing for NO_x reduction”. (A. Bueno López, A. García García, C. Salinas Martínez de Lecea, C. McRae C. y C.E. Snape. *Energy Fuels* **16**, 997 (2002)).

Capítulo 5. Reducción de NO_x con pellets de potasio/carbón. Influencia del porcentaje de potasio a diferentes temperaturas de reacción.

En el quinto capítulo se analiza la influencia sobre la reacción NO_x -carbón de dos variables decisivas como son el porcentaje de potasio y la temperatura de reacción. Los resultados han permitido encontrar un porcentaje óptimo de catalizador en los pellets así como acotar un intervalo de temperaturas útil (*ventana de reactividad*) para llevar a cabo la reducción de NO_x con dichos pellets.

El contenido de este capítulo ha sido incluido en dos publicaciones complementarias con los siguientes títulos y referencias:

- “ *NO_x reduction by potassium containing coal-pellets. Discussing lifetime test profiles*”. (A. Bueno López, A. García García y A. Linares Solano. *Fuel Proc. Technol.* **77**, 301 (2002)).
- “*Influence of potassium loading at different reaction temperatures on the NO_x reduction process by potassium-containing coal pellets*”. (A. Bueno López, A. García García, J.A. Caballero Suárez y A. Linares Solano. *Fuel* **81**, 2435 (2002)).

Capítulo 6. Análisis cinético de la reducción de NO_x con carbón catalizada por potasio. Influencia de la P_{NO_x} y del tiempo de residencia.

En el sexto capítulo se estudia la influencia del tiempo de residencia de los gases en el lecho de muestra (relación masa muestra/flujo gases) conjuntamente con la presión parcial de NO_x . Esto permite evaluar la máxima reducción de NO_x que es posible alcanzar modificando dicho tiempo de residencia así como determinar la constante de velocidad y el orden de reacción respecto a la presión parcial de NO_x de la reacción NO_x -carbón. Este estudio se ha llevado a cabo con la mejor muestra y a una temperatura de reacción dentro del intervalo útil de trabajo según los resultados del capítulo precedente.

El contenido de este capítulo será publicado próximamente en la revista especializada *Energy & Fuels*, con el siguiente título y autores:

“*Analysis of the reaction conditions in the NO_x reduction process by carbon with a view to achieve high NO_x conversions. Residence time considerations*”. (A. Bueno López, J.A. Caballero Suárez y A. García García. *Energy Fuels* **16** (2002). En prensa).

Capítulo 7. Desarrollo de un modelo cinético para el proceso de reducción de NO_x con pellets de potasio/carbón. Discusión del mecanismo de reacción.

En el séptimo capítulo, último de los dedicados al estudio de la reducción de NO_x con carbón en atmósferas NO_x/O₂/N₂, se aprovecha la experiencia previa para proponer un mecanismo para la reacción NO_x-carbón en estas condiciones. La validez de dicho mecanismo se verifica simulando, mediante las expresiones matemáticas que se derivan del modelo teórico, las curvas de reducción de NO_x y de consumo de carbón obtenidas experimentalmente en determinados ensayos presentados y discutidos en capítulos anteriores. Esto ha permitido obtener parámetros cinéticos, hasta ahora no disponibles, de las etapas que constituyen el mecanismo y obtener interesantes conclusiones sobre el papel del catalizador en la reacción. También se ha simulado cómo varía la concentración de C_f y [CO][#] con el tiempo de reacción.

El contenido de este capítulo será publicado próximamente en la revista especializada *Environmental Science and Technology* con el siguiente título y autores:

“*Development of a kinetic model for the NO_x reduction process by potassium-containing coal pellets*”. (A. Bueno López, A. García García y J.A. Caballero Suárez. *Env. Sci. Technol.* Aceptado (2002)).

Capítulo 8. Reducción de NO_x con pellets de potasio/carbón. Influencia del CO₂, H₂O y SO₂.

En el octavo capítulo se analiza cómo afectan al proceso de reducción de NO_x con pellets de potasio/carbón la presencia de H₂O, CO₂ y SO₂, gases que, además del oxígeno, se encuentran habitualmente presentes en las corrientes gaseosas reales en las que se pretenden eliminar los óxidos de nitrógeno. Se analiza tanto la repercusión de la presencia de los mencionados gases sobre el proceso de reducción, como las causas que originan las modificaciones respecto al comportamiento observado previamente en mezclas NO_x/O₂/N₂.

Capítulo 9. Diseño de un sistema en doble lecho para la eliminación conjunta de SO₂/NO_x.

Una vez contrastada la viabilidad de llevar a cabo la reducción de NO_x con pellets de potasio/carbón, y aprovechando la experiencia previa de este grupo de investigación en la retención de SO₂ con sorbentes de calcio, en este último capítulo de los dedicados a la presentación y discusión de resultados experimentales se analiza la posibilidad de llevar a cabo la eliminación consecutiva de SO₂ y NO_x en un lecho doble compuesto por pellets de Ca(OH)₂ y pellets de potasio/carbón. Puesto que ambos lechos operan en un mismo reactor a

una misma temperatura se puede considerar como un proceso de eliminación conjunta de los dos contaminantes.

Capítulo 10. Conclusiones generales.

En el último capítulo de la memoria se exponen las conclusiones más relevantes a las que se han llegado en este estudio de investigación.