

Inhaltsverzeichnis

Danksagung	i
Symbolverzeichnis	vii
Abstract	xv
Kurzfassung	xvii
1 Einleitung	1
2 Theoretische Grundlagen	5
2.1 Entwicklung verfahrenstechnischer Prozesse	5
2.2 Grundlagen der Kohlenwertstoffrückgewinnung	8
2.3 Grundlagen der heterogenen Katalyse	12
2.3.1 Definition und Prinzipien	12
2.3.2 Kenngrößen zur Charakterisierung von Katalysatoren	14
2.3.3 Deaktivierungsmechanismen	14
2.3.4 Kinetik heterogen katalysierter Reaktionen	16
2.3.5 Organische Schwefelverbindungen und Umwandlung durch Cobalt-Molybdänkatalysatoren	20
2.3.6 Edelmetallkatalysatoren	22
3 Prozessauswahl	25
3.1 Festlegung der Ziele und Bedingungen	25
3.2 Auswahl eines geeigneten Verfahrens	26
4 Experimentelles Untersuchungskonzept	29
4.1 Laboranlage	29
4.1.1 Auslegung der Laboranlage	29
4.1.2 Beschreibung der Laboranlage	30
4.1.3 Sicherheits- und Automatisierungskonzept	34
4.1.4 Planung der Versuche mittels statistischer Versuchsplanung	36
4.1.5 Durchführung der Laborversuche	36
4.2 Miniplant mit industriellem Prozessgas	37
4.2.1 Beschreibung der Miniplant	37
4.2.2 Durchführung der Versuche mit realem Prozessgas	41
4.3 Analytik	43
4.3.1 Gaschromatografie	43

4.3.2	Rasterelektronenmikroskopie	44
4.3.3	Röntgenbeugung	45
4.3.4	Elementaranalyse	45
5	Ergebnisse Teil I: CoMo-Katalysator	47
5.1	Untersuchungen mit der Laboranlage	47
5.1.1	Leerrohrversuche	47
5.1.2	Machbarkeit und Betriebsbereich	48
5.2	Untersuchungen mit der Miniplant	53
5.2.1	Ergebnisse der ersten Versuchsreihe	53
5.2.2	Ergebnisse der zweiten Versuchsreihe	64
5.3	Fazit	71
6	Ergebnisse Teil II: Edelmetallkatalysatoren	73
6.1	Untersuchungen mit der Laboranlage	73
6.1.1	Untersuchung der Knallgasreaktion ohne Anwesenheit von Schwefel	74
6.1.2	Untersuchungen des Katalysators mit Schwefel und Sauerstoff . .	75
6.1.3	Postulierter Reaktionsmechanismus	79
6.1.4	Ermittlung eines Betriebsbereichs	81
6.1.5	Auswahl eines Katalysators für weitere Untersuchungen	82
6.1.6	Anfahrverhalten des Katalysators	86
6.2	Untersuchungen mit der Miniplant	87
6.2.1	Stabiler Betriebsbereich	87
6.2.2	Instabiler Betrieb	91
6.2.3	Nebenreaktionen im stabilen Betrieb	95
6.3	Fazit	98
7	Prozesssimulation	101
7.1	Modellbildung	102
7.1.1	1-D Modell	102
7.1.2	2-D Modell	106
7.2	Lösung der Gleichungssysteme	107
7.3	Parameterschätzung und Subset-Selection	111
7.4	Durchführung und Ergebnisse der Parameterschätzung	113
7.4.1	Auswahl der Messdaten	114
7.4.2	Startwerte für die Parameterschätzung	114
7.4.3	1-D Modell	114
7.4.4	2-D Modell	121
7.4.5	Vergleich der Modelle	127
7.5	Beispielfall mit ganzheitlichem Prozesskonzept	127
7.6	Fazit	130
8	Zusammenfassung und Ausblick	131
	Literatur	I

Abbildungsverzeichnis	XIII
Tabellenverzeichnis	XIX
Veröffentlichungen	XXI
Anhang	XXIII
A.1 R & I Schemata	XXIV
A.2 Technische Zeichnung	XXVI
A.3 Chromatogramme und Kalibrierung	XXVII
A.4 Ergänzende Ergebnisse der Laboruntersuchungen mit Edelmetallkatalysatoren	XXIX
A.5 Stoff- und Systemgrößen	XXX
A.6 Kinetische Parameter	XXXVI
A.7 Vergleich der Ergebnisse von 1-D und 2-D Modell	XXXVII