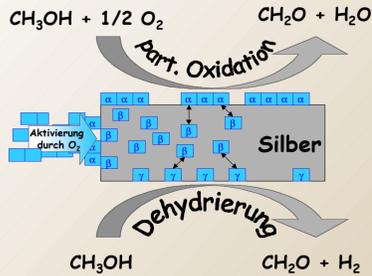


E. Panzer, G. Emig, Lehrstuhl für Technische Chemie I, Universität Erlangen-Nürnberg, Egerlandstraße 3, D-91058 Erlangen
Phone +49 9131 / 85 27427, Fax +49 9131 / 85 27420

Motivation

Reaktionssystem:



Zwei parallele Reaktionsmechanismen am Silberkatalysator:
Dehydrierung
Oxidehydrierung



Veränderungen des Katalysators während der Reaktion:

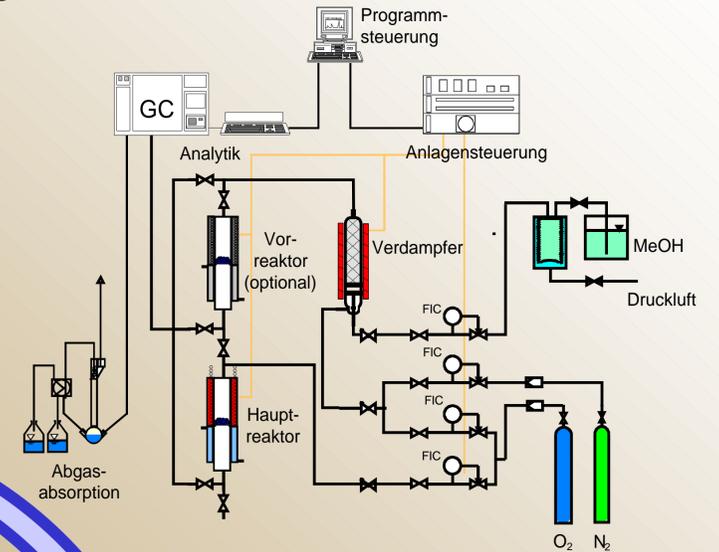
Mit zunehmender Standzeit bildet sich die unerwünschte Ameisensäure in verstärktem Maß
Sinterung des Silbergranulates erhöht den Druckverlust in der Schüttung

Forschungsziele:

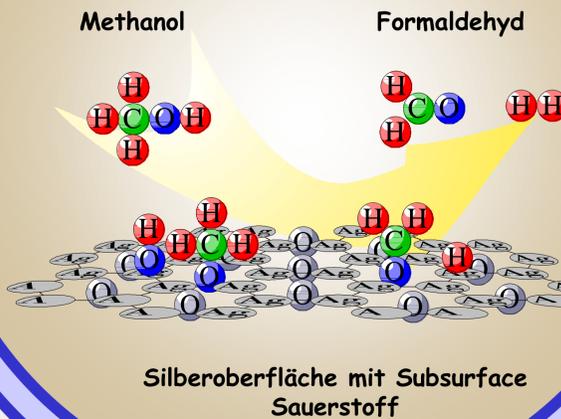
Verständnis der Änderung der Katalysatorselektivität während der Reaktion
Quantifizierung der Alterungseffekte
Verbesserung des Silberkatalysators bezüglich Standzeit und Nebenproduktbildung

Experimentelle Ausstattung

Laboranlage mit Festbett-Rohrreaktor aus Aluminiumoxid
Analyse der Produktkomponenten in einem Gaschromatographen
Oberflächenuntersuchungen mit REM und EDX
Messung von BET-Oberflächen

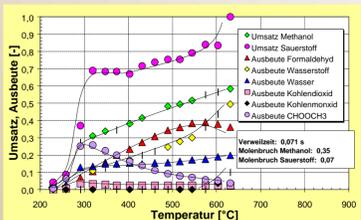


Reaktionssystem



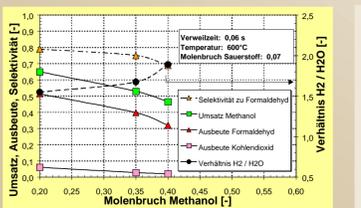
Reaktion

Variation der Temperatur:

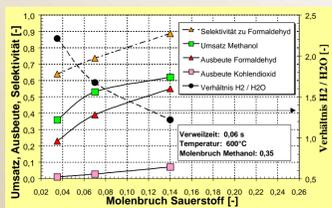


Zünden der Reaktion bei ca. 250°C
Verstärkte Produktion von AME bei niedrigen Temperaturen

Variation der Reaktandenkonzentration:



Stärkerer Einfluß von Sauerstoff auf den Reaktionsverlauf
Verhältnis $\text{H}_2/\text{H}_2\text{O}$ kann beeinflußt werden



Veränderung des Katalysators während der Reaktion

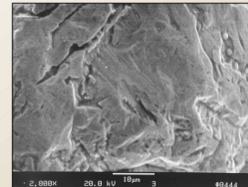
Makroskopisch



Partikel sind zu einem festen Block gesintert
Scharf abgegrenzte Reaktionszone
Sichtbare Verkokung der Reaktionszone
Stärkste Verkokung in der obersten an der Reaktion beteiligten Katalysatorschicht

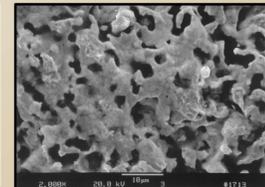
Mikroskopisch

Neue Silberprobe



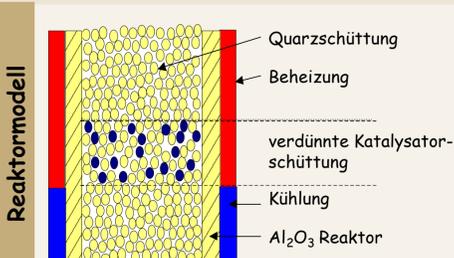
Glatte Strukturen
BET-Oberfläche nicht meßbar

Im Laborreaktor gealterte Probe



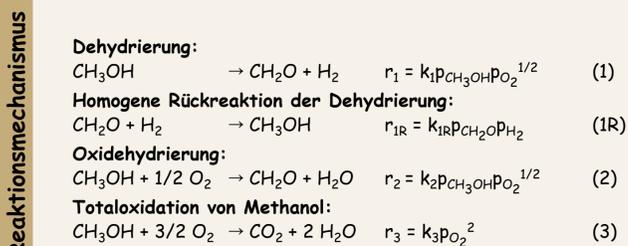
Stark poröse Struktur entsteht
BET-Oberfläche ca. 11 m²

Kinetik

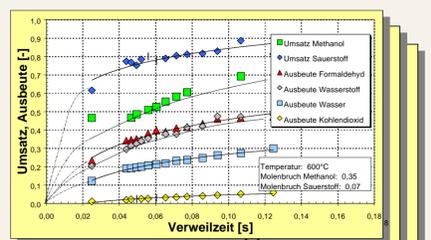


$$\frac{\delta(C_i u)}{\delta z} = \sum_{j=1}^M v_{ij} r_j$$

Integralreaktor
Isothermie
Plug-flow Modell



Experimente



Variation von $c_{\text{MeOH}}, c_{\text{O}_2}$

Simusolv

Parameterschätzung

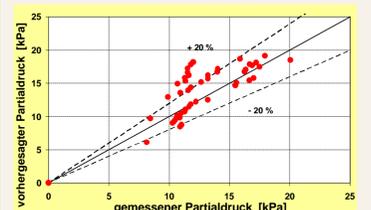
Kinetische Parameter:

$$k_1 = 5,320 \pm 0,148 \text{ mol/s kPa}^{3/2}$$

$$k_{1R} = 0,189 \pm 3,68 \cdot 10^{-2} \text{ mol/s kPa}^2$$

$$k_2 = 1,156 \pm 9,28 \cdot 10^{-2} \text{ mol/s kPa}^{3/2}$$

$$k_3 = 2,723 \pm 0,146 \text{ mol/s kPa}^2$$



Paritätsdiagramm
Vergleich zwischen vorhergesagtem und gemessenem Partialdruck