

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Einführung in die Problemstellung	5
2.1	Die Entstehung von Stickstoffoxiden	5
2.1.1	Die thermische NO-Bildung	5
2.1.2	Die prompte NO-Bildung	6
2.1.3	Die Brennstoff-NO-Bildung	8
2.2	Die Wirkung der Stickstoffoxide auf die Umwelt	8
2.3	Die Reduktion von Stickstoffoxiden	10
2.3.1	Primärmaßnahmen zur Stickstoffoxid-Reduktion	10
2.3.2	Sekundärmaßnahmen zur Stickstoffoxid-Reduktion	11
3	Zielsetzung der vorliegenden Arbeit	14
4	Bisherige Ergebnisse zur Problematik der Entstickung an Aktivkohlen	18
4.1	Die Adsorption von Stickstoffoxiden an kohlenstoffhaltigen Adsorbentien	18
4.1.1	Der Einfluß des Sauerstoffs auf die Stickstoffoxid-Adsorption . . .	21
4.2	Die Oxidation von Kohlenstoff	27
4.3	Die Adsorption von Ammoniak an Kohlenstoff	30
4.4	Die Reduktion von Stickstoffoxiden mittels Ammoniak	33
4.4.1	Reaktionsmechanismen der Stickstoffoxid-Reduktion an Aktivkohlen und Aktivkohlen	33

5	Der experimentelle Teil	38
5.1	Die Anforderung an die Versuchsanlage	38
5.2	Die verwendete Versuchsanlage	39
5.2.1	Der Rohrreaktor	39
5.2.2	Die Erzeugung der Modellgase	41
5.2.3	Die Prozeßgasentnahme und -analytik	42
5.2.4	Die Meßdatenerfassung und Steuerung der Versuchsanlage	43
5.3	Die Versuchsbedingungen	44
5.4	Die Versuchsdurchführung	46
5.5	Aktivkoks und Aktivkohle	47
5.5.1	Aktivkoks- und Aktivkohle-Herstellung	47
5.5.2	Das Porensystem kohlenstoffhaltiger Adsorbentien	48
5.5.3	Der Einfluß der Poren auf die Adsorptionseigenschaften	49
5.5.4	Die Charakterisierung der verwendeten Aktivkohle	50
6	Darstellung der experimentellen Ergebnisse	55
6.1	Untersuchungen zur Adsorption von Stickstoffmonoxid an Aktivkohle	56
6.1.1	Der Einfluß des Sauerstoffes auf die Adsorption	56
6.1.2	Die Produktion von CO und CO ₂ bei der Adsorption von NO	61
6.1.3	Die Vorstellung eines Adsorptions-Mechanismus für die Adsorption von NO	63
6.2	Untersuchungen zur Adsorption von Ammoniak an Aktivkohle	67
6.2.1	Der Einfluß des Sauerstoffes auf die Adsorption	67
6.2.2	Der Einfluß der Temperatur auf die Adsorption	70
6.2.3	Der Einfluß der Eingangskonzentration auf die Adsorption	72
6.2.4	Der Adsorptions-Mechanismus für die Adsorption von NH ₃	73

6.3	Untersuchungen zur Reduktion von Stickstoffmonoxid an Aktivkohle mittels Ammoniak	76
6.3.1	Der Einfluß des Sauerstoffes auf die Reaktion	76
6.3.2	Der Einfluß der Temperatur auf die Reaktion	80
6.3.3	Gesamtdarstellung aller Einflußgrößen auf die Reaktion	82
6.3.4	Die Produktion von CO/CO ₂ bei der Reaktion	84
6.3.5	Die Bestimmung der NO/NH ₃ -Stöchiometrie bei der NO-Reduktion	85
6.3.6	Die Vorstellung eines Reaktions-Mechanismus für die Reduktion von NO	87
7	Betrachtung der Meßfehler	91
7.1	Die Fehlerfortpflanzung	91
7.1.1	Die Fehler der eingesetzten Gasanalysatoren	92
7.1.2	Die Abweichungen durch die eingesetzten Kalibriergase	94
7.1.3	Diskussion über den möglichen Gesamtfehler bei der Messung der Gaskonzentrationen	97
7.1.4	Die Abweichungen bei der Messung der Temperatur	99
8	Die Bestimmung der Prozeßparameter	100
8.1	Die Bestimmung von Stoffdaten mit Hilfe der Momentenmethode	100
8.1.1	Die Bestimmung der Adsorptionsisothermen für das System NH ₃ /Aktivkohle	104
8.1.2	Die Bestimmung des effektiven Diffusionskoeffizienten	116
8.2	Die Berechnung der Stoffänderungsgeschwindigkeit	123
8.2.1	Der kinetische Ansatz der NO-Konvertierungs-Reaktion	126
8.2.2	Die Anpassung der Konstanten des kinetischen Ansatzes	129
8.2.3	Die Temperatur und Sauerstoffabhängigkeit der Konstanten des kinetischen Ansatzes	132

8.2.4	Paritätstest des kinetischen Ansatzes	136
8.2.5	Die Ermittlung der maximal möglichen Stoffänderungsgeschwindigkeit	138
9	Die dynamische Anlagensimulation	140
9.1	Die Ableitung des dynamischen Reaktormodells	141
9.1.1	Die Ableitungen der Massenbilanzen	143
9.1.2	Die Ableitungen der Energiebilanzen	154
9.1.3	Die Berechnung des Wärmeübergangskoeffizienten und des axialen Wärmeleitungskoeffizienten	161
9.2	Zusammenfassung der Differentialgleichungen	163
9.3	Die numerische Lösung der Differentialgleichungen	166
9.3.1	Das Lösen der Differentialgleichungen für die Gasphase	166
9.3.2	Das Lösen der Differentialgleichung der Feststoffphase	168
9.4	Die Diskussion der Simulationsergebnisse	175
9.4.1	Die Simulation der Adsorptionsversuche	175
9.4.2	Die Simulation der Reaktionsversuche	181
10	Zusammenfassung	192
Anhang		198
A.1	Die Randbedingungen zur Lösung des Stofftransports in das kugelförmige Aktivkohlekorn	198
A.1.1	Die Randbedingung an der Stelle $r_v = 1$ der Kugeloberfläche	199
A.1.2	Die Randbedingung an der Stelle $r_v = 0$ in der Kugelmitte	200
A.2	Die Randbedingungen zur Lösung des Energietransports in das kugelförmige Aktivkohlekorn	202
A.2.1	Randbedingung an der Stelle $r_v = 1$ der Kugeloberfläche	202
A.2.2	Die Randbedingung an der Stelle $r_v = 0$ in der Kugelmitte	203

A.3 Einige Stoffdaten der Reaktanden	206
Literaturverzeichnis	207