

Gleichzeitiger Wärme- und Stofftransport mit exothermer Wandreaktion bei freier Konvektion*

Bernhard Brand und Ulrich Grigull**

Bei exothermen heterogenen katalytischen Reaktionen treten aus dem Zusammenspiel von gleichzeitigem Wärme- und Stofftransport mit der Wandreaktion Stabilitätsprobleme auf, die C. Wagner [1] grundsätzlich beschrieben hat. Besonders ausgeprägt ist dies bei selbstvergiftenden Reaktionen (mit negativer Reaktionsordnung), zu denen die hier untersuchte katalytische Oxidation von Kohlenmonoxid an Platin gehört.

Die katalytische Oxidation von Kohlenmonoxid wurde an einer senkrechten ebenen Platin-Platte bei freier Konvektion untersucht. Die Platte konnte bis auf ca. 550°C elektrisch aufgeheizt werden. Das reaktionsfähige Gasgemisch bestand nur aus Kohlenmonoxid (zwischen 1 und 8 Vol.-%) und Sauerstoff.

In dem angegebenen Temperatur- und Konzentrationsbereich wurde die Wärme- und Stoffbilanz sowie das bekannte Stabilitätsverhalten gemessen. Dabei wurde die Selbstver-

schene Bereich läßt sich erwartungsgemäß eine reine Temperatur-Grenzschicht nachweisen. Im Falle eindeutiger Diffusionshemmung läßt sich mit Hilfe von Vergleichsversuchen ohne die Wandreaktion das Temperaturprofil von den Konzentrationsprofilen zufriedenstellend trennen.

Bei den interferometrischen Beobachtungen zeigte sich, daß bei der Wandreaktion, vor allem in der Nähe der Zünd- und Löschpunkte, häufig lokale Instabilitäten auftreten. Durch einfache Überlegungen für die lokale Stoffbilanz wird nachgewiesen, daß es bei Reaktionen mit negativer Reaktionsordnung eine charakteristische Temperatur T^* gibt, bei der diese Instabilitäten auftreten. Diese Temperatur errechnet sich allgemein durch folgende Näherungsformel:

$$T_N^* = \frac{E}{R} \frac{1}{\ln \left[\frac{(1-n)k'_0 x_0^n}{\beta \cdot x_0} \right]} \quad (14a)$$

Für $n = -1$ gilt exakt:

$$T^* = \frac{E}{R} \frac{1}{\ln \left[\frac{4k'_0}{\beta x_0^2} \right]} \quad (14b)$$

Dabei ist E die Aktivierungsenergie, R die allg. Gaskonstante, x_0 das Partialdruckverhältnis bzw. der Molenbruch der entscheidenden Komponente (hier CO) im Frischgas, β der lokale Stoffübergangskoeffizient und k'_0 die Häufigkeitskonstante.

Es zeigte sich, daß mit diesen Gleichungen, die eigentlich nur lokale Werte von T^* liefern, auch die Lösch- und Zündtemperaturen der gesamten Platte wiedergegeben werden können. Dabei sind allerdings für Lösch- und Zündpunkte unterschiedliche Werte des Verhältnisses k'_0/β maßgeblich. Eine Darstellung der experimentell beobachteten Zünd- und Löschpunkte sowie der aus den Wärmebilanz(WB)-Messungen nach den Stabilitätsüberlegungen ermittelten Punkte und der aus den angegebenen Gleichungen berechneten Werte zeigt Abb. 1. Die Übereinstimmung ist gut.

Eingegangen am 4. November 1974

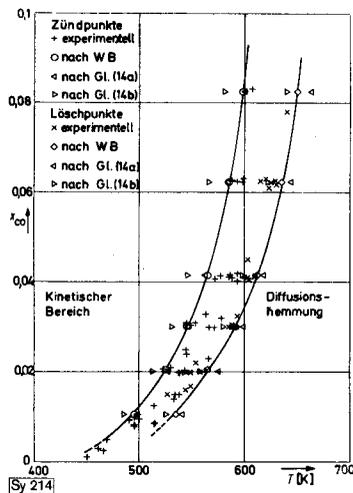


Abb. 1. Zusammenstellung der Zünd- und Löschpunkte.

giftung (Reaktionsordnung $n = -1$) als wesentlich bestätigt. Zusätzlich wurde die Grenzschicht an der Platte in einem Mach-Zehnder-Interferometer beobachtet. Die Interferenzbilder enthalten Information über das überlagerte Temperatur- und Konzentrationsfeld. Im eindeutig kineti-

Literatur

[1] C. Wagner, Chem. Techn. 18, 28/34 [1945].

Schlüsselworte: Kohlenmonoxid-Oxidation an Platin, Zünden, Löschen, Stabilität bei Reaktionen mit negativer Reaktionsordnung, Selbstvergiftung, Stoffbilanz am Katalysator.

Das vollständige Manuskript dieser Arbeit umfaßt 30 Seiten mit 9 Abbildungen und 11 Literaturzitaten. Es ist als Photokopie oder Mikrofiche MS 199/75 erhältlich. Einen Bestellschein finden Sie in diesem Heft auf der letzten Innenseite.

* Vorgetragen von B. Brand auf dem Jahrestreffen der Verfahrens-Ingenieure, 17. bis 20. September 1974 in München.

** Dipl.-Ing. B. Brand und Prof. Dr.-Ing. U. Grigull, Institut A für Thermodynamik, TU München, 8000 München 2, Postfach 202420.