

Dipl.-Ing. Kai-Olaf Hinrichsen, Bochum

**Die mikrokinetische  
Modellierung der  
Ammoniaksynthese mit  
Ruthenium-Katalysatoren**

Reihe **3**: Verfahrenstechnik

Nr. **486**

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
1.1	Die mikrokinetische Analyse . . . . .	1
1.2	Der Surface-Science-Ansatz . . . . .	3
1.3	Zielstellung . . . . .	5
<b>2</b>	<b>Grundlagen der Modellierung</b>	<b>9</b>
2.1	Makrokinetik und Mikrokinetik . . . . .	9
2.2	Chemische Reaktoren und Reaktionsführung . . . . .	9
2.3	Die Elementarschritte der heterogenen Katalyse . . . . .	11
2.3.1	Adsorption und Desorption . . . . .	13
2.3.2	Die katalytische Oberflächenreaktion . . . . .	20
2.4	Die Auswertung kinetischer Daten für die $\text{NH}_3$ -Synthese . . . . .	20
2.4.1	Theoretische Kriterien . . . . .	21
2.4.2	Die Kinetik der $\text{NH}_3$ -Synthese . . . . .	28
2.5	Die Modellierung stationärer Experimente . . . . .	33
2.5.1	Umsatzmessungen . . . . .	34
2.5.2	Die Isotopenaustauschexperimente . . . . .	40
2.6	Die Modellierung instationärer Experimente . . . . .	41
2.6.1	Die temperaturprogrammierte Desorption . . . . .	43
2.6.2	Die temperaturprogrammierte Adsorption . . . . .	55
2.6.3	Die temperaturprogrammierte Oberflächenreaktion . . . . .	55
2.7	Verwendete Programme . . . . .	59
<b>3</b>	<b>Resultate</b>	<b>63</b>
3.1	Die Wechselwirkung von Stickstoff mit Ru-Katalysatoren . . . . .	63
3.1.1	Die temperaturprogrammierte Stickstoffdesorption . . . . .	63

3.1.2	Das Isotopenaustauschexperiment . . . . .	72
3.1.3	Die temperaturprogrammierte Stickstoffadsorption . . . . .	74
3.1.4	Ergebnisse aus Untersuchungen an Einkristallen unter UHV-Bedingungen	78
3.1.5	Zusammenfassung . . . . .	81
3.2	Das mikrokinetische Modell für die Cs-Ru/MgO-Katalysatoren . . . . .	82
3.2.1	Die Hydrierung von präadsorbiertem Stickstoff . . . . .	83
3.2.2	Stationäre Kinetik . . . . .	86
3.2.3	Vorhersagen mit Hilfe des mikrokinetischen Modells . . . . .	89
3.2.4	Zusammenfassung . . . . .	99
3.3	Das mikrokinetische Modell für den Ru/MgO-Katalysator . . . . .	100
3.3.1	Die Hydrierung von präadsorbiertem Stickstoff . . . . .	101
3.3.2	Stationäre Kinetik . . . . .	103
3.3.3	Vorhersagen mit Hilfe des mikrokinetischen Modells . . . . .	106
3.3.4	Zusammenfassung . . . . .	110
3.4	Der CsNO <sub>3</sub> -Ru/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> - und der Ru/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Katalysator . . . . .	111
3.4.1	Einleitung . . . . .	111
3.4.2	Das mikrokinetische Modell für den CsNO <sub>3</sub> -Ru/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Katalysator .	111
3.4.3	Das mikrokinetische Modell für den Ru/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Katalysator . . . . .	115
3.4.4	Zusammenfassung . . . . .	117
3.5	Der Vergleich der katalytischen Aktivität von Ru- und Fe-Katalysatoren . . .	118
<b>4</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>125</b>
<b>5</b>	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>129</b>