



# Zündung der Partialoxidation von Methan in katalytischen Monolithen

Renate Schwiedernoch, Steffen Tischer, Chrys Correa, Olaf Deutschmann

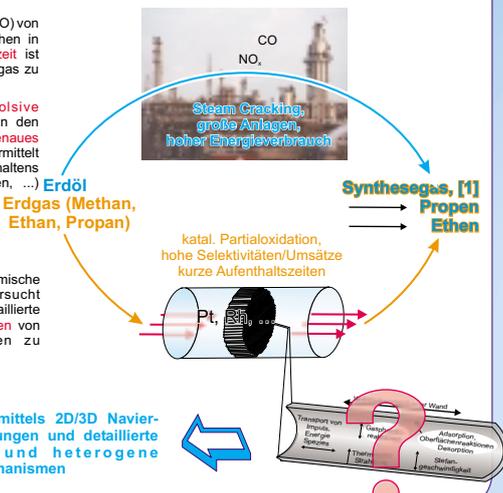
Interdisziplinäres Zentrum für wissenschaftliches Rechnen (IWR), Universität Heidelberg

Im Neuenheimer Feld 368 • 69120 Heidelberg • Tel.: 06221 / 54-5013 • Fax: 06221 / 54-5050 • e-mail: Renate.Schwiedernoch@pci.uni-heidelberg.de

## Motivation

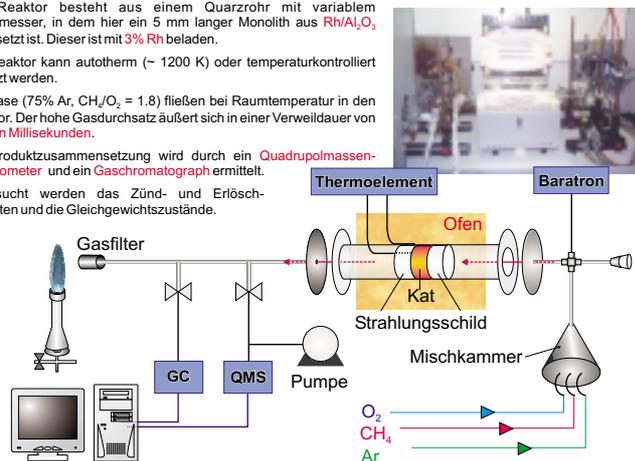
- Die katalytische Partialoxidation (CPO) von Methan an Rh beladenen Monolithen in Reaktoren mit **kurzer Aufenthaltszeit** ist geeignet zur Umwandlung von Erdgas zu Synthesegas.[1]
- In den Reaktor werden **explosive** Gasmischungen bei ca. 1200 K in den Reaktor eingeleitet. Daher ist ein **genaues Verständnis**, das durch Simulation ermittelt werden kann, des transienten Verhaltens der Reaktion (Zündung, Erlöschen, ...) notwendig.
- Während in vorherige Arbeiten dynamische Gleichgewichtszustände untersucht worden sind,[2] ist nun das Ziel detaillierte Modelle für das **transiente Verhalten** von "short-contact-time" Reaktoren zu entwickeln.

Modellierung mittels 2D/3D Navier-Stokes-Gleichungen und detaillierte homogene und heterogene Reaktionsmechanismen

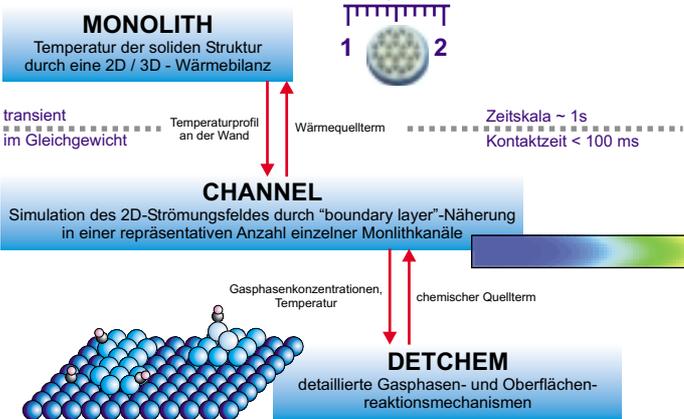


## Experimenteller Aufbau

- Der Reaktor besteht aus einem Quarzrohr mit variablem Durchmesser, in dem hier ein 5 mm langer Monolith aus  $Rh/Al_2O_3$  eingesetzt ist. Dieser ist mit 3% Rh beladen.
- Der Reaktor kann autotherm (~ 1200 K) oder temperaturkontrolliert benutzt werden.
- Die Gase (75% Ar,  $CH_4/O_2 = 1.8$ ) fließen bei Raumtemperatur in den Reaktor. Der hohe Gasdurchsatz äußert sich in einer Verweildauer von einigen Millisekunden.
- Die Produktzusammensetzung wird durch ein **Quadrupolmassenspektrometer** und ein **Gaschromatograph** ermittelt.
- Untersucht werden das Zünd- und Erlöschverhalten und die Gleichgewichtszustände.

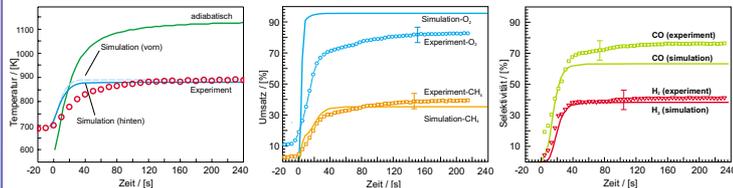


## Transiente numerische 2D/3D-Simulation: DETCHEM<sup>MONOLITH</sup>, [3]



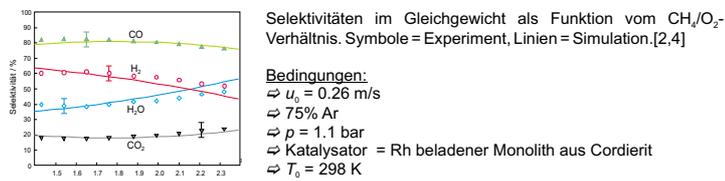
## Temperatur, Selektivität, Umsatz

### Vergleich von Simulation und Experiment während der Zündung

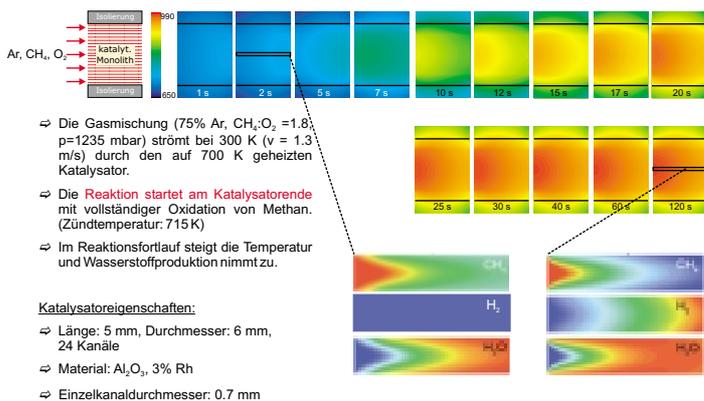


Zeitabhängige Änderung der Temperatur, Synthesegasselektivität und Umsatz im Reaktor unter Einsatz eines  $Rh/Al_2O_3$ -Monolithen. Die Simulation basiert auf einen kürzlich entwickelten Oberflächenreaktionsmechanismus von Rhodium auf Cordierit. [4]

### Vergleich von Simulation und Experiment bei Gleichgewichtsbedingungen



## Temperatur- und Speziesprofile während der Zündung



- Im Vergleich der verschiedenen Trägermaterialien (Cordierit versus Aluminiumoxid) ist die Ausbeute an Synthesegas beim  $Rh/Al_2O_3$ -Katalysator größer.
- Der Methanumsatz, die Wasserstoffselektivität und der Temperaturverlauf während des Zündprozesses werden durch das Modell der Partialoxidation von Methan auf  $Rh/Al_2O_3$  bereits sehr gut wiedergegeben.
- Zukünftig wird der verwendete Mechanismus für Aluminiumoxid als Trägermaterial weiterentwickelt werden, um die Abweichung der CO-Selektivität und des Sauerstoffumsatzes zu eliminieren.

### Referenzen:

[1] D.A. Hickman, L.D. Schmidt, science 259 (1993); A.S. Bodke, S.S. Bharadwaj, and L.D. Schmidt, Cat. Lett. 179 (1998) 138  
 [2] O. Deutschmann, L.D. Schmidt, AIChE J. 44 (1998) 2465  
 [3] O. Deutschmann, C. Correa, S. Tischer, D. Chatterjee, J. Warnatz, DETCHEM-PACKAGE (Version 1.4.2) <http://reactive-flows.com>;  
 S. Tischer, C. Correa, O. Deutschmann, Catalysis Today (accepted for publication)  
 [4] O. Deutschmann, R. Schwiedernoch, L. Mauer, D. Chatterjee, Natural Gas Conversion VI, Studies in Surface and Catalysis 136.

### Danksagung

Die Autoren danken J. Warnatz, J. Wolfrum, H.-R. Volpp (Universität Heidelberg) für die Unterstützung und für hilfreiche Diskussionen.  
 Diese Arbeit wurde von der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) und Ebersbacher GmbH & Co finanziell unterstützt.