

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung.....	1
1 Hintergrund der Arbeit.....	3
1.1 Ausgangspunkt und Ziel der Untersuchungen.....	3
1.2 Brennstoffzellen.....	3
1.2.1 Brennstoffzellentypen und deren Empfindlichkeit gegenüber Schwefelverbindungen.....	5
1.2.2 Brenngaserzeugung eines Brennstoffzellensystems.....	7
1.3 Schwefelverbindungen in handelsüblichen Brennstoffen.....	8
2 Verfahrenswahl	19
2.1 Katalytische Reaktionen	22
2.1.1 Hydrierende Entschwefelung (HDS)	22
2.1.2 Oxidation der Schwefelverbindungen.....	23
2.1.3 Alkylierung.....	24
2.2 Physikalische und chemische Stofftrennung	25
2.3 Hybride Entschwefelungsverfahren	32
2.3.1 Reaktivdestillation	32
2.3.2 Reaktivabsorption	33
2.4 Entschwefelungsverfahren der partiellen Verdampfung mit anschließender Hydrierung	38
3 Hydrierende Entschwefelung.....	41
3.1 Reaktionsnetz und Reaktionskinetik (Haupt- und Nebenreaktionen).....	41
3.2 Thermodynamik.....	46
3.3 Katalysatoren.....	48
3.4 Nebenreaktionen und konkurrierende Adsorption an der Katalysatoroberfläche	50
4 Untersuchungen zur hydrierenden Entschwefelung	57

4.1	Beschreibung der Laboranlage	57
4.2	Katalysatoraktivierung.....	60
4.3	Versuchsdurchführung.....	61
4.3.1	Versuche zur Teilverdampfung.....	61
4.3.2	Versuche zur Entschwefelung.....	62
4.4	Analytik	62
4.5	Versuchsauswertung	64
4.6	Modellierung der Reaktionskinetik	65
5	Versuchsergebnisse	67
5.1	Mitteldestillat-HDS in der Gasphase	67
5.1.1	Vorversuche	67
5.1.2	Einfluss des H ₂ /Öl-Verhältnisses.....	73
5.1.3	Temperatureinfluss.....	79
5.1.4	Einfluss des Verdampfungsverhältnisses	82
5.2	Reformatgaseinfluss	87
5.3	Formalkinetische Beschreibung	93
5.3.1	Ohne Wassergas-Shift-Reaktion	93
5.3.2	Mit Wassergas-Shift-Reaktion	96
5.3.3	Anwenden des kinetischen Modells auf eine unterschiedliche Ölmatrix	101
6	Schlussfolgerungen.....	103
	Literaturverzeichnis	105
	Symbolverzeichnis	121
	Anhang	129
A	Ergänzungen zur Versuchsapparatur und zur Analytik.....	129
A.1	Auslegung des Rohrwendelverdampfers.....	129
A.2	Beschreibung des Wasserdampfsättigers	133
A.3	Angaben zu dem verwendeten industriellen Katalysator	134
A.4	Ergänzende Erläuterungen zur Analytik	134

A.5	Verwendete Gase	140
B	Schwefelanreicherung im Tank	141
C	Daten zur Abschätzung der Sorbensmasse eines Brennstoffzellensystems.....	143
D	Berechnung der Bodensteinzahl.....	144
E	Stoffmengenbilanz um den Wasserabscheider	147
F	Matlabprogramm.....	148
G	Thermodynamische Daten zur Berechnung der Gleichgewichtskonstante Kp.....	159