

# Inhaltsverzeichnis

<b>Formelzeichenverzeichnis</b>	<b>IV</b>
<b>Abkürzungsverzeichnis</b>	<b>VII</b>
<b>Abstract</b>	<b>IX</b>
<b>Kurzfassung</b>	<b>XI</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
1.1 Dieseloxydationskatalysatoren . . . . .	6
1.2 Edelmetalloxydbildung . . . . .	9
1.3 Ziele und Aufbau der Arbeit . . . . .	11
<b>2 Stand der Forschung</b>	<b>13</b>
2.1 Edelmetalloxyd-Bildung . . . . .	13
2.1.1 Platin . . . . .	13
2.1.2 Palladium . . . . .	16
2.1.3 Platin/Palladium-Legierung . . . . .	17
2.2 Palladium-Einfluss . . . . .	19
2.3 Katalysatoralterung . . . . .	21
2.3.1 Sinterungsmechanismen . . . . .	24
2.3.2 Modellierung gealterter Katalysatoren . . . . .	24
<b>3 Methodik der experimentellen Untersuchungen</b>	<b>27</b>
3.1 Katalysatorproben . . . . .	27
3.2 Versuchsaufbau . . . . .	28
3.2.1 Isothermer Flachbettreaktor . . . . .	28
3.2.2 Anlagenperipherie . . . . .	30
3.2.3 Gasanalyse . . . . .	31
3.3 Versuchsbedingungen . . . . .	32
<b>4 Mathematisches Modell</b>	<b>35</b>
4.1 Modellannahmen . . . . .	35

4.2	Komponentenbilanzen . . . . .	36
4.3	Globale Reaktionsansätze . . . . .	38
4.3.1	Eley-Rideal Mechanismus . . . . .	38
4.3.2	Langmuir-Hinshelwood-Hougen-Watson Mechanismus . . . . .	40
4.4	Globalkinetisches Edelmetalloxidationsmodell . . . . .	41
<b>5</b>	<b>Makrokinetische Modellbildung</b>	<b>45</b>
5.1	Kinetische Voruntersuchungen . . . . .	45
5.1.1	CO- und Propen-Oxidation . . . . .	46
5.1.2	NO-Oxidation . . . . .	50
5.2	Hystereseverhalten . . . . .	57
5.2.1	Platin-Katalysator . . . . .	58
5.2.2	Palladium-Katalysator . . . . .	74
5.2.3	Platin/Palladium-Katalysator . . . . .	84
5.3	Zwischenfazit . . . . .	93
5.4	Weiterführende Überlegungen . . . . .	93
5.4.1	Oszillationen . . . . .	94
5.4.2	Sattelbildung im Propen-Umsatz . . . . .	96
5.4.3	Aktivitätssteigerung auf Pt/Pd . . . . .	98
<b>6</b>	<b>Makrokinetische Simulation</b>	<b>103</b>
6.1	Platin-Katalysator . . . . .	103
6.2	Palladium-Katalysator . . . . .	113
6.3	Platin/Palladium-Katalysator . . . . .	122
6.4	Grenzen der Modellvorstellung . . . . .	131
<b>7</b>	<b>Katalysatoralterung</b>	<b>135</b>
7.1	Veränderung des Hystereseverhaltens . . . . .	135
7.1.1	Platin-Katalysator . . . . .	137
7.1.2	Palladium-Katalysator . . . . .	138
7.1.3	Platin/Palladium-Katalysator . . . . .	140
7.2	Reparametrierungsstrategie . . . . .	142
7.3	Simulationsergebnisse . . . . .	144
7.3.1	Platin-Katalysator . . . . .	144
7.3.2	Palladium-Katalysator . . . . .	147
7.3.3	Platin/Palladium-Katalysator . . . . .	150

7.3.4	Zusammenfassung . . . . .	153
<b>8</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>155</b>
<b>A</b>	<b>Modellparameter</b>	<b>159</b>
A.1	Geometrische Katalysator-Parameter . . . . .	159
A.2	Makrokinetische Modellparameter . . . . .	162
<b>B</b>	<b>Herleitung der Komponentenbilanzen</b>	<b>165</b>
B.1	Gasphase . . . . .	167
B.2	Washcoat . . . . .	169
<b>C</b>	<b>Gleichgewichtsbetrachtungen</b>	<b>171</b>
C.1	Gasphasengleichgewichte . . . . .	171
C.2	Gas-Feststoff-Gleichgewichte . . . . .	172
<b>D</b>	<b>Aktivierungsenergie der NO-Oxidation auf Platin</b>	<b>175</b>
<b>E</b>	<b>Anmerkungen zur Numerik</b>	<b>181</b>
E.1	Optimierung der Rechenzeit . . . . .	181
E.2	Vorgehen bei der Parameteranpassung . . . . .	182
<b>F</b>	<b>Versuche zur regulären CO-Hysterese auf Platin</b>	<b>187</b>
<b>G</b>	<b>Weiterführende Überlegungen für den Pt/Pd-Katalysator</b>	<b>191</b>
G.1	Modellvorstellungen . . . . .	191
G.1.1	Gleichbleibende Partikelstruktur . . . . .	192
G.1.2	Veränderliche Partikelstruktur . . . . .	193
G.2	Atomsondentomographie . . . . .	195
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>209</b>
	<b>Über den Autor</b>	<b>209</b>