

# Entwicklung eines inhärent sicheren, kostengünstigen und flexiblen Verfahrens zur Herstellung von Wasserstoffperoxidlösungen durch Direktsynthese mittels katalytisch beschichteter Membranen

14782 BG

Schwerpunkte der Forschungsarbeiten waren die Präparation und Charakterisierung katalytisch aktiver Membranen sowie deren Einsatz zur Direktsynthese von  $\text{H}_2\text{O}_2$ . Zunächst wurde eine Methode zur Abscheidung von Pd in Membranelementen mit innen liegender feinporiger Schicht entwickelt. Dies wird durch die Imprägnierung mit Pd-Acetat und dessen thermischer Zersetzung erreicht. Das Verfahren wurde für Einkanalrohre und Mehrkanalelemente verschiedener Geometrie aus  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{TiO}_2$  und C-infiltriertem  $\text{Al}_2\text{O}_3$  verifiziert und konnte für Membranlängen bis 50 cm erfolgreich umgesetzt werden.

Die Methode liefert fest haftende Pd-Partikel von etwa 10 nm Größe, die überwiegend in der feinporigen Schicht bis etwa 40  $\mu\text{m}$  Tiefe abgeschieden werden. Eine bereits vorhandene Laboranlage wurde zunächst erweitert, um dann ein Regelungskonzept zur kontinuierlichen Prozessführung zu entwickeln und implementieren. Mit 10 cm langen Einkanalrohren mit 10 mm Durchmesser ließ sich in Wasser ein stabiler Betrieb bei einer Druckdifferenz Gas/Flüssigkeit bis zu 10 bar sowie in Methanol bis zu 5 bar über mehrere Tage erreichen. Nach der Lösung von hartnäckigen Abdichtungsproblemen an den Stirnseiten gelang es auch mit Mehrkanalelementen (19 Kanäle, 2,5 cm Außendurchmesser, 25 cm Länge) einen stabilen Betrieb bis etwa 2 bar Druckdifferenz über mehrere Stunden aufrechtzuerhalten.

Durch separate Experimente mit selbst präparierten Trägerkatalysatoren in einem Autoklaven konnten zwei viel versprechende Katalysatortypen identifiziert werden:  $\text{Pd/TiO}_2$  und  $\text{Pd/C-Al}_2\text{O}_3$ . Diese Materialien wurden daraufhin für die Membranherstellung gewählt. Die Experimente im Batch-Betrieb dienten auch zur Untersuchung der Reaktionskinetik als Basis für ein Simulationsmodell, das den Membrankontaktor beschreibt und den Stofftransport und die chemische Reaktion in den Reaktionskanälen berücksichtigt. Mit Hilfe des Modells wurden günstigere Reaktionsbedingungen ermittelt, die zu einer Verbesserung der Aktivität der katalytischen Membranen führten. Bei Experimenten im Kreislaufmodus wurde allerdings eine Abnahme der  $\text{H}_2\text{O}_2$ -Konzentration mit der Zeit registriert, die auf eine Deaktivierung des Katalysators, möglicherweise durch einen veränderten Oxidationszustand von Pd oder auf eine unkontrollierte Zersetzung von  $\text{H}_2\text{O}_2$  in der Apparatur hindeuten. Ein Pd-Verlust durch Leaching konnte ausgeschlossen werden.

Die besten Ergebnisse wurden ohne Rückführung erzielt, wobei Pd-beschichtete Einkanalrohre aus  $\text{C-Al}_2\text{O}_3$  und  $\text{TiO}_2$  zum Einsatz kamen. Die Produktivität erreichte dabei Werte bis zu  $6,41 \text{ molH}_2\text{O}_2 \text{ m}^{-2} \text{ h}^{-1}$  bzw.  $1,63 \text{ molH}_2\text{O}_2 \text{ gPd}^{-1} \text{ h}^{-1}$  bei einer Selektivität zu  $\text{H}_2\text{O}_2$  von über 70 % bezogen auf den Verbrauch von  $\text{H}_2$ .

Bearbeitet wurde das Forschungsthema von 06/06 bis 03/09 bei der **DECHEMA e.V., Karl-Winnacker-Institut** (Theodor-Heuss-Alle 25, 60486 Frankfurt am Main, Tel.: 069/7564-0) unter Leitung von Prof. Dr. R. Dittmeyer (Leiter der Forschungsstelle Prof. Dr. G. Kreysa) und am **Hermisdorfer Institut für Technische Keramik e.V.** (Michael-Faraday-Straße 1, 07629 Hermsdorf, Tel.: 036601/61866) unter Leitung von Dr. H. Richter (Leiterin der Forschungsstelle Dr. B. Voigtsberger).

[--> TIB](#)

Gefördert durch:



aufgrund eines Beschlusses  
des Deutschen Bundestages

Das IGF-Vorhaben Nr. 14782 BG der Forschungsvereinigung DECHEMA, Gesellschaft für Chemische Technik und Biotechnologie e.V., Theodor-Heuss-Allee 25, 60486 Frankfurt am Main wurde über die AiF im Rahmen des Programms zur Förderung der industriellen Gemeinschaftsforschung (IGF) vom Bundesministerium für Wirtschaft und Energie aufgrund eines Beschlusses des Deutschen Bundestages gefördert.