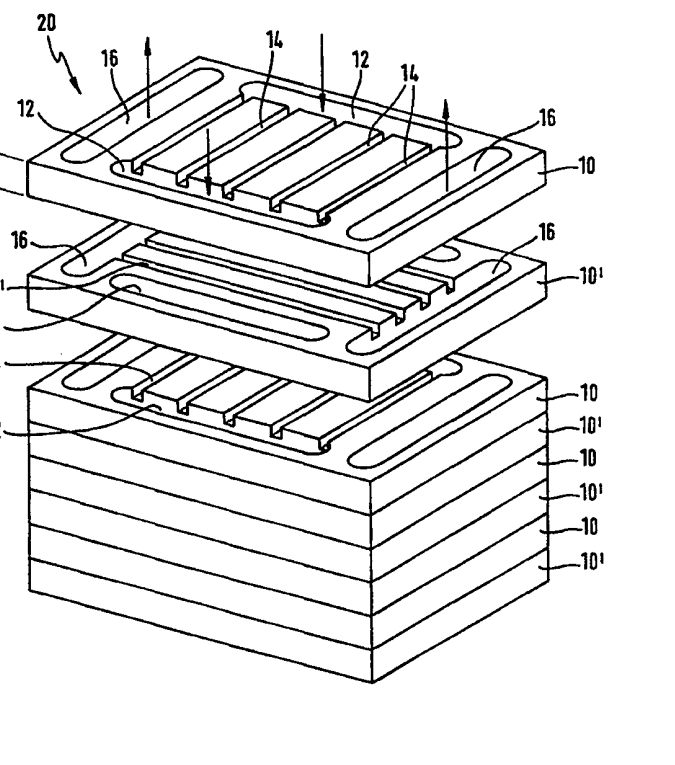


<p>(51) Internationale Patentklassifikation ⁶ : B01J</p>	<p>A2</p>	<p>(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 99/17867</p> <p>(43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 15. April 1999 (15.04.99)</p>
<p>(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP98/05796</p> <p>(22) Internationales Anmeldedatum: 11. September 1998 (11.09.98)</p> <p>(30) Prioritätsdaten: 197 43 673.0 2. Oktober 1997 (02.10.97) DE</p> <p>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): DBB FUEL CELL ENGINES GESELLSCHAFT MIT BESCHÄNKTER HAFTUNG [DE/DE]; Neue Strasse 95, D-73230 Kirchheim (DE).</p> <p>(72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): SCHÜSSLER, Martin [DE/DE]; Ziegelgasse 41, D-89077 Ulm (DE). STE- FANOVSKI, Tomas [DE/DE]; Albert-Schweitzer-Strasse 39, D-71034 Böblingen (DE). ZUR MEGEDE, Detlef [DE/DE]; Stuttgarter Strasse 84/4, D-73230 Kirchheim (DE).</p> <p>(74) Anwälte: DAHMEN, Toni usw.; Daimler-Benz Aktiengesellschaft, FTP- C 106, D-70546 Stuttgart (DE).</p>		<p>(81) Bestimmungsstaaten: JP, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).</p> <p>Veröffentlicht <i>Ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts.</i></p>
<p>(54) Title: DEVICE FOR CARRYING OUT A HETEROGENOUSLY CATALYSED REACTION AND METHOD FOR PRODUCING A CATALYST</p>		
<p>(54) Bezeichnung: VORRICHTUNG ZUR DURCHFÜHRUNG EINER HETEROGEN KATALYSIERTEN REAKTION UND VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG EINES KATALYSATORS</p>		
<p>(57) Abstract</p>		
<p>The invention relates to a device for carrying out a heterogeneously catalysed reaction, for example the production of hydrogen from hydrocarbons or alcohol, especially methanol, by adding a reaction mixture consisting of hydrocarbon and water to a catalyst. The inventive catalyst is produced by pressing at least one catalyst powder into a very compact layer forming a shaped body. The reaction mixture can then be pressed through the catalyst layer by reducing pressure.</p>		
<p>(57) Zusammenfassung</p> <p>Zur Durchführung einer heterogen katalysierten Reaktion, wie beispielsweise die Wasserstoffherzeugung aus Kohlenwasserstoffen oder Alkohol, insbesondere Methanol, unter Zuführung eines Kohlenwasserstoff und Wasser umfassenden Reaktionsgemisches auf einen Katalysator, wird ein Katalysator vorgeschlagen, der durch Verpressen mindestens eines Katalysatorpulvers in eine einen Formkörper bildende und stark komprimierte Schicht hergestellt ist, wobei das Reaktionsgemisch unter Druckabfall durch die Katalysatorschicht hindurchpreßbar ist.</p>		
 <p>The diagram shows a perspective view of a catalytic device. It consists of a stack of plates. The top plate (10) has a series of parallel channels (12) formed by raised ridges (14). A catalyst layer (16) is applied to the top surface of the plate, filling the channels. The device is shown in a partially exploded view to reveal the internal structure of the plates and the catalyst layer. Labels 10, 10', 12, 14, 16, and 20 indicate various components and features of the device.</p>		

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauretanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						

Vorrichtung zur Durchführung einer heterogen katalysierten
Reaktion und Verfahren zur Herstellung eines Katalysators

Die vorliegende Erfindung betrifft eine Vorrichtung zur Durchführung einer heterogen katalysierten Reaktion unter Zuführung eines geeigneten Reaktionsgemisches auf einen Katalysator sowie ein Verfahren zur Herstellung eines Katalysators, der insbesondere zur Verwendung in einer derartigen Vorrichtung geeignet ist.

Bei einer heterogen katalysierten Reaktion handelt es sich beispielsweise um die Wasserstofferzeugung aus Kohlenwasserstoff oder Alkohol, insbesondere Methanol (Methanol-Reformierung), unter Zuführung eines Kohlenwasserstoff oder Alkohol und Wasser umfassenden Reaktionsgemisches auf einen Katalysator. Weitere Beispiele sind die Kohlenmonoxid-Verringerung unter Freisetzung von Kohlendioxid in einer sogenannten Wasserstoff-Shift-Reaktion, die Kohlenmonoxid-Oxidation unter Zuführung eines CO-haltigen Gases und eines O₂-haltigen Gases auf einen Katalysator sowie das Verbrennen eines brennbaren Eduktes unter Zusatz eines O₂-haltigen Gases in einem katalytischen Brenner.

Die Gewinnung von Wasserstoff aus Methanol basiert auf der Gesamtreaktion $\text{CH}_3\text{OH} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO}_2 + 3\text{H}_2$. Zur Durchführung dieser Reaktion wird in der Praxis ein den Kohlenwasserstoff und Wasserdampf umfassendes Reaktionsgemisch unter Zufuhr von Wärme an einem geeigneten Katalysator entlangeleitet, um in einem zwei- oder mehrstufigen Reaktionsablauf den gewünschten Wasserstoff zu erzeugen. Eine derartige Vorrichtung zur zweistufigen Methanol-Reformierung ist aus der EP 0 687 648 A1 bekannt. In der bekannten Vorrichtung wird das Reaktionsgemisch einem ersten

Reaktor zugeführt, in dem nur ein Teilumsatz des Methanols angestrebt wird. Nach dem Durchströmen des ersten Reaktors wird das Gasgemisch, in welchem noch Anteile nicht umgesetzter Edukte enthalten sind, einem zweiten Reaktor zugeleitet, der restumsatzoptimiert aufgebaut ist. Die Reaktoren sind dabei als Platten- bzw. Schüttreaktoren ausgeführt, in welchen der Katalysator in Form einer Schüttung oder Beschichtung der Verteilungskanäle vorgesehen ist. Des weiteren sind Katalysatoren in Form von beschichteten Blechen, Netzen und Schäumen bekannt, die von dem Reaktionsgemisch durchströmt werden.

Aus der EP 0 217 532 B1 ist ein Verfahren zur katalytischen Erzeugung von Wasserstoff aus Gemischen von Methanol und Sauerstoff unter Verwendung eines gasdurchlässigen Katalysatorsystems bekannt, bei dem ein Wasserstoff-Generator mit einer oberen Reaktionszone und einer unteren Reaktionszone vorgesehen ist, wobei das Reaktionsgemisch von Methanol und Sauerstoff in die obere Reaktionszone eingespeist wird. Nach dem Durchströmen der oberen Reaktionszone wird das Reaktionsgemisch in die untere Reaktionszone geleitet, in welcher es durch eine spontane Einleitung der Oxidation des Methanols zu einem derartigen Anstieg der Temperatur kommt, daß eine teilweise Oxidation des Methanols in Anwesenheit eines Kupfer-Katalysators in der oberen Reaktionszone beginnt und Wasserstoff gebildet wird.

Ausgehend von diesem Stand der Technik liegt der Erfindung die Aufgabe zugrunde, eine gattungsgemäße Vorrichtung in möglichst einfacher und kompakter Bauweise bereitzustellen, bei der die für die Umsetzung eines bestimmten Brennstoffmengenstroms nötige Menge an Katalysatormaterial minimiert ist. Des weiteren ist es Aufgabe der Erfindung, ein Verfahren zur Herstellung eines Katalysators anzugeben, mit dem die genannte Minimierung an Katalysatormaterial und die einfache und kompakte Bauweise erzielt werden können.

Zur Lösung dieser Aufgabe wird eine Vorrichtung zur Durchführung einer heterogen katalysierten Reaktion mit den Merkmalen

des Anspruches 1 vorgeschlagen. Die erfindungsgemäße Vorrichtung umfaßt demnach einen Katalysator, der durch Verpressen von Katalysatormaterial in eine dünne und großflächige Schicht gebildet ist, wobei das Reaktionsgemisch unter Druckabfall durch den Katalysator hindurchpreßbar ist. Im Unterschied zu den bekannten Vorrichtungen wie Wasserstoffreaktoren und dergleichen ist der Katalysator nicht als bloße Oberflächenstruktur ausgebildet, der von dem Reaktionsgemisch nur umströmt wird, sondern als stark komprimierte dreidimensionale Schicht, durch die das Reaktionsgemisch unter starker Druckbeaufschlagung hindurchgepreßt wird. Dadurch wird eine hohe Auslastung der aktiven Katalysatorzentren und eine hohe Reaktionsgeschwindigkeit an diesen Zentren erreicht. Aufgrund des starken Druckabfalls beim Durchtritt des Reaktionsgemisches durch die erfindungsgemäße Katalysatorschicht spielen die Strömungswiderstände der Zu- und Ableitung der Edukte und Produkte der Reaktion keine große Rolle, so daß Zu- und Ableitung der an der Reaktion beteiligten Stoffe einfach gestaltet werden kann. Durch die starke Komprimierung des Katalysatormaterials beim Verpressen wird eine sehr kompakte Katalysatorschicht erzielt, was zur Folge hat, daß der Anteil von Gasraum und nicht katalytisch wirksamen Festkörpern (wie beispielsweise Trägerbleche und dergleichen) am Gesamtvolumen und Gewicht des Reaktors gegenüber bekannten Vorrichtungen deutlich verringert ist. Vorzugsweise wird als Katalysatormaterial feinkörniges Katalysatorgranulat bzw. -pulver verwendet. Dadurch wird auch bei hohen Reaktionsgeschwindigkeiten ein guter Stoff- und Wärmetransport zu und von den inneren Bereichen der Katalysatorkörner gewährleistet. Außerdem nimmt der Anteil der durchströmbaren Poren mit abnehmender Korngröße zu, d.h. die Anzahl der "Sackgassen" für die Gasdurchströmung nimmt ab. Beim Durchströmen der Schicht tritt eine starke Verwirbelung der Gase auf, wodurch die Filmdiffusionswiderstände um die Körner des Katalysatormaterials verringert werden, was zu einem verbesserten Wärmetransport durch Konvektion führt.

In Ausgestaltung der Erfindung ist die Katalysatorschicht im wesentlichen senkrecht zur Strömungsrichtung des Reaktionsgemis-

ches angeordnet. Dadurch werden besonders kurze Wege für die Gasdurchströmung erzielt. Durch die großflächige und stark komprimierte Ausgestaltung der erfindungsgemäßen Katalysatorschicht genügt bei senkrechter Durchströmung bereits ein kurzer Weg, um unter hohem Druckabfall einen hohen Reaktionsumsatz zu erzielen.

In besonders vorteilhafter Ausgestaltung der Erfindung ist das Katalysatormaterial mit einer Trägerstruktur verpreßt, wodurch das Katalysatormaterial mechanisch stabilisiert ist und/oder eine verbesserte Wärmeleitung vorliegt. Bei der Trägerstruktur handelt es sich vorteilhafterweise um eine dreidimensionale netzartige Struktur (Matrix), die in weiterer vorteilhafter Ausgestaltung der Erfindung eine metallene Trägerstruktur ist. Als Metall wird beispielsweise Kupfer, insbesondere dendritisches Kupfer verwendet.

In vorteilhafter Ausgestaltung der Erfindung enthält das Katalysatormaterial ein Edelmetall, insbesondere Platin. Das zuge setzte Edelmetall, bei dem es sich vorzugsweise um Platin handelt, wobei jedoch auch die Verwendung anderer Edelmetalle möglich ist, reagiert bereits bei relativ niederen Betriebstemperaturen und dient somit zur Aufheizung der Katalysatoranordnung. Durch diese Maßnahme wird das Kaltstartverhalten der Katalysatoranordnung beträchtlich verbessert, was sich insbesondere bei einer Anwendung im Bereich der mobilen Wasserstoffherzeugung vorteilhaft auswirkt.

In besonders vorteilhafter Weiterbildung der Erfindung sind mehrere parallel geschaltete Schichten vorgesehen. Dadurch kann die insgesamt von dem Reaktionsgemisch zu durchströmende Fläche auf mehrere nachgeordnete, jedoch parallel geschaltete Schichten verteilt werden. Diese "Modulbauweise" führt zu einem besonders kompakten Aufbau der Katalysatoranordnung.

Zur vereinfachten Zu- und Ableitung der an der Reaktion beteiligten Stoffe sind in weiterer Ausgestaltung der Erfindung in

der mindestens einen Katalysatorschicht Kanäle zum Leiten von Edukten des Reaktionsgemisches und der Reaktionsprodukte vorsehen.

In weiterer Ausgestaltung der Erfindung erfolgt eine gegebenenfalls reaktionsbenötigte oder reaktionsfördernde Zuführung von Sauerstoff zu dem Reaktionsgemisch erst in der Ebene der mindestens einen Katalysatorschicht.

Zur weiteren Lösung der Erfindung wird ein Verfahren mit den Merkmalen des Anspruchs 12 vorgeschlagen. Erfindungsgemäß wird demnach zur Herstellung eines insbesondere in einer erfindungsgemäßen Vorrichtung zur Wasserstofferzeugung verwendbaren Katalysators aus mindestens einem Katalysatorpulver durch Verpressen eine einen Formkörper bildende und stark komprimierte Schicht gebildet, wobei das Katalysatorpulver dendritisches Kupfer in Pulverform umfaßt.

In Ausgestaltung der Erfindung wird der Formkörper im Anschluß an das Verpressen einer Sinterung unterzogen, wodurch eine besonders gute Beständigkeit des erfindungsgemäßen Katalysators erreicht wird.

In weiterer Ausgestaltung der Erfindung werden beim Verpressen in den Formkörper Kanäle zum Leiten von Edukten und Produkten der katalytischen Reaktion eingebracht. Vorteilhafterweise werden diese Kanäle durch Einbringen von in einem nachfolgenden Verfahrensschritt wieder entfernbaren Platzhalterelementen erzeugt. Das Entfernen der Platzhalterelemente erfolgt vorteilhafterweise durch Verbrennen, Pyrolysieren, Lösen oder Verdampfen.

In weiterer vorteilhafter Ausgestaltung der Erfindung wird auf einem bereits gesinterten Formkörper eine weitere Pulverschicht aufgepreßt und anschließend gesintert. Dadurch kann in mehrstufiger Herstellung in einer Art Sandwichstruktur ein Katalysator mit mehreren übereinanderliegenden Schichten hergestellt wer-

den, die durch Einbringen geeigneter Kanäle parallel verschaltet sind. Dadurch kann das gesamte von dem Reaktionsgemisch zu durchfließende Katalysatorvolumen auf eine kleinere Querschnittsfläche aufgeteilt und trotzdem das Konzept des hohen Druckabfalls über einen kleinen Strömungsweg beibehalten werden.

Die Erfindung ist anhand von Ausführungsbeispielen in der Zeichnung schematisch dargestellt und wird im folgenden unter Bezugnahme auf die Zeichnung ausführlich beschrieben.

Figur 1 veranschaulicht in stark schematischer Darstellung die Funktionsweise einer erfindungsgemäßen Katalysatorschicht.

Figur 2 zeigt in perspektivischer Darstellung eine erfindungsgemäße stapelförmige Anordnung parallel geschalteter Katalysatorschichten.

Figur 3 zeigt in perspektivischer Darstellung ein weiteres Ausführungsbeispiel einer einzelnen erfindungsgemäßen Katalysatorschicht.

Figur 1 zeigt schematisch in seitlicher Ansicht eine erfindungsgemäße Katalysatorschicht 10, die durch Verpressen von Katalysatormaterial in eine dünne und großflächige, stark komprimierte Schicht gebildet ist. Die Schicht 10 bildet einen Formkörper mit einer Dicke d , die beispielsweise 1 mm beträgt. Als Katalysatormaterial wird ein feinkörniges Katalysatorpulver oder -granulat verwendet, dessen Körner einen Durchmesser von ca. 0,5 mm oder kleiner haben. Das Verpressen erfolgt beispielsweise bei Temperaturen von ca. 200° bis 500°C.

Die dargestellte Katalysatorschicht 10 ist Bestandteil einer nicht näher dargestellten Vorrichtung zur Wasserstoffherzeugung, wobei die Edukte des Reaktionsgemisches unter Druckbeaufschlagung im wesentlichen senkrecht zu der Katalysatorschicht 10 auf

diese zugeführt und durch sie hindurchgepreßt werden. Beim Durchströmen der Katalysatorschicht 10 erfährt das Reaktionsgemisch einen Druckabfall Δp von ca. 100 mbar und mehr (beispielsweise 1 bis 4 bar). Auf der gegenüberliegenden Seite der Katalysatorschicht 10 treten die katalytischen Reaktionsprodukte im Sinne des eingezeichneten Pfeiles aus.

Um dem Katalysatormaterial eine bessere mechanische Stabilität und/oder verbesserte Wärmeleitung zu verleihen, wird das Katalysatormaterial in eine Trägerstruktur verpreßt. Bei dieser Trägerstruktur handelt es sich um eine netzartige Matrix, die durch Vermischen des mindestens einen Katalysatorpulvers mit dendritischem Kupfer in Pulverform und Verpressen dieses Gemisches erhalten wird. Beim Verpressen bildet das dendritische Kupfer eine netzartige Matrixstruktur, in welche die Katalysatorkörner "eingebaut" sind. Das dendritische Kupferpulver läßt sich auch bei einem relativ geringen Massenanteil des Kupferpulvers zur Gesamtmasse der Schicht leicht zu einem Netz zusammenpressen bzw. versintern, hat eine große Oberfläche und ist selber katalytisch aktiv. Durch die Verwendung von dendritischem Kupferpulver wird deshalb ein stabilisierendes, fixierendes und wärmeverteilendes Netz im Mikrometer-Bereich erhalten.

Die Katalysatorschicht 10 weist eine relativ große Fläche von beispielsweise 100 cm² auf. Um eine kompaktere Bauweise zu erreichen, wird das von dem Reaktionsgemisch zu durchfließende Katalysatorvolumen auf mehrere Schichten aufgeteilt, die jedoch nicht nebeneinander, sondern hintereinander, aber parallel geschaltet angeordnet sind. Eine derartige Anordnung ist in Figur 2 dargestellt und zeigt einen eine Vielzahl von aufeinanderliegenden Katalysatorschichten 10, 10' umfassenden Stapel 20, wobei die in der Zeichnung oben liegenden Schichten zur besseren Veranschaulichung der Wirkungsweise beabstandet zueinander dargestellt sind.

Die Katalysatorschichten 10 weisen Kanäle 12, 14, 14' 16 zum -
Leiten von Edukten und Produkten der katalytischen Reaktion

auf. In dem in Figur 2 dargestellten Ausführungsbeispiel sind in der Katalysatorschicht im wesentlichen parallel zu den Längskanten verlaufende Eduktkanäle 12 vorgesehen, die senkrecht zur Flächenebene der Katalysatorschicht durchgehende Führungskanäle bilden, wobei die Eduktkanäle 12 übereinanderliegender Katalysatorschichten 10, 10' im wesentlichen deckungsgleich zueinander angeordnet sind und somit einen durch den gesamten Stapel 20 von oben nach unten durchgehenden Führungskanal für die Edukte des Reaktionsgemisches bilden. Je nach Verwendung der Stapelanordnung wird durch die Eduktkanäle 12 ein spezifisches Reaktionsgemisch geleitet. Im Falle der Verwendung als Wasserstoffreaktor umfaßt das Reaktionsgemisch Alkohol, insbesondere Methanol, sowie chemisch gebundenen Wasserstoff, vorteilhafterweise in Form von Wasser. Im Falle der Verwendung des Stapels 20 in einer sogenannten H_2 -Shift-Reaktion zur Verringerung von Kohlenmonoxid unter Freisetzung von Kohlendioxid umfaßt das Reaktionsgemisch Kohlenmonoxid und Wasserstoff. Im Falle des Einsatzes im Bereich der Kohlenmonoxid-Oxidation umfaßt das Reaktionsgemisch ein CO -haltiges Gas sowie ein O_2 -haltiges Gas. Bei der Verwendung des Katalysatorstapels 20 in einem katalytischen Brenner umfaßt das Reaktionsgemisch ein brennbares Edukt sowie ein O_2 -haltiges Gas.

Die Eduktkanäle 12 jeder zweiten Katalysatorschicht 10 stehen mit im wesentlichen parallel zur Flächenausdehnung der Katalysatorschicht 10 verlaufenden Verteilungskanälen 14 in Verbindung, die wenigstens einen Teil des durch die Eduktkanäle 12 eintretenden Reaktionsgemisches in das Innere der Katalysatorschicht 10 ableiten.

Erfindungsgemäß wird demnach jeweils ein Teil des durch die Eduktkanäle 12 eintretenden und durch den Stapel 20 geführten Reaktionsgemisches in jeder zweiten Schichtenebene durch die Verteilungskanäle 14 in das Innere der beiden angrenzenden Katalysatorschichten 10, 10' abgeleitet, wodurch eine Parallelschaltung der übereinanderliegend angeordneten Katalysatorschichten erreicht wird.

In dem in der Figur 2 dargestellten Ausführungsbeispiel sind wie beschrieben pro Katalysatorschicht 10, 10' zwei räumlich getrennte Eduktkanäle 12 vorgesehen. Dies kann dazu genutzt werden, um verschiedene Stoffe des Reaktionsgemisches getrennt voneinander zuzuführen, so daß einzelne Bestandteile des Reaktionsgemisches erst in der Ebene der Katalysatorschicht 10 zusammenkommen.

Vorteilhafterweise wird hierzu eine Katalysatorschicht mit einer Kanalstruktur eingesetzt, wie sie in dem Ausführungsbeispiel der Figur 3 dargestellt ist. Die in Figur 3 gezeigte Katalysatorschicht 21 weist Eduktkanäle 22a, 22b und Produktkanäle 26 auf, die in ihrer Funktion prinzipiell den in Zusammenhang mit der Figur 2 beschriebenen Edukt- und Produktkanälen 12 und 16 entsprechen. Abweichend von der in Figur 2 dargestellten Katalysatorschicht 10 stehen die zwei räumlich getrennt voneinander angeordneten Eduktkanäle 22a, 22b durch die Verteilungskanäle nicht miteinander in Verbindung, sondern die von jedem der Eduktkanäle 22a, 22b ausgehenden Verteilungskanäle 24a bzw. 24b erstrecken sich quer über die Katalysatorschicht 21, enden jedoch, bevor sie den gegenüberliegenden Eduktkanal 22b bzw. 22a erreichen. Dadurch wird eine Anordnung von alternierend ineinandergreifenden Kanälen geschaffen, was zur separaten Zuführung eines (weiteren) Gases, das zur Reaktion benötigt wird oder diese unterstützt, genutzt werden kann. Wird im Beispiel des Methanol-Reformers durch den einen Eduktkanal, beispielsweise den Eduktkanal 22a, eine Mischung aus Methanol und Wasserdampf zugeführt, so kann durch den entsprechend anderen Eduktkanal 22b Sauerstoff (Luft) zugeführt werden. Über die dem jeweiligen Eduktkanal zugeordneten Verteilungskanäle 24a, 24b werden die zugeleiteten Stoffe in der Katalysatorschicht 21 verteilt und treten erst in der Schicht selbst miteinander in Kontakt. Dadurch wird eine besonders homogene und sichere (Explosionsgefahr) Verteilung und Vermischung der Edukte erreicht. Selbstverständlich sind auch andere als die dargestellte Aus-

führungsformen mit nur einem Eduktkanal oder auch mehr als zwei Eduktkanälen möglich.

Entlang der Querkanten der Katalysatorschichten 10, 10' sind analog zu den Eduktkanälen 12 ausgebildete Produktkanäle 16 angeordnet, die ebenfalls im wesentlichen senkrecht zur Flächenausdehnung jeder Katalysatorschicht 10 verlaufende Führungskanäle bilden, die bei übereinandergelegten Katalysatorschichten 10 jeweils deckungsgleich mit den Produktkanälen der darüber bzw. darunterliegenden Katalysatorschicht 10, 10' zum Liegen kommen. Die Produktkanäle 16 jeder zweiten Katalysatorschicht 10' stehen mit Sammelkanälen 14' in Verbindung, die das aus der jeweils darüber- und darunterliegenden Katalysatorschicht 10, 10' austretende Reaktionsprodukt sammeln und in Querrichtung den Produktkanälen 16 zuführen, mittels welcher die Reaktionsprodukte durch den Stapel 20 abgeleitet werden.

In der dargestellten Ausführungsform einer erfindungsgemäßen Vorrichtung zur Durchführung einer heterogen katalysierten Reaktion wie der Wasserstoffherzeugung verfügen die übereinandergelegten Katalysatorschichten 10, 10' also über jeweils alternierende Funktionsweisen; in den Katalysatorschichten 10 werden die durch die Eduktkanäle 12 zugeführten Edukte verteilt und über Verteilungskanäle 14 über die Fläche der darüber- und darunterliegenden Katalysatorschicht verteilt, wo sie diese im wesentlichen senkrecht und unter einem beträchtlichen Druckabfall durchströmen. In der jeweils folgenden Katalysatorschicht 10' werden die Produkte der katalytischen Reaktion in Sammelkanälen 14' gesammelt und den Produktkanälen 16 zum Abführen der Reaktionsprodukte aus dem Katalysatorstapel 20 zugeführt.

Natürlich ist die Erfindung nicht auf die dargestellte und beschriebene Ausführungsform beschränkt. Vielmehr sind auch Ausführungsformen denkbar, in welchen jede Katalysatorschicht das Zuführen, Verteilen, Sammeln und Abführen der Edukte bzw. Produkte übernimmt. Derartige komplexere Katalysatorschichten können beispielsweise durch Aufpressen und Sintern von pulverför-

migen Katalysatormaterial auf bereits gesinterte Katalysatorschichten hergestellt werden.

Erfindungsgemäß werden somit Katalysatorschichten bereitgestellt, die einfach und in kompakter Weise herstellbar und zur Verwendung in Wasserstoffreaktoren zur katalytischen Wasserstoffherzeugung, Wasserstoff-Shift-Stufen zur CO-Verringerung, Kohlenmonoxid-Oxidatoren sowie katalytischen Brennern geeignet sind. Durch die erfindungsgemäße Ausgestaltung des Katalysators wird eine modulare Bauweise ermöglicht, bei dem nur geringe thermische Verluste und keine großen Temperaturgradienten auftreten, wodurch eine über ein großes Volumen homogen ablaufende Reaktion ermöglicht wird. Das gesamte Katalysatorvolumen ist räumlich mit Edukten erreichbar, was zu einer deutlich verbesserten Startdynamik führt. Darüber hinaus wird die Gefahr der Zündung der homogenen Verbrennung von Methanol oder der Knallgasreaktion vermieden.

Durch geeignete Wahl der Prozeßparameter (Preßdruck, Temperatur, Art und Beschaffenheit der Ausgangsmaterialien wie Korngrößenverteilung, Porösität etc.) kann der Fachmann eine auf die jeweiligen Anforderungen zugeschnittene und bezüglich Schichtfolge, Wärmeverteilung, Strömungsverhältnisse und mechanische Eigenschaften wie Druckabfall und Stabilität optimierte erfindungsgemäße Katalysatorschicht bzw. Katalysatorschichtenanordnung erzeugen.

Patentansprüche

1. Vorrichtung zur Durchführung einer heterogen katalysierten Reaktion unter Zuführung eines geeigneten Reaktionsgemisches auf einen Katalysator,
dadurch gekennzeichnet,
daß der Katalysator mindestens eine durch Verpressen von Katalysatormaterial gebildete dünne und großflächige Schicht (10, 10'; 21) ist, durch die das Reaktionsgemisch unter Druckabfall (Δp) hindurchpreßbar ist.
2. Vorrichtung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Schicht (10, 10'; 21) im wesentlichen senkrecht zur Strömungsrichtung des Reaktionsgemisches angeordnet ist.
3. Vorrichtung nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß das Katalysatormaterial mit einer Trägerstruktur verpreßt ist.
4. Vorrichtung nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Trägerstruktur eine netzartige metallene Trägerstruktur ist.
5. Vorrichtung nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß die netzartige Trägerstruktur aus Kupfer ist.
6. Vorrichtung nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß die netzartige Trägerstruktur aus dendritischem Kupfer ist.
7. Vorrichtung nach einem der vorstehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß das Katalysatormaterial ein Edelmetall, insbesondere Platin, enthält.

8. Vorrichtung nach einem der vorstehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß mehrere parallel geschaltete Schichten (10, 10'; 21) vorgesehen sind.

9. Vorrichtung nach einem der vorstehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß in der mindestens einen Schicht (10, 10'; 21) Kanäle (12, 14, 14', 16; 22a, 22b, 24a, 24b, 26) zum Leiten von Edukten des Reaktionsgemisches und der Reaktionsprodukte vorgesehen sind.

10. Vorrichtung nach einem der vorstehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß eine gegebenenfalls reaktionsfördernde Zuführung von Sauerstoff getrennt von den übrigen Edukten erfolgt.

11. Vorrichtung nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, daß ein Zusammenführen und Mischen des Sauerstoffs mit den übrigen Edukten erst in der Schicht (10, 21) erfolgt.

12. Verfahren zur Herstellung eines Katalysators, insbesondere für eine Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 10, bei dem aus mindestens einem Katalysatorpulver durch Verpressen ein einen Formkörper bildende dünne und stark komprimierte Schicht (10, 10') gebildet wird, wobei das Katalysatorpulver dendritisches Kupfer in Pulverform enthält.

13. Verfahren nach Anspruch 12, bei dem der Formkörper im Anschluß an das Verpressen einer Sinterung unterzogen wird.

14. Verfahren nach einem der Ansprüche 12 oder 13, bei dem beim Verpressen in den Formkörper Kanäle (12, 14, 14', 16; 22a, 22b, 24a, 24b, 26) zum Leiten von Edukten und Produkten der katalytischen Reaktion eingebracht werden.

15. Verfahren nach Anspruch 14, bei dem die Kanäle (12, 14, 14', 16; 22a, 22b, 24a, 24b, 26) durch Einbringen von in einem

nachfolgenden Verfahrensschritt wieder entfernbaren Platzhalterelementen erzeugt werden.

16. Verfahren nach Anspruch 15, bei dem die Platzhalterelemente durch Verbrennen, Pyrolysieren, Lösen oder Verdampfen entfernt werden.

17. Verfahren nach einem der Ansprüche 12 bis 16, bei dem auf einen bereits gesinterten Formkörper eine weitere Pulverschicht aufgepreßt und anschließend gesintert wird.

1 / 2

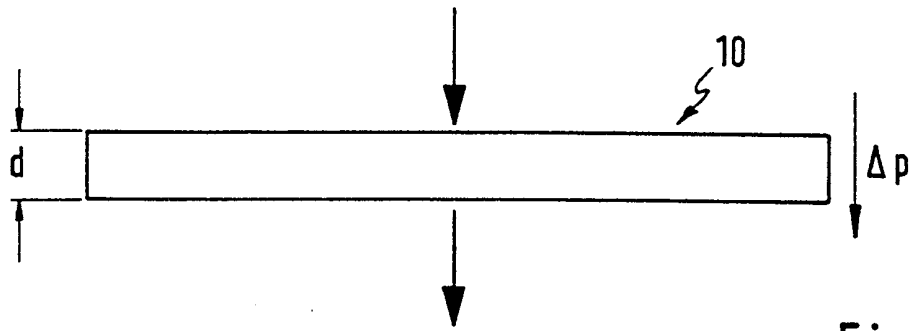


Fig. 1

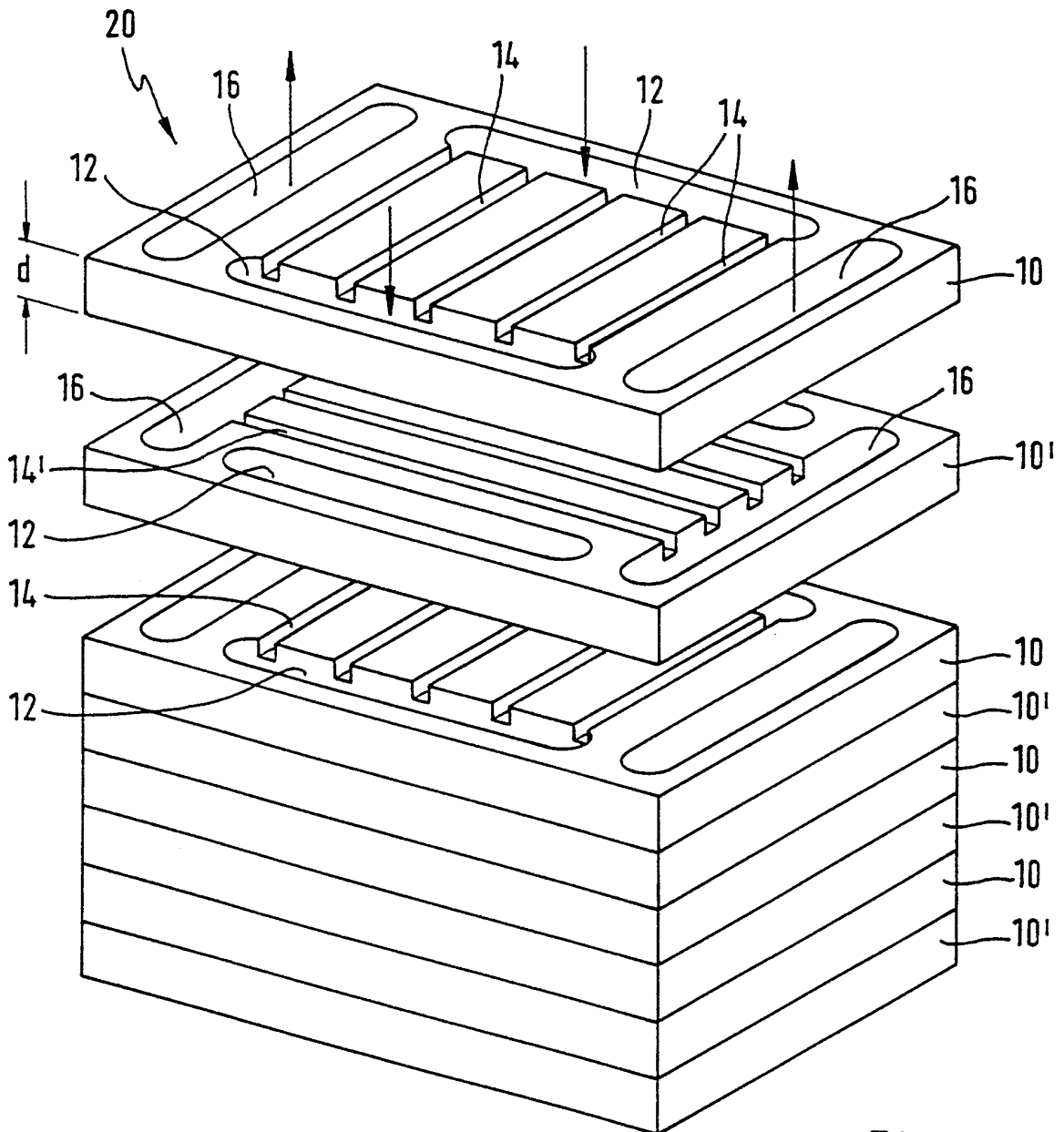


Fig. 2

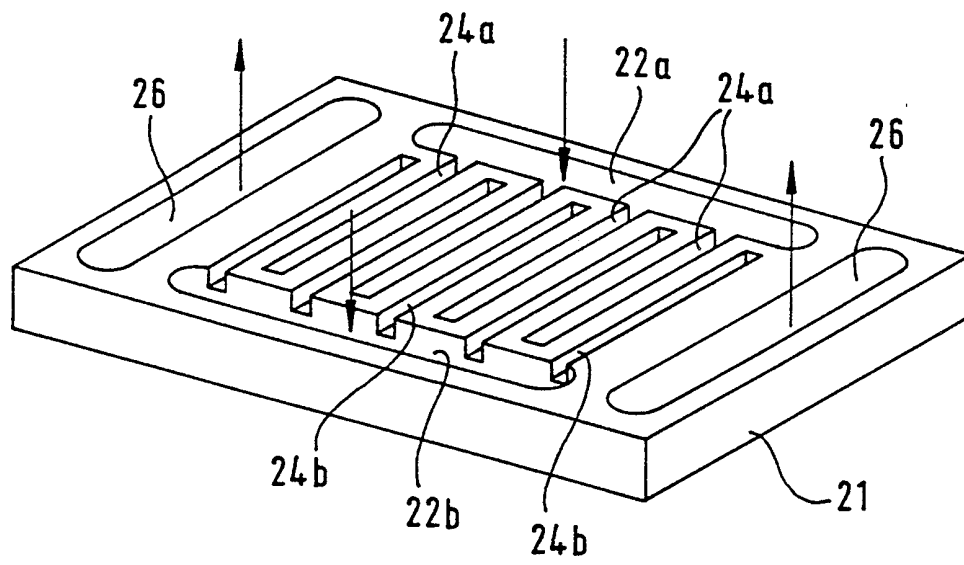


Fig. 3