

(12) **Patentschrift**

(21) Anmeldenummer: A 50467/2019  
(22) Anmeldetag: 21.05.2019  
(45) Veröffentlicht am: 15.10.2020

(51) Int. Cl.: **B01J 19/24** (2006.01)  
**C01B 3/32** (2006.01)

(56) Entgegenhaltungen:  
EP 2675556 B1  
EP 1676811 A2  
WO 03013716 A1  
WO 0022690 A1

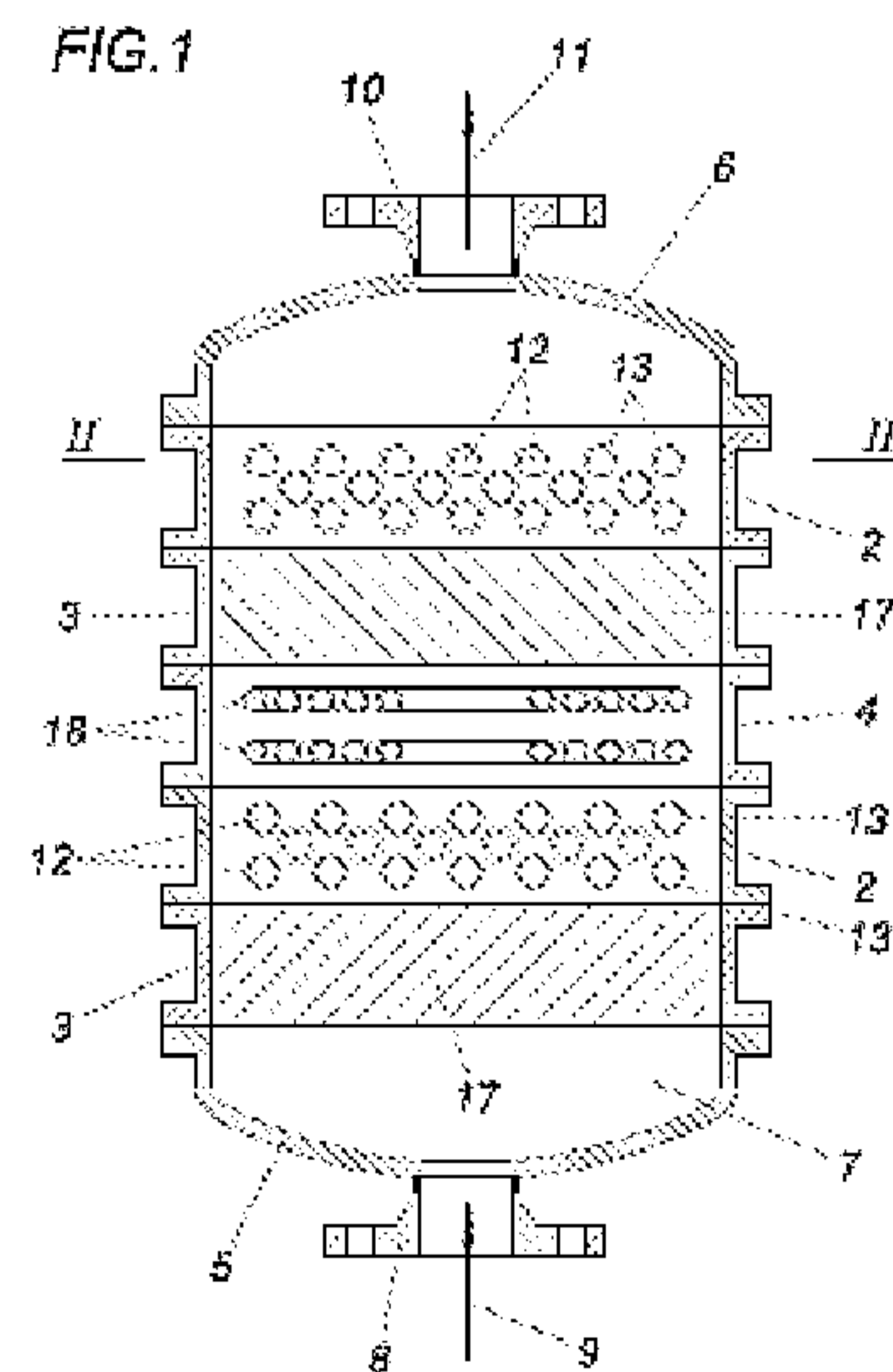
(73) Patentinhaber:  
LEC GmbH  
8010 Graz (AT)

(72) Erfinder:  
Kirchberger Roland  
8045 Graz (AT)  
Lang Michael  
8010 Graz (AT)  
Wermuth Nicole  
8010 Graz (AT)  
Sauperl Igor  
2000 Maribor (SI)

(74) Vertreter:  
Hübscher & Partner Patentanwälte GmbH  
4020 Linz (AT)

(54) **Membranreaktor**

(57) Es wird ein Membranreaktor mit einem ein Gehäuse (1) durchsetzenden, einen Katalysator (17) aufnehmenden Strömungskanal (7) für ein Prozessgas (9) und mit einem Strömungsweg für ein Permeat (15) beschrieben, der vom Strömungskanal (7) für das Prozessgas (9) durch eine für das Permeat (15) durchlässige Membran (13) getrennt ist. Um vorteilhafte Konstruktionsbedingungen zu schaffen, wird vorgeschlagen, dass das Gehäuse (1) aus einzelnen Gehäusemodulen (2, 3, 4) zusammengesetzt ist, die den von Gehäusemodul (2, 3, 4) zu Gehäusemodul (2, 3, 4) durchgehenden Strömungskanal (7) für das Prozessgas (9) bilden und an eine Sammelleitung (14) für das Permeat (15) angeschlossene, quer zum Strömungskanal (7) ausgerichtete Hohlkörper (12) als Träger für die Membran (13) aufweisen.



## Beschreibung

**[0001]** Die Erfindung bezieht sich auf einen Membranreaktor mit einem ein Gehäuse durchsetzenden, einen Katalysator aufnehmenden Strömungskanal für ein Prozessgas und mit einem Strömungsweg für ein Permeat, der vom Strömungskanal für das Prozessgas durch eine für das Permeat durchlässige Membran getrennt ist.

**[0002]** Um die mit der Lagerung von Wasserstoff beispielsweise als Treibstoff für Schiffsantriebe verbundenen Schwierigkeiten zu vermeiden, wurde bereits vorgeschlagen, Methanol, das eine hohe Energiedichte besitzt und eine unbegrenzte Lagerung ohne Verluste erlaubt, als flüssigen, gut handhabbaren Wasserstoffspeicher einzusetzen. In einem Membranreaktor wird ein verdampftes Methanol-Wassergemisch als Prozessgas in einer katalytischen Reaktion im Wesentlichen in Wasserstoff und Kohlendioxid umgesetzt, wobei der Wasserstoff die Hauptkomponente des Permeats und das Kohlendioxid die Hauptkomponente des Retentats bilden. Das im Wesentlichen aus Methanol und Wasser gebildete Prozessgas wird durch einen mit einem Katalysator bestückten Rohrkanal geleitet, dessen Mantel als poröser Träger für die Membran dient. Das durch den die Membran durchsetzenden Wasserstoff gebildete Permeat wird im Gegenstrom zum Prozessgas durch den Ringspalt zwischen dem Rohrkanal und dem den Rohrkanal mit Abstand umschließenden Reaktorgehäuse abgezogen.

**[0003]** Nachteilig bei diesen Membranreaktoren ist, dass sich entlang des axialen Strömungswegs des Prozessgases durch den Rohrkanal die für die katalytische Reaktion bestimmenden Parameter, wie Druck, Temperatur und chemische Zusammensetzung, ändern, sodass sich hinsichtlich der Optimierung des Umsetzungsprozesses Schwierigkeiten ergeben, die zu ungünstigen Wirkungsgraden führen.

**[0004]** Der Erfindung liegt somit die Aufgabe zugrunde, einen Membranreaktor so auszugestalten, dass über den gesamten örtlichen und zeitlichen Reaktionsverlauf vorteilhafte Parameter für die katalytische Umsetzung eines Prozessgases in ein Permeat, insbesondere zur Gewinnung von Wasserstoff aus Methanol, gewährleistet werden können.

**[0005]** Ausgehend von einem Membranreaktor der eingangs geschilderten Art löst die Erfindung die gestellte Aufgabe dadurch, dass das Gehäuse aus einzelnen Gehäusemodulen zusammengesetzt ist, die den von Gehäusemodul zu Gehäusemodul durchgehenden Strömungskanal für das Prozessgas bilden und an eine Sammelleitung für das Permeat angeschlossene, quer zum Strömungskanal ausgerichtete Hohlkörper als Träger für die Membran aufweisen.

**[0006]** Aufgrund der Zusammensetzung des Gehäuses des Membranreaktors aus einzelnen Gehäusemodulen, die je einen Strömungskanalabschnitt bilden, können für jeden Strömungsabschnitt des Prozessgases bzw. des Reaktionsgases, das sich aus dem Prozessgas und dem Retentat aus dem bereits umgesetzten Prozessgas zusammensetzt, jeweils vorteilhafte Parameter für die katalytische Umsetzung und die Abscheidung des Permeats vorgegeben werden, weil die einzelnen Gehäusemodule entsprechend gestaltet werden können. Mit dem Vorsehen von einzelnen Gehäusemodulen zur Permeatableitung entlang des Strömungskanals für das Produktgas und von diesen Gehäusemodulen zugeordneten Katalysatoren, die gegebenenfalls die sich aufgrund der Permeatableitung und der chemischen Reaktionen ändernde Zusammensetzung des Reaktionsgases berücksichtigen, können im Bereich jeder dieser voneinander gesonderten Abschnitte für die katalytischen Reaktionen vorteilhafte, weitgehend konstante Umsetzungsparameter gewährleistet werden.

**[0007]** Besonders einfache Konstruktionsverhältnisse ergeben sich, wenn die Gehäusemodule Gehäuseringe bilden, die zwischen zwei einerseits mit einem Zulauf für das Prozessgas und andererseits mit einem Ablauf für das Retentat versehenen Endkappen zusammengeflanscht sind, sodass zwischen den beiden Endkappen in ihrem Aufbau und in ihrer Anzahl unterschiedliche Gehäusemodule zu einem an die jeweiligen Anforderungen angepassten Membranreaktor zusammengefasst werden können. Die einzelnen Gehäuseringe können dabei in einfacher Weise mithilfe von Ringdichtungen gegeneinander abgedichtet werden.

**[0008]** Obwohl die Gehäusemodule zur Permeatableitung auf der Strömungszulaufseite mit entsprechenden Katalysatoren versehen sein können, ergeben sich hinsichtlich der Gestaltungsfreiheit Vorteile, wenn der Katalysator und die mit der Membran versehenen Hohlkörper in gesonderten Gehäusemodulen vorgesehen sind.

**[0009]** Die quer zum Strömungskanal ausgerichteten, mit einer Membran zur Permeatableitung umschlossenen Hohlkörper können in einfacher Weise aus porösen Rohren gebildet werden, die in außen an den Gehäusemodulen vorgesehene, an die Sammelleitung angeschlossene Sammelräume münden. Mit der Anzahl und dem Durchmesser dieser die Membran tragenden Rohre lässt sich das Verhältnis der Membranfläche zum Querschnitt des Strömungskanals für das Prozessgas bzw. das Reaktionsgas einfach festlegen.

**[0010]** Um Einfluss auf die Temperatur nehmen zu können, kann zumindest ein Gehäusemodul einen Wärmetauscher aufweisen. Mit solchen Wärmetauschermodulen kann je nach Bedarf Wärme sowohl zugeführt als auch abgeführt werden, um die jeweils günstigste Prozesstemperatur einstellen zu können.

**[0011]** In der Zeichnung ist der Erfindungsgegenstand beispielsweise dargestellt. Es zeigen

**[0012]** Fig. 1 einen erfindungsgemäßen Membranreaktor in einem schematischen Längsschnitt,

**[0013]** Fig. 2 einen Schnitt nach der Linie II-II der Fig. 1 und

**[0014]** Fig. 3 eine Ausführungsvariante eines erfindungsgemäßen Membranreaktors in einem der Fig. 1 entsprechenden, schematischen Schnitt.

**[0015]** Ein erfindungsgemäßer Membranreaktor weist ein Gehäuse 1 auf, das sich aus einzelnen, vorzugsweise Gehäuseringe bildenden Gehäusemodulen 2, 3 und 4 zusammensetzt, die zwischen zwei Endkappen 5, 6 dichtend zusammengeflanscht sind. Die zusammengeflanschten Gehäusemodule 2, 3 und 4 bilden einen durchgehenden Strömungskanal 7, der durch einen Zulauf 8 der Endkappe 5 mit einem Prozessgas 9 beaufschlagt wird und im Bereich der gegenüberliegenden Endkappe 6 in einen Ablauf 10 für das Retentat 11 mündet.

**[0016]** Wie insbesondere der Fig. 2 entnommen werden kann, weisen die Gehäusemodule 2 quer zum Strömungskanal 7 verlaufende Hohlkörper 12 in Form von porösen Rohren als Träger für eine Membran 13 auf. Diese Hohlkörper 12 münden in einen außen an den Gehäusemodulen 2 vorgesehenen, an eine Sammelleitung 14 für das Permeat 15 angeschlossenen Sammelraum 16.

**[0017]** Den Gehäusemodulen 2 zur Permeatableitung sind in Strömungsrichtung des Prozessgases 9 mit einem Katalysator 17 versehene Gehäusemodule 3 vorgelagert. In diesen Katalysatoren 17 findet die katalytische Umsetzung des Prozessgases 9 in ein Permeat 15 und ein Retentat 11 statt. Das sich bildende Permeat wird in dem jeweils nachfolgenden Gehäusemodul 2 über die Membran 13 abgeschieden und durch die Hohlkörper 12 ausgetragen. Von dem Reaktionsgas verbleibenden, wird der Prozessgasanteil in einem nachfolgenden Strömungsabschnitt wieder katalytisch umgewandelt, um gegebenenfalls nach einer mehrstufigen katalytischen Umwandlung mit nachfolgender Permeatableitung ein weitgehend prozessgasfreies Retentat 11 aus dem Membranreaktor abführen zu können.

**[0018]** Der Temperatureinfluss auf die katalytische Reaktion kann durch Gehäusemodule 4 berücksichtigt werden, die einen Wärmetauscher 18 aufnehmen, beispielsweise in Form von in Windungen verlegte Rohrschlangen für einen Wärmeträger, mit dessen Hilfe je nach Bedarf entweder Wärme eingebracht oder abgeführt werden kann.

**[0019]** Wird ein Membranreaktor gemäß der Fig. 1 zur Wasserstoffgewinnung mit einem Methanol-Wasserdampfgemisch als Prozessgas 9 beaufschlagt, so erfolgt zunächst in einem Gehäusemodul 3 eine teilweise katalytische Umsetzung des Prozessgases 9 in die Hauptkomponenten Kohlendioxid und Wasserstoff, der im nachfolgenden Gehäusemodul 2 über die Membran 13 durch die Hohlkörper 12 abgeleitet wird. Das verbleibende Reaktionsgas aus mit Kohlendioxid angereichertem Prozessgas wird durch Wärmezufuhr im anschließenden Wärmetauscher 18 eines Gehäusemoduls 4 auf eine für die nachfolgende katalytische Reaktion günstige Prozesstem-

peratur erwärmt, um im Anschluss den aus dem Prozessgas umgesetzten Wasserstoff in einem Gehäusemodul 2 ableiten zu können. Der in den einzelnen Gehäusemodulen 2 abgeschiedene Wasserstoff wird durch eine diesen Gehäusemodulen 2 gemeinsame Sammelleitung 14 zur weiteren Verwendung abgezogen. Das Retentat 11, im Wesentlichen Kohlendioxid und Wasser, verlässt den Membranreaktor durch den Ablauf 10 der Endkappe 6.

**[0020]** Durch unterschiedliche Kombinationen der Gehäusemodule 2, 3 und 4 lässt sich der Membranreaktor in einfacher Art an unterschiedliche Anforderungen anpassen. So zeigt die Fig. 3 beispielsweise einen Membranreaktor, dessen zulaufseitiger Katalysatorabschnitt gegenüber dem Ausführungsbeispiel nach der Fig. 1 durch das Hintereinanderschalten von zwei einen Katalysator 17 aufnehmenden Gehäusemodulen 3 verlängert wurde. Außerdem wird auf die Prozesstemperatur in diesem verlängerten Katalysatorabschnitt durch einen vorgelagerten Wärmetauscher 18 eines Gehäusemoduls 4 Einfluss genommen. Die nachfolgende Umsetzung des im Reaktionsgas verbleibenden Prozessgases wird entsprechend der Fig. 1 optimiert, indem zunächst nach dem Ableiten des Permeats das verbleibende Gasgemisch im Wärmetauscher 18 eines nachfolgenden Gehäusemoduls 4 auf die gewünschte Prozesstemperatur gebracht und dann das restliche Prozessgas in einem Gehäusemodul 3 in ein Permeat und ein Retentat umgesetzt wird, bevor das Permeat in einem abschließenden Gehäusemodul 2 aus dem Gasgemisch abgeleitet wird.

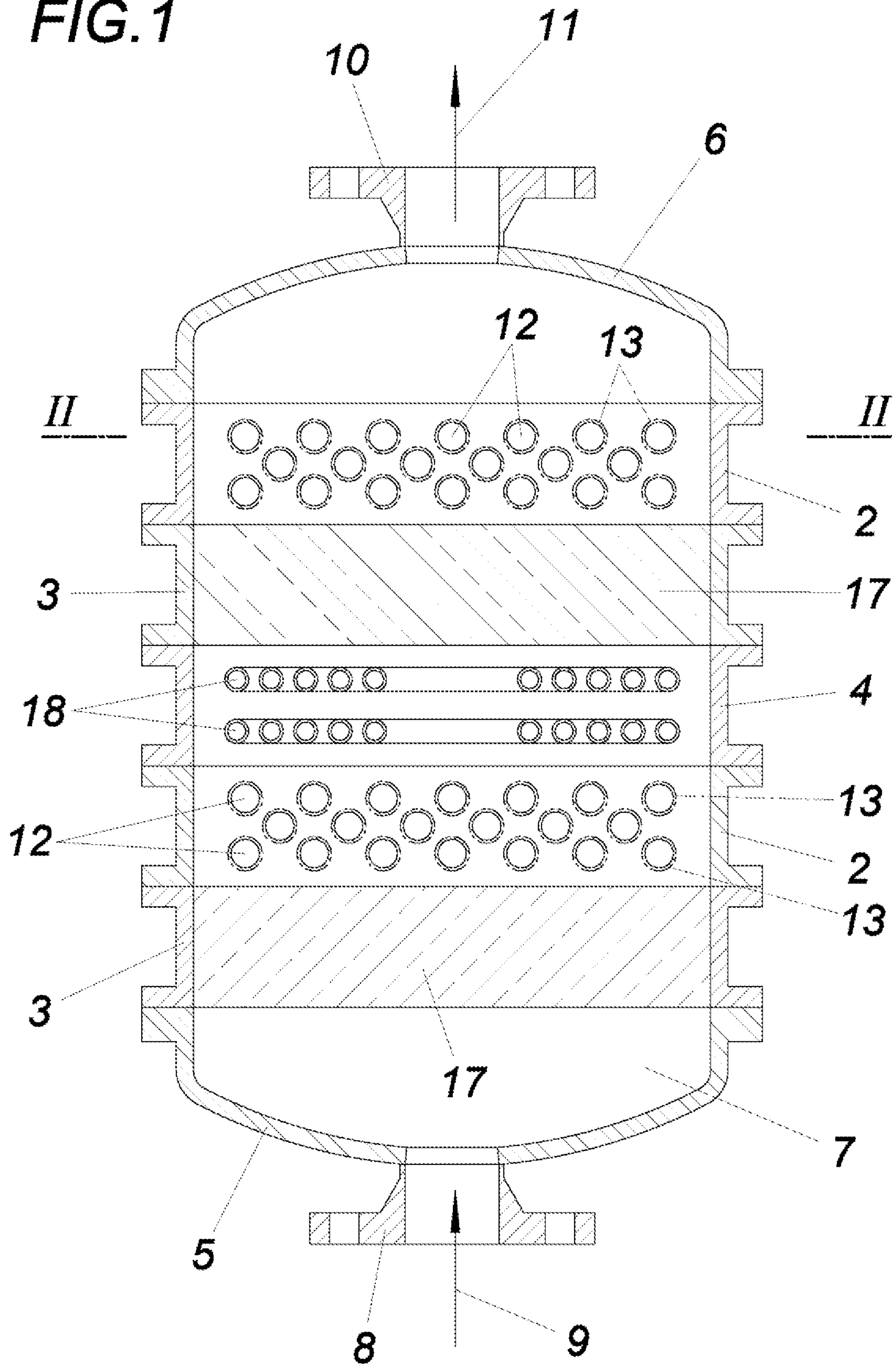
**[0021]** Es zeigt sich somit, dass durch den modulartigen Aufbau der Membranreaktor in optimaler Art an unterschiedliche Anforderungen der Umwandlungs- und Abscheidevorgänge angepasst werden kann, weil die Anordnung und Eigenschaften von Katalysatoren, Wärmetauschern und Membranen beliebig verändert werden und auf die jeweilige Reaktion sowie auf anfangs unbekannte Randbedingungen und Komponenteneigenschaften abgestimmt werden können, sodass sämtliche Gehäusemodule in einem optimalen Bereich der für die Umwandlung maßgebenden Parameter arbeiten können.

## Patentansprüche

1. Membranreaktor mit einem ein Gehäuse (1) durchsetzenden, einen Katalysator (17) aufnehmenden Strömungskanal (7) für ein Prozessgas (9) und mit einem Strömungsweg für ein Permeat (15), der vom Strömungskanal (7) für das Prozessgas (9) durch eine für das Permeat (15) durchlässige Membran (13) getrennt ist, **dadurch gekennzeichnet**, dass das Gehäuse (1) aus einzelnen Gehäusemodulen (2, 3, 4) zusammengesetzt ist, die den von Gehäusemodul (2, 3, 4) zu Gehäusemodul (2, 3, 4) durchgehenden Strömungskanal (7) für das Prozessgas (9) bilden und an eine Sammelleitung (14) für das Permeat (15) angeschlossene, quer zum Strömungskanal (7) ausgerichtete Hohlkörper (12) als Träger für die Membran (13) aufweisen.
2. Membranreaktor nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Gehäusemodule (2, 3, 4) Gehäuseringe bilden, die zwischen zwei einerseits mit einem Zulauf (8) für das Prozessgas (9) und andererseits mit einem Ablauf (10) für das Retentat (11) versehenen Endkappen (5, 6) zusammengeflanscht sind.
3. Membranreaktor nach Anspruch 1 oder 2, **dadurch gekennzeichnet**, dass der Katalysator (17) und die mit der Membran (13) versehenen Hohlkörper (12) in gesonderten Gehäusemodulen (2, 3) vorgesehen sind.
4. Membranreaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 3, **dadurch gekennzeichnet**, dass die die Membran (13) tragenden Hohlkörper (12) Rohre bilden, die in außen an den Gehäusemodulen (2) vorgesehene, an die Sammelleitung (14) angeschlossene Sammelräume (16) münden.
5. Membranreaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 4, **dadurch gekennzeichnet**, dass zumindest ein Gehäusemodul (4) einen Wärmetauscher (18) aufweist.

**Hierzu 3 Blatt Zeichnungen**

**FIG. 1**



**FIG.2**

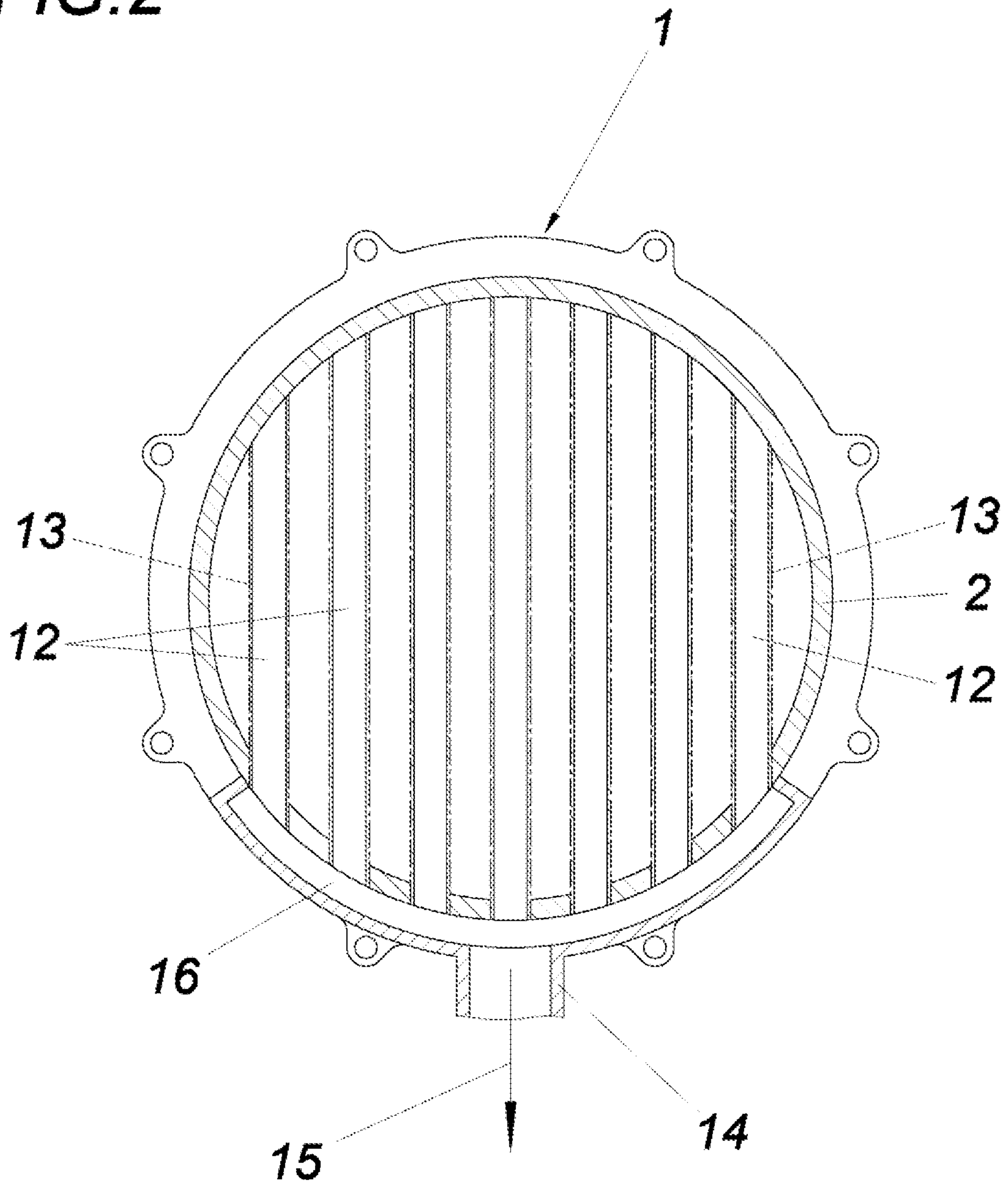


FIG.3

