

## **0. Zusammenfassung**

Integrierte Reaktions- und Trennoperationen stellen eine interessante Alternative zur sequentiellen Anordnung von konventionellen Reaktionen und Trennschritten dar. Diese Klasse von Reaktoren kennzeichnet sich maßgeblich durch die Möglichkeit, Betriebs- und Investitionskosten chemischer Anlagen durch gezielte Ausbeute- und Selektivitätslenkung mittels der Kopplung von Reaktion und Trennung einzusparen. Allerdings geht mit der Integration mehrerer Grundoperationen ineinander eine Reduktion der Anzahl frei veränderbarer Betriebsparameter einher. Daher sind die Auswahl und der Entwurf multifunktionaler Reaktions- und Trennoperationen eine anspruchsvolle Aufgabenstellung.

Diese Arbeit untersucht integrierte Reaktions- und Trennapparate. An Hand realer Reaktionssysteme wird die Problematik der Auswahl eines geeigneten Reaktortyps verdeutlicht. Der Schwerpunkt der Arbeiten liegt auf der systematischen Betrachtung kombinierter Reaktoren unter Berücksichtigung von Nebenreaktionen, wobei verschiedene reaktionstechnische Parameter variiert werden, die Einfluss auf die Größen Umsatz, Ausbeute und Selektivität besitzen. Aus den Simulationsergebnissen werden mehr als 100 heuristische Regeln abgeleitet, die in einer systematischen Prozesssynthesestrategie zusammengefasst sind.

Die entwickelte Strategie bildet kein eigenständiges Synthesekonzept. Vielmehr stellt sie einen weiteren Ast im Rahmen des allgemeinen Prozesssynthetevorgehens dar. Sie bietet den Vorteil, auf der Basis leicht zugänglicher reaktionstechnischer und thermodynamischer Daten in einer frühen Projektierungsphase zu einer fundierten Auswahl integrierter Reaktoren zu führen. Die Grundlage zur Auswahl bilden die Leistungskennzahlen Umsatz, Ausbeute, Selektivität und Raum-Zeit-Ausbeute.

Die Methodik zur Prozesssynthese gliedert sich in drei Schritte:

1. Basierend auf der Problemstellung wird eine Zielgröße ermittelt, die die Reaktorleistung charakterisiert. Unter Verwendung der Regeln der konventionellen Reaktionstechnik werden Konzentrations- sowie Temperatur- und Druckprofile erarbeitet, die die Steigerung der Zielgröße unterstützen.

2. Ausgehend von den Hinweisen, die dem ersten Syntheseschritt entstammen, wird eine geeignete Verteilung der Reaktionsteilnehmer auf die verschiedenen reaktiven und nicht-reaktiven Phasen des kombinierten Reaktors festgelegt. An Hand dieser werden anschließend physikalische Trennoperationen ermittelt, die die geforderte Verteilung der Komponenten auf die Phasen realisieren können.  
Eine Überlagerung des Betriebsfensters der Trennung mit dem Betriebsfenster der chemischen Umsetzung sondiert, welche der ermittelten Trennoperationen mit der Reaktion gekoppelt werden können.
3. Ein dritter Schritt stellt die integrierten Verfahren, die als tauglich eingestuft werden, vergleichend gegenüber. Es wird sichergestellt, dass Prozesse, die bereits in dieser Phase der Auswahl als unwirtschaftlich erkannt werden, nicht in die Phase des konzeptionellen Entwurfes übernommen werden. Für verbleibende Verfahren wird eine Stromführung ausgewählt. Es folgt der Entwurf, die Simulation sowie die numerische Optimierung der verbleibenden Prozesse.

Auf diese Weise ergeben sich Fließbilder integrierter Prozesse, die mit den Gesamtverfahrensfließbildern konventioneller Verfahren verglichen werden können.

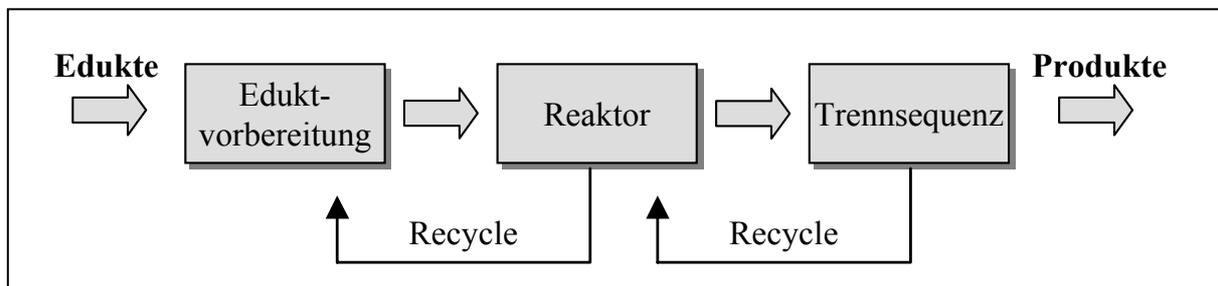
Im Folgenden stellt ein Ausblick den Kenntnisstand bezüglich der Wahl eines geeigneten Integrationsgrades und der Verteilung verschiedener funktioneller Abschnitte in integrierten Apparaten dar.

Abschließend wird die Leistungsfähigkeit der erarbeiteten Prozesssynthesemethodik mittels dreier Beispielreaktionen demonstriert. Es wird gezeigt, dass die Strategie detailliert und individuell auf Änderungen der Zielanforderung sowie Modifikationen der Eigenschaften des untersuchten Reaktionssystems reagiert.

# 1. Einleitung

## 1.1 Einordnung integrierter Reaktions-Trennoperationen

Chemische Verfahren gliedern sich allgemein in drei Teilabschnitte. Das Herzstück des Prozesses bildet der Reaktor, in dem die Umsetzung der Edukte in die Produkte stattfindet. Eine vorgeschaltete Eduktvorbereitung stellt die Einsatzstoffe im erforderlichen chemischen, physikalischen und thermodynamischen Zustand zur Verfügung. Eine nachgeschaltete Trennsequenz sorgt für die Aufreinigung der Reaktionsprodukte und die Rückgewinnung nicht umgesetzter Wertstoffe. Abbildung 1.1-1 zeigt die schematische Darstellung eines konventionellen Verfahrens, dessen Reaktions- und Trennstufen sequentiell angeordnet sind.

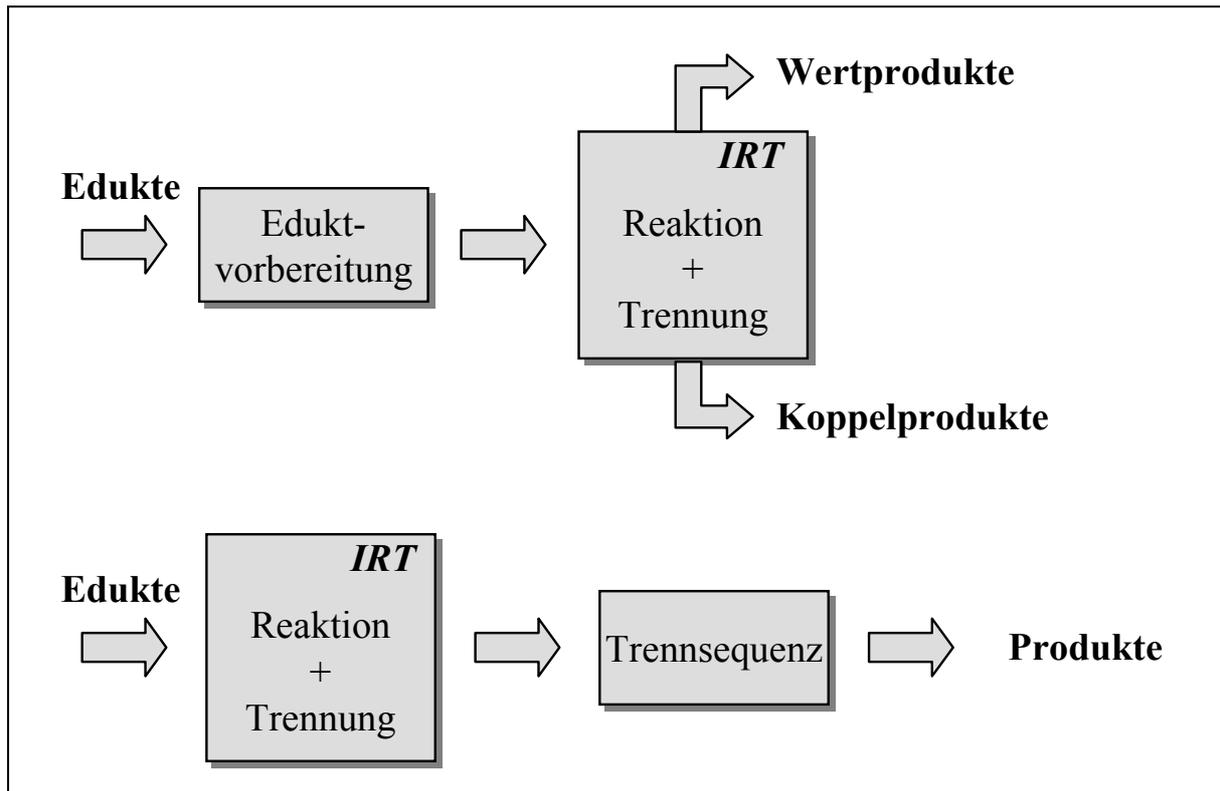


**Abbildung 1.1-1:** Schematische Darstellung eines chemischen Gesamtverfahrens

Integrierte Reaktions- und Trenneinheiten (IRT-Einheiten) kombinieren die chemische Umsetzung mit einer weiteren mechanischen oder thermischen Grundoperation in einer einzigen apparativen Einheit. Die Abbildung 1.1-2 zeigt schematisch zwei Beispiele für Verschaltungen von IRT-Einheiten.

Ziel integrierter Reaktions-Trenn-Technologie ist es, durch die Kombination der Verfahrensschritte „Trennung“ und „Reaktion“ einen Synergieeffekt zu erzielen. Im Mittelpunkt steht hierbei die Senkung der Investitions- und Betriebskosten eines Prozesses. IRT-Einheiten bieten eine große Anzahl verschiedener Einsparungspotentiale:

- effizientere Ausnutzung der Edukte durch Steigerung von Selektivität und Ausbeute einer wertproduktbildenden Reaktion
- Verminderung von Kreislaufstrommengen durch Umsatzsteigerung der Edukte
- Einsparung apparativer Einheiten in der Aufarbeitungssequenz
- Verzicht auf Separationsschritte in der Eduktvorbereitung/-reinigung
- direkte Energieintegration durch Nutzung von Reaktionswärme zur Trennung des Reaktionsgemische



**Abbildung 1.1-2:** Schematische Darstellung einer Gesamtanlage unter Verwendung integrierter Reaktions- und Trennoperationen

Jedoch birgt die Kopplung zweier Grundoperationen einen Nachteil. Der Versuch, mehrere Verfahrensschritte simultan zu führen, erhöht die Anzahl der Randbedingungen, die an den Prozess und die Anlage gestellt werden. Die Anzahl der Freiheitsgrade, die zur Auslegung und zum Betrieb eines integrierten Prozesses zur Verfügung stehen, reduziert sich. Als Folge erhöht sich der Designaufwand für IRT-Einheiten auf Grund der größeren Komplexität des kombinierten Verfahrens im Vergleich zur sequentiellen Verschaltung von Reaktion und Trennung.

Das große wirtschaftliche Potential integrierter Reaktions- und Trennoperationen hat diese Klasse von Reaktoren in jüngster Vergangenheit zunehmend in den Mittelpunkt des wissenschaftlichen Interesses gerückt. Publikationen und Patente, die IRT-Prozesse betreffen, bilden einen beachtlichen Teil aktuell erscheinender Veröffentlichungen [Dohe01]. Das Hauptaugenmerk richtet sich dabei auf die Reaktivrektifikation. Sie stellt z. Zt. das technisch bedeutsamste integrierte Reaktorkonzept dar.

Der Schwerpunkt der Publikationen liegt auf der Betrachtung ausgewählter Prozesse und Reaktionssysteme, welche detailliert modelliert und optimiert werden. Die untersuchten Reaktionen beschränken sich hierbei oftmals auf eine Hauptreaktion. Nur wenige Literaturstellen beschäftigen sich mit komplexeren Reaktionssystemen (z. B. [Ciri94], [Schi96], [Kawa01], [Stic98]). Bei den auftretenden Nebenreaktionen handelt es sich fast ausschließlich um Folge-

und Parallel-Folgereaktionen, da bei diesen die Selektivität und die Ausbeute zur Hauptreaktion gezielt durch die Abfuhr eines Produktes beeinflusst werden können.

Eine systematische Vorgehensweise zur Auswahl und zum Vergleich kombinierter Prozesse ist in der Literatur nicht vorhanden. Daher gestaltet sich die Einbindung integrierter Reaktoren in den großtechnischen Alltag schwierig. Zudem sind persönliche Erfahrungen der planenden Ingenieure bezüglich kombinierter Prozesse oftmals nur begrenzt vorhanden, da kombinierte Verfahren trotz ihres wirtschaftlichen Potentials oft übersehen und selten eingesetzt werden.

Die vorliegende Arbeit soll einen Beitrag leisten, um die ökonomischen Möglichkeiten der Kombination zweier Grundoperationen industriell auszuschöpfen.

## ***1.2 Zielsetzung***

Um integrierte Reaktions- und Trennoperationen technisch nutzbar zu machen, ist eine Strategie zu entwickeln, die es ermöglicht, IRT-Verfahren bereits in einem frühen Stadium der Prozesssynthese zu berücksichtigen. Aus den wenigen reaktionstechnischen und thermodynamischen Daten, die zu Beginn der Prozessentwicklung verfügbar sind, sollen sukzessive thermodynamisch mögliche Reaktions- und Trennoperationen identifiziert und unter wirtschaftlichen Gesichtspunkten bewertet werden. Dies soll sowohl den Vergleich unterschiedlicher Reaktions-Trennverfahren als auch den Vergleich mit herkömmlichen Verfahren, deren Reaktor ausschließlich die Reaktion beherbergt (sog. konventionelle Reaktoren), beinhalten.

Die Grundlage der Vergleichbarkeit verschiedener Verfahren bilden die Investitions- und Betriebskosten der Gesamtanlage inklusive benötigter Trennstufen. Die Prozesssynthesemethodik soll deshalb zusätzlich Hilfestellungen geben, die es erleichtern, ein als vorteilhaft identifiziertes Verfahren konzeptionell zu entwerfen und numerisch zu simulieren.

Erweiternd zur Literatur sollen neben den Zielgrößen Umsatz- und Ausbeutesteigerung durch Abführung eines Reaktionsproduktes (betrifft Folge- und Parallel-Folgereaktionen) weitere Zielgrößen berücksichtigt werden:

- Ausbeute- und Selektivitätssteigerung der Hauptreaktion durch Beeinflussung der Eduktkonzentration in der Reaktionsphase bei Auftreten von Parallel- oder Parallel-Folgereaktionen
- Steigerung der Raum-Zeit-Ausbeute.

Basierend darauf soll im Rahmen dieser Arbeit eine systematische Vorgehensweise zur Prozesssynthese integrierter Reaktions- und Trennoperationen entwickelt werden. Ausgehend von den Zielgrößen Umsatz, Ausbeute, Selektivität oder Raum-Zeit-Ausbeute sollen mögliche