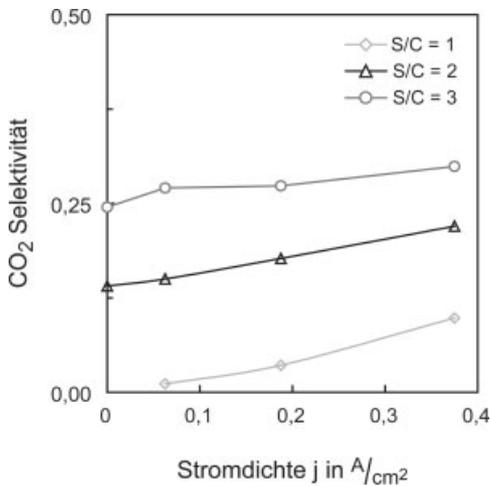


Die Untersuchungen haben gezeigt, dass die Reformierung des Methans an der Anode trotz kurzer Verweilzeiten praktisch vollständig in der ersten Hälfte stattfindet. Dies ist vermutlich auf den hohen Nickelanteil an der Elektrode zurückzuführen.

Wie in der Abbildung zu erkennen, wird für höhere S/C-Verhältnisse aufgrund der Wassergas-Shift Reaktion eine höhere CO<sub>2</sub>-Selektivität erreicht. Da unter Last wegen der elektrochemischen Umsetzung an der Anode zusätzlich Wasser gebildet wird, steigt die CO<sub>2</sub>-Selektivität auch mit der Stromdichte an. Ein Einfluss der elektrischen Last auf die Methanumsetzung konnte nicht festgestellt werden.

Abbildung.  
CO<sub>2</sub>-Selektivität in Abhängigkeit der Stromstärke für eine Ni/CGO-Anode bei verschiedenen S/C-Verhältnissen, T = 950 °C und w<sub>0</sub> = 1,31 m/s.



Es konnte anhand der U/I-Kennlinien gezeigt werden, dass sich beide Anodenmaterialien elektrochemisch gleich verhalten. Dagegen konnte, insbesondere bei T = 800 °C, ein deutlicher Unterschied in der katalytischen Aktivität der beiden Anodenmaterialien festgestellt werden.

## B-12

### Wasserstoffherstellung aus Kohlenwasserstoffen durch Hochtemperaturkatalyse

Dipl.-Chem. R. Schwiedernoch<sup>1)</sup>

Prof. Dr. O. Deutschmann\*<sup>1)</sup>

E-Mail: deutschmann@ict.uni-karlsruhe.de

Prof. Dr. L. D. Schmidt<sup>2)</sup>

<sup>1)</sup> Institut für Technische Chemie und Polymerchemie, Universität Karlsruhe (TH), D-76131 Karlsruhe;

<sup>2)</sup> Department of Chemical Engineering and Materials Science, University of Minnesota, 151 AmundH, 0531 Minneapolis Campus.

Die stark vorangetriebene Erforschung und Entwicklung kompakter Reaktoren zur katalytischen Reformierung von Kohlenwasserstoffen zur Bereitstellung von Wasserstoff ist vielfach motiviert:

- Durch Reformierung von Diesel produzierter Wasserstoff kann in Brennstoffzellen (PEM-FC) eingesetzt werden;
- während der Kaltstartphase dem Verbrennungsmotor zugeführter Wasserstoff führt zu einer drastischen Verringerung der Schadstoffbildung;
- die mit Magermischmotoren unvermeidbaren Stickoxidemissionen lassen sich mittels Wasserstoff-SCR-Abgaskatalysatoren reduzieren;
- für stationär betriebene PEM-FC mit Erdgas als Energieträger muss dieses zunächst in Wasserstoff konvertiert werden.

Kürzlich konnte gezeigt werden, dass die Partialoxidation von Alkanen über Edelmetallkatalysatoren bei Verweilzeiten von wenigen Millisekunden nicht nur zur Konversion von Erdgas zu Synthesegas bzw. Wasserstoff sowie zur Oxidhydrierung von Paraffinen zu Olefinen verwendet werden kann, sondern auch zur Reformierung von Ethanol und Diesel [1]. Zur Wasserstoff-Erzeugung werden dabei die Kohlenwasserstoff/Sauerstoff(Luft)-Gemische über mit Edelmetall (Pt, Rh) beschichteten Monolithen oder Pellets sowie über Pt/Rh-Drahtnetze geleitet. Die Anwesenheit von Sauerstoff führt zur Totaloxidation eines geringen Teils der Kohlenwasserstoffe, was zu einer autothermen Betriebsweise bei einer Katalysatortemperatur von ca. 1000 °C genutzt werden kann. Eine zweite Reaktionsstufe (Rh, Ni) führt zur Erhöhung des Wasserstoff/CO-Verhältnisses. Umsätze und Selektivität bei dieser Hochtemperaturkatalyse lassen sich nur durch die Wechselwirkungen von Transportprozessen mit den heterogenen und homogenen Reaktionen verstehen; insbesondere bei höheren Alkanen wird ein beträchtlicher Teil der Kohlenwasserstoffe in der Gasphase umgesetzt [2].

Im Mittelpunkt der Forschung stehen bezüglich der Wasserstoffbildung aus flüssigen Kohlenwasserstoffen die Verbesserung des Wasserstoff/CO-Verhältnisses, die Unterdrückung der Verkokung der Katalysatoren, Sicherheitsaspekte sowie das schnelle An- und Abschalten des Reaktors und sein Betrieb unter zeitlich variierendem Wasserstoff-Bedarf.

Das Zusammenspiel von Experiment und numerischer Simulation der Reaktoren unter Verwendung detaillierter, auf dem molekularen Geschehen aufbauender Modelle führt zu einem besseren und schließlich quantitativen Verständnis der Hochtemperaturkatalyse und zur Verfahrensoptimierung [3]. Der aktuelle Forschungsstand wird vorgestellt und kritisch diskutiert.

[1] G. A. Deluga, J. R. Salge, L. Schmidt, X. E. Verykios, *Science* **2004**, *303*, 993.

[2] R. P. O'Connor, L. D. Schmidt, O. Deutschmann, *AIChE J.* **2002**, *48*, 1241.

[3] R. Schwiedernoch, S. Tischer, C. Correa, O. Deutschmann, *Chem. Eng. Sci.* **2003**, *58*, 633.