

in den letzten Jahren gelungen, neuere Erkenntnisse zum Cu/ZnO-System zu gewinnen [2]. Die Durchführung von detaillierten Kinetikstudien unter stationärer und instationärer Reaktionsführung sowie der Einsatz physikalisch-chemischer Charakterisierungsmethoden (u. a. Sorptionsmethoden, XRD, IR, EXAFS) eröffneten in Zusammenarbeit mit der präparativen Anorganischen Chemie neue Synthesewege zu effizienten Methanolsynthese-Katalysatoren und führten zu einem tieferen Verständnis der Funktionsweise des Katalysatorsystem unter prozessnahen Reaktionsbedingungen.

[1] P. L. Hansen, J. B. Wagner, S. Helveg, J. R. Rostrup-Nielsen, B. S. Clausen, H. Topsøe, *Science* **2002**, 295, 2053.

[2] <http://www.sfb558.de>

## D.07

### Isomerisierung von überkritischem n-Butan an Extrudaten und Tabletten aus sulfatiertem Zirkoniumdioxid mit Übergangsmetall-Promotoren

Prof. Dr. B. Kraushaar-Czarnetzki\*

E-Mail: Bettina.Kraushaar@ciw.uni-karlsruhe.de

Dipl.-Ing. P. D'Jesus

Dipl.-Ing. B. Zerrer

Institut für Chemische Verfahrenstechnik CVT, Universität Karlsruhe, Kaiserstraße 12, D-76131 Karlsruhe.

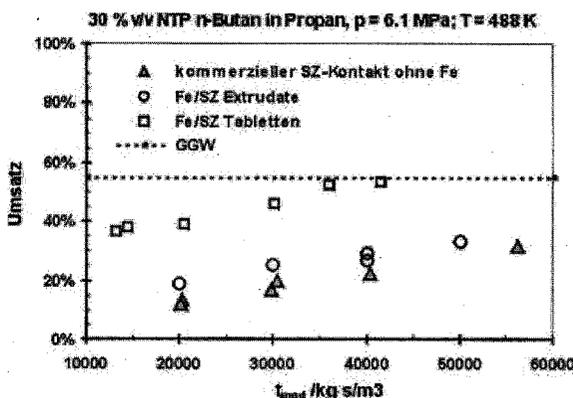
Die überkritische Reaktionsführung bietet eine Möglichkeit zur Prozessintensivierung. Bei der Isomerisierung von Butan beispielsweise wird durch die überkritische Reaktionsführung die Verkokung des Kontaktes (sulfatiertes Zirkoniumdioxid, kurz: SZ) verhindert und die Produktionskapazität für Isobutan im Vergleich zur Gasphasenreaktion vervielfacht. In unseren bisherigen Studien wurden jedoch kommerzielle SZ-Kontakte verwendet, die für diese Anwendung noch nicht optimiert waren. Sie zeigten kinetische Inhibierung bei hohen C<sub>4</sub>-Konzentrationen und Porendiffusionslimitierung bei niedrigen C<sub>4</sub>-Konzentrationen bzw. erhöhter intrinsischer Aktivität.

Unser Ziel ist es, Katalysatoren auf der Basis von SZ zu formulieren, die für die Anwendung bei überkritischen Bedingungen bessere Aktivitäten und Stofftransporteigenschaften aufweisen. Aus der Literatur ist bekannt, dass zumindest in der Gasphasenreaktion die Aktivität durch Dotierung mit Übergangsmetallen gesteigert werden kann. Die Transporteigenschaften der Kontakte hängen von ihrer Form, Größe und Porentextur ab und lassen sich bei der Formgebung variieren. Die Formulierung der Kontakte erfolgte einerseits durch Imprägnierung (incipient wetness method) fertiger SZ-Extrudate mit Fe-Lösungen. Weiterhin wurde pulverförmiges sulfatiertes Zr(OH)<sub>4</sub> mit Promotoren beladen und erst nachfolgend durch Extrusion oder Tablet-

terierung zu Kontakten unterschiedlichen Gehalts an aktiver Komponente verarbeitet. Für die katalytischen Experimente bei überkritischen Bedingungen wurde eine kontinuierlich durchströmte Anlage mit Festbett-Rohrreaktor eingesetzt.

Im Vergleich zu den nicht promotierten SZ-Kontakten sind die mit Eisen dotierten Katalysatoren deutlich aktiver und auch selektiver für die Bildung von Isobutan. Bislang wurden gute Ergebnisse erzielt, wenn Eisen als Promotor in geringen Mengen verwendet und bereits vor der Formgebung dem sulfatierten Zr(OH)<sub>4</sub> zugesetzt wurde. Beste Resultate wurden erhalten, wenn sulfatiertes Zr(OH)<sub>4</sub> mit nur 1,0 % (m/m) Fe beladen und zu Tabletten verarbeitet wurde. Bei höheren Verweilzeiten war es mit diesen sogar möglich, den Gleichgewichtsumsatz (GGW) zu erreichen (s. Abb.). Diese Ergebnisse und die Einflüsse der Transporteigenschaften werden diskutiert, um Möglichkeiten zur weiteren Verbesserung der Kontakte und somit zur Erweiterung des Betriebsbereiches bei überkritischen Bedingungen aufzuzeigen.

Abbildung. Umsatz als Funktion der modifizierten Verweilzeit: Extrudate und Tabletten.



## D.08

### Katalysierte Simultanumsetzung von Ruß und Stickstoffoxiden zu Stickstoff und Kohlendioxid im Abgas von Diesel-Motoren

Dr. S. Kureti\*<sup>1)</sup>

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

Dipl.-Ing. S. Nobst

Prof. Dr.-Ing. H. Bockhorn

<sup>1)</sup> Kaiserstraße 12, D-76131 Karlsruhe.

Laboruntersuchungen haben gezeigt, dass die katalysierte Simultanumsetzung von Rußpartikeln und Stickstoffoxiden eine mögliche Alternative zu den bekannten Verfahren zur Entfernung der beiden Schadstoffe aus dem Abgas von Diesel-Motoren sein kann. Der Ruß soll dabei mit NO<sub>x</sub> an einem Katalysator/Rußfilter-System unter Bildung von