

Zur Prozessgestaltung von Enzymkatalysen mit reaktionsintegrierter Adsorption

Von der Fakultät für Maschinenbau

der Technischen Universität Carolo-Wilhelmina zu Braunschweig

zur Erlangung der Würde
eines Doktor-Ingenieurs (Dr.-Ing.)
genehmigte Dissertation

von: Dipl.-Biotechnol. Thomas Waluga

aus: Hamburg

eingereicht am: 17.05.2013

mündliche Prüfung am: 06.09.2013

Referenten: Herr Prof. Dr.-Ing. S. Scholl

Herr Prof. Dr. H-J. Jördening

Vorsitzender: Herr Prof. Dr. R. Krull

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis	i
Zusammenfassung	iii
Abstract	iv
Symbol- und Abkürzungsverzeichnis	v
1. Motivation	1
2. Stand des Wissens	4
2.1 Modellreaktionen, Plattformtechnologien und Gestaltungsregeln	4
2.2 Darstellung von Laminaribiose	6
2.3 Immobilisierung von Biokatalysatoren	8
2.3.1 Diffusionslimitierung und Diffusion in Gelen.....	11
2.3.2 Mechanische Festigkeit von Immobilisaten	17
2.4 Stofftrennung mittels Adsorption und Desorption	19
2.4.1 Adsorptionsmodelle.....	20
2.4.2 Zeolithe als Adsorbens	24
2.4.3 Desorption	27
2.4.4 Ad- und Desorptionskinetik in Zeolithen	29
2.5 Reaktionsintegrierte Produktabtrennung (ISPR).....	31
2.6 Simulation.....	34
3. Materialien und Methoden	37
3.1 Stofftransportmessungen	37
3.2 Bestimmung der mechanischen Eigenschaften der Immobilisate	39
3.3 Charakterisierung der Zeolithe	40
3.3.1 Messung des Zeta-Potentials	40
3.3.2 Makroporenbestimmung mittels Quecksilberintrusion	41
3.3.3 Messung der BET-Oberfläche	42
3.3.4 Partikelgrößenverteilung	42
3.4 Adsorptionsmessungen.....	42
3.5 Waschen und Desorptionsmessungen	44
3.6 Analytik.....	44
3.7 Verwendete Software	45
4. Charakterisierung der Immobilisate	46
4.1 Stofftransport in Chitosanmatrices	46
4.1.1 Stofftransportmessungen in sphärischen Partikeln.....	46

4.1.2	Stofftransportmessungen in Membranen.....	50
4.2	Mechanische Eigenschaften der Immobilisate	59
5.	Bestimmung der Adsorptionscharakteristika von Zeolithen	65
5.1	Partikeleigenschaften der Zeolithe	65
5.1.1	Partikeleigenschaften der Pulverzeolithe.....	66
5.1.2	Partikeleigenschaften der Zeolithextrudate	69
5.2	Screening nach Adsorbentien.....	71
5.3	Einfluss des pH-Wertes auf die Adsorption	74
5.4	Adsorptionsisothermen von BEA50.....	75
5.5	Adsorptionsisothermen von BEA150 Extrudaten	78
5.5.1	Vergleich der Isothermen von BEA150 Extrudat und Pulver	81
5.5.2	Einfluss der Temperatur auf die Adsorption bei BEA150 Extrudaten	83
5.5.3	Adsorptionseenthalpie von BEA150 Extrudaten	85
5.6	Bestimmung der Adsorptionskinetiken	87
6.	Desorption	91
6.1	Bestimmung der Desorptionskinetik	91
6.2	Desorption bei Pulverzeolithen mit langen Desorptionszeiten	94
6.3	Alternative Desorptionsstrategien	95
6.3.1	Mehrstufige Desorption	95
6.3.2	Desorption bei geringeren Temperaturen und Verdrängungsdesorption	96
7.	Simulation des Gesamtprozesses.....	99
7.1	Einfluss der eingesetzten Enzymmenge auf die Ausbeute	101
7.2	Simulation der reaktionsintegrierten Adsorption	105
7.2.1	Einfluss der Verweilzeit der Zeolithe auf die Ausbeute.....	110
7.3	Parametervariation.....	115
7.3.1	Einfluss der Koadsorption auf die Ausbeute	116
7.3.2	Einfluss der Enzymkinetik auf die Ausbeute	118
8.	Zusammenfassung	121
9.	Ausblick.....	123
10.	Literaturverzeichnis.....	124
11.	Anhang.....	135