

# **BMU-Umweltinnovationsprogramm**

## **Abschlussbericht**

### Zum Vorhaben:

Kontinuierliche Produktionsanlage für Dicobaltoctacarbonyl (DiCOC)

KfW-Aktenzeichen: NKa3 – 003328

### Fördernehmer:

Umicore AG & Co KG, Rodenbacher Chaussee 4, 63457 Hanau

### Umweltbereich:

Ressourceneffizienz

### Laufzeit des Vorhabens:

07.11.2018 – 03.02.2022

### Autor/Ansprechpartner:

Dr. Ralf Karch, Umicore AG & Co KG, Rodenbacher Chaussee 4, 63457 Hanau,  
(Tel.: 06181-59-4951)

**Gefördert mit Mitteln des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz,  
nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz**

### Datum der Erstellung:

15.7.2022

### Berichts-Kennblatt

<b>Aktenzeichen UBA:</b>	<b>Projekt-Nr.:</b> 3328
<b>Titel des Vorhabens:</b> Kontinuierliche Produktionsanlage für Dicobaltoctacarbonyl (DiCoC)	
<b>Autor/-en (Name, Vorname):</b> Karch, Dr. Ralf	<b>Vorhabenbeginn:</b> 07.11.2018
	<b>Vorhabenende:</b> 03.02.2022
<b>Zuwendungsempfänger/-in (Name, Anschrift):</b> Umicore AG & Co KG, Rodenbacher Chaussee 4, 63457 Hanau	<b>Veröffentlichungsdatum:</b>
	<b>Seitenzahl:</b> 22
Gefördert mit Mitteln des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz, nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz	
<b>Kurzfassung (max. 1.500 Zeichen):</b> Im Rahmen des vorliegenden Projekts sollte eine Produktionsanlage zur Fertigung von Dicobaltoctacarbonyl, einem zentralen Intermediat für die Herstellung von Elektronikchemikalien, auf Basis eines neu entwickelten Verfahrens errichtet und in Betrieb genommen werden.  Die Anlage wurde zwischen 2018 und 2020 errichtet.  Die Inbetriebnahme der Anlage konnte nicht erfolgreich umgesetzt werden, das Zielprodukt konnte nicht isoliert werden. Eine Fehleranalyse identifizierte eine Reihe verschiedener möglicher Punkte, deren Verifikation und mögliche Korrekturen mit unverhältnismäßig hohem Entwicklungs- und Investitionsaufwand verbunden wären. Auf dieser Basis wurde das Projekt abgebrochen.	
<b>Schlagwörter:</b> Dicobaltoctacarbonyl, Cobalt, Ressourceneffizienz, Halbleiter, Mikroelektronik	
<b>Anzahl der gelieferten Berichte Papierform:</b>  <b>Elektronischer Datenträger:</b> pdf-Datei	<b>Sonstige Medien:</b> <b>Veröffentlichung im Internet geplant auf der Webseite:</b>

## Report Coversheet

<b>Reference-No. German Environment Agency:</b>	<b>Project–No.:</b> 3328
<b>Report Title:</b> Continuous manufacturing unit for Dicobaltoctacarbonyl (DiCoC)	
<b>Author/Authors (Family Name, First Name):</b> Karch, Dr. Ralf	<b>Start of project:</b> 07/11/2018
	<b>End of project:</b> 03/02/2022
<b>Performing Organisation (Name, Address):</b> Umicore AG & Co KG, Rodenbacher Chaussee 4, 63457 Hanau	<b>Publication Date:</b>
	<b>No. of Pages:</b> 22
Funded in the Environmental Innovation Programme of the Federal Ministry for the Environment, Nature Conservation, Nuclear Safety and Consumer Protection	
<b>Summary (max. 1.500 characters):</b> The present project addressed the installation and commissioning of a production unit for Dicobaltoctacarbonyl – a central intermediate for the manufacturing of electronic chemicals – based on a new developed process.  The plant was constructed between 2018 and 2020.  Commissioning of the plant was not successful, the target product could not be isolated. A failure analysis identified a number of different possible factors, the verification and potential correction of which would result in a disproportionate additional development and investment effort. On this basis the project was discontinued.	
<b>Keywords:</b> Dicobaltoctacarbonyl, Cobalt, resource efficiency, semi-conductor, microelectronics,	

## 1. Kurzfassung / Summary

- **Beschreibung/Description**

Der Geschäftsbereich Precious Metals Chemistry der Umicore AG & Co KG ist ein Spezialchemiebereich der Umicore, einer global aktiven Materialtechnologiegruppe, fokussiert auf die Herstellung metallbasierter Chemikalien, Prozesse und Materialien mit starkem Augenmerk auf der Belieferung nachhaltiger Märkte wie Emissionskontrolle, Recycling oder Energiematerialien.

Das vorliegende Projekt stellt die Installation einer Fertigungsanlage für DiCobaltoctacarbonyl dar, ein Intermediat zur Herstellung von Chemikalien für ALD-(Atomic Layer Deposition) und CVD- (Chemical Vapor Deposition) Verfahren, mit deren Hilfe sehr dünne Funktionsschichten in elektronischen Bauteilen, z.B. Logic- oder Memory-Chips, erzeugt werden. Während die adressierten Märkte einen neuen Miniaturisierungsgrad der Chips, verbunden mit geringerem Materialeinsatz, anstreben, sollte durch den Umicore-Beschaffungsprozess eine nachhaltige und ethische Versorgung mit Kobalt sichergestellt werden.

Die Anlage basiert auf einem neu entwickelten und patentgeschützten Verfahren welches gegenüber dem Stand der Technik durch die kontinuierliche Fahrweise eine höhere Sicherheit und eine bedarfsbezogene Skalierbarkeit aufweisen soll.

Das Projekt konnte nur teilweise realisiert werden. Im Zeitraum vom November 2018 bis Juli 2020 wurde die Anlage genehmigt und errichtet. Ab Juli 2020 startete der Testbetrieb in dessen Verlauf festgestellt werden musste, dass das Zielprodukt trotz verschiedener Ansätze nicht hergestellt werden konnte. Eine Analyse möglicher Fehlerquellen resultierte in der Notwendigkeit zusätzlicher aufwändiger Entwicklungsarbeiten und wahrscheinlich nachfolgenden Investitionen ohne sichere Erfolgsprognose. Auf dieser Basis wurde der Abbruch des Projektes durch die Geschäftsleitung beschlossen und der Projektträger KfW entsprechend informiert.

The Business unit Precious Metals Chemistry of Umicore AG & Co KG is a specialty chemicals division of Umicore, a globally active materials and technology group, focusing on metal based chemicals, processes and materials with a strong aspect on sustainable markets like emission control, recycling or energy materials.

The present project encompasses the installation of a production unit for Dicobaltoctacarbonyl, an intermediate for the manufacturing of chemicals for ALD-(Atomic Layer Deposition) and CVD-(Chemical Vapor Deposition) processes, by means of which very thin functional layers in electronic components, e.g. logic- or memory-chips, can be generated. While the addressed markets allow a new level of miniaturization of those chips - combined with a lower use of materials – the sourcing process of Umicore was to secure a sustainable and ethical supply of the required Cobalt.

The plant is based on a newly developed and patented process which, compared with state of the art processes, should show an easier demand-driven scaling and higher safety aspects by implementation of a continuous manufacturing approach.

The project could only be partially realized. Between November 2018 and July 2020 the plant was approved and erected. Starting in 2020 pilot-test were started in course of which it had to be realized, that the target product in spite of different approaches could not be manufactured. A failure analysis identified the need of additional development and likely additional investment needs without a definitive success prognosis. On this basis a termination of the project was decided by management and the funding body KfW was informed.

- **Anwendbarkeit der Technik/Applicability**

Die Produktionsanlage zur Herstellung von Dicobaltoctacarbonyl konnte mit der geplanten Chemie nicht erfolgreich in Betrieb genommen werden. Eine Anwendbarkeit der Technik konnte nicht bewiesen werden.

The production unit for manufacturing of Dicobaltoctacarbonyl could not be commissioned with the intended chemistry. The applicability of the technology thus could not be proven.

- **Wesentliche Vorteile für die Umwelt/Main environmental benefits**

Aufgrund des Projektabbruchs können Vorteile für die Umwelt nicht bewertet werden.

Due to project abortion environmental advantages could not be evaluated.

- **Medienübergreifende Aspekte/Cross-media aspects**

Aufgrund des Projektabbruchs werden medienübergreifende Aspekte nicht betrachtet.

Due to project abortion environmental cross-media aspects were not evaluated.

- **Kostendaten/Economics**

Das Projekt wurde mit ca. 1,2 Mio € aus dem Umweltinnovationsprogramm (UIP) des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz, nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz gefördert, was einem substantziellen Anteil der Gesamtinvestitionssumme darstellt.

Die Gesamtkosten lagen etwas höher, als ursprünglich geplant.

Aufgrund des Projektabbruchs wurde eine ökonomische Betrachtung nicht durchgeführt.

The project was funded with ca. 1.2 M€ from the Environmental Innovation Program of the German Federal Ministry for the Environment, Nature Conservation, Nuclear Safety and Consumer Protection, which corresponds to a substantial part of the overall investment. The overall project cost was slightly higher, than originally planned. Due to project abortion an economic evaluation of the project was not done.

- **Referenzliteratur/Reference Literatur**

- Patente/Patents

- WO18149525, PROCESS FOR THE PRODUCTION OF METAL CARBONYLS, **Umicore AG & Co KG**

## Inhaltsverzeichnis

1.	Einleitung .....	7
1.1.	Kurzbeschreibung des Unternehmens (Geschäftstätigkeit und ggf. der Projektpartner) .....	7
1.2.	Ausgangssituation .....	7
2.	Vorhabensumsetzung .....	10
2.1.	Ziel des Vorhabens .....	10
2.2.	Darstellung der technischen Lösung .....	10
2.3.	Darstellung der Umsetzung des Vorhabens (Darstellung der einzelnen Arbeitsschritte von der Planungsphase bis zur Inbetriebnahme, Darstellung evtl. Hemmnisse) .....	12
2.4.	Behördliche Anforderungen (Genehmigungen) .....	18
2.5.	Erfassung und Aufbereitung der Betriebsdaten .....	18
3.	Ergebnisse .....	18
3.1.	Bewertung der Vorhabendurchführung .....	18
3.2.	Stoff- und Energiebilanz .....	19
3.3.	Umweltbilanz .....	19
3.4.	Konzeption, Durchführung und Ergebnisse des Messprogramms .....	19
3.5.	Wirtschaftlichkeitsanalyse .....	19
3.6.	Technischer Vergleich zu konventionellem Verfahren .....	19
4.	Empfehlungen .....	20
4.1.	Erfahrungen aus der Praxiseinführung .....	20
4.2.	Modellcharakter (Verbreitung und weitere Anwendung des Verfahrens/ Anlage/ Produkt) .....	20
4.3.	Zusammenfassung .....	20
5.	Literatur .....	21
6.	Anhang .....	21

# 1. Einleitung

## 1.1. Kurzbeschreibung des Unternehmens (Geschäftstätigkeit und ggf. der Projektpartner)

Umicore AG & Co KG ist das deutsche Tochterunternehmen der Umicore S.A. mit Sitz in Brüssel/Belgien. Der Gesamtkonzern beschäftigt weltweit ca. 11.000 Mitarbeiter, davon etwa 1700 in Deutschland, bei einem Konzernumsatz von ca. 3,2 Mrd. € ohne Edelmetalle (Zahlen des Geschäftsjahrs 2020).

Umicore ist ein global tätiges Recycling- und Materialtechnologie-Unternehmen. Das Unternehmen erzielt den überwiegenden Teil seiner Umsätze mit umweltfreundlichen Technologien wie Autoabgaskatalysatoren, Materialien für wieder aufladbare Batterien (Lithiumionenakkumulatoren) sowie dem Recycling von Metallen, insbesondere Edelmetallen.

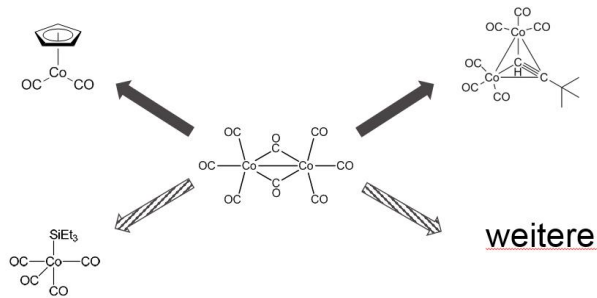
Der Geschäftsbereich Precious Metals Chemistry der Umicore AG & Co KG entwickelt und produziert metallbasierte Spezialchemikalien der Edelmetalle, wie auch einer Vielzahl weiterer Sondermetalle, wie Cobalt, Wolfram, Arsen etc. Die Produkte des Geschäftsbereichs finden Anwendung als homogene Katalysatoren in der chemischen und pharmazeutischen Industrie, als Vorprodukte für die Herstellung heterogener Katalysatoren und galvanischer Bäder, als Präkursoren für die Gasphasenepitaxie in der Halbleiterindustrie, sowie als pharmazeutische Wirkstoffe in der Krebstherapie. Weiterhin entwickelt der Geschäftsbereich Katalysatoren für Brennstoffzellen, die in der nächste Generation der Elektromobilität zum Einsatz gelangen sollen.

## 1.2. Ausgangssituation

Das vorliegende Projekt umfasste die Errichtung einer Produktionsanlage für Dicobaltoctacarbonyl [ $\text{Co}_2(\text{CO})_8$ ; im weiteren Text abgekürzt „DiCoC“] am Standort Hanau der Umicore AG & Co KG, unter Federführung des Geschäftsbereichs Precious Metals Chemistry.

DiCoC ist ein orange-kristalliner, temperaturempfindlicher Feststoff, der sich auch bei Raumtemperatur unter langsamer Freisetzung von Kohlenmonoxid zersetzt. Die Chemikalie dient u.a. als zentrales Intermediat zur Herstellung von Cobalt-haltigen Folgeprodukten. Der von Umicore adressierte Anwendungszweck war die Herstellung von Präkursoren für ALD- und CVD-Prozesse (ALD = atomic layer deposition; CVD = chemical vapour deposition) in der Elektronikindustrie. Hierbei handelt es sich um flüchtige, in den meisten Fällen flüssige, Chemikalien, die im Rahmen von Gasphasenabscheidungsprozessen zur Herstellung nanostrukturierter Schichten in der Mikroelektronikindustrie eingesetzt werden. Die Cobalt-Schichten kommen hierbei in neuen Bauteilen zum Einsatz, die gegenüber dem vorherigen Stand der Technik eine weitere Miniaturisierung, verbunden mit höherer Energieeffizienz, wie auch einen niedrigeren Materialverbrauch, ermöglichen. Repräsentative Folgeprodukte von DiCoC sind in folgender Graphik dargestellt:





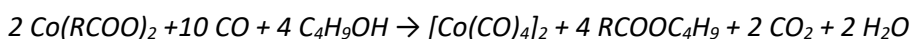
An die Endprodukte und somit auch an das Intermediat DiCoC werden sehr hohe Reinheitsanforderungen gestellt, insbesondere werden metallische Verunreinigungen ausgewählter Metalle im sub-ppm oder gar ppb-Bereich gefordert.

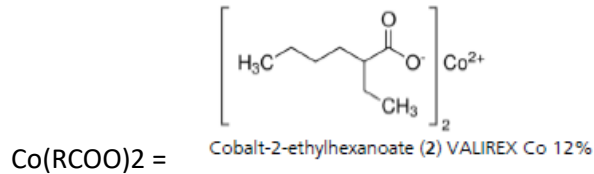
Umicore ist ein etablierter Hersteller von Materialien und Chemikalien verschiedener Sondermetallen, wie beispielsweise den Edelmetallen, Gallium, Indium, Germanium oder Cobalt. Insbesondere der Geschäftsbereich Precious Metals Chemistry weist langjährige Erfahrungen in der Entwicklung und Herstellung metallorganischer Produkte auf. Zum Zeitpunkt des Projektbeginns konnte auch bereits auf eine mehrjährige Erfahrung in der Herstellung verschiedener anderer Präkursoren für den adressierten Zielmarkt im Geschäftsbereich zurückgegriffen werden.

Zum Zeitpunkt der strategischen Entscheidung von Umicore in die Produktion von Co-haltigen Elektronik-Präkursoren einzusteigen war das Vorprodukt DiCoC nur aus nicht-europäischen Quellen, z.B. aus Russland, oder auch - in sehr reduziertem Ausmaß - aus den USA erhältlich. Dabei wies besonders Material aus der russischen Quelle variable, nicht immer zufriedenstellende Qualitäten auf. An der Versorgungssituation hat sich auch zum heutigen Zeitpunkt keine wesentliche Änderung ergeben. Eine weitere Quelle in China ist mittlerweile identifiziert – aus geostrategischer Position ist eine sichere Versorgung aus europäischen und nordamerikanischen Quellen in ausreichender Menge aktuell nicht gegeben.

Die bekannten industriellen Verfahren des Stands der Technik zur Herstellung von DiCoC sind Batch-Prozesse ausgehend i.A. von Cobaltcarboxylaten oder -halogeniden, die bei sehr hohen Kohlenmonoxid-Drücken in Gegenwart eines Reduktionsmittels (i.A. Wasserstoff oder Zn/Al) das Produkt synthetisieren.

Das Verfahren, welches dem vorliegenden Projekt zugrunde liegt, wurde im Vorgang durch Umicore entwickelt und zum Patent angemeldet (WO18149525). Im Wesentlichen wird auf ein spezifisches Cobaltcarboxylat (Valirex Co12) zurückgegriffen, welches in einer anderen Umicore-Einheit in Belgien (Umicore Cobalt Specialty Materials) in großen Mengen hergestellt wird. Im Gegensatz zu den Materialien des industriellen Stands der Technik wird dieses Rohprodukt in flüssiger Form bereitgestellt und kann somit einfach dosiert werden, was es für eine kontinuierliche oder semi-kontinuierliche Fahrweise gut geeignet macht. In Gegenwart von Butanol bei hohen Kohlenmonoxid-Drücken von ca. 200 bar bei einer Temperatur von ca. 200°C wird das Zielprodukt DiCoC hergestellt, wobei das Lösemittel Butanol zugleich auch als Reagenz agiert, wie die Reaktionsgleichung zeigt:





Teile des Reaktionsgemischs befinden sich bei den angegebenen Bedingungen in einem überkritischen Zustand, wodurch eine bessere Homogenität der Mischung vermutet wird. In Batch-Versuchen und auch bei kontinuierlicher Fahrweise im Labormaßstab – Versuche, die bei einem Kooperationspartner [Fraunhofer ICT Pfinztal] durchgeführt wurden, konnte innerhalb weniger Minuten das Zielprodukt erzeugt werden. Die Isolierung erfolgte durch unmittelbar der Umsetzung folgende Entspannung der Reaktionsmischung und Abkühlung der Mischung auf -18°C wodurch DiCoC in kristalliner Form anfiel.

Die Eignung des isolierten DiCoC für die geplante Folgechemie zur Herstellung von ALD-Präkursoren wurde in anschließenden Laborversuchen untersucht und bestätigt.

Im Vergleich zum Stand der Technik wurde in der geplanten Anlage eine kontinuierliche Fahrweise (entsprechend den vorhergehenden Laborversuchen) angestrebt. Die angestrebten Vorteile gegenüber den verschiedenen bestehenden industriellen Verfahren, die eine solche Fahrweise liefern sollte, waren

- eine höhere Raum-Zeit Ausbeute
- ein geringerer Platzbedarf
- eine sicherere Fahrweise durch geringere vorgehaltene Kohlenmonoxid-Mengen im Hochdruckbereich
- eine höhere Produktqualität durch Vermeidung metallischer Reduktionsmittel
- eine flexible Produktmengenausbringung nach Marktbedarf

Insbesondere der letzte Punkt vermeidet es, entweder in vielen Kleinchargen das Produkt zu erzeugen (kostenintensiv), oder aber eine sehr große Batch-Größe zu wählen und somit das Produkt ggf. über längere Zeiträume lagern zu müssen (Zersetzungsgefahr). Zudem sind Hochdruck-Batch-Synthesen dieser Art in größerem Maßstab sowohl vom technischen als auch effizienztechnischem Aspekt unattraktiv.

Darüber hinaus wollte sich Umicore mit der Etablierung einer Anlage in Deutschland von der strategischen Abhängigkeit aus nicht-westlichen Quellen lösen und eine europäische Gegenposition insbesondere zur Versorgung aus Russland etablieren.

Zuletzt spielt ein Nachhaltigkeitsaspekt eine weitere wesentliche Rolle. Während bei Versorgung mit Rohstoffen aus Russland und China nicht in allen Fällen die ethische Rückintegration des Kobalts eindeutig sicherzustellen ist, hat sich Umicore – als erstes Unternehmen weltweit – bei der externen Kobaltbeschaffung nachhaltig und ethisch positioniert und auch extern prüfen und validieren lassen (s. Anlage), eine Tatsache, die neben der intrinsischen Notwendigkeit auch zunehmend von Marktteilnehmern eingefordert wird oder erwartbar gefordert werden wird.

Alle vorgenannten Aspekte und die zugesagte Förderung aus dem UIP haben zur Entscheidung der Installation einer Produktionsanlage von DiCoC auf Basis eines neuen Verfahrens am Standort Hanau beigetragen. Die Markteinführung, die für 2023 erwartet wurde, übte einen hohen Zeitdruck aus, da späte Einqualifizierungen in die supply chain von Herstellern mikroelektronischer Bauteile eine hohe Hürde darstellt.

## 2. Vorhabensumsetzung

### 2.1. Ziel des Vorhabens

Ziel des Projektes war die Errichtung einer Produktionsanlage für DiCoC mit einer Produktionskapazität von min. 5 t/Jahr (bei Volllastung) am Standort Hanau der Umicore AG & Co KG.

### 2.2. Darstellung der technischen Lösung

Das zur Umsetzung geplante Verfahren beruht auf der oben dargestellten Reaktion von Valirex Co 12% mit Butanol in Gegenwart von Kohlenmonoxid bei einer Zieltemperatur von ca. 200°C und einem Druck von ca. 200 bar. Während der Rohstoff Valirex Co 12% durch einen anderen Geschäftsbereich von Umicore bereitgestellt wird, werden die anderen Rohstoffe am freien Markt bezogen. Es handelt sich um Standardchemikalien.

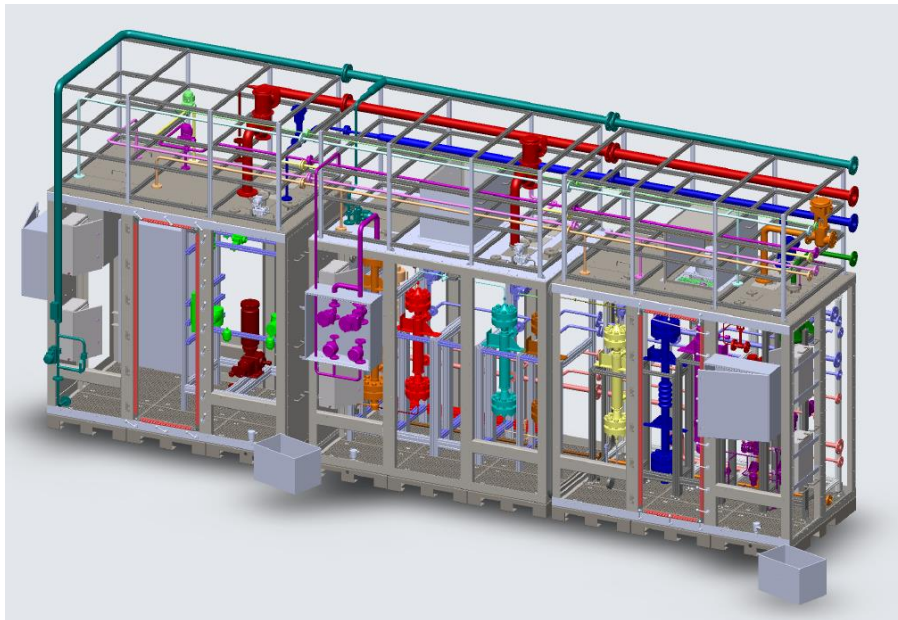
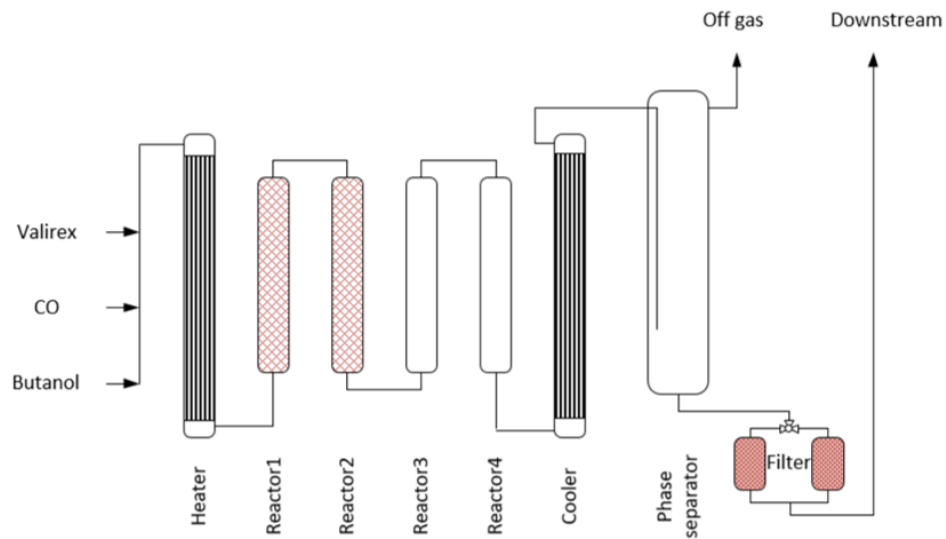
Die Ausführung des Verfahrens sollte kontinuierlich erfolgen, d.h. drei Rohstoffe werden kontinuierlich dem Reaktorsystem zugeführt. Über einen Kompressor wird der Zieldruck des Verfahrens erzeugt. Anschließend werden die Edukte in einem Rohrbündel-Wärmeübertrager auf Reaktionstemperatur gebracht und in vier in Reihe geschalteten Reaktoren zum Zielprodukt umgesetzt. Die Reaktoren selbst stellen prinzipiell einfache Rohrsysteme dar. Hierbei sind die beiden ersten Reaktoren mit Mischaggregaten ausgestattet. Die Aufgabe der ersten beiden Reaktoren ist hierbei die Homogenisierung der Reaktionsmischung, die beiden folgenden Reaktoren dienen der Nachreaktion, d.h. einer Komplettierung der Umsetzung. Die Reaktoren sind vertikal angeordnet und werden im Wechsel von oben/unten mit dem Reaktionsgemisch angesteuert.

Nach erfolgter Umsetzung durchläuft das Produktgemisch einen Kühler, der die Reaktionsmischung auf ca. 50-70°C absenkt.

In einem Phasenseparator wird die Reaktionsmischung in zwei Ströme aufgeteilt. Gasphase (v.a. Kohlenmonoxid) und Flüssigphase, bestehend aus Lösemittel, Produkt und Nebenprodukten separieren sich. Nach dem Phasenseparator wird der gasförmige Abgasstrom ins Abgas entspannt und die flüssige Produktlösung wird in Richtung der Kristallisationseinheiten geführt (d.h. auf Normaldruck abgesenkt). Das Gas wird einer am Standort vorhandenen Abgasnachbehandlungsanlage zugeführt, die Produktmischung wird nach Abtrennung eventuell

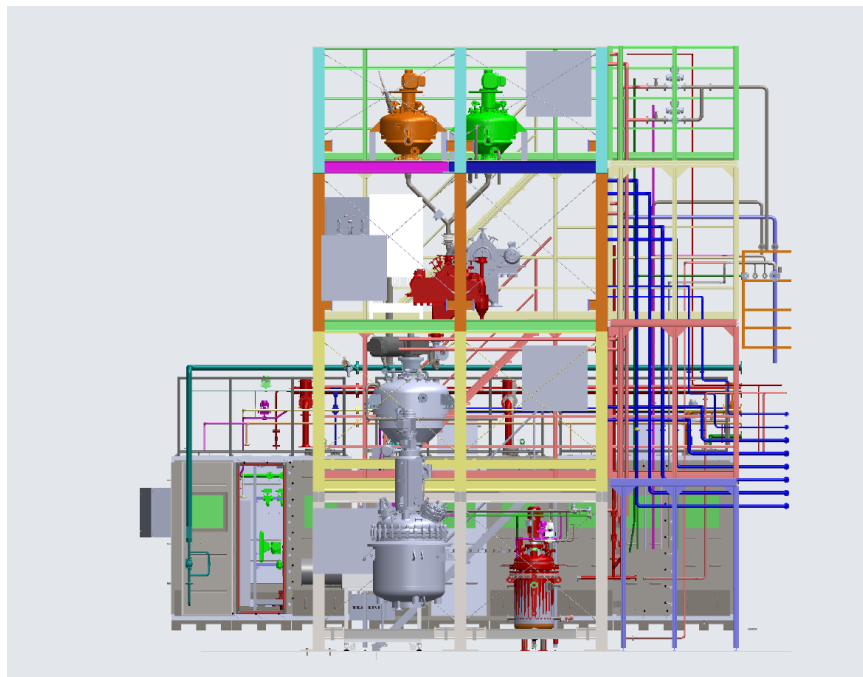
vorhandener fester Nebenkomponenten über ein Filtersystem in den sogenannten Downstream-Teil zur Produktisolierung weitertransportiert.

Siehe anbei eine schematische Darstellung des Reaktionsteils der Anlage, wie auch ein 3D-Schema des Hochdruckteils aus dem Basic Engineering der Anlage:



Im sogenannten Downstream-Teil der Anlage wird die Reaktionsmischung anschließend auf  $-20^{\circ}\text{C}$  in einem Kristaller gekühlt, um DiCoC auszukristallisieren. Das Produkt sollte anschließend durch Zentrifugation isoliert und in der Anlage gespeichert, bzw. der weiteren Verwendung zugeführt werden. Anfallende kobalthaltige Mutterlauge des Separationsschritts sollte potenziell einer künftigen Rückgewinnungsanlage für Kobalthaltige Recyclingmaterialien zugeführt werden. Für letztere Fragestellung ist die technische Machbarkeit positiv beantwortet, allerdings noch nicht final geklärt, ob der logistische und sicherheitstechnische Aufwand diese Rückführung rechtfertigen kann (aufgrund der relativ geringen anfallenden Mengen beim DiCoC-Verfahren).

3D-Schema des Downstreamteils als Ergebnis des Basic Engineerings. Von oben nach unten: Kristaller (orange/grün), Zentrifuge (rot), Zwischenbehälter (grau).



2.3. Darstellung der Umsetzung des Vorhabens (Darstellung der einzelnen Arbeitsschritte von der Planungsphase bis zur Inbetriebnahme, Darstellung evtl. Hemmnisse)

Im Folgenden werden die im Projekt vereinbarten Meilensteine übersichtlich mit ihren jeweils erreichten Abschlussterminen dargestellt. In eckigen Klammern dazu im Vergleich die ursprünglich angenommenen Termine gemäß Projektantrag:

- M0 07.11.2018 [01.01.2018] Projektbeginn - erledigt**  
 Der Projektbeginn erfolgte unmittelbar nach Eingang der Förderzusage mit dem Schreiben von Bundesministerin Fr. Schulze vom 7.11.2018
- M1 14.01.2020 [31.05.2018] Anlage genehmigt, Baustart - erledigt**  
 Der BImSchG-Genehmigungsbescheid wurde am 3.2.2020 übermittelt.
- M2 30.10.2020 [31.08.2018] Aufbau Medienversorgung, Temperierung und Infrastruktur abgeschlossen – erledigt**  
 Abschluss Medienversorgung und Infrastruktur zum 31.8.2020, Abschluss Temperierung zum 30.10.2020
- M3 15.03.2019 [30.11.2018] Behälter und Apparate vollständig geliefert - erledigt**  
 Alle Aggregate waren seit 13.3.2020 vor Ort
- M4 01.07.2020 [30.04.2019] Fertigstellung Anlage, Start Inbetriebnahme - erledigt**  
 Die Inbetriebnahme der Anlage startete Anfang Juli 2020.
- M5 28.2.2022 [31.12.2019] Projektende, Inbetriebnahme/Testbetrieb abgeschlossen – nicht erreicht**

Aufgrund der verspäteten Zusendung des Zuwendungsbescheids ergab sich eine Verschiebung des Projektstarts um 6 Monate gegenüber dem ursprünglichen Zeitplan. Weitere Verzögerungen ergaben sich im Wesentlichen durch Bauarbeiten im Aufstellungsraum der Anlage durch ein parallel in Umsetzung befindliches Investitionsprojekts in eine andere Produktionsanlage, Lieferverzögerungen von Teileinheiten, sowie mehrere kleinere Effekte. Die wesentliche Verzögerung entstand durch die verlängerte Inbetriebnahme der Anlage [M5], die zuletzt auch nicht erfolgreich durchgeführt werden konnte.

Auf Basis der nicht erfolgreichen Inbetriebnahme der Anlage wurde eine Fehleranalyse erstellt, begleitende Versuche zur Untermauerung der identifizierten Schwachstellen durchgeführt, sowie ein erster Projektplan erstellt, der für die Behebung der Probleme als notwendig erachtet wird.

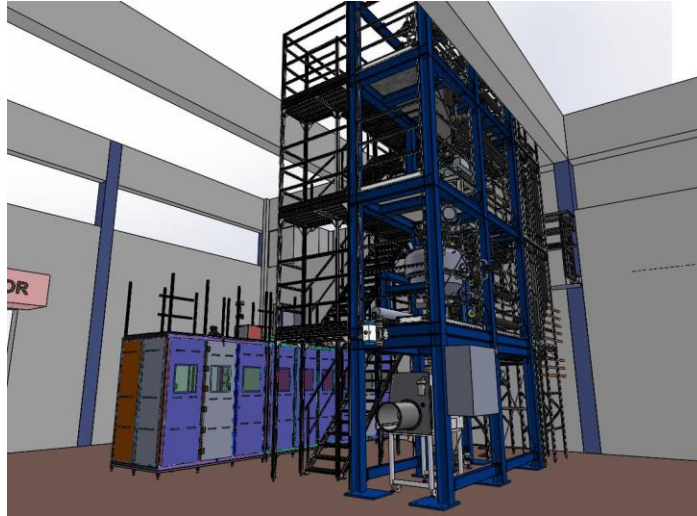
Im Folgenden werden die einzelnen Projektphasen anhand der im Projektantrag definierten Teilprojekte kurz erläutert.

### **Engineering**

Auf des Entwicklungsverfahrens und des zu Projektbeginn vorliegenden Anlagenkonzepts wurde im Rahmen des vorliegenden Projektes ein detaillierter Anlagenplan (Detailed Engineering) durchgeführt. Die Arbeiten umfasste u.a. die genaue Spezifikation aller Anlagenteile, die Rohrleitungsplanung, Medienversorgung und das Messstellenkonzept. Auch eine umfassende Sicherheitsbetrachtung wurde durchgeführt und notwendige Maßnahmen in die Anlagenplanung

mit aufgenommen. Das finale Anlagenkonzept zusammen mit der Verfahrensbeschreibung bildete die Basis für Genehmigung und Bau. Die entsprechenden Arbeiten waren in Q1/2020 abgeschlossen.

Siehe die Teilansicht der Planung der Gesamtanlage laut Detailed Engineering:



### **Baumaßnahmen Anlage/Infrastruktur**

Auslegung und Bau der gesamten Reaktoreinheit (Edukt-Dosierung, Reaktoren, Produktisolierung und Entnahme) wurden, aufgrund der dort vorliegenden Expertise mit Hochdruckanlagen, an einen Unterauftragnehmer (HDT-Mothes/Berlin) vergeben, während Infrastruktur und Medien- sowie Energieschnittstellen durch das Umicore-eigene Engineering bereitgestellt wurden.

Bei der Bereitstellung der Infrastruktur kam es zu leichten Verzögerungen, da im räumlichen Bereich der Zielanlage eine weitere Produktionseinheit zeitgleich in Bau befindlich war, deren Massivarbeiten zunächst abgeschlossen werden musste. Die Erschütterungen während der Massivarbeiten hätten die Arbeiten am vorliegenden Projekt gefährden können. Aus diesem Grund wurde die Anlage zunächst in einem separaten Bereich der Geschäftseinheit vormontiert und anschließend in Modulen an den finale Standort verbracht und endmontiert.

Mit Quartal 3/2020 war die Stromversorgung der Anlage, Medienversorgung (Inertgase, Druckluft, Wasser etc.) wie auch Anschluss an die Abgasbehandlungsanlage des Standorts abgeschlossen.

(s. anbei Bild der finalen Produktionsanlage)





### **Behälter und Apparate**

Wie oben erwähnt wurden die wesentlichen Aggregate der Reaktionseinheit durch den Unterauftragnehmer HDT-Mothes ausgewählt und geordert. Die Anlagenteile der „Down-Stream Einheit“, d.h. Kristaller, Speicherbehälter, Zentrifuge für Produktisolierung wurde durch das Umicore-eigene Engineering ausgelegt und geordert – welches auch die Gesamtprojektbetreuung und Steuerung der externen Gewerke wahrnahm.

Mit Quartal 1/2020 waren alle Aggregate spezifikationsgerecht geliefert. Dies betraf auch die Einzelgewerke Temperierung der Einheiten und Medienversorgung.

### **Inbetriebnahme/Testbetrieb**

Elektrische Funktionstests wurden von Juni – August 2020 durchgeführt und positiv abgeschlossen.

Die prinzipielle Funktionsprüfung der Einzelaggregate und der Gesamtanlage wurde mit nicht-reaktiven Medien (Wasser und Stickstoff) im Probetrieb getestet und nach Behebung kleinerer Mängel im November 2020 beendet. Die Funktionsfähigkeit auch im angestrebten Druck- und Temperaturbereich wurde bestätigt.

Ab Dezember 2020 wurde die Inbetriebnahme der Anlage mit dem Zielverfahren zur Herstellung von DiCoC begonnen. Hierbei wurden Dichtheitsprobleme im Hochdruckbereich (gekapselter Sicherheitsbereich) erkannt. Als Fehler konnten Leckagen des CO-Kompressors, der Kohlenmonoxid auf Betriebsdruck bringt, identifiziert werden. Mitte Januar 2021 waren die Reparaturen der Leckage beendet.

Mit erneutem Start der Inbetriebnahme konnte trotz mehrfacher Versuche und Einhaltung der Zielparameter (Stöchiometrie, Druckbereich, Temperaturen, Durchflussraten) in keinem einzigen Versuch DiCoC isoliert oder auch nur in Spuren in Reaktionsmischungen beobachtet werden. Es konnten allerdings Spuren eines Folgeprodukts von DiCoC nachgewiesen werden, was für ein temporäre Bildung, gefolgt von einer Zersetzung vor Isolierung spricht. Allerdings waren die beobachteten Spuren bei weitem unterhalb der Erwartungsbereiche der Umsetzung.



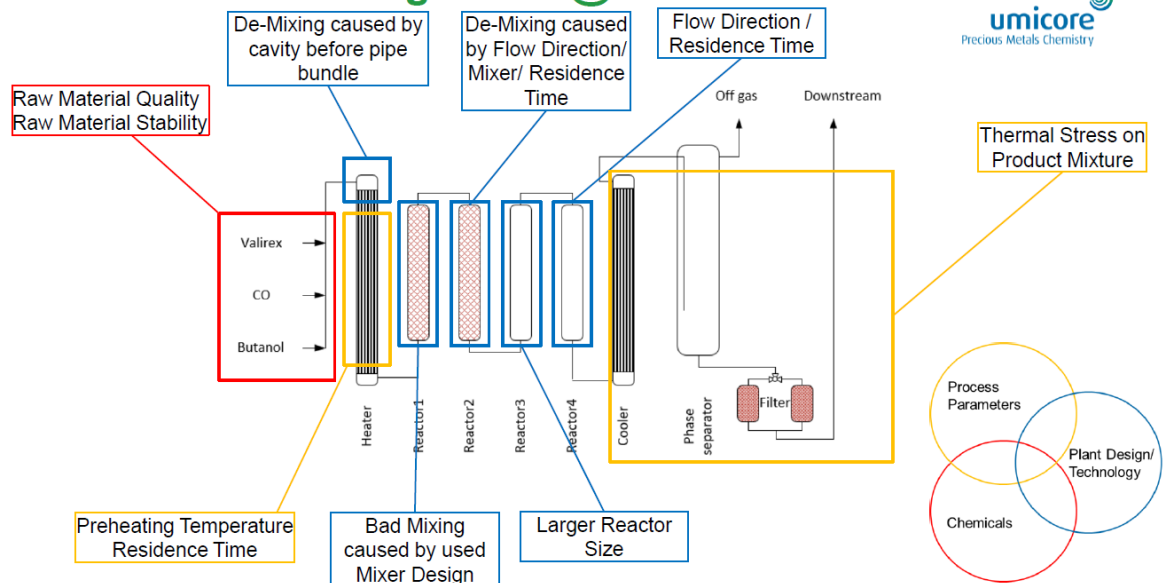
Das Ausbleiben einer erwarteten Wärmeentwicklung im Reaktorbereich – es handelt sich um eine exotherme Reaktion – zusammen mit den zuvor getätigten Beobachtungen legt eine nicht vorhandene oder nur sehr geringe Umsetzung der Reaktionspartner nahe, d.h. die in der Entwicklungsphase beobachtete Reaktion konnte in der Zielanlage nicht realisiert werden.

Noch während der Inbetriebnahme-Versuche wurde mit dem ursprünglichen Entwicklungspartner (Fraunhofer ICT, Pfinztal) der Kontakt gesucht und mögliche unerwartete Effekt durch das Design, bzw. die Betriebsweise der Anlage identifiziert. Dies erfolgte auf Kosten von Umicore außerhalb des Projektbudgets. Insbesondere wurden folgende Punkte als Hauptquellen der beobachteten Problematik angeführt:

- Die Qualität des eingesetzten Kohlenmonoxids
- Unzureichendes Mischungsverhalten in den Reaktoren
- Entmischung der Reaktionsmischung im vorgeschalteten Heizaggregat und/oder in den Reaktoren (Übergang der Strömungsrichtung zwischen den Reaktoren, ggf. Entmischung beim Anströmen der Reaktoren 2 und 4 von oben, fehlende innenliegend Mischer in Reaktoren 3 und 4), verbunden ggf. mit Zersetzung bereits gebildeten Produkts
- Zersetzung des gebildeten Produkts beim Transport der Reaktionsmischung zum Downstream-Bereich über nicht-gekühlte Leitungen ohne CO-Überdruck

s. anbei eine Übersicht möglicher identifizierter Fehlerquellen:

## Root Cause investigations @ ICT



In ersten Voruntersuchungen mit dem Entwicklungspartner, sowie mit Hilfe strömungsdynamischer Berechnungen, die bei der Zentralforschung von Umicore durchgeführt wurden, konnten erste Punkte abgeklärt werden.

Ein negativer Einfluss der eingesetzten Kohlenmonoxid-Qualität wurde beobachtet. Auch Alterung des eingesetzten Cobalt-Vorprodukts Valirex nimmt Einfluss auf die beobachteten Ausbeuten. Allerdings war der Einfluss dieser Parameter nicht in dem Maße wesentlich, dass die Beobachtungen im Rahmen der Inbetriebnahme erklärt werden konnten. Alle Laborversuche führten zur Isolierung von DiCoC, einzig die Ausbeuten wiesen Schwankungen auf. Einsatz erhöhter Kohlenmonoxid-Qualität im Testbetrieb, sowie der Einsatz verschiedener Valirex-Chargen führten entsprechend nicht zur gewünschten Isolierung von DiCoC, d.h. können die beobachtete Problematik nicht alleine erklären.

Die strömungsdynamischen Rechnungen legen den Schluss nahe, dass die Annahme von Entmischung im Heizaggregat zumindest nicht ausgeschlossen werden kann. Weiterhin konnten Vorversuche beim Fraunhofer Institut belegen, dass eine Strömungsrichtung von oben nach unten die Umsetzung verhindert. Es spricht sehr viel für die Vermutung, dass die Reaktionsmischung im überkritischen Kohlenmonoxid immer noch mehrphasig vorliegt. Insgesamt ist offensichtlich dem Aspekt einer stetigen, guten Durchmischung und der Vermeidung von Entmischung bei der Lösung des Problems hohe Priorität zuzuordnen.

Es ist bekannt und konnte verifiziert werden, dass es bei thermischer Belastung in Abwesenheit von Kohlenmonoxid-Überdruck zu Zersetzung von DiCoC kommen kann. Das bedeutet, dass eine mögliche Zersetzung gebildeten DiCoCs bei Überführung der Reaktionsmischung von der Reaktoreinheit zur Produktisolierung ohne Kühlung nicht ausgeschlossen werden kann. Allerdings wird aktuell davon ausgegangen, dass aufgrund der vorher dargestellten Problematik keine oder nur eine sehr geringe Produktbildung stattgefunden hat, so dass die Zersetzungsreaktion bisher noch gar keine Rolle spielen konnte.

Zur detaillierteren Analyse der vorliegenden Problemfelder, sowie der Entwicklung von Lösungskonzepten wurde eine Reihe möglicher Projektpläne entwickelt, die sich in Laufzeit, Einbindung externer Partner unterscheiden, zum Teil auch unter Errichtung einer zusätzlichen Pilotanlage zur besseren Untersuchung des Reaktionsverhaltens. Als Ergebnis dieses Projektes, aufgegliedert in mehrere Teilprojekte, würde eine Bestätigung der Fehlermöglichkeiten und idealerweise Vorgaben eines geeigneteren Reaktorkonzepts erwartet, allerdings kann dieses Ergebnis nicht vorab garantiert werden.

Im Erfolgsfall dieser additiven Entwicklungsarbeiten wird ein Konzept erarbeitet, wie der Prozess mit größeren oder kleineren Veränderungen der Produktionsanlage in Betrieb gehen kann.

Erste Kosten- und Zeitschätzungen des Entwicklungsprojektes variieren zwischen 1 und 1.2 Millionen € Entwicklungskosten, ohne sichere Zielerreichung. Die Laufzeit der Projekte variiert zwischen 1.5 und 2 Jahren – unvorhergesehene Entwicklungen nicht berücksichtigt.

Die Konsequenzen für die notwendigen Umbauten der Produktionseinheit sind zum gegenwärtigen Zeitpunkt schwer zu bewerten. Auf Basis der jetzigen Ausgangslage muss aber mit signifikanten Anpassungen im Reaktionsteil, wie auch dem Downstream-Bereich gerechnet werden. Vorsichtige erste Schätzungen legen Umbauten > 1 Million € nahe, verbunden mit einer Investitionszeit (nach Abschluss der Entwicklungsarbeiten) von deutlich über einem Jahr.

Auf Basis dieser Abschätzungen (kostenseitig, zeitlich), sowie dem weiter verbleibenden Risiko, dass die Entwicklungen nicht das gewünschte Ergebnis liefern kann, wurde von Umicore ein Abbruch des Projektes entschieden.

#### 2.4. Behördliche Anforderungen (Genehmigungen)

Die BImSchG-Genehmigungsunterlagen für das Gesamtprojekt wurden dem Regierungspräsidium Darmstadt am 23.1. und 24.4.2019 übermittelt. Der Genehmigungsbescheid wurde am 3.2.2020 erteilt. Die Auflagen der Nebenbestimmungen wurden durch Umicore geprüft und akzeptiert.

Somit lagen zum Zeitpunkt der Inbetriebnahme alle notwendigen Genehmigungsunterlagen vor.

#### 2.5. Erfassung und Aufbereitung der Betriebsdaten

Entfällt.

Aufgrund der nicht erfolgreichen Inbetriebnahme konnten Betriebsdaten nicht gesammelt werden.

### 3. Ergebnisse

#### 3.1. Bewertung der Vorhabendurchführung

Das Projekt muss als gescheitert betrachtet werden.

Engineering und Bau der Anlage auf Basis der Vorgaben konnten erfolgreich und mit leichten Verzögerungen und einer Kostenüberschreitung von knapp 20% gegenüber dem Planbudget implementiert werden.

Aufgrund der nicht erfolgreichen Inbetriebnahme muss das Gesamtprojekt als gescheitert erachtet werden. Es ist nicht gelungen das Zielprodukt – auch nicht in geringen Mengen – in der Anlage erfolgreich zu fertigen.

Im Nachgang wurde eine Reihe möglicher Fehler identifiziert und erste Bewertungen auch experimentell und theoretisch unterlegt.

Rückblickend wäre es notwendig gewesen, auf Basis der Entwicklungsergebnisse deutlich intensiver und detaillierter die verfahrenstechnischen Aspekte des Verfahrens experimentell, als auch theoretisch zu untersuchen. Auch der Bau einer Pilotanlage für das Gesamtverfahren oder zumindest für Teilverfahrensschritte hätte sich empfohlen.

Auf diese Maßnahme wurde bei Investitionsentscheid aus Kosten-, aber insbesondere aus zeitlichen Gründen verzichtet, da eine möglichst frühe Markteinführung als wesentlich erachtet wurde.

### 3.2. Stoff- und Energiebilanz

Entfällt.

Aufgrund der nicht erfolgreichen Inbetriebnahme ist eine Stoff- und Energiebilanz nicht möglich.

### 3.3. Umweltbilanz

Entfällt.

Aufgrund der nicht erfolgreichen Inbetriebnahme ist eine Umweltbilanz nicht möglich.

### 3.4. Konzeption, Durchführung und Ergebnisse des Messprogramms

Entfällt.

Aufgrund der nicht erfolgreichen Inbetriebnahme wurde ein Messprogramm nicht implementiert.

### 3.5. Wirtschaftlichkeitsanalyse

Die Investitionskosten der Anlage lagen bei 4.7 M€ und damit 0.7 M€ über den ursprünglichen Plankosten.

Eine Wirtschaftlichkeitsbetrachtung ist nicht möglich, da der Zweck der Anlage nicht erreicht werden konnte.

### 3.6. Technischer Vergleich zu konventionellem Verfahren

Entfällt.

Aufgrund der nicht erfolgreichen Inbetriebnahme ist Vergleich zu konventionellen Verfahren nicht sinnvoll. Allerdings ist ein solcher Vergleich prinzipiell schwer darstellbar, da genau Betriebs/Kostendaten der industriell umgesetzten Vergleichsverfahren nicht öffentlich zugänglich sind.

## 4. Empfehlungen

### 4.1. Erfahrungen aus der Praxiseinführung Entfällt.

Eine Praxiseinführung konnte nicht realisiert werden. Eine Testung in ein- oder mehreren Piloteinheiten (s.o.) vor Installation einer Produktionsanlage wäre im Rückblick sinnvoll gewesen.

### 4.2. Modellcharakter (Verbreitung und weitere Anwendung des Verfahrens/ Anlage/ Produkt)

Entfällt.

Eine Praxiseinführung konnte nicht realisiert werden.

### 4.3. Zusammenfassung

Im Rahmen des vorliegenden Projektes sollte eine Produktionsanlage zur Fertigung von Dicobaltocatacarbonyl [ $\text{Co}_2(\text{CO})_8$ ] am Standort Hanau der Umicore AG & Co KG installiert und in Betrieb genommen werden.

Das Projekt wurde durch das Umweltinnovationsprogramm der BMU mit ca. 1,2 Millionen Euro gefördert, was einem Anteil von ca. 30% der mit Projektstart geplanten Investitionssumme entsprach. Die Kostenziele konnten nicht erreicht werden, wodurch sich der Anteil der Förderung leicht reduziert hat.

Design, Bau und Genehmigung der Anlage, wie auch die prinzipielle Funktionsprüfung konnten mit leichter Zeitüberschreitung abgeschlossen werden. Bei der Inbetriebnahme der Anlage ergaben sich massive Probleme. Das Zielprodukt konnte nicht hergestellt werden.

Eine Fehleranalyse ergab eine größere Anzahl möglicher Ursachen in der Reaktionsführung, deren Abklärung signifikante Zusatzaufwendungen in Forschung- und Entwicklung gefolgt von Investitionen zur Umarbeitung der Produktionsanlage in unbekanntem, aber vermutlich hohem Aufwand, notwendig macht und eine mehrjährige Zeitverzögerung bis einer möglichen erneuten Inbetriebnahme nach sich zieht. Da zum heutigen Zeitpunkt nicht sichergestellt werden kann, dass diese Arbeiten erfolgreich zu Ende geführt werden können und durch die Zeitverzögerung das aktuelle Markteintrittsfenster verpasst wird, ist die Entscheidung getroffen worden das Projekt nicht weiterzuführen.

5. Literatur

6. Anhang