

M.Sc. Nils Ortner

(e-mail: nils.ortner@outlook.de)

Untersuchung und Entwicklung von Katalysatoren zur Beeinflussung der Reaktionswege für die Hydrierung von CO₂ zu Methanol

Die stoffliche Nutzung von Kohlenstoffdioxid (CO₂) hat das Potenzial, dabei zu helfen, den menschengemachten CO₂-Emissionen durch Industrie und Verkehr entgegenzuwirken. Dazu wird das ausgestoßene CO₂ eingefangen und durch chemische Reaktionen in wertige Produkte umgewandelt, beispielsweise durch die Hydrierung mit Wasserstoff in die Industriechemikalie Methanol. Wenn "grüner", also durch nachhaltige Energiequellen gewonnener, Wasserstoff genutzt wird, wird gleichzeitig das Problem gelöst, dass Methanol üblicherweise aus Synthesegas hergestellt wird, welches aus nicht nachhaltigen, fossilen Rohstoffen wie Erdöl oder Erdgas gewonnen wird.

In dieser Arbeit wurden standardmäßige CuZn-basierte Katalysatoren für die CO₂-Hydrierung zu Methanol untersucht und weiterentwickelt. Durch Dotierung von CuZn/ZrO_x mit Oxiden von In, La, Y und Ti konnten die Geschwindigkeiten der einzelnen Reaktionsschritte verändert und die katalytischen Fähigkeiten verbessert werden. Diese Veränderungen konnten mit der Erhöhung der Konzentration stark basischer Zentren und Erhöhung der Cu-Dispersion in Verbindung gebracht werden. Außerdem wurde durch intensive kinetische Untersuchungen der Hydrier-Reaktion und der Methanolzersetzung an einem CuZnAlO_x-Katalysator gezeigt, dass es unterschiedliche Reaktionszentren für die Entstehung und die Zersetzung auf der Katalysatoroberfläche gibt. Durch die Sättigung dieser Zersetzungscentren wurde eine überdurchschnittlich hohe Methanelselektivität von 93 % bei einem CO₂-Umsatz von 18,9 % erzielt. Darüber hinaus wurden mathematische Analysen wie Regressionsbaumanalysen auf einen gesammelten Datensatz, bestehend aus katalytischen Daten zur CO₂-Hydrierung zu Methanol aus wissenschaftlichen Veröffentlichungen, angewendet, um Informationen zur optimierten Katalysatorsynthese offenzulegen. Aus diesen Analysen wurden diverse Trägermaterialien und Promotoren als besonders geeignet für hohe Methanelselektivitäten und CO₂-Umsätze herausgestellt.

M.Sc. Nils Ortner

(e-mail: nils.ortner@outlook.de)

Investigation and development of catalysts to influence the reaction pathways in the hydrogenation of CO₂ to methanol

The recycling of carbon dioxide (CO₂) has the potential to help counteracting the anthropogenic CO₂ emissions from the industry and transport sector. This involves capturing emitted CO₂ and converting it into valuable products through chemical reactions, such as hydrogenation with hydrogen into the industrially important chemical methanol. When "green" hydrogen, i.e., hydrogen produced by sustainable energy sources, is used, it simultaneously solves the problem that methanol is usually produced from syngas, which is derived from unsustainable fossil feedstocks such as petroleum or natural gas.

In this work, standard CuZn-based catalysts for CO₂ hydrogenation to methanol were investigated and further developed. By doping CuZn/ZrO_x with oxides of In, La, Y, and Ti, the rates of the individual reaction steps could be changed and the catalytic capabilities were improved. These changes could be related to the increase of the concentration of strong basic sites and increase of Cu dispersion. Moreover, intensive kinetic studies of the hydrogenation reaction and methanol decomposition on a CuZnAlO_x catalyst showed that there are different active sites for the formation and decomposition on the catalyst surface. By saturating these decomposition sites, a higher than average methanol selectivity of 93% was obtained at a CO₂ conversion of 18.9%. In addition, mathematical analyses such as regression tree analyses were applied to a collected data set consisting of catalytic data for CO₂ hydrogenation to methanol from scientific publications to reveal information on optimized catalyst synthesis. From these analyses, various support materials and promoters were found to be particularly suitable for high methanol selectivities and CO₂ conversions.