

Verwertung von CO₂ durch elektrokatalytische Aktivierung im Mikroreaktor

A. Inan^{1*}, N. Wagner², T. Dietrich³, E. Klemm¹

¹Universität Stuttgart - Institut für Technische Chemie, Stuttgart/Deutschland

² Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt, Stuttgart/Deutschland

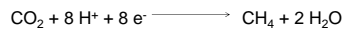
³ mikroglas chemtech GmbH, Mainz/Deutschland

*E-mail Adresse des präsentierenden Autors: andrea.inan@itc.uni-stuttgart.de

Einleitung

Die kathodische Aktivierung von CO₂ mit elektrischem Strom aus erneuerbaren Energien ist eine energetisch sinnvolle Route zur stofflichen Verwertung von CO₂ bzw. zur chemischen Energiespeicherung. Bei Anwesenheit von Protonen kann so CO₂ zu CO, Ameisensäure, Methan oder höheren Kohlenwasserstoffen umgesetzt werden. Diese Reaktionen sind prinzipiell möglich, wie auch in der Literatur gezeigt wird [1]. Grundlegenden Probleme über die berichtet wird, sind u.a. die geringe Produktelektivität, die eingeschränkte CO₂-Löslichkeit, der gehemmte Massentransport und die geringe Faraday-Ausbeute. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit erfolgt eine Prozessoptimierung, indem sowohl eine Katalysatorentwicklung als auch eine reaktionstechnische Optimierung durchgeführt wird.

Reaktionsgleichungen



Reaktionsmechanismus

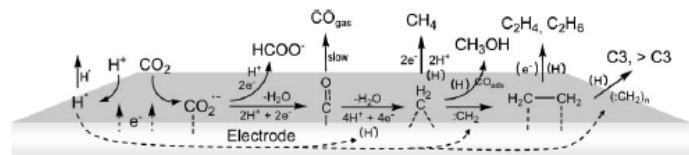


Abb.1: Reaktionsmechanismus der kathodischen CO₂-Reduktion [2].

Elektrochemische Mikroreaktoren

Vorteile:

- Minimierung der Ohmschen Widerstände
- Erhöhung der apparatespezifischen Elektrodenoberfläche
- Beschleunigung des Stofftransports
- Mikrostruktur erlaubt eine effiziente Kontaktierung im Dreiphasensystem: Gas/Elektrolyt/Katalysator



Abb.2: Aufbau des elektrochemischen Mikroreaktors.

Versuchsanlage

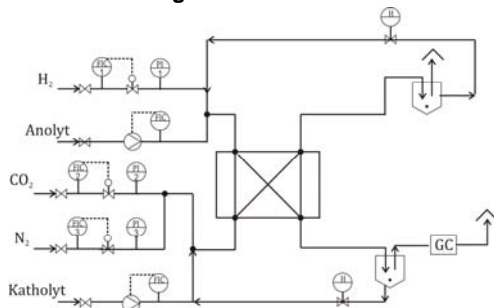


Abb.3: Links: R&I-Fließbild der Versuchsanlage. Rechts: Versuchsanlage am Institut.

- Mikrostrukturierten Reaktor mit integrierten Elektroden
- parallele Anordnung von Kathode und Anode, die durch eine Nafion®-Membran voneinander getrennt sind.
- Versuchsanlage umfasst die Dosierung von Gasen und flüssigen Elektrolyten mittels MFC und einer Spritzenpumpe, den Reaktor, einen Phasentrenner nach dem Reaktor und die Analytik der Gasphase mittels Gaschromatographie.

Ergebnisse

Als Katalysator wurden sowohl Metallfolien als auch diverse kohlegetragerte Metalle auf ihr elektrochemisches CO₂-Reduktionsvermögen getestet. Die kohlegetragerten Katalysatoren wurden durch das Trockensprühverfahren auf die Membran aufgebracht.

Die elektrokatalytischen Messungen im Mikroreaktor sollen hier am Beispiel von Gold als Katalysator und CO als Produkt gezeigt werden.

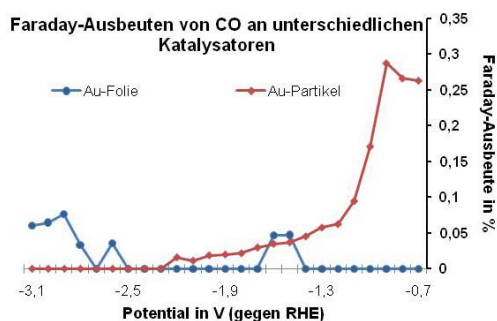


Abb.2: CO Faraday-Ausbeute in % in Abhängigkeit vom angelegten Potential (vs. RHE) an Gold-Katalysatoren. T = Raumtemperatur, p = Umgebungsdruck, τ = 7 Sekunden.

- Geträgerte Gold-Partikel (d ~ 500 nm) sind deutlich aktiver als die Goldfolie
- Bereits bei einem Potential von -0,9 V (vs. RHE) wird die höchste Faraday-Ausbeute (0,3%) an CO erreicht, welche jedoch bei negativeren Potentialbereichen stetig abnimmt. Ein möglicher Grund könnte sein, dass CO in Folgereaktionen zu weiteren Produkten reduziert wird.
- Bei ausreichend negativen Potentialen (bis zu -2,7 V) wird auch an der Au-Folie CO₂ zum Zwischenprodukt CO reduziert.
- Partikelgröße ist ein sensibler Parameter und muss demnach optimiert werden.
- **Hauptnebenreaktion:** Reduktion zu Wasserstoff
 - zur Unterdrückung bieten sich u.a. Metallkatalysatoren mit hohen Überspannung zur H₂-Bildung, Gasdiffusionselektroden, aprotische Lösungsmittel an.

[1] Y. Hori in *Modern Aspects of Electrochemistry*, Vol. 42, editiert von C. Vayenas et al. Springer, New York, 2008.

[2] G. Centi, S. Perathoner, G. Wine, M. Gangeri, *Green Chem.* 2007, 9, 671–678.