


Chemisches Recycling für Kunststoffe: Status und Perspektiven

Arkadi Maisels¹, Andreas Hiller² und Franz-Georg Simon^{3,*}

DOI: 10.1002/cite.202100115

 This is an open access article under the terms of the Creative Commons Attribution License, which permits use, distribution and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.



Supporting Information
available online

Das mechanische Recycling von Kunststoffen ist seit Jahren großtechnisch etabliert, hat aber technische und ökonomische Grenzen. Durch Verfahren des chemischen Recyclings gelangt man zurück zu Monomeren oder den Rohstoffen, so dass am Ende wieder Neuware für alle Einsatzgebiete von Kunststoffen entsteht. Die Vielfalt von chemischen Recyclingverfahren ist groß. Die Kapazitäten der Anlagen sind heute noch gering und die Wirtschaftlichkeit wird stark vom Ölpreis beeinflusst. Die Rentabilitätsgrenze liegt derzeit bei einem Preis zwischen 50 und 60 US-\$ pro Barrel.

Schlagerwörter: Chemisches Recycling, Oxyfuel-Verbrennung, Pyrolyse, Solvolyse

Eingegangen: 17. Juni 2021; *revidiert:* 09. September 2021; *akzeptiert:* 10. September 2021

Chemical Recycling of Plastics: Status and Prospects

The mechanical recycling of plastics has been established on an industrial scale for years but has technical and economic limits. Chemical recycling processes lead back to monomers or to the raw materials, so that in the end new goods can be produced for all areas of application of plastics. The variety of chemical recycling processes is large. The capacities of the plants are still low today and the profitability is strongly influenced by the oil price. The profitability limit is currently between 50 and 60 US \$ per barrel.

Keywords: Chemical recycling, Oxyfuel combustion, Pyrolysis, Solvolysis

1 Einleitung

Kunststoffe sind aus dem täglichen Leben kaum mehr wegzudenken. Der Verbrauch lag im Jahr 2019 in Deutschland bei 12,1 Mio. Tonnen [1]. Mehr als 50 % dieser Menge entfallen allein auf Polyethylen, Polypropylen und Polystyrol. Über Polymerisation wurde erstmalig von Staudinger vor gut 100 Jahren berichtet [2]. Dafür erhielt er 1953 den Chemie-Nobelpreis. 1950 wurden dann bereits weltweit 2 Mio. Tonnen Kunststoffe produziert, 380 Mio. Tonnen im Jahr 2015. Geyer et al. haben berechnet, dass von 1950 bis 2015 rund 8300 Mio. Tonnen Kunststoffe hergestellt wurden (Primärproduktion) [3]. Sekundärmaterial spielt in dieser Betrachtung kaum eine Rolle, denn gerade einmal 9 % davon wurden recycelt. Das meiste (79 %) endete auf Deponien oder in der Umwelt (z. B. 150 Mio. t in den Meeren [4]), 12 % wurden verbrannt.

In der EU lag der Bedarf an Kunststoffen im Jahr 2017 bei 51,2 Mio. Tonnen. Knapp 40 % davon wurden als Verpackungsmaterial verwendet [5], was eine eher kurzlebige

Anwendung im Vergleich zu Kunststoffen im Baubereich (20 %) oder in der Automobilbranche (10 %) darstellt und somit nach kurzer Nutzungsphase zur Entsorgung ansteht. Die Verwertungswege für Verpackungsabfälle aus Kunststoff sind in den einzelnen Mitgliedsländern der EU sehr unterschiedlich, im Durchschnitt erreichten die EU-Staaten im Jahr 2017 eine Verwertung von knapp 80 %. Bei den Ländern mit Verwertungsquoten über 80 % dominiert meist die thermische Verwertung, in Deutschland sind die Anteile

¹Dr. Arkadi Maisels
Evonik Operations GmbH, Research, Development & Innovation,
Rodenbacher Chaussee 463457 Hanau-Wolfgang, Deutschland.

²Dr. Andreas Hiller
TU Dresden, Institut für Verfahrenstechnik und Umwelttechnik,
Helmholtzstraße 14, 01062 Dresden, Deutschland.

³Dr. Franz-Georg Simon
franz-georg.simon@bam.de Bundesanstalt für Materialforschung
und -prüfung, Unter den Eichen 87, 12205 Berlin, Deutschland.

(mechanisches) Recycling und thermische Verwertung in etwa gleich groß (s. Abb. 1). Die Grenzen des mechanischen Recyclings sind Folge der Verschlechterung der mechanischen Eigenschaften wegen oxidativer Abbaureaktionen und inkonsistenter Produktqualität [6]. Hinzu kommen hohe Kosten und Aufwand, wenn gemischte Kunststoffe und Verbundstoffe getrennt werden müssen. Chemisches Recycling spielt bisher noch keine große Rolle. PlasticsEurope weist für das Jahr 2018 in Deutschland 10 600 t und in Italien 3600 t für das chemische Recycling (0,2 bzw. 0,1 %) aus [7]. Dieser Anteil wird in Zukunft zunehmen. Das zeigt der Blick auf aktuelle Literatur zum Thema [8–12]. Diese Übersichtsarbeit legt den Schwerpunkt auf Verfahren der Pyrolyse und der Solvolyse. Die Verfahren werden mit den wichtigsten Merkmalen tabellarisch beschrieben. Im Fazit werden Vorteile und Bereiche, in denen Probleme und Forschungsbedarf bestehen, diskutiert.

2 Überblick über chemische Recyclingverfahren

Recycling ist eine Maßnahme zur Behandlung von Abfällen, die nach der Europäischen Abfallrahmenrichtlinie in der 5-stufigen Abfallhierarchie an dritter Position liegt. Darüber sind Abfallvermeidung und die Vorbereitung zur Wiederverwendung angesiedelt. Wiederverwendung von Produkten aus Kunststoff nach Aufbereitung ist denkbar, bildet aber eher die Ausnahme. Der Wiedereinsatz von Produktionsabfällen (im einfachsten Fall Verschnitt) bei der Herstellung von Kunststoffprodukten wird als primäres Recycling bezeichnet [14] und ist die in allen Belangen beste

Methode zur Kreislaufführung. Die Produkte aus mechanischen Aufbereitungsverfahren finden Verwendung als Rohstoffe für neue Produkte aus Kunststoff. Allerdings haben mechanische Recyclingverfahren (sekundäres Recycling) ihre Grenzen bei stark vermischten und verschmutzten Kunststoffabfällen. Hier können Verfahren des chemischen Recyclings helfen, die Lücken im Kreislauf zu schließen. Auch die Verbrennung (insbesondere bei Sauerstoffanreicherung, Oxyfuel) kann dazu einen Beitrag leisten, da hier die Abtrennung von CO₂ einfacher durchzuführen ist [15]. Verbrennung gilt aber in der Abfallhierarchie als sonstige Verwertung und steht vor der Beseitigung an vierter Position.

Unter dem chemischen Recycling von Kunststoffen wird im Allgemeinen die Zerlegung der langkettigen organischen Makromoleküle in kurzkettige organische Moleküle, Monomere oder ihre Bestandteile mit der nachfolgenden Verwertung zumindest eines Teils dieser Zerlegungsprodukte in der Herstellung der neuen Kunststoffe verstanden. Dabei wird in Abhängigkeit vom dem für die Zerlegung realisierten chemischen Prinzip bzw. Verfahren zwischen Hydrolyse, Solvolyse, Hydrocracking, katalytisches Cracking, Pyrolyse und Vergasung unterschieden. Zwar gehört die Verbrennung ebenfalls zu chemischen Verwertungsverfahren, dieser Vorgang kann aber nicht wirklich als Recycling betrachtet werden, wenn die entstehenden Verbrennungsprodukte (im Wesentlichen CO₂ und H₂O) nicht verwertet werden – was in dem überwiegenden Anteil der Verbrennungsanlagen der Fall ist. Die Verwendung der Produkte des chemischen Recyclings für die Herstellung der Treibstoffe (Benzin, Diesel) ist möglich und in einigen Regionen (z. B. Indien) noch verbreitet und kann ebenfalls als ein Teil

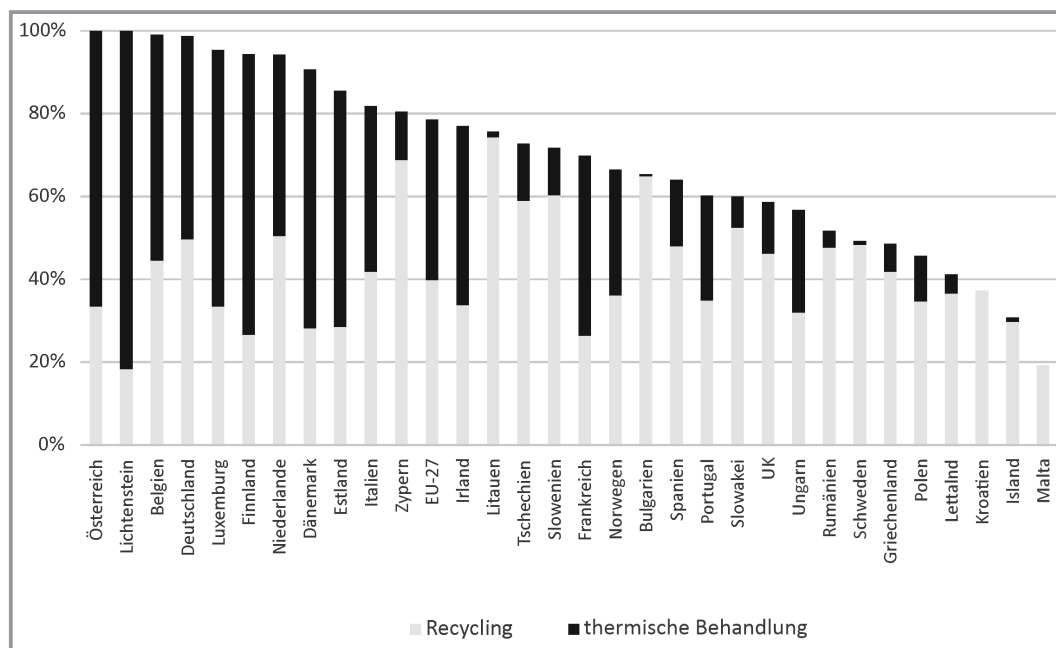


Abbildung 1. Entsorgungswege für Verpackungsabfälle aus Kunststoff im Jahr 2017 [13].

von Recycling betrachtet werden. Das chemische Recycling ist technisch deutlich anspruchsvoller als das mechanische Recycling, bietet aber die Flexibilität in der Produktion des neuen Kunstoffs an und erlaubt sogar die Herstellung der Kunststoffe aus recyceltem Rohstoff in der Qualität von Neuware (virgin quality), was beim mechanischen Recycling deutlich problematischer ist. In den nachfolgenden Abschnitten werden Pyrolyse und Solvolyse detailliert betrachtet und analysiert. Abb. 2 zeigt, wie sich Wiederverwendung und die unterschiedlichen Recyclingverfahren in den gesamten Lebenszyklus von Kunststoffen einfügen.

2.1 Pyrolyse

Bei der Pyrolyse werden langkettige Polymermoleküle in kurzkettige Bestandteile durch die Zufuhr thermischer Energie unter Sauerstoffausschluss (inerte Atmosphäre oder Vakuum) gespalten. Dabei entsteht ein Gemisch aus Gas- (z. B. H_2 , CH_4 , C_2H_6 , CO), Flüssig- (z. B. C_4 – C_{10} -Verbindungen) und Festphasenprodukten (z. B. Paraffine, Wachs, Kohle) [12, 16]. Die genaue Zusammensetzung der Pyrolyseprodukte hängt sowohl vom Rohstoff (Kunststoffgemisch) als auch von den Pyrolysebedingungen (Temperatur, Katalysator, Trägergas, Druck) ab. Die flüssigen Pyrolyseprodukte werden oft als Pyrolyseöl bezeichnet und können entweder dem Rohölstrom in den Cracking-Anlagen zugefügt oder nach Fraktionierung als Rohstoff in der chemischen Produktion (Kunststoffherstellung, Tenside, Weichmacher usw.) eingesetzt werden. Bei einigen Verfahrensvarianten wird Wasserstoff zur Steuerung des Outputs benötigt [9, 17]. Gasphasenprodukte werden in den meisten Anlagen

als Energieträger für die Pyrolyse eingesetzt, allerdings sind Konzepte bekannt, bei denen Gasphasenprodukte den Hauptanteil des Wertstoffstroms darstellen. Eine wirtschaftlich lukrativere Ausnahme sind dabei Polymethylmethacrylat (PMMA) und Polystyrol (PS), die sich in die Monomere MMA bzw. Styrol pyrolysieren lassen. Eine Übersicht der aktuellen Pyrolyseanlagen und Projekte ist in der Tab. S1 (Supporting Information) zu finden.

Aus Tab. S1 wird deutlich, dass die Pyrolyse bereits in vielen Ländern zum Recycling bzw. Rohstoffgewinnung eingesetzt wird und damit eine bekannte und in einem gewissen Maße verbreitete Technologie darstellt. Die gesamte Kapazität der Pyrolyseanlagen beträgt im Jahr 2021 ca. 1 Mio. t. Diese Kapazität wird sich laut Ankündigungen (Chevron Phillips, Neste, BP, Quantafuel/BASF) bis 2030 verdreifachen. Das ist zwar nur ein Bruchteil der ca. 370 Mio. t der weltweit jährlich produzierten Menge an Kunststoffen, aber die Wachstumsrate der Pyrolysekapazität unterstreicht die wachsende Bedeutung dieser Technologie für Plastikrecycling.

Die überwiegende Mehrheit der in Tab. S1 aufgeführten Unternehmen betreibt bereits Anlagen mit der angegebenen Kapazität. Diese Anlagen lassen sich nach ihrer Kapazität, Rohstoff- und Produktqualität sowie nach Betreiber klassifizieren und in unterschiedliche Gruppen unterteilen.

Rohstoffqualität

- 1) Reiner Kunststoff (Polyethylen PE, Polypropylen PP, Polystyrol PS) bzw. definiertes Kunststoffgemisch (PE und PP): Im Regelfall handelt es sich um etwas ältere Anlagen bzw. Anlagenkonzepte, bei denen keine Hand-

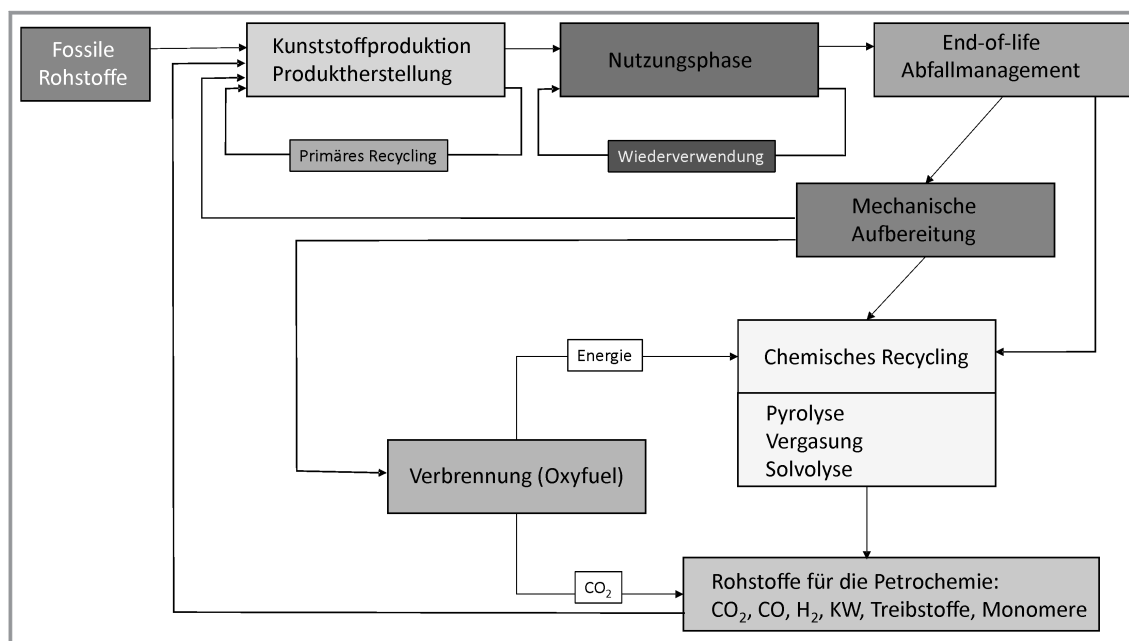


Abbildung 2. Chemisches Recycling als Baustein in der Kreislaufwirtschaft für Kunststoffe.

- habung von PVC möglich ist. Darüber hinaus erlaubt der definierte Rohstoff einen einfacheren Betrieb der Pyrolyseanlage und eine stabilere Qualität der Produkte.
- 2) PS- und PMMA-Depolymerisierungsanlagen (Toshiba Plant System, Toyo, JSW, Agilyx): Es handelt sich um ein echtes chemisches Recycling von Polymeren zu Monomeren, das jede weitere Nutzung von Monomeren erlaubt und dem Konzept der Kreislaufwirtschaft entspricht.
 - 3) Kunststoffgemisch bzw. Gemisch aus Kunststoffen und Cellulose: Diese moderneren Anlagen besitzen viel Flexibilität in Bezug auf den Rohstoff durch die Sortierung vor der Pyrolyse bzw. durch die Entchlorung der Rohstoffe. Allerdings müssen bei diesen Anlagen größere Schwankungen bei der Produktqualität in Kauf genommen oder Maßnahmen zu Homogenisierung des Produktes implementiert werden.

Produktqualität

- 1) Reine Monomere (Styrol, MMA): s.o.
- 2) H₂/CO-Gemisch (PowerHouse Energy, Showa Denko): In diesen Anlagen wird die Pyrolyse bzw. Vergasung bei Showa Denko bei deutlich höheren Temperaturen (800 °C und mehr) durchgeführt, um die Ausbeute an H₂/CO zu erhöhen. Die Wahl der Produkte ist durch den höheren Marktpreis im Vergleich zu Kohlenwasserstoffen begünstigt, allerdings sind die Prozesse durch höhere Temperaturen anspruchsvoll und energieaufwendig.
- 3) Gemisch aus Gas-, Flüssig- und Festphasenprodukten: überwiegender Teil der Anlagen. Einige Anlagenbetreiber versuchen, den Anteil an Flüssigphasenprodukten zu erhöhen, die Ausbeute liegt bei optimaler Prozessdurchführung bei 90 %.

Anlagengröße

- 1) bis 10 000 t a⁻¹: Bei den Anlagen dieser Gruppe handelt es sich um Demonstrations- bzw. Forschungsanlagen, die zwar in einigen Fällen kommerziell betrieben werden, aber im Wesentlichen der Minimierung der Hürde bei größeren Investitionsprojekten bzw. der Erleichterung des Einstiegs eines Partners dienen. Darüber hinaus werden in einigen Regionen (Finnland, Indien) Anlagen dieser Größenklasse für die Herstellung von Treibstoff (Diesel) eingesetzt.
- 2) 10 000–30 000 t a⁻¹: Bei der zweiten Gruppe handelt es sich um Anlagen, die kommerziell betrieben werden, um lokal anfallenden Plastikabfall in flüssige Kohlenwasserstoffe zu überführen und auf diese Art und Weise zu verwerten. Die Anlagen in dieser Kapazität stellen die Mehrheit der Anlagen dar. Die Größe der Geräte hält die Investitionsvolumina in überschaubaren Grenzen und erlaubt es, die Anlagen dauernd sicher zu betreiben. Allerdings sind diese Anlagen noch zu klein,

um den Rohstoffbedarf eines großen Chemieunternehmens nennenswert (zu 10 % oder mehr) zu decken.

- 3) mehr als 30 000 t a⁻¹: Bei der dritten Gruppe handelt es sich um die Anlagen, die eine Dimension besitzen, die für einen Hersteller aus der chemischen Industrie schon relevant sind. Unverkennbar ist die deutliche Zunahme der Anzahl der Projekte dieser Größenklasse seit 2019.

Betreiberkonsortien

- 1) Erfinder, Start-ups, Spin-offs, Unternehmensgründer: Die meisten Betreiber der Pyrolyseanlagen sind gleichzeitig die Entwickler des Verfahrens, die die Technologie vermarkten. Die Kapazität der betriebenen Anlagen übersteigt 20 000 t a⁻¹ nicht, die Aussage zu Skalierbarkeit kann nicht eindeutig getroffen werden.
- 2) Abfallwirtschaft (Indaver, PHJK, Agrob Eko): Die Abfallwirtschaft erkennt das Potenzial des chemischen Recyclings und arbeitet bereits an den technischen Lösungen, auch wenn die Rahmenbedingungen (Müllpreis, Ölpreis) noch nicht optimal sind.
- 3) Anlagenbauer (Splainex, Leitner Technologies, Jinan Niutex, Xinxiang Huayin): Diese Anlagenbauer vertreiben modulare Pyrolyseanlagen mit der Kapazität bis zu 35 000 t a⁻¹. Eine höhere Kapazität wird bei diesen Anlagen durch die Erhöhung der Anzahl der Pyrolysereaktoren (numbering-up) erreicht.
- 4) Petrochemische Industrie (MOL, Indian Oil Corporation, Neste, OMV, Chevron Phillips, BP, Shell): Auch Unternehmen der petrochemischen Industrie betreiben z. Zt. Anlagen, die die Machbarkeit und Wirtschaftlichkeit demonstrieren sollen. Allerdings kündigten BP für den Standort Gelsenkirchen und Chevron Phillips für Baytown an, Pyrolyseanlagen mit der Kapazität über 100 000 t a⁻¹ errichten zu wollen. Die Pyrolyseprodukte aus diesen Anlagen werden bei der PE-Herstellung eingesetzt.
- 5) Große Chemieunternehmen (BASF, Dow, INEOS, LyondellBasell, Borealis, Lucite, SABIC): Zweifelsohne sind diese Unternehmen in der Lage, eigene Pyrolyseanlagen zu entwickeln und zu betreiben, allerdings erscheint die Beteiligung an Aktivitäten kleinerer Technologieentwickler z. Zt. attraktiver. So startete INEOS Projekte mit Indaver, Green Mantra, und Pyrowave; BASF kündigte Kooperation mit Pyrum und Quantafuel an.

Die Wirtschaftlichkeit von Pyrolyseanlagen wird im Bericht "A circular solution to plastic waste" der Boston Consulting Group diskutiert [18]. Eine vereinfachte Betrachtung der Rohstoff- und Produktionskosten für eine der aufgeführten Regionen führt zum äquivalenten Ölpreis in der Region, ab dem der Betrieb einer Pyrolyseanlage mit Kapazität von 30 000 t a⁻¹ sich lohnt (Tab. 1).

Tab. 1 offenbart den wirtschaftlichen Schwachpunkt der Pyrolyseanlagen, wenn das Pyrolyseöl als Hauptprodukt im Fokus steht. Dieses Produkt wird direkt mit dem Öl- bzw.

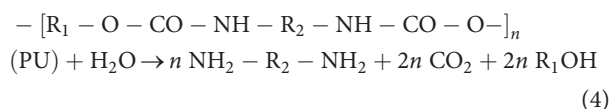
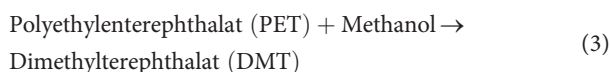
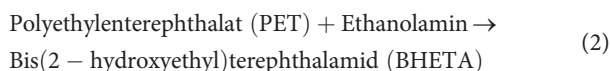
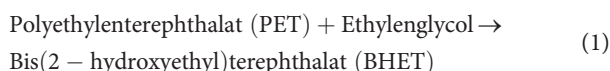
Tabelle 1. Betriebskosten für eine Pyrolyseanlage (30 000 t a⁻¹) und der äquivalente Ölpreis.

Standort	Plastikabfall [US-\$ t ⁻¹]	Pyrolysekosten [US-\$ t ⁻¹]	Entsorgung, Transport [US-\$ t ⁻¹]	Gesamtkosten [US-\$ t ⁻¹]	Äquivalenter Ölpreis [US-\$ bbl ⁻¹]
Singapur	169	196	5	370	58,9
Frankreich	120	196	5	321	51,0
USA (Florida)	125	196	5	326	51,8
China (Zhejiang)	200	196	5	401	63,8

Naphthapreis verglichen, der im Jahr 2020 unter dem Niveau von 50 US-\$ bbl⁻¹ lag. Eine detaillierte Betrachtung der Investition in die Konstruktion und Betrieb einer Pyrolyseanlage mit der Kapazität von 120 000 t a⁻¹ wurde in [19] aufgeführt. Auch diese Analyse unterstreicht die Abhängigkeit der Wirtschaftlichkeit eines derartigen Projekts vom Öl- bzw. Naphthapreis.

2.2 Solvolyse

Die Zersetzung der Polymere in Oligomere oder Monomere in Lösungsmittel unter der Wirkung von diesen Lösungsmitteln oder der dort gelösten chemischen Reagenzien (Basen, Säuren, Alkohole usw.) wird als Solvolyse bezeichnet. Im Gegensatz zur Pyrolyse, die zur Depolymerisierung von allen Polymeren und Polymergemischen eingesetzt werden kann, handelt es sich bei der Solvolyse um ein deutlich selektiveres Recyclingverfahren, das an das Polymer angepasst wird. Da bei der Solvolyse das Polymer Schritt für Schritt in Bestandteile abgebaut wird, wird diese Technologie fast ausschließlich bei den Polymeren angewendet, die durch Polykondensation entstehen und Heteroatome (z. B. N oder O) in der Hauptkette beinhalten. In Abhängigkeit vom eingesetzten Reaktant wird zwischen Glycolyse (z. B. mit Ethylenglycol, s. Gl. (1) [20]), Aminolyse (z. B. mit Ethanolamin, s. Gl. (2) [21]), Acidolyse (mit Säuren), Alkoholyse (z. B. mit Methanol, s. Gl. (3) [22]) und Hydrolyse (Wasser, s. Gl. (4) [23]) unterschieden.



Die Solvolyse wird bei Temperaturen zwischen 150 °C und 300 °C durchgeführt; der Prozess kann durch die Katalysatoren (Zeolithe, Basen usw.) beschleunigt werden. Die genaue Zusammensetzung der Solvolyseprodukte hängt im Wesentlichen vom Rohstoff ab. Die Produkte können nach der Trennung vom Lösungsmittel für die Herstellung des Ausgangspolymers oder als Rohstoffe bei der Herstellung von anderen chemischen Produkten eingesetzt werden. Eine Übersicht der aktuellen Solvolyseanlagen und Projekte ist in Tab. S2 (Supporting Information) dargestellt.

Im Gegensatz zu den meisten Pyrolyseanlagen werden die Anlagen für industrielle Solvolyse mit einer bestimmten Sorte von Kunststoffabfall betrieben. Dabei handelt es sich im Wesentlichen um Polyamide (PA), Polyurethane (PU) und Polyethylenterephthalat (PET). PE und PP werden nur in den Hydrolyse-Anlagen recycelt, die überkritisches Wasser verwenden. Glycolyse und Alkoholyse bzw. Methanolyse wird bevorzugt beim Recycling von Polyurethanschäumen und von PET verwendet, für Recycling von Polyamid wird das von DSM entwickelte Aminolyse-basierte Verfahren eingesetzt. Ebenfalls wird deutlich, dass Entwicklung und Implementierung von Solvolyse-basierten Recyclingverfahren weltweit stattfinden. Die meisten in Tab. S2 aufgeführten Unternehmen betreiben bereits eigene Anlagen oder liefern Technologie an ihre Partner. Diese Anlagen lassen sich nach der Größe, Rohstoff- und Produktqualität klassifizieren und in unterschiedliche Gruppen unterteilen.

Rohstoff

- 1) PU: Es handelt sich entweder um Entsorgung von Polyurethanschäumen (z. B. Matratzen, Polster) oder um Verwertung der Produktionsabfälle.
- 2) PA: hauptsächlich Polyamid 6 aus technischen und textilen Anwendungen, Fischernetze, Teppiche
- 3) PET: Abfälle aus Verpackungen aus der Lebensmittelindustrie, PET-Fasern

Produktqualität

- 1) Reine Monomere: Phthalsäure, Phthalate und Ethylenglycol beim PET-Recycling
- 2) Oligomere und Polymere: Polyole bei PU-Recycling, PET-Harze
- 3) Gemisch aus Flüssigphasenprodukten: bei Hydrolyse mit dem überkritischen Wasser

Anlagengröße

- 1) bis 1000 t a^{-1} : der größte Teil der Anlagen, die bereits Fällen kommerziell betrieben werden.
- 2) $1000\text{--}10\,000 \text{ t a}^{-1}$: Die Anlagen in dieser Kapazität stellen bereits einen wichtigen Schritt in der Entwicklung der Technologie dar.
- 3) mehr als $10\,000 \text{ t a}^{-1}$: Bei dieser Gruppe handelt es sich um die Anlagen, die aus den neusten Projekten stammen oder sich in der Planungsphase befinden. Die Anzahl der Projekte in dieser Gruppe nimmt seit 2019 zu.

Große Chemieunternehmen (BASF, Dow, DSM) entwickelten in Vergangenheit eigene Solvolyse-basierte Verfahren, aber zu einer großtechnischen Implementierung kam es bisher selten. Diese Tendenz scheint sich nun mit den neuesten Projekten von BASF und Dow zu ändern.

3 Wirkungsbetrachtung

Mechanisches Recycling von Kunststoffabfällen ist unter fast allen Bedingungen die günstigste Abfallbehandlungsstrategie. Dies kann durch Lebenszyklusanalysen gezeigt werden. Beim wichtigsten Parameter, den Treibhausgasemissionen, werden die Aufwände für Sammlung, Transport und Aufbereitung deutlich ausglich durch die Gutschriften aus vermiedenem Einsatz von fossilen Rohstoffen. Die Netto-Einsparungen (Aufwände – Gutschriften) liegen im Bereich von $1,0\text{--}1,3 \text{ kg CO}_2\text{eq kg}^{-1}$ [24]. Die thermische Behandlung von Kunststoffabfällen kann dem Recycling ebenbürtig oder sogar vorteilhafter sein, wenn die Verbrennungsanlage eine effiziente Nutzung der enthaltenen Energie durch Produktion von Wärme und Strom ermöglicht und so fossile Energieträger bei der Strom- und Wärmeerzeugung substituiert werden [25]. Dieser Vorteil verschwindet, wenn sich der Energiemix in Richtung erneuerbare Energien verändert. Aber auch dann kann Verbrennung die bessere Alternative für stark vermischte Abfälle oder Sortierreste aus Aufbereitung von Kunststoffabfällen sein.

Pyrolyseverfahren stellen eine Möglichkeit zur Schließung von Kohlenstoffkreisläufen dar. Damit sie als Recyclingverfahren gelten, kommt eine Nutzung der Produkte als Treibstoff nicht in Frage [26]. Die Anforderungen an die Reinheit des Inputmaterials sind geringer als bei den mechanischen Verfahren. Auch bei den Solvolyse-Verfahren können stark heterogene Stoffgemische und Verbundwerkstoffe verarbeitet werden [8].

Chemisches Recycling bedeutet mehr Aufwand im Vergleich zu mechanischem Recycling und steht daher auch nicht in Konkurrenz dazu. Ob chemisches Recycling Vorteile gegenüber der thermischen Behandlung hat, kann wegen fehlender großtechnischer Erfahrungen bisher nicht mit Bestimmtheit gesagt werden. Während es beim mechanischen Recycling genügt, die Aufwände für Transport und Aufbereitung in Energie (oder Exergie) pro kg Kunststoffabfall (z. B. [27]) aufzusummieren, müssen beim chemi-

schen Recycling alle eingesetzten Stoffe (Wasserstoff, Lösemittel, Additive wie CaO) betrachtet werden [14]. Ein Vergleich von vier Studien zum chemischen Recycling sieht dabei geringere Treibhausgasemissionen als bei der Verbrennung (auch bei Berücksichtigung von Gutschriften für Energie), allerdings nur, wenn der benötigte Wasserstoff ohne CO_2 -Freisetzung hergestellt werden kann [28]. Dies ist sicher zutreffend, solange die Anlagenkapazitäten für chemisches Recycling noch gering sind. Irgendwann steht das chemische Recycling aber in Konkurrenz zu anderen Abnehmern für grünen Wasserstoff, wie der Stahlindustrie oder eventuell dem Verkehr. Eine solche Konkurrenzsituation ist für die Stromerzeugung für die Elektromobilität beschrieben (Merit-Order-Ansatz, [29]). Von Umweltverbände werden Ökobilanzen, die deutliche Vorteile beim chemischen Recycling sehen, kritisiert [30].

3.1 CO_2 als Rohstoff nutzen

Neben dem energetischen Aspekt der effektiven thermischen Nutzung von Kunststoffabfällen, der in zunehmenden Maß die ökologische Konkurrenz von Wasserstoff als Energiequelle erfahren wird, ist ein Großteil des heutigen Kohlenstoffkreislaufes in organischen Verbindungen zu finden, in denen reine Wasserstoffprodukte keine Alternativen sein können. Die Kunststoffe selbst bilden neben den synthetischen Kraftstoffen den Bedarf an solchen Kohlenwasserstoffverbindungen. Dabei sind die Anforderungen an Kunststoffe derart spezifisch, dass geringste Verunreinigungen die physikalischen und damit auch mechanischen sowie thermischen und eine Reihe weiterer Eigenschaften beeinflussen.

Mechanisch recycelte Kunststoffe unterliegen damit einem sehr hohen Aufwand hinsichtlich der Kontrolle als Inputstoff in die weitere Nutzung. Dabei ist meist der Aufwand und damit die Kosten der Kombination mehrerer mechanischer Aufbereitungsschritte mit dem Verkaufserlös des Rezyklates als Nutzen abzuwägen. Vielmals fällt diese Kalkulation (noch) nicht positiv aus, da die Einhaltung von immer strengeren Grenzwerten für Spurenstoffe die Anwendung von Rezyklaten auch nahezu unmöglich machen kann (z. B. Bromverbindungen von Flammschutzmitteln).

Die Alternative könnten deshalb Verfahren sein, welche die Kunststoffströme sowohl thermisch nutzen als auch das entstehende (reine) CO_2 als Rohstoff für Synthesen mit grünem Wasserstoff bereitstellen. Solche Verfahren molekularisieren die Kunststoffe und sind hochtolerabel hinsichtlich von Störstoffen oder untrennbaren Stoffgemischen. Augenmerk muss hier auf die Kosten der CO_2 -Abtrennung gelegt werden, da fossile Kohlenstoffquellen zukünftig entfallen und damit gewisse Kohlenstoffströme fehlen werden.

Die Verbrennung von Kunststoffen ist zwar auch ein chemischer Prozess, aber im Allgemeinen wird Verbrennung nicht mit Recycling assoziiert. Bei Verbrennung in Sauerstoffatmosphäre oder zumindest mit angereichertem Sauerstoff (Oxyfuel) bieten die Anlagen aber die Möglichkeit,

Verfahren zur CO₂-Erfassung nach der thermischen Behandlung stärker zu integrieren und für eine bessere Effizienz und eine optimierte Verfahrenscharakteristik zu sorgen [31]. Eine Kreislaufführung des Kohlenstoffs ist somit möglich. Persistente organische Schadstoffe (POPs, z. B. PCB, Dioxine und Furane, bromierte Verbindungen) werden umfassend zerstört, allerdings auch die Polymerstruktur.

Die Herausforderung der Zukunft wird damit sein, den Trennpunkt zwischen unvertretbar hohem energetischen Sortieraufwand und stofflicher Kunststoffnutzung und dem Bedarf an Kohlenstoff zu finden und dynamisch zu verschieben. Dabei haben die in Abb. 2 unter chemischem Recycling erwähnten Verfahren eine gleichberechtigte Bedeutung.

4 Fazit

Bei Pyrolyse oder Vergasung werden flüssige und gasförmige Produkte gewonnen, die wieder zur Synthese von Kunststoffen oder zumindest als Treibstoffe eingesetzt werden können. Allerdings bleibt auch hier die Polymerstruktur nicht erhalten. Die Verfahren gelten somit nicht als werkstoffliches Recycling im Sinne von § 16 des Verpackungsgesetzes (VerpackG) [26, 32]. Die Quote für werkstoffliches Recycling von Verbundverpackungen liegt derzeit bei 55 % und wird zum Jahr 2022 auf 70 % angehoben. Gleiches gilt für die Solvolyse, die sich für Polyamide und Polyester anbietet.

Der verfahrenstechnische Aufwand ist beim chemischen Recycling höher als beim mechanischen Recycling. Inwieweit dieser Aufwand überall dort geleistet werden kann, wo Kunststoffabfälle anfallen, die sich nicht mehr ohne weiteres mechanisch recyceln lassen, ist fraglich. In Ländern mit hochentwickelter chemischer Industrie sollte das aber zu leisten sein. Hier könnten dann auch durch Importe von Kunststoffabfällen Anlagen mit sehr großer Kapazität errichtet und betrieben werden. Die Standorte der in Tab. S1 und S2 gelisteten Verfahren sind überwiegend in solchen Ländern. Für die Bewertung, ob Verfahren des chemischen Recyclings im Vergleich zur Verbrennung bzw. zum mechanischen Recycling ökologische Vorteile haben, werden detaillierte Energie- und Massenbilanzen sowie der Nachweis der großtechnischen Eignung benötigt. Dann könnte die künftige Stellung des chemischen Recyclings in der Wertungshierarchie neu festgelegt werden [26]. Weitere intensive Forschung und Entwicklung für leistungsfähige Verfahren und Konzepte beim chemischen Recycling sind daher notwendig [33].

Supporting Information

Weiterführende Informationen zu diesem Artikel (Supporting Information) finden Sie unter DOI: <https://doi.org/10.1002/cite.202100115>. Sie beinhalten zusätzliche Literaturstellen in Zusammenhang mit dieser Arbeit [34–58].

Dieser Artikel entstand nach Diskussion in der ProcessNet Fachgruppe Rohstoffe (Fachgemeinschaft SUPER) unter Vorsitz von Prof. Martin Bertin, TU Bergakademie Freiberg. Die Autoren danken den weiteren Beiratsmitgliedern der Fachgruppe für ihren fachlichen Input. Open Access Veröffentlichung ermöglicht und organisiert durch Projekt DEAL.



Arkadi Maisels studierte Physik an der Physikalisch-Technischen Hochschule zu Moskau und promovierte anschließend am Institut für Strukturelle Makrokinetik der Russischen Akademie der Wissenschaften im Jahr 1996. Danach absolvierte einen Postdoc auf dem Gebiet der Prozess- und Aerosolmesstechnik an der Universität Duisburg-

Essen. Nach einem weiteren Postdoc beim Max-Planck-Institut für Eisenforschung in Düsseldorf begann er 2005 seine Karriere bei Evonik AG (damals Degussa AG) und ist zurzeit für Technology Scouting im Konzernbereich CREAVIS zuständig.



Andreas Hiller studierte Wärme- und Energietechnik an der TU Dresden, Diplom 1995. Nach einer Beschäftigung in einem Ingenieurbüro ist er seit 1997 wissenschaftlicher Mitarbeiter an der Professur für Energieverfahrenstechnik der TU Dresden, wo er 2004 auch promovierte.



Franz-Georg Simon studierte Chemie an den Universitäten Frankfurt/Main und Mainz und promovierte 1989. Von 1990 bis 1998 arbeitete er im ABB Forschungszentrum in der Schweiz, wo er sich mit Rückständen aus der thermischen Abfallbehandlung und Verfahren zur Luftreinhaltung befasste. 1998 wechselte er zur Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung in Berlin und leitet dort den Fachbereich Schadstofftransfer und Umwelttechnologien.

Literatur

- [1] C. Lindner, J. Schmitt, J. Hein, *Stoffstrombild Kunststoffe in Deutschland 2019*, Kurzfassung der Converso Studie, Converso Market & Strategy GmbH, Mainaschaff **2020**.
- [2] H. Staudinger, *Ber. Dtsch. Chem. Ges. (A and B Series)* **1920**, 53 (6), 1073–1085.
- [3] R. Geyer, J. R. Jambeck, K. L. Law, *Sci. Adv.* **2017**, 3 (7), e1700782.
- [4] J. R. Jambeck, R. Geyer, C. Wilcox, T. R. Siegler, M. Perryman, A. Andrady, R. Narayan, K. L. Law, *Science* **2015**, 347 (6223), 768–771.
- [5] *Plastics – the Facts 2018, An analysis of European plastics production, demand and waste data*, PlasticsEurope, Association of Plastics Manufactures, Brussels **2018**.
- [6] Z. O. G. Schyns, M. P. Shaver, *Macromol. Rapid Commun.* **2021**, 42 (3), 2000415.
- [7] *Plastics – the Facts 2020, An analysis of European plastics production, demand and waste data*, PlasticsEurope, Association of Plastics Manufactures, Brussels **2020**.
- [8] A. Lechleitner, D. Schwabl, T. Schubert, M. Bauer, M. Lehner, *Oesterr. Wasser-Abfallwirtsch.* **2020**, 72, 47–60.
- [9] K. Ragaert, L. Delva, K. Van Geem, *Waste Manage.* **2017**, 69, 24–58.
- [10] A. Rahimi, J. M. García, *Nat. Rev. Chem.* **2017**, 1, 0046.
- [11] J. M. Garcia, M. L. Robertson, *Science* **2020**, 358 (6365), 870–872.
- [12] M. Solis, S. Silveira, *Waste Manage.* **2020**, 105, 128–138.
- [13] *Packaging waste by waste management operations*, Online data code, ENV_WASPAC, eurostat, Statistical Office of the EU, Luxemburg **2021**.
- [14] S. Russo, A. Valero, A. Valero, M. Iglesias-Émbil, *Energies* **2021**, 14 (2), 363.
- [15] P. Wienchol, A. Szłęk, M. Ditaranto, *Energy* **2020**, 198, 117352.
- [16] E. Butler, G. Devlin, K. McDonnell, *Waste Biomass Valorization* **2011**, 2 (3), 227–255.
- [17] Material Economics, *Industrial Transformation 2050 – Pathways to Net-Zero Emissions from EU Heavy Industry*, University of Cambridge Institute for Sustainability Leadership (CISL) **2019**.
- [18] H. Rubel, U. Jung, C. Follette, A. Meyer zum Felde, S. Appathurai, M. Benedi Diaz, *A circular solution to plastic waste*, Boston Consulting Group, München **2019**.
- [19] M. Larrain, S. Van Passel, G. Thomassen, U. Kresovic, N. Alderweireldt, E. Moerman, P. Billen, *J. Clean. Prod.* **2020**, 270, 122442.
- [20] A. Sheel, D. Pant, 4 – Chemical Depolymerization of PET Bottles via Glycolysis, in *Recycling of Polyethylene Terephthalate Bottles* (Eds: S. Thomas, A. Rane, K. Kanny, V. K. Abitha, M. G. Thomas), William Andrew Publishing, Norwich, NY **2019**.
- [21] P. Gupta, S. Bhandari, 6 – Chemical Depolymerization of PET Bottles via Ammonolysis and Aminolysis, in *Recycling of Polyethylene Terephthalate Bottles* (Eds: S. Thomas, A. Rane, K. Kanny, V. K. Abitha, M. G. Thomas), William Andrew Publishing, Norwich, NY **2019**.
- [22] M. Han, 5 – Depolymerization of PET Bottle via Methanolysis and Hydrolysis, in *Recycling of Polyethylene Terephthalate Bottles* (Eds: S. Thomas, A. Rane, K. Kanny, V. K. Abitha, M. G. Thomas), William Andrew Publishing, Norwich, NY **2019**.
- [23] A. Sheel, D. Pant, 6 – Chemical Depolymerization of Polyurethane Foams via Glycolysis and Hydrolysis, in *Recycling of Polyurethane Foams* (Eds: S. Thomas, A. Rane, K. Kanny, V. K. Abitha, M. G. Thomas), William Andrew Publishing, Norwich, NY **2018**.
- [24] W. d'Ambrieres, *Field Act. Sci. Rep.* **2019**, Special Issue 19, 12–21.
- [25] H.-J. Gehrman, M. Hiebel, F. G. Simon, *J. Eng.* **2017**, 2017, 3567865.
- [26] J. Vogel, F. Krüger, M. Fabian, *Chemisches Recycling*, Umweltbundesamt, Dessau-Roßlau, Juli **2020**.
- [27] J. Dewulf, H. Van Langenhove, *Int. J. Energy Res.* **2004**, 28, 969–976.
- [28] *Chemical Recycling: Greenhouse gas emission reduction potential of an emerging waste management route*, Quantis Intl., CEFIC, Brussels **2020**.
- [29] K. O. Schallaböck, R. Carpentier, M. Fishedick, M. Ritthoff, G. Wilke, *Modellregionen Elektromobilität: Umweltbegleitforschung Elektromobilität*, Wuppertal Report, 6. Wuppertal Institut für Klima, Umwelt, Energie, Wuppertal **2012**.
- [30] S. Tabrizi, A. N. Rollinson, M. Hoffmann, E. Favoino, Die Umweltauswirkungen des chemischen Recyclings von Kunststoffen, Zero waste Europe, **2020**.
- [31] *Making change possible, 4 challenges for the energy transition*, Sustainability report. Saipem SpA, Mailand **2019**.
- [32] Chemisches Recycling von Verpackungen aus Kunststoff ist keine werkstoffliche Verwertung, *EUWID Recycling und Entsorgung* **2018**, 42.
- [33] U. Schlotter, F. Ausfelder, K. Wendler, I. Sartorius, M. A. Reuter, A. Köhne, D. Stapf, D. Köpke, C. Mühlhaus, M. Ritthoff, W. Golla, *Forschungspolitische Empfehlungen zum chemischen Kunststoffrecycling – neue Verfahren und Konzepte*, BKV, DECHEMA, PlasticsEurope, VCI **2021**.
- [34] Press release, *Indaver receives permit to build a new plant for the chemical recycling of end-of-life plastics*, Indaver, Mechelen, 15. Oktober **2019**.
- [35] J. Neumann, N. Jäger, A. Apfelbacher, R. Daschner, S. Binder, A. Hornung, *Biomass Bioenergy* **2016**, 89, 91–97.
- [36] J. Neumann, S. Binder, A. Apfelbacher, J. R. Gasson, P. Ramirez García, A. Hornung, *J. Anal. Appl. Pyrolysis* **2015**, 113, 137–142.
- [37] J. Neumann, J. Meyer, M. Ouadi, A. Apfelbacher, S. Binder, A. Hornung, *Waste Manage.* **2016**, 47, 141–148.
- [38] T. Schubert, M. Lehner, T. Karner, W. Hofer, A. Lechleitner, *Fuel Process. Technol.* **2019**, 193, 204–211.
- [39] www.splainex.com, (accessed on June 16, 2021)
- [40] H. Smuda, Method for transformation of polyolefine wastes into hydrocarbons and a plant for performing the method, *Patent US 6777581 B1*, **2004**.
- [41] O. Tóth, A. Holló, J. Hancsók, *J. Environ. Manage.* **2020**, 265, 110562.
- [42] O. Tóth, A. Holló, J. Hancsók, *Chem. Eng. Trans.* **2019**, 76, 1345–1350.

- [43] M. Tomasi Morgano, H. Leibold, F. Richter, D. Stapf, H. Seifert, *Waste Manage.* **2018**, *73*, 487–495.
- [44] <https://rudraenvsolution.com/productprocess.html> (accessed on June 16, 2021)
- [45] <http://polycycl.com/technology.html> (accessed on June 16, 2021)
- [46] <https://mmatwo.eu> (accessed on June 16, 2021)
- [47] J. Scheirs, in *Overview of Commercial Pyrolysis Processes for Waste Plastics, in Feedstock Recycling and Pyrolysis of Waste Plastics: Converting Waste Plastics into Diesel and Other Fuels* (Eds: J. Scheirs, W. Kaminsky), John Wiley & Sons, Chichester, **2006**, 383–434.
- [48] www.adherent-tech.com/recycling_technologies (accessed on June 16, 2021)
- [49] www.hs-anlagentechnik.de (accessed on June 16, 2021)
- [50] www.getzner.com/de (accessed on June 16, 2021)
- [51] www.emeryoleo.com/Eco-Friendly-Polyols.ph (accessed on June 16, 2021)
- [52] T. Fukaya, H. Watando, S. Fujieda, S. Saya, C. M. Thai, M. Yamamoto, *Polym. Degrad. Stab.* **2006**, *91* (11), 2549–2553.
- [53] www.loopindustries.com/en/ (accessed on June 16, 2021)
- [54] <https://ioniq.com/> (accessed on June 16, 2021)
- [55] www.meltemkimya.com.tr/en/rpet-resin-2/ (accessed on June 16, 2021)
- [56] www.tytonbio.com (accessed on June 16, 2021)
- [57] www.troypolymers.com/ (accessed on June 16, 2021)
- [58] <https://muratechnology.com/> (accessed on June 16, 2021)