

Project EcoFuel: Renewable electricity-based, cyclic and economic production of fuel

Johann Bachler^a, Kerstin Wiesner-Fleischer^b, Maximilian Fleischer^b, Remigiusz Pastusiak^b, Elfriede Simon^b, Aleksander Makaruk^c, Michael Filippi^d, Tim Möller^d, Wen Ju^d, Peter Strasser^d, Elena C. Corbos^e, Toby Hodges^e, Joost Smith^f, Christian Kortus^a, Thomas Sacher^a, Nathalie Cros^g, Ferdinand Vogelgsang^h, Lénárd-István Csepei^h, Arne Roth^h

^aAVL List GmbH, A-8010 Graz, Austria, ^bSiemens Energy, 81739 Munich, Germany, ^caxiom angewandte Prozeßtechnik GmbH, A-2483 Ebreichsdorf, Austria, ^dThe Electrochemical Energy, Catalysis, and Materials Science Laboratory, Department of Chemistry, Chemical Engineering Division, Technical University Berlin, 10623 Berlin, Germany, ^eJohnson Matthey Technology Centre, Sonning Common, RG4 9LH, UK, ^fJohnson Matthey, W26LG London, UK, ^gPretego, 34090 Montpellier, France, ^hFraunhofer IGB, 94315 Straubing, Germany
johann.bachler@avl.com

Abstract: E-Fuels, die aus CO₂ unter Verwendung von erneuerbarer Energie hergestellt werden, leiden derzeit unter einer geringen Energieeffizienz, einem hohen Energiebedarf und damit verbundenen hohen Kosten, und werden noch nicht im benötigten industriellen Maßstab hergestellt. Um kommerziell rentabel zu sein, erfordert die Produktion von E-Fuels die Verfügbarkeit großer Mengen an kostengünstigem Strom. Das Horizon 2020-Projekt EcoFuel entwickelt und demonstriert mit dem Ziel, diese Defizite zu überwinden, eine neuartige Prozesskette, welche die Energieeffizienz in der Produktion von synthetischem Kraftstoff aus CO₂ und Wasser deutlich verbessert. Die Prozesskette umfasst a) die Rückgewinnung von CO₂ aus der Atmosphäre über einen neuartigen Direct-Air-Capture (DAC)-Ansatz, b) die direkte elektrokatalytische Reduktion von CO₂ zu C₂/C₃-Kohlenwasserstoffen im Niedertemperaturbereich und c) die thermokatalytische Verflüssigung von Alkenen, sowie die Aufbereitung und Fraktionierung zu Kraftstoffen. Die direkte elektrokatalytische CO₂-Reduzierung in Kohlenwasserstoffe bietet im Vergleich zu klassischen Power-to-X-Technologien, die der Wasserelektrolyse nachgeschaltet sind, deutlich erhöhte Effizienzpotenziale bei gleichzeitiger Reduktion der notwendigen Prozessschritte. Übergeordnete Ziele von EcoFuel sind die Reduzierung des Primärenergiebedarfs, die Steigerung der Ressourcen- und Kosteneffizienz der Kraftstoffproduktion, die Minimierung des ökologischen Fußabdrucks der Herstellung sowie der Nachweis des ökologischen und ökonomischen Vorteils.

1 Einleitung

Die Kohlenstoffabscheidung und die anschließende elektrochemische Umwandlung von CO₂ zu Kraftstoffen hat ein immenses Potenzial zur Defossilisierung von Industriesektoren und bietet eine alternative Speicherlösung für die intermittierende Versorgung mit erneuerbaren Energien. Solche nachhaltigen Kraftstoffe sind eine der wichtigsten Säulen, um bis 2050 Netto-Null-Emissionen im Transportsektor, insbesondere in schwer zu dekarbonisierenden Anwendungen des Verkehrssektors wie der Luftfahrt, der Schifffahrt oder dem Langstrecken-Lkw, zu erreichen. Die Erneuerbare-Energien-Richtlinie und ihre Aktualisierungen [1] haben Zielquoten für Energieträger nicht biogenen Ursprungs festgelegt.

Die heutigen Nachteile synthetischer Kraftstoffe sind der Energiebedarf für die Herstellung, die damit verbundenen Energiekosten und ihre großtechnische Verfügbarkeit. EcoFuel behandelt die Herausforderungen des Energiebedarfs und der Verfügbarkeit, und sieht eine Hochskalierung bis hin zur Industrialisierung vor.

2 Das Projekt EcoFuel und seine Prozessschritte

EcoFuel entwickelt und demonstriert eine neuartige Prozesskette (Bild 1), die die Energieeffizienz für die Herstellung von synthetischem Kraftstoff aus CO₂ und Wasser deutlich verbessert.

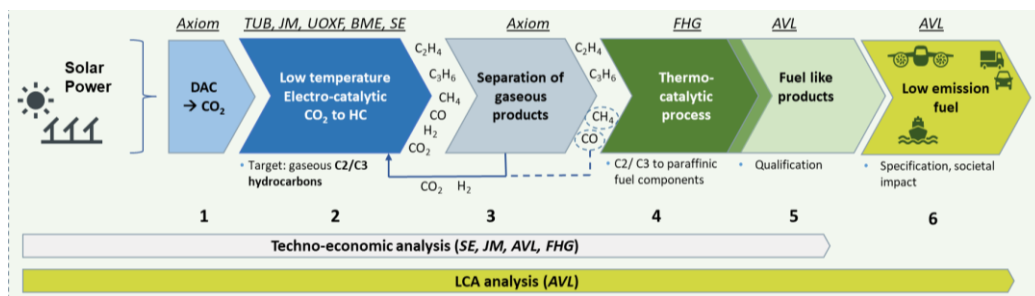


Bild 1: Der EcoFuel Prozess - Übersicht

Die Implementierung dieser neuen Prozesskette hat das Ziel, den Wirkungsgrad der Gewinnung des (über Electricity-to-Liquid) Kohlenwasserstoff-Kraftstoffmoleküls in einer optimierten Industrialisierung auf einen Wert von 54 % zu steigern und so enorme Mengen an wertvoller erneuerbarer Energie für die zukünftige Massenproduktion von CO₂-neutralen, nachhaltigen Kraftstoffen einzusparen. Die erste Hälfte des Projekts widmete sich der Grundlagenforschung und experimentellen Untersuchungen der Komponenten der Prozesskette. Die zweite Projekthälfte konzentrierte sich auf die Optimierung und Stabilität der Prozessparameter und ihrer Elemente, den Aufbau eines integrierten elektrochemischen 1kW-Systems sowie die Demonstration der kombinierten Reaktionskaskade. Die entstehenden Kraftstoffvorprodukte werden messtechnisch und simulatorisch analysiert und qualifiziert. Die gesamte Prozesskette wird ökonomisch und ökologisch bewertet.

2.1 Inputs für die Kraftstoffsynthese

Als Kohlenstoffquelle verwendet das EcoFuel-Verfahren ein kürzlich entwickeltes Konzept zur atmosphärischen CO₂-Abscheidung (Bild 2). Es besteht aus drei Hauptschritten: (i) Absorption von Kohlendioxid aus der Atmosphäre an Metallionenkarbonaten, (ii) Karbonatanreicherung mittels Elektrodialyse und (iii) thermische Desorption von konzentriertem Kohlendioxid. Dieser wird als Ausgangsbasis für die Kraftstoffsynthese verwendet. Die drei Schritte sind durch zwei getrennte Flüssigkarbonatkreisläufe miteinander verbunden.

Um die Machbarkeit des Verfahrens zu demonstrieren, wurden alle drei Anlagen in einem Labormaßstab experimentell konzipiert, montiert und in Betrieb genommen. Die Experimente zur Kohlenstoffabscheidung bewiesen, dass sie in der Lage sind, atmosphärisches CO₂ abzuscheiden und in hoher Konzentration und Reinheit bereitzustellen. Die installierte DAC-Versuchsanlage wird mit atmosphärischer Luft mit einer CO₂-Konzentration von ~400 ppm CO₂ beladen und liefert 0,95kg atmosphärisches CO₂ pro Stunde.

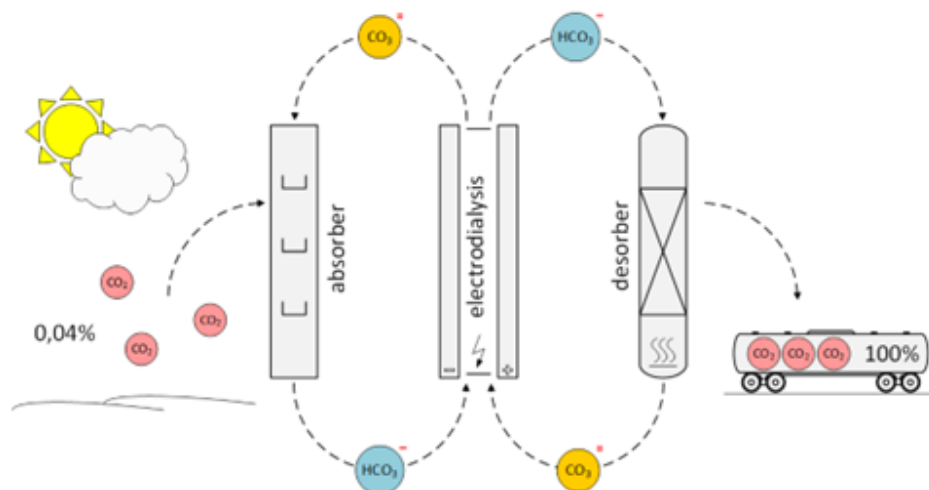


Bild 2: Grundlegendes Konzept des EcoFuel DAC-Prozesses

Die Anlage bewies, dass das neue DAC-Verfahren in der Lage ist, reine CO₂-Prozessströme bei einem deutlich reduzierten Bedarf an thermischer <800 kWh (~75 °C) und elektrischer <1500 kWh Energie pro Tonne abgetrenntem CO₂ aus der Luft bereitzustellen. Bei ≤150 €/t CO₂-Lieferkosten kann damit das gesetzte Projektziel erreicht werden.

Darüber hinaus wird Wasser als Ausgangsstoff für das EcoFuel-Verfahren bei der elektrokatalytischen Reduktion von CO₂ zu C2/C3-Alkenen benötigt, ebenso als Prozesswasser zur Kühlung im thermokatalytischen Prozess und weiters zum Auffüllen des verdampften Wassers im Absorptionsprozess der DAC-Anlage. Um das Thema „Zugang zu Wasser“ in einem breiteren Kontext zu betrachten, wurde in einer Studie die Entsalzung von Meerwasser als die Methode mit dem höchsten Potenzial zur Lösung der Wasserprobleme identifiziert. Während die Kosten für CO₂ einen erheblichen Einfluss auf die Gesamtkosten synthetischer Kraftstoffe haben, betragen die Kosten für die Wasserbereitstellung weniger als 1 % der Kosten für die CO₂-Versorgung.

2.2 Die elektro-chemische CO₂ Reduktion

Die elektrokatalytische CO₂-Reduktionseinheit (ECO2R) reduziert das CO₂ aus der DAC-Anlage mit Hilfe von elektrischer Energie zu Ethylen. Intensive Entwicklungsarbeit wurde an den Katalysatoren, der Elektrolysezelle, der Kathode, der Anode und den damit verbundenen Prozessparametern (z.B. Stromdichte) geleistet.

Die Katalysatorentwicklung konzentrierte sich auf die Synthese und das Screening neuer Elektrokatalysatoren für die kathodische elektrokatalytische CO₂-Reduktion (ECO2R) und die anodische elektrokatalytische Oxidation von Wasser zu Sauerstoff (OER). Bei der Entwicklung der CO₂RR-Katalysatoren (CO₂-Reduktionsreaktion) konzentrierten sich die Partner auf die Herstellung von Katalysatoren auf Cu-Basis mit dem Ziel, die Produktion von gasförmigen C₂+Kohlenwasserstoffen zu kontrollieren und zu erhöhen und gleichzeitig den Anteil von Konkurrenzprodukten bei niedrigen kinetischen Überpotentialen zu reduzieren. Eine Vielzahl von PGM- und Nicht-PGM-OER-Katalysatoren wurden untersucht. Die Forschung am Anodenkatalysator zielte darauf ab, Edelmetall-Katalysatorkomponenten zu reduzieren und zu ersetzen, während die kinetischen Überpotentiale erhalten bzw. gesenkt wurden, wodurch wiederum die Energieeffizienz erhöht werden konnte. Die Dauerhaltbarkeit wurde durch Vergleich der Aktivitätsverluste bewertet.

Für die Kathode wurden auch verschiedene Ionomer- und GDL (Gas Diffusion Layer)-Eigenschaften untersucht, mit dem Ziel, eine Elektrodenflutung in der Zelle zu unterbinden bzw. weitestgehend zu vermeiden. Die CuO-Kathoden wurden in einer Durchflusselektrolysezelle bei verschiedenen Stromdichten hinsichtlich des elektrokatalytischen Reduktionspotentials von CO₂ getestet. Das Zielprodukt war Ethylen.

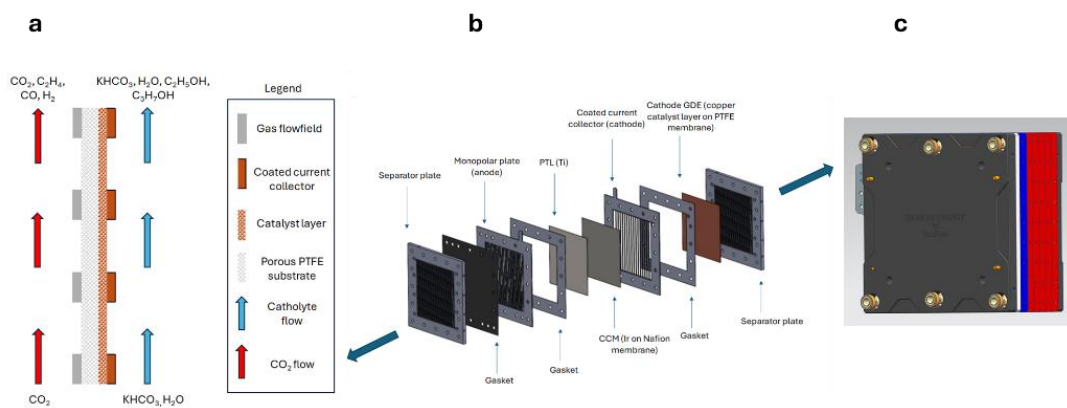


Bild 3: Zellendesign für die EcoFuel-Elektrolyseeinheit. (a) Schema der Kathode. (b) Skalierte Zelle einschließlich des neuartigen Stromkollektorsatzes. (c) Zellstack

Die definierte und entwickelte elektrochemische Zelle besteht aus einer Kombination von PTFE-Substraten und einer CuO-Katalysatorschicht für die Kathodengasdiffusionselektroden. Diese ermöglichen eine selektive CO₂-Reduktion zu Ethylen bei großen Stromdichten. Abbildung 3a zeigt die Kathoden-GDE-Komponente (Gasdiffusionselektrode). Zusätzlich zu dieser PTFE-basierten GDE wurde ein neuartiger Stromkollektor entwickelt, der ein Scale-up auf 300 cm² ermöglicht. Abbildung 3b zeigt ein vergrößertes Zelldesign, das die Zellkomponenten enthält, und Abbildung 3c den skalierten Zellstack.

2.3 Die Olefin Separation Unit (OSU)

Die im ECO2R-Elektrolyseur-Zellstack entstehenden gasförmigen C₂+ Kohlenwasserstoffe sind der Input des nachfolgenden Gastrennungsprozessschritts. Eine Abtrennung der relevanten C₂+ Kohlenwasserstoffe von Wasserstoff und des nicht umgesetztem CO₂, welche beide dem ECO2R-Prozess rückgeführt werden, ist notwendig, um die elektrokatalytische CO₂-Umwandlung und Energieeffizienz zu erhöhen. Diese Olefin Separation Unit trennt den Abgasstrom der ECO2R auf und reichert Ethylen im Abwasserstrom an.

Zuerst wird Ethen und Kohlenmonoxid von H₂ und CO₂ abgetrennt. Danach reichert sich Ethen durch die Abtrennung von CO an. Im dritten Schritt wird das H₂ und CO₂ Gasgemisch aufgetrennt. Das entwickelte OSU-Design umfasst ein Multi-Permeator-Multi-Kompressor-System zur Anreicherung von C₂+, das sowohl eine hohen Reinheitsgrad als auch eine hohe Rückgewinnungsrate erreicht. Das die OSU verlassende Gasgemisch für die nachfolgende OTL-Synthese enthält nur noch sehr geringe Mengen an H₂, CH₄ und CO.

2.4 Die Olefin-to-Liquid (Otl) Reaktion

Nach der Anreicherung und Reinigung des Ethylenstroms wird er in den chemischen Umwandlungsreaktor geleitet. In diesem Festbettreaktor katalysiert ein Ni-Katalysator die Oligomerisierungsreaktion bei Temperaturen von 260 °C und 30 bar Gesamtdruck. Bei den Zielprodukten handelt es sich um Flüssigkraftstoff-Vorläufer, hauptsächlich lineare und verzweigte Olefine mit einer Kohlenstoffkettenlänge von C6 bis C14. In einem weiteren Schritt werden diese Olefine unter erhöhten Temperaturen und Drücken hydriert, wobei Wasserstoff verbraucht wird, der ein Nebenprodukt der elektrokatalytischen CO₂-Reduktion ist. Das Endprodukt weist derzeit Eigenschaften zwischen herkömmlichem Dieselmotorkraftstoff und Kerosin auf.

3 Ergebnisse und Ausblick

Die EcoFuel-Reaktionssequenz besteht aus mehreren, separaten Einheiten (Direct-Air-Capture Anlage, elektrokatalytischen CO₂-Reduktion, Olefin Separation Unit und Olefin-to-Liquid-Einheit). Die Einheiten basieren auf den Forschungsarbeiten und Erkenntnissen aus der ersten Projektphase. Nachdem alle Prozessschritte zu einer Kaskade verbunden und aufeinander abgestimmt wurden, wurden Anpassungen vorgenommen sowie zusätzliche Prozessschritte eingeführt, um ein wirtschaftlich und technisch geeignetes Verfahren zu realisieren, um als Zielprodukt ein flüssiges Kraftstoff-Produkt zu erhalten. Die Kohlenstoffausbeute - in Relation zum luftgebundenen CO₂ - wurde optimiert. Die Arbeit umfasste auch eine HAZOP-Analyse und eine kombinierte LCA/TEA-Bewertung.

Für die Realisierung der Reaktionskaskade wurden die einzelnen Prozesseinheiten miteinander verbunden, um den Gesamtprozess zu definieren, und zu demonstrieren (Bild 4). Die sich ergebenden Stoffstromflüsse und Skalierungsoptionen wurden simulatorisch abgeglichen und optimiert. Ertrags- und Umwandlungswerte basieren auf Kohlenstoffströmen.

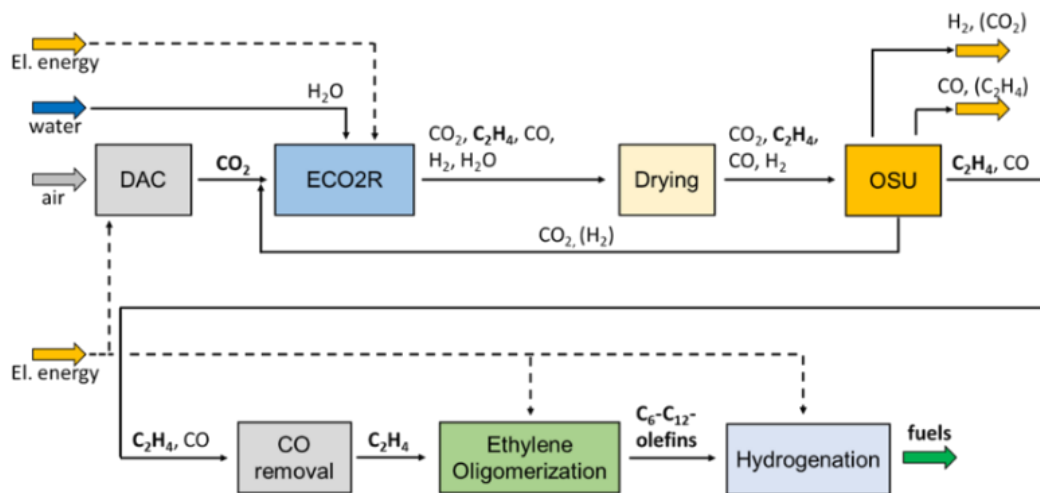


Bild 4: Schematik des EcoFuel Prozesses

Nach einem ersten Layout des Prozessschemas wurden Anpassungen vorgenommen, um ein wirtschaftlich und technisch geeignetes Verfahren zu realisieren: (i) Das nicht umgesetzte CO_2 aus dem ECO2R-Prozeß wird in der OSU abgetrennt und dieser wird zurück zum Elektrolyseur rückgeführt, wodurch die Kohlenstoffeffizienz dieses Prozessschritts auf 58 % erhöht wird. (ii) Ein Trocknungsschritt zwischen ECO2R und OSU entfernt den Wasserdampf. (iii) Eine CO-Abscheideeinheit entfernt das CO durch Oxidation aus dem ethylenreichen Strom nach der OSU. (iv) Eine weitere Optimierung bestand darin, die Olefin-Oligomerisationseinheit bei höheren Temperaturen laufen zu lassen, um die Bildung von Ni-Carbonyl während der Oligomerisierungsreaktion zu vermeiden.

Basierend auf den Daten der durchgeführten Arbeiten wurde das Konzept für die Reaktionskaskade von der elektrochemischen CO_2 -Reduktion zu C2/C3-Kohlenwasserstoffen und deren weiterer thermokatalytischer Umwandlung in Kraftstoffprodukte entworfen. Nach erfolgter Konstruktion und Aufbau der elektrochemischen und thermokatalytischen Systeme werden gegen Ende des Projekts die Systeme unter industriell relevanten Bedingungen betrieben. Hierfür entsteht zu Demonstrations- und Analysezwecken eine 300 cm^2 Elektrode als 5-Zellen-Stack mit einer Leistung von $\sim 1 \text{ kW}$. Die entstehenden Kraftstoffprodukte wurden zur Analyse und Bewertung der Eigenschaften hinsichtlich den Spezifikationen existierender Kraftstoffnormen übergeben.

Abschließend bewertet ein Life Cycle Assessment (LCA) in Kombination mit einem Techno Economical Assessment (TEA) die Effizienzsteigerungen der neuartigen Prozesskette. Zu Beginn des Projekts wurde eine Metastudie zu Ökobilanz und TEA bereits existierender alternativer Kraftstoffe durchgeführt, um die Ausgangsbasis für den Vergleich mit dem endgültigen EcoFuel-Produkt zu ermitteln [2]. Für die kombinierte Analyse wurde ein theoretisches Scale-up einer 1-GW-Fabrik modelliert. Je nach Strommix liegen die vorläufigen Ergebnisse für die Ökobilanz zwischen ~10g (PV) und ~40g (europäischer Strommix) CO_{2eq}/MJ. Die geschätzten Produktionskosten liegen zwischen 1,05€/l (Patagonien) und 4,06€/l (europäischer Strommix) EcoFuel. Transport und Lagerung wurden aktuell noch nicht berücksichtigt, da sie vom gewählten Produktionsstandort, dem Endprodukt und dessen Verwendung abhängen. Bis Projektende wird eine weitere Verbesserung der LCA- und TEA-Ergebnisse erwartet.

Mögliche Anwendungen verschiedener Komponenten des EcoFuel-Prozesses sind: i) Grünes Ethylen auf Basis mittelgroßer Elektrolyseurgrößen; ii) Grüner Kraftstoff ; iii) Herstellung von katalysatorbeschichteten Membranen (CCM) für Protonenaustauschmembran-Elektrolyseure (PEM).

Eine Analyse der Charge-1-Kraftstoffprobe zeigt eine Destillationskurve hauptsächlich zwischen Benzin- und Dieselmotorkraftstoff. Mittels eines weiteren Raffinationsprozesses wären somit folgende Endprodukte möglich: (i) Diesel B7 (A1) (EN 590); ii) paraffinischer Dieselmotorkraftstoff (ähnlich HVO -A3) (EN 15940); iii) Kerosin (C-JET A-1 / JP-8); iv) Benzin (EN 228). Die Substitution von Kerosin oder Dieselmotorkraftstoff hat jedoch eine höhere Priorität als die Substitution von Benzin, daher ist es das Ziel, den Anteil von Kerosin/Diesel-ähnlichen Fraktionen zu erhöhen. Bis zum Projektende werden außerdem weitere technische Fortschritte hinsichtlich Effizienz und Langzeitstabilität erwartet.

Acknowledgements

This project has received funding from the European Union's Horizon 2020 research and innovation programme under grant agreement No 101006701.

Reference List

- [1] Directive EU/2018/2001, [EUR-Lex - 32018L2001 - EN - EUR-Lex \(europa.eu\)](https://eur-lex.europa.eu/eli/dir/2018/2001/oj)

- [2] Literature review of existing LCA and techno-economic studies on competitive technologies and fuels production, Deliverable 7.1, Horizon Project EcoFuel, Ch. Kortus, H. MacPherson, et al.