

Update zur Kohlenstoffabscheidung und -nutzung

[Ahmed Al-Mamoori](#), [Anirudh Krishnamurthy](#), [Ali A. Rownaghi](#), [Dr. Fateme Rezaei](#)

Erstmals veröffentlicht: 23. Januar 2017

<https://doi.org/10.1002/ente.201600747>

Zitate: 136

Abstrakt

In den letzten Jahren wurde die Kohlenstoffabscheidung und -nutzung (CCU) als mögliche technologische Lösung für die Probleme der Treibhausgasemissionen und des ständig wachsenden Energiebedarfs vorgeschlagen. Um den Klimawandel und die Versauerung der Ozeane infolge anthropogener CO₂-Emissionen zu bekämpfen, wurden bereits Anstrengungen unternommen, um CO₂ aus großen Punktquellen, insbesondere Kraftwerken, einzufangen und zu binden. Die Verwendung von CO₂ als Ausgangsmaterial zur Herstellung wertvoller Chemikalien, Materialien und Transporttreibstoffe ist jedoch möglicherweise wünschenswerter und bietet eine bessere und langfristige Lösung als die Sequestrierung. Die Produkte von CO₂Die Verwendung kann chemische Rohstoffe in der Feinchemie-, Pharma- und Polymerindustrie ergänzen oder ersetzen. In dieser Übersicht geben wir zunächst einen Überblick über den aktuellen Stand der CO₂-Erfassungstechnologien und die damit verbundenen Herausforderungen und Chancen in Bezug auf Effizienz und Wirtschaftlichkeit, gefolgt von einem Überblick über verschiedene Ansätze zur Kohlenstoffverwertung. Der aktuelle Status der kombinierten CO₂-Abscheidung und -Nutzung als neuartiger effizienter und kostengünstiger Ansatz wird ebenfalls kurz erörtert. Wir fassen die wichtigsten Herausforderungen zusammen, die mit dem Design, der Entwicklung und dem großtechnischen Einsatz von CO₂ verbunden sind Erfassungs- und Nutzungsprozesse, um eine Perspektive und einen Fahrplan für die Entwicklung neuer Technologien und Möglichkeiten zur Beschleunigung ihrer Skalierung in naher Zukunft bereitzustellen.

1 Einführung und Motivation

Es ist allgemein anerkannt, dass fossile Brennstoffe mindestens in den nächsten 50 Jahren die Hauptenergiequelle bleiben werden, und die aus solchen Energiequellen stammenden CO₂-Emissionen tragen erheblich zum globalen Klimawandel bei. **1** Dies erfordert kurzfristig den Einsatz fortschrittlicher kohlenstoffarmer Technologien für fossile Energien. Auf der UN-Klimakonferenz im Dezember 2015 in Paris wurde ein langfristiges Ziel vereinbart, die durchschnittliche Erwärmung unter 2 °C zu halten. Dies kann erreicht werden, indem zwei langfristige Emissionsziele berücksichtigt werden: Erstens ein möglichst baldiger Höhepunkt der Emissionen; und dann ein Ziel der Netto-Treibhausgasneutralität (ausgedrückt als

Gleichgewicht zwischen anthropogenen Emissionen durch Quellen und Entfernung durch Senken) in der zweiten Hälfte dieses Jahrhunderts. **2** Daher ist es unbedingt erforderlich, solche anthropogenen Emissionen zu reduzieren.

Andererseits wird mit der Zunahme der Weltbevölkerung erwartet, dass die Nachfrage nach Energieversorgung in den nächsten Jahrzehnten erheblich zunimmt, und daher sind neue und erneuerbare Energiequellen erforderlich, um diese Nachfrage zu befriedigen. Abgefangenes CO₂ kann als wertvolles Ausgangsmaterial für die Herstellung vieler wertschöpfender Chemikalien und Kraftstoffe behandelt werden und bietet somit eine Lösung für die Herausforderungen der Emissionskontrolle und der Energieversorgung. **3**

Die Konzepte der Abscheidung, Nutzung und Sequestrierung von CO₂ (CCUS) werden häufig im Zusammenhang mit dem Kohlenstoffmanagement und dem Klimawandel verwendet. Unter Kohlenstoffabscheidung und -speicherung (CCS) versteht man Technologien, die sich auf die selektive Entfernung von CO₂ aus Gasströmen, die Komprimierung in einen überkritischen Zustand und schließlich auf den Transport und die Sequestrierung in geologischen Formationen, einschließlich erschöpfter Öl- und Gasspeicher oder Ozeane, konzentrieren. **4** Trotz Versprechen, große Mengen an CO₂ zu mindern und trotz umfangreicher staatlicher Anreize und regulatorischer Faktoren haben sich die hohen Kosten von CCS weitgehend auf den groß angelegten Einsatz ausgewirkt. Die hohen Kosten für CCS resultieren hauptsächlich aus der Erfassung und Komprimierung, die 75% der Gesamtkosten von CCS ausmachen. Laut dem 2013 veröffentlichten Bericht der Internationalen Energieagentur (IEA) wird **5** CCS erheblich zur Emissionsreduzierung bei allen anwendbaren Prozessen in der Stromerzeugung und in industriellen Anwendungen (z. B. Zement, Eisen und Stahl, Ö raffinerie, Zellstoff und Papier sowie Biokraftstoffe) beitragen (Sektoren) durch die Implementierung von 3000 CCS-Projekten auf der ganzen Welt, wobei jährlich über 7000 Mt CO₂ gespeichert werden.

Als attraktivere Alternative haben CCU-Technologien (Carbon Capture and Use) in jüngster Zeit große Aufmerksamkeit erhalten, um gebundenes CO₂ als erneuerbaren Kohlenstoff-Rohstoff in wertvolle Produkte umzuwandeln, anstatt es dauerhaft zu binden. Tatsächlich behandelt die CCU eingefangenes CO₂ als erneuerbare Ressource, um die herkömmlichen petrochemischen Rohstoffe zu ergänzen oder zu ersetzen. **6** Darüber hinaus sind die langfristigen Auswirkungen der Sequestrierung für diesen Ansatz nicht von Belang. Trotz der erheblichen Vorteile, die CCU im Vergleich zu CCS bietet, ist die Umwandlung von CO₂ und dessen Verwendung in chemischen Reaktionen vor allem aufgrund der thermodynamisch stabilen Natur von CO₂ selbst eine große Herausforderung .

Der Zweck dieses Papiers ist es, die neuesten Entwicklungen auf dem Gebiet der Kohlenstoffabscheidung und -nutzung zu überprüfen und gleichzeitig einen Überblick über aktuelle Herausforderungen und zukünftige Chancen im Kontext des

Kohlenstoffmanagements zu geben. Detaillierte Beschreibungen verschiedener Erfassungs- und Nutzungstechnologien fallen nicht in den Geltungsbereich dieser Überprüfung, und der interessierte Leser wird auf zuvor veröffentlichte Übersichten verwiesen, die neben einer detaillierten Beschreibung auch Lebenszyklusanalysen, Risikobewertungen und Überlegungen zur industriellen Ökologie von berücksichtigten CCU-Technologien. **7 - 11**

2 CO₂-Erfassungsoptionen: Herausforderungen und Chancen

CO₂-Erfassungstechnologien beziehen sich entweder auf die direkte Entfernung von CO₂ aus Rauchgasströmen (als Nachverbrennung bezeichnet) oder auf die Entwicklung fortschrittlicher kohlenstoffarmer Verbrennungssysteme (als Vorverbrennung bezeichnet), die einen integrierten kombinierten Vergasungszyklus (IGCC) umfassen) sowie die Autogenverbrennung, bei der reiner Sauerstoff verwendet wird, um die Kohlenstoffintensität der Stromerzeugung zu verringern. **12** Technoökonomische Analysen haben gezeigt, dass die aktuellen CO₂-Entnahmetechnologien energieintensiv sind und zu einer signifikanten Verringerung der Verbrennungseffizienz sowie zu einem Anstieg des Strompreises führen. Die Wahl der Einfangtechnologie ist je nach CO₂-Quelle branchenübergreifend sehr unterschiedlich und die industriellen Prozesse, die CO₂ erzeugen. Das Einfangen von CO₂ aus verschiedenen Quellen hat unterschiedliche Energieeinbußen. Einige Industrien wie Ethanolproduktionsanlagen produzieren beispielsweise hochkonzentrierte CO₂-Ströme, während Wärmekraftwerke CO₂ in sehr geringen Konzentrationen produzieren und daher viel mehr Energie für ihre Rückgewinnung benötigt wird. **13** Letzteres ist jedoch die größte CO₂-Quelle, was in der Branche ein Rätsel darstellt. Darüber hinaus wurden fortschrittliche überkritische CO₂-Verbrennungsprozesse, bei denen recyceltes CO₂ verwendet wird und die über dem überkritischen Druck von CO₂ arbeiten, als weitere vielversprechende Methoden zur Bekämpfung anthropogener CO₂-Emissionen anerkannt. Die Verwendung von überkritischem CO₂ als Arbeitsmedium in einem Energiekreislauf wurde in einer Vielzahl von Szenarien untersucht und es wurde festgestellt, dass die Anlage im Vergleich zum herkömmlichen Dampfkreislauf energieeffizienter ist. **14** Studien haben auch eine Steigerung des Wirkungsgrads von Dampfturbinen gezeigt, wenn das überkritische CO₂ mit Öl als Arbeitsmedium verglichen wird. Der Nachteil dieses Verfahrens besteht darin, dass Sauerstoff vor der Verwendung vollständig gereinigt werden muss. Ferner gibt es zwei Wege, die verwendet werden können: flüssiges CO₂ und gasförmige CO₂-Rückführung, wobei der erstere kryogen behandeltes CO₂ beinhaltet in flüssiger Form.

In der Regel machen Kraftwerke allein etwa 45% der weltweiten CO₂-Emissionen aus, was erhebliche Möglichkeiten für CCU- und CCS-Optionen als Hauptquellen für gebundenes CO₂ bietet. **15** Der industrielle Einsatz von CO₂-Erfassungstechnologien nach der

Verbrennung wird größere wirtschaftliche Auswirkungen auf die Reduzierung der Erfassungskosten haben als die anderen Optionen. Im besten Fall werden jedoch für ein neues Kraftwerk, das mit den aktuellen Nachverbrennungstechnologien ausgestattet ist, die Kosten für die Erfassung auf ungefähr 56 USD t^{-1} geschätzt, was eine Energiestrafe von 62% für das Kraftwerk bedeutet. **11** Die Kohlenstoffabscheidung wurde bereits in der chemischen Produktion und in der Erdgasindustrie kommerzialisiert. Vor kurzem im Jahr 2014 demonstrierte SaskPower im 110-MW-Kraftwerk Boundary Dam die CO_2 -Abscheidung nach der Verbrennung aus kohlebefeuertem Rauchgas im industriellen Maßstab. **16** In Abbildung **1** sind die verschiedenen Erfassungsrouten dargestellt, die in den letzten Jahrzehnten in Industrie und Wissenschaft untersucht wurden und die im nächsten Abschnitt erörtert werden.

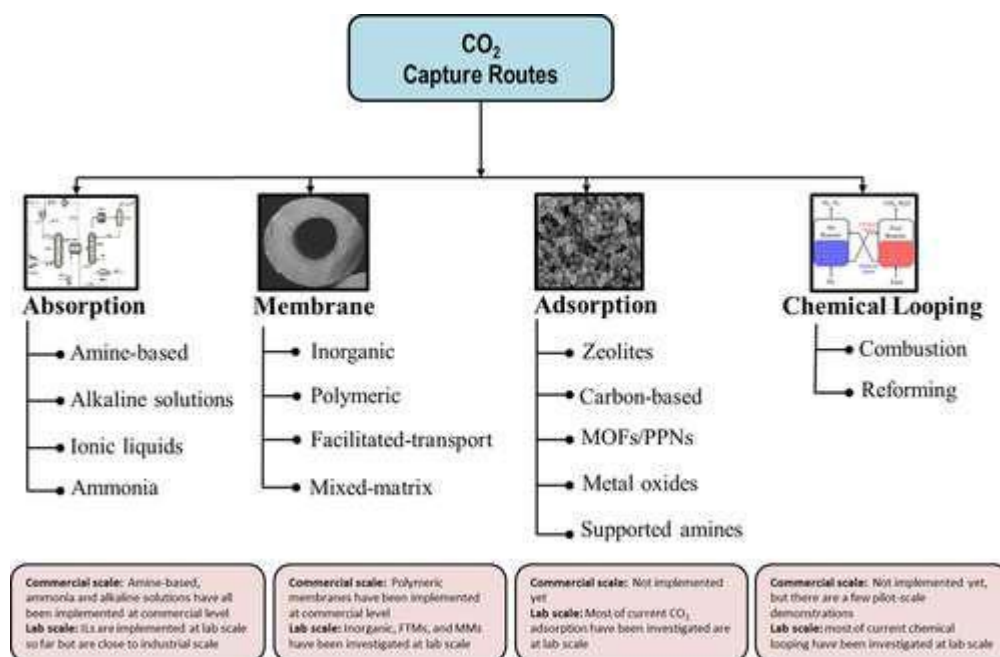


Abbildung 1

[Im Figure Viewer öffnen](#) [Power Point](#)

Verschiedene Technologien zur Kohlenstoffabscheidung und die entsprechenden Materialien, die derzeit untersucht werden.

2.1 Absorptionsbasierte CO_2 -Abscheidung

Die ausgereifteste Trennmethode in der Öl- und Chemieindustrie ist die Absorption durch chemische oder physikalische Lösungsmittel. **3** Diese Technologie wurde sowohl für die Nachverbrennung (mit chemischen Lösungsmitteln) als auch für die Vorverbrennung (mit physikalischen Lösungsmitteln) intensiv eingesetzt. Die chemische Absorption durch wässriges Ammoniak, Lösungsmittel auf Aminbasis wie Monoethanolamin (MEA), Diethanolamin (DEA) und *N*-Methyldiethanolamin (MDEA) sowie alkalische Lösungsmittel

wie $\text{Ca}(\text{OH})_2$ und NaOH ist die häufigste Methode zur Erfassung nach der Verbrennung in verschiedenen Industrien, darunter Zement, Eisen und Stahl, Kraftwerke und Öltraffinerien. **17 - 20** Die etablierten kommerziellen physikalischen Absorptionstechnologien für die Vorverbrennung von CO_2 Die Erfassung umfasst Selexol, Rectisol, Purisol und Fluor. In jüngster Zeit wurden ionische Flüssigkeiten (ILs) aufgrund ihrer inhärenten Eigenschaften, zu denen geringe Flüchtigkeit, niedriger Dampfdruck, hohe thermische Stabilität bei erhöhten Temperaturen und geringe Regeneration gehören, als geeignete Alternativen zu den herkömmlichen physikalischen Lösungsmitteln identifiziert, die in den obigen Verfahren verwendet werden Energiebedarf. **21 - 23** Ihre geringe Arbeitskapazität ist jedoch ein Haupthindernis für ihre weit verbreitete Verwendung bei der CO_2 -Abscheidung.

Obwohl die Absorption eine ausgereifte und gut etablierte Trennmethode ist, die zu einer hohen Abscheidungseffizienz führt, ist der Energieverlust hauptsächlich aufgrund des hohen Energiebedarfs für die Lösungsmittelregenerationsoption sehr hoch. **3** Obwohl die Wärmeintegration in einigen Branchen wie Kraftwerken den Energiebedarf verringern kann, können andere Branchen wie Zement oder Eisen und Stahl eine solche Wärmeintegration nicht bereitstellen. Außerdem stellen andere bekannte Betriebsbeschränkungen wie Korrosion und ein großes Volumen an Wasserzusammensetzung signifikante Barrieren dar. Typischerweise hängt die chemische Absorption von der Regeneration des thermischen Schwungs ab. Daher ist die optimale Auswahl von Lösungsmitteln mit einer optimalen Kombination von thermischen und physikalischen Eigenschaften von größter Bedeutung für die Entwicklung von energieeffizientem CO_2 auf Absorptionsbasis-Erfassung. Beispielsweise wurden Piperazin (PZ) und PZ-Derivate aufgrund ihrer überlegenen Leistung wie schnelle Reaktionskinetik, geringe chemische Reaktivität und geringe Regenerationsenergie als Alternativen zu herkömmlichen chemischen Lösungsmitteln vorgeschlagen. **24** Eine weitere Möglichkeit besteht darin, die Arbeitsfähigkeit von ILs durch Einbau funktioneller Gruppen (wie Perfluoralkylgruppen, Amin- und Aminosäuregruppen oder Carboxylatanionen) zu verbessern, die möglicherweise den Weg für ihre Verwendung als Lösungsmittel für die CO_2 -Absorption ebnen könnten. **3** Der Kompromiss zwischen Reaktionswärme und Kinetik ist ein weiterer wichtiger Gesichtspunkt. Typischerweise werden für die chemische Absorption Lösungsmittel mit einer hohen Absorptionswärme ($> 60 \text{ kJ mol}^{-1}$) eingesetzt. Dies könnte den Energieverbrauch senken, während die Verwendung von thermisch stabilen Lösungsmitteln mit geringem Regenerationsenergiebedarf die thermodynamische Effizienz des Trennprozesses erheblich verbessern kann. **4 Die** Vergiftung durch Verunreinigungen in Rauchgasen oder anderen Abwasserströmen ist eine weitere Herausforderung, die die Stabilität chemischer Lösungsmittel verringert. Daher sollte die Toleranz gegenüber Verunreinigungen neben der Beständigkeit gegen Lösungsmitteloxidation und Dampfverluste als Schlüsselkennzahl für die Entwicklung neuer wässriger wässriger Stoffe angesehen werden Lösungsmittel für die CO_2 -Absorption. Eine Erhöhung der Aminkonzentration in

wässrigen Lösungen könnte auch dazu beitragen, die Einfangkazität von Aminlösungen zu erhöhen.

Neben Fortschritten in der Materialentwicklung und der optimalen Auswahl von Lösungsmitteln mit besserer Energieeffizienz sind Prozessverbesserungen für die Skalierung der nächsten Generation von Absorptionstechnologien von gleicher Bedeutung. In dieser Hinsicht Absorptionsprozesse der nächsten Generation mit optimierten Prozesskonfigurationen und -intensivierungen, die Wärmeintegrationsstrategien wie beheizte Stripper (um die Wärme effektiv vom Stripper über Kopf zurückzugewinnen) und zwischengekühlte Absorber (um einen reversibleren Absorberbetrieb mit mehr Fett und Magerem bereitzustellen) bereitstellen Laden) könnte eine wettbewerbsfähige CO₂-Erfassungslösung bieten .

2.2 CO₂-Abscheidung durch Membrantrennung

Im Allgemeinen kann die Verwendung von Membranen für Gastrennanwendungen einen Ansatz bieten, der energieeffizienter und umweltfreundlicher ist als andere Trennmethode. Darüber hinaus wird die membranbasierte CO₂-Trennung normalerweise unter kontinuierlichen Bedingungen im stationären Zustand betrieben, und eine Druckdifferenz über die Membran treibt den Permeationsprozess an. Das Material der Membran ist neben ihrer Konfiguration, Morphologie, Zusammensetzung und Betriebsbedingungen Schlüsselfaktoren, die ihre Gastrennleistung in hohem Maße bestimmen. Die Membrantrennung zur Entfernung von CO₂ aus Rauchgasströmen von Kraftwerken war Gegenstand vieler Studien. 25 - 28 Die Anwendung der Membrantechnologie für CO₂ nach der VerbrennungDie Erfassung von CO₂ ist vor allem aufgrund des niedrigen Drucks der Rauchgasströme sehr schwierig. Im Vertrag eignen sich Membranen besser für Hochdruck-Vorverbrennungsprozesse wie IGCC. Im Gegensatz zu anderen Einfangwegen umfasst die membranbasierte CO₂-Trennung einen mehrstufigen Betrieb und das Recycling von Strömen, die häufig als Herausforderungen angesehen werden, die diesen Vorgang schwierig und komplex machen.

Verschiedene poröse anorganische Membranen, die typischerweise aus Zeolithen, metallorganischen Gerüsten (MOFs), Kohlenstoffmolekularsieben (CMS), Keramik und einigen Oxiden (z. B. Aluminiumoxid, Titandioxid, Zirkonoxid) bestehen, wurden ausführlich auf die CO₂-Abscheidung aus Rauchgas untersucht oder andere Abwasserströme. Obwohl anorganische Membranen hohen Temperaturen standhalten können und häufig mechanische Stabilität aufweisen, behindern ihre hohen Kosten ihre Kommerzialisierung. Anorganische Membranen wurden noch nicht in großem Maßstab nachgewiesen, und tatsächlich sind sie noch weit vom Scale-up entfernt. Die Hauptherausforderungen, die mit ihrer großtechnischen

Nutzung verbunden sind, ergeben sich aus ihren Herstellungswegen, die sehr teuer sind, sowie ihrer langfristigen Stabilität und Zuverlässigkeit.

Umgekehrt haben Polymermembranen, die leicht in Hohlfasermodulen formuliert werden können, ein enormes Potenzial für industrielle Großanwendungen gezeigt. Darüber hinaus können anorganische Membranen nicht die hohe Packungsdichte erreichen, die Polymermembranen bieten, wie im Fall von in den Modulen montierten Hohlfasermembranen aus polymerem Verbundwerkstoff, die eine Filtrationsfläche von bis zu $10\,000\text{ m}^2$ in 1 m^3 haben. **29 - 32** Polymerverbundmembranen weisen jedoch im Vergleich zu anorganischen Membranen eine geringe Trennleistung auf. Zum Beispiel CO_2 -Das Einfangen durch aktuelle Polymermembranen leidet immer noch unter mehreren Nachteilen, wie einer geringen CO_2 / N_2 -Selektivität und -Permeabilität für Nachverbrennungsprozesse, der Kompromissbegrenzung zwischen Permeabilität und Selektivität, Quellung, Alterung, Empfindlichkeit gegenüber Verunreinigungen und mechanischer Stabilität, insbesondere für Hochdruckbetrieb. Damit Polymermembranen für die CO_2 -Abscheidung nach der Verbrennung kostengünstig sind, ist eine minimale CO_2 / N_2 -Selektivität von 200 erforderlich und eine relativ hohe Permeabilität muss beibehalten werden. **33** Eine hohe Permeabilität macht eine große Membranfläche für eine akzeptable Trennrate überflüssig, wodurch die Kapitalkosten des Trennprozesses reduziert werden. Eine Möglichkeit, die mit herkömmlichen Polymermembranen verbundenen Herausforderungen anzugehen, besteht darin, Polymere mit intrinsischer Mikroporosität (PIMs) zu verwenden, die große freie Poren in der Polymermatrix enthalten, die einen höheren CO_2 -Fluss ermöglichen. Polymermembranen wurden zur CO_2 -Abscheidung bei der Erdgasäufung kommerzialisiert. Membrane Technology & Research, Inc. (MTR) hat ein membranbasiertes Pilotverfahren zur CO_2 -Abscheidung nach Verbrennung aus Rauchgas aus einem 880 MW-Kohlenstaubkraftwerk mit einer Abscheidungsrate von 90% implementiert. **34**

Erleichterte Transportmembranen (FTMs) wie Flüssigmembranen, Ionenaustauschermembranen und Membranen mit festem Träger haben sich als hochselektiv für CO_2 erwiesen. Sie sind jedoch einer Vergiftung durch Spuren von sauren Gasen wie NO_x und SO_x ausgesetzt, die im Rauchabzug vorhanden sind und unter Langzeitstabilität leiden. **35 - 37** Unter den verschiedenen im Handel erhältlichen Membrantypen bieten Hohlfasermembranen das höchste Verhältnis von Oberfläche zu Volumen, eine optimale Geometrie für hohe Produktionsraten und kompaktere Module als Flachblech- oder Spiralwickelheiten. **35** Hohlfasermembranen aus Verbundwerkstoffen mit einer dünnen selektiven Schicht mit einer Dicke von weniger als einem Mikrometer auf einer hochporösen polymeren Unterstruktur bieten Möglichkeiten für eine fortschrittliche Membranentwicklung. **38**

Mixed-Matrix-Membranen (MMMs), die durch Dispergieren hochselektiver Molekularsiebpartikel wie Zeolithe, Kohlenstoffnanoröhren, Schichtsilikate und MOFs in einer Polymermatrix gebildet werden, sind vielversprechende Kontaktoren, die das Skalieren und Verarbeiten von Polymermembranen mit den Vorteilen der Trennung verbinden Leistung von Molekularsiebmaterialien. Im Vergleich zu porösen Zeolithen zeigen MOFs als Füllstoffe bessere Eigenschaften wie ein höheres Porenvolumen und eine geringere Dichte, eine bessere Affinität zu Polymerketten und eine einfache Abstimmung der Hohlräume in Bezug auf Größe und Form durch Auswahl geeigneter Liganden mit unterschiedlichen Funktionalitäten. MMMs bieten eine Lösung, um die bekannte Kompromissgrenze für Polymermembranen über die Obergrenze hinaus sowie die mit den Kosten und der Verarbeitung anorganischer Membranen verbundenen Hindernisse zu überschreiten. **39 - 45** Sie befinden sich jedoch noch in einem frühen Entwicklungsstadium und sind weit vom industriellen Einsatz entfernt. Außerdem sind ihre derzeitigen Herstellungsprozesse kostspielig und komplex.

Im Zusammenhang mit der CO₂-Abscheidung von Membranen sollten sich die zukünftigen Möglichkeiten daher auf Verbundmembranen konzentrieren, die sowohl polymere als auch anorganische Bestandteile nutzen und die derzeit leistungsstärksten Membranen übertreffen können. Strategien zur Verbesserung von Verbundsystemen durch alternative Chemie, Neuentwicklung der Materialsysteme und Verarbeitungstechniken werden wichtige Einblicke in die Hindernisse für die Entwicklung hochentwickelter Verbundsysteme für die zukünftige membranbasierte CO₂-Trennung liefern .

2.3 Adsorptionsbasierte CO₂-Abscheidung

Die CO₂-Abscheidung über porösen festen Materialien bietet einen vielversprechenden Ansatz zur selektiven Entfernung von CO₂ aus Gasströmen in verschiedenen Branchen. Bisher wurde eine Vielzahl von Adsorbentien umfassend auf CO₂ untersucht Abscheidung aus Abwässern von Vorverbrennungs- und Nachverbrennungsgasen. Im Allgemeinen werden die verwendeten Adsorbentien entweder als Hochtemperatur- oder Niedertemperaturmaterialien klassifiziert. Zu den Hauptklassen von Hochtemperaturmaterialien gehören Hydrotalcite, Alkali- oder Erdalkalioxide wie Calciumoxide, Alkalisilikate und Zirkonate sowie Doppelsalze, während Niedertemperaturadsorbentien herkömmliche poröse Materialien wie Zeolithe und Materialien auf Kohlenstoffbasis abdecken (z. B. Aktivkohle, Kohlenstoffnanoröhren, Kohlenstoffnanofasern, Graphen) und Molekularsiebe sowie neuere Klassen wie MOFs, poröse Polymernetzwerke (PPNs) und kovalente organische Gerüste (COFs). **46 - 51** Die Hochtemperaturadsorbentien sind alle Chemisorbentien, während die Niedertemperaturadsorbentien hauptsächlich Physisorbentien sind. **52** Unterstützte Amine

gehören zu den Niedertemperaturadsorbentien, sind jedoch Chemisorbentien, die starke Wechselwirkungen mit CO_2 aufweisen .

Die Effizienz und Wirtschaftlichkeit von Adsorptionsprozessen wie der Druck- / Temperaturwechseladsorption (PSA / TSA) wird neben den Prozessdesign- und Betriebsfaktoren weitgehend von den Eigenschaften der Adsorbentien bestimmt. **53** , **54** **Im** Allgemeinen müssen Adsorbentien für jede Gastrennanwendung mehrere Kriterien erfüllen, um für eine großtechnische Trennung effizient zu sein. Diese Metriken umfassen hohe Arbeitskapazität und Selektivität, niedrige Kosten, geringe Regenerationsanforderungen, Langzeitstabilität und schnelle Kinetik. **52** Neben den physiochemischen Eigenschaften der Adsorbentien sind die Zyklusconfiguration, die Anzahl der Schritte, die Zykluszeit, die Betriebsdrücke oder -temperaturen und die Anzahl der Betten einige der anderen wichtigen Prozessparameter, die für eine optimale Erfassungseffizienz optimiert werden müssen.

Im Zusammenhang mit der adsorptiven CO_2 -Abscheidung übersehen die meisten Studien im Labormaßstab häufig die Leistung von Adsorbentien unter praktischen Bedingungen. Zum Beispiel kompetitive Wasseradsorption; die strukturelle, mechanische und chemische Stabilität gegenüber Feuchtigkeit, die häufig in Gasabwässern vorhanden ist; und die Stabilität in Gegenwart anderer Schadstoffe wie SO_x , NO_x (insbesondere für den Nachverbrennungsprozess) und Flugasche werden häufig nicht untersucht. Die Beibehaltung der Arbeitskapazität über viele Adsorptions-Desorptions-Zyklen und das Wärmemanagement sind weitere wichtige Kriterien, die bei der Konstruktion oder beim Screening der Adsorbentien häufig übersehen werden. Darüber hinaus berücksichtigen die meisten aktuellen Studien nicht die endgültigen Prozessleistungsmetriken bei der Entwicklung neuer Materialien. Obwohl das herkömmliche Zeolith-13X-Material hinsichtlich der Einfangkosten für die Nachverbrennung unter trockenen Rauchgasbedingungen im Vergleich zu den besten MOFs wie HKUST-1 und Mg-MOF-74, **55** , **56** immer noch die beste Wahl ist. Die Wasserkoabsorption ist immer noch problematisch und erfordert ein Schutzbett oder eine Dehydratisierungseinheit vor der PSA- oder TSA-Einheit. Obwohl mehrere MOF-Materialien eine hervorragende Kapazität und Selektivität für CO_2 aufweisen , bleiben ihre Produktion in großem Maßstab und ihre Wasserstabilität eine Herausforderung für ihre weit verbreitete Anwendung in der Industrie. Das Design von zusammengesetzten Adsorbentien (wie Zeolith oder MOF-funktionalisierten Aminen) könnte die bekannten Probleme herkömmlicher Adsorbentien lösen und einen kostengünstigen und hocheffizienten Ansatz für die CO_2 -Abscheidung nach der Verbrennung ermöglichen .

Die adsorptionsbasierte CO_2 -Abscheidung durch PSA hat aufgrund des einfachen Prozesses, des geringen Energiebedarfs und der geringen Kosten große Aufmerksamkeit auf sich gezogen. **57** Eine geringe Rückgewinnung von CO_2 ist für diesen Ansatz jedoch immer noch eine Herausforderung. **54** Für die CO_2 -Abscheidung nach der Verbrennung sind Vakuum-

Swing-Adsorption (VSA) und TSA im Allgemeinen besser geeignet als PSA, während PSA (hauptsächlich aufgrund großer Druckabfälle bei der Rauchgasanwendung) für den Vorverbrennungsprozess vielversprechender ist. 58 - 61 Der Abrieb von Adsorbenspartikeln ist ein weiteres häufiges Problem beim Prozessbetrieb. Die Verwendung von strukturierten Adsorbentien wie Monolithen oder Hohlfasern kann sowohl Druckabfall- als auch Abriebprobleme lösen und dennoch einen schnellen Betrieb von Zyklen ermöglichen. Schnelle Schwenkzyklen können den Prozessdurchsatz verbessern, wodurch ein geringerer Adsorbensbestand und eine geringere Säulengröße ermöglicht werden. Der TSA-Prozess zur CO₂-Abscheidung ist aufgrund des hohen Energiebedarfs für die Regeneration des Adsorbens und der langen Abkühlzeit noch weit von einer groß angelegten Implementierung entfernt. Neuartige Ansätze, die Wärmemanagementoptionen bieten, wie Hohlfaseradsorbentien mit einem Kühlmedium auf der Bohrungsseite oder monolithische Strukturen mit optimalem Wärmemanagement, könnten diese Scale-up-Herausforderungen bewältigen. 43, 62 - 64 Darüber hinaus könnten hinsichtlich des Prozessdesigns Modifikationen des ursprünglichen Designs, die neuartige indirekte Heiztechniken wie Heizmäntel, Wärmetauscher oder Spulen umfassen, implementiert werden, um den Energieverbrauch weiter zu reduzieren und / oder die erforderliche Abkühlzeit zu verkürzen im TSA-Prozess. 58, 65 - 68

Obwohl die adsorptionsbasierte Trennung die meisten Einschränkungen der Absorptionsprozesse beseitigen kann, sind die derzeit entwickelten / vorgeschlagenen Technologien in ihren derzeitigen Entwicklungsstadien nicht kosteneffektiv. Darüber hinaus wurde noch kein Großbetrieb vollständig bereitgestellt. 69 - 71 Das Design, die Entwicklung und die Bewertung von Hochleistungsadsorbentien sollten eng mit der Bewertung ihrer praktischen Leistungen und Prozessüberlegungen verbunden sein. Darüber hinaus sollten bei der Gestaltung, Konfiguration und Optimierung eines zyklischen Prozesses die Eigenschaften des spezifischen Adsorbens berücksichtigt werden, das eventuell verwendet werden soll.

2.4 CO₂-Abscheidung durch chemische Schleifenbildung

Chemical-Looping-Verbrennung (CLC) und Chemical-Looping-Reforming (CLR) sind zwei Prozesse, die als potenziell kostengünstige CO₂-Einfangoptionen mit minimalen Energieverlusten angesehen werden, bei denen sowohl CO₂ als auch H₂O von Natur aus getrennt sind Rauchgas. 72 Sie können auch die NO_x-Bildung während der Reaktion weitgehend minimieren. Zur Vorverbrennung CO₂ Beim Einfangen kann eine chemische Schleife mit IGCC kombiniert werden, um Synthesegas als wertvolles Nebenprodukt zu erzeugen. Diese Technologien verwenden ein Metalloxid als Sauerstoffträger, um Sauerstoff zwischen den Luft- und Brennstoffreaktoren zu zirkulieren. Daher hängen ihre großtechnischen Anwendungen stark von der Verfügbarkeit

geeigneter Sauerstoffträger ab. Hohe Oxidations- / Reduktionsaktivität, mechanische Stabilität (in Wirbelbetten), Agglomerationsbeständigkeit, hoher Schmelzpunkt (um der Reaktionstemperatur standzuhalten und Agglomeration zu vermeiden), Langzeitstabilität bei wiederholter Oxidation / Reduktion sowie Kosten- und Umweltauswirkungen sind Schlüsseleigenschaften von Metalloxiden (hauptsächlich Übergangsmetalloxide wie Fe, Cu, Co, Mo, Mn, Cr, Nb, V, Ce und In-Oxide) für chemische Schleifenprozesse. 72 Von diesen Eigenschaften ist die Reaktivität sowohl im Oxidations- als auch im Reduktionszyklus das wichtigste Kriterium, das berücksichtigt werden sollte. Darüber hinaus sollten diese Oxide in der Lage sein, den Kraftstoff vollständig zu verbrennen, um eine maximale Verbrennungseffizienz zu erreichen. Keiner der bisher untersuchten aktuellen Sauerstoffträger ist in der Lage, alle oben genannten Anforderungen gleichzeitig zu erfüllen.

Eine weitere Herausforderung im Zusammenhang mit chemischen Kreislaufprozessen ist der Hochdruckbetrieb, der erforderlich ist, um einen hohen Gesamtwirkungsgrad zu erzielen, obwohl hohe Drücke für CCS-Anwendungen günstig sein können. Jüngste Energieanalysen haben gezeigt, dass insbesondere der Prozess der Kalziumschleifen-Nachverbrennung eine Effizienzstrafe von nur 6–8% nach sich ziehen kann. 73 - 76 Ein derart geringer Energieverlust resultiert aus Verbesserungen im ursprünglichen Design des Zwei-Bett-Ca-Looping-Prozesses (Karbonisator und Kalzinator), z. B. dem Einbau eines zusätzlichen Wärmerückgewinnungsbettes zum Austausch von Wärme zwischen dem CO₂-Strom und die festen Partikel, die in den Kalzinator eintreten. Gegenwärtig befinden sich die meisten für den Stromerzeugungssektor in Betracht gezogenen chemischen Kreislauftechnologien in der Labor- oder Konzeptphase der Entwicklung. Einige Pilotstudien werden derzeit untersucht (77 - 79), und es wird davon ausgegangen, dass ihr vollständiger Einsatz nicht in Anspruch genommen wird Platz vor 2030. 5 Die technischen Hürden bei der Materialentwicklung und beim Prozessdesign sollten überwunden werden, um den aktuellen Stand der Technik für chemische Schleifen zu verbessern. In dieser Hinsicht könnten neuartige chemische Schleifenverfahren auf der Basis von Metalloxid-Verbundoxiden wie Ca / Cu, die die Möglichkeit bieten, endotherme und exotherme Reaktionen in derselben festen Matrix zu koppeln, zu einer höheren Abfangeffizienz und niedrigeren Ausrüstungskosten führen.

2.5 Direkte Abscheidung von CO₂ aus der Luft

Die direkte Entfernung von CO₂ aus der Umgebungsluft, die als direkte Luftabscheidung (Direct Air Capture, DAC) bezeichnet wird, hat in jüngster Zeit unter Forschern erhebliche Beachtung gefunden, da sie die Probleme minimieren könnte, die mit dem Transport großer Mengen an CO₂ von Punktquellenemittenten zu geeigneten Standorten verbunden sind geologische Sequestrierung. 80 - 84 Im Gegensatz zu herkömmlichen Einfangverfahren, die nur auf Großpunktquellen abzielen und bestenfalls die Anstiegsrate der atmosphärischen CO₂-Konzentration verlangsamen können, kann DAC, wenn es weit verbreitet ist, die

atmosphärischen CO₂-Niveaus senken. Obwohl das Konzept aufgrund der ultradünnten Natur von CO₂ im Wesentlichen dem der adsorptionsbasierten CO₂-Abscheidung ähnelt, in Luft (400 ppm) stellt die DAC-Technologie gewaltige technologische Herausforderungen. Aufgrund der ultraniedrigen CO₂-Konzentration sind für diese Technologie Materialien mit starken Bindungsaffinitäten (scharfe Aufnahme bei niedrigen Partialdrücken) und hohen CO₂/N₂-Selektivitäten erforderlich. Verschiedene wässrige Hydroxide wie Calciumhydroxidlösung, NaOH- und KOH-Lösungen sowie feste Materialien wie Alkali- und Alkaliträgercarbonate, Anionenaustauscherharze, aminfunktionalisierte Metalloxide und MOFs wurden auf DAC untersucht. **84** Insbesondere nicht jedes Hochleistungsmaterial, das für CO₂ mit großer Punktquelle gut geeignet ist. Die Erfassung würde für den DAC-Prozess notwendigerweise auf einem akzeptablen Niveau erfolgen, hauptsächlich aufgrund der oben genannten Unterschiede.

Neuere thermodynamische Analysen haben gezeigt, dass der TSA-Prozess für DAC-Anwendungen thermodynamisch effizienter ist als der PSA-Prozess, da die Adsorptionswärme oder Adsorbataffinität bei verdünnten CO₂-Konzentrationen zunimmt. **85** Zu diesem Zeitpunkt sind die geschätzten DAC-Kosten erheblich höher als die Kosten für die Erfassung aus großen Punktquellen (30–1000 und 30–100 USD ton⁻¹, beziehungsweise). Diese enorme Unsicherheit bei den Entwurfsüberlegungen und der wirtschaftlichen Analyse des DAC-Prozesses muss durch eine klare Darstellung der zugrunde liegenden Annahmen behoben werden. Darüber hinaus sind für eine großflächige Lufterfassung Materialien erforderlich, die kostengünstig und langlebig sind. Obwohl sich jeder DAC-Prozess noch in einem frühen Entwicklungsstadium befindet, muss er die Kosten für seine Einführung und Implementierung in der Gesellschaft minimieren. Die Verwendung einer minimalen Energiemenge, idealerweise aus einer verteilten erneuerbaren Quelle wie Solarthermie, wäre ein potenzieller Weg, um die Durchführbarkeit des DAC-Prozesses zu verbessern.

2.6 CO₂-Abscheidung durch Hybridprozesse

Einer der vielversprechenden Ansätze, der einen kostengünstigen, skalierbaren und nachhaltigen Erfassungspfad bietet, umfasst Hybridtrennungen, bei denen zwei oder mehr Erfassungssysteme kombiniert werden. Das Konzept von Hybridprozessen bei der Gastrennung und -reaktion wurde bereits auf mehrere Anwendungen angewendet. Hybridtechnologien profitieren von zwei oder mehr parallelen oder in Reihe geschalteten Trenneinheiten mit dem Ziel, die Trennleistung zu verbessern und gleichzeitig die Gesamtkosten der Trennung zu senken. Die Machbarkeit mehrerer Hybridkonzepte für die CO₂-Abscheidung wie Membran-PSA und Membrandestillation wurde untersucht. **86 - 90** American Air Liquide hat kürzlich ein vielversprechendes Hybridsystem mit potenziellen Energieeinsparungen entwickelt, bei dem die CO₂-Abscheidung bei

Subambientemperatur (-50 bis -20 ° C) durch einen Hybridmembran-Kryo-Destillationsprozess durchgeführt wird. **91** Dieses Hybridverfahren zielt auf die Nachrüstung bestehender Kohlenstaubkraftwerke ab und soll sowohl die Produktivität als auch die Selektivität des Membranmoduls verbessern, wodurch sowohl die Energie- als auch die Kapitalkosten des Auffangprozesses gesenkt werden. Damit diese Technologie in großem Umfang eingesetzt werden kann, ist eine gute Strategie zur Wärmeintegration von entscheidender Bedeutung, da das gesamte Speisegas auf Temperaturen unter Umgebungstemperatur abgekühlt werden muss.

Für Hybridmembran-PSA-Systeme besteht die Idee darin, den Hochdruckmembranpermeationsstrom in den Druckbeaufschlagungs- und Hochdruckadsorptionsschritten eines typischen PSA-Prozesses zu verwenden. Zusätzlich könnte die Membranpermeation in den Ablassschritt des PSA-Zyklus einbezogen werden, so dass der Betriebsdruck des PSA als treibende Kraft für die Membranpermeation verwendet werden kann. Beide Optionen können zu erheblichen Einsparungen führen, da keine Hochleistungspumpen erforderlich sind.

Ein weiteres Beispiel für ein solches integriertes System ist der hybride Druck-Temperatur-Swing-Adsorptionsprozess (PTSA), der bei moderaten Drücken und Temperaturen betrieben werden kann und somit zu geringeren Energiekosten für die Erfassung führt. **92**, **93** Bei dieser Konfiguration kann die Notwendigkeit des Hochvakuumniveaus, das typischerweise in PSA erforderlich ist, um hochreines CO₂ zu erreichen, oder der hohen Temperatur, die in TSA häufig zur Erzielung einer hohen Rückgewinnung erforderlich ist, drastisch vermieden werden, was zu führt kostengünstigerer Betrieb, schnellere Zyklen und längere Lebensdauer des Adsorbens. **92** Die allgemeine Idee für das Design von PTSA besteht darin, einen effektiven Stoffübergang während des Adsorptionsschritts und einen effektiven Wärmeübergang während des Desorptionsschritts zu erzielen. **94**

Insgesamt sollten auf der Grundlage des aktuellen Standes der neuesten Technologien Hybridprozesse, die zwei oder mehr Erfassungsrouten kombinieren, als neuartiger Ansatz zur Verbesserung der Trennungseffizienz und der Kosten betrachtet werden. Es ist jedoch unbedingt erforderlich, dass sich die Zukunft der verwandten Forschung auf das vollständige Verständnis dieser hybriden Prozesse unter den Gesichtspunkten Machbarkeit, Prozessdesign, Materialauswahl, Umweltauswirkungen und Gesamtkostenreduzierung unter Berücksichtigung von Unsicherheitsfaktoren konzentriert.

2.7 Zusammenfassung

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die meisten CO₂-Erfassungstechnologien trotz erheblicher Fortschritte in den letzten Jahren noch einen langen Weg vor sich haben, um in verschiedenen Branchen kommerziell verfügbar zu werden. Es scheint, dass eine Brücke

zwischen Materialwissenschaftlern und Ingenieuren entscheidend ist, um die Lücke zwischen Materialeigenschaften und Prozessleistung zu schließen. Daher ist die Untersuchung der Beziehung zwischen den Eigenschaften der Materialien und den hybriden Prozessparametern entscheidend, um eine einzigartige und umfassende Strategie für das Design hocheffizienter und kostengünstiger Abscheidungstechnologien der nächsten Generation zu entwickeln, die erheblich zur Reduzierung der CO₂-Emissionen beitragen. Tabelle 1 enthält eine Zusammenfassung der aktuellen Herausforderungen und zukünftigen Chancen im Zusammenhang mit verschiedenen CO₂-Erfassungsmethoden.

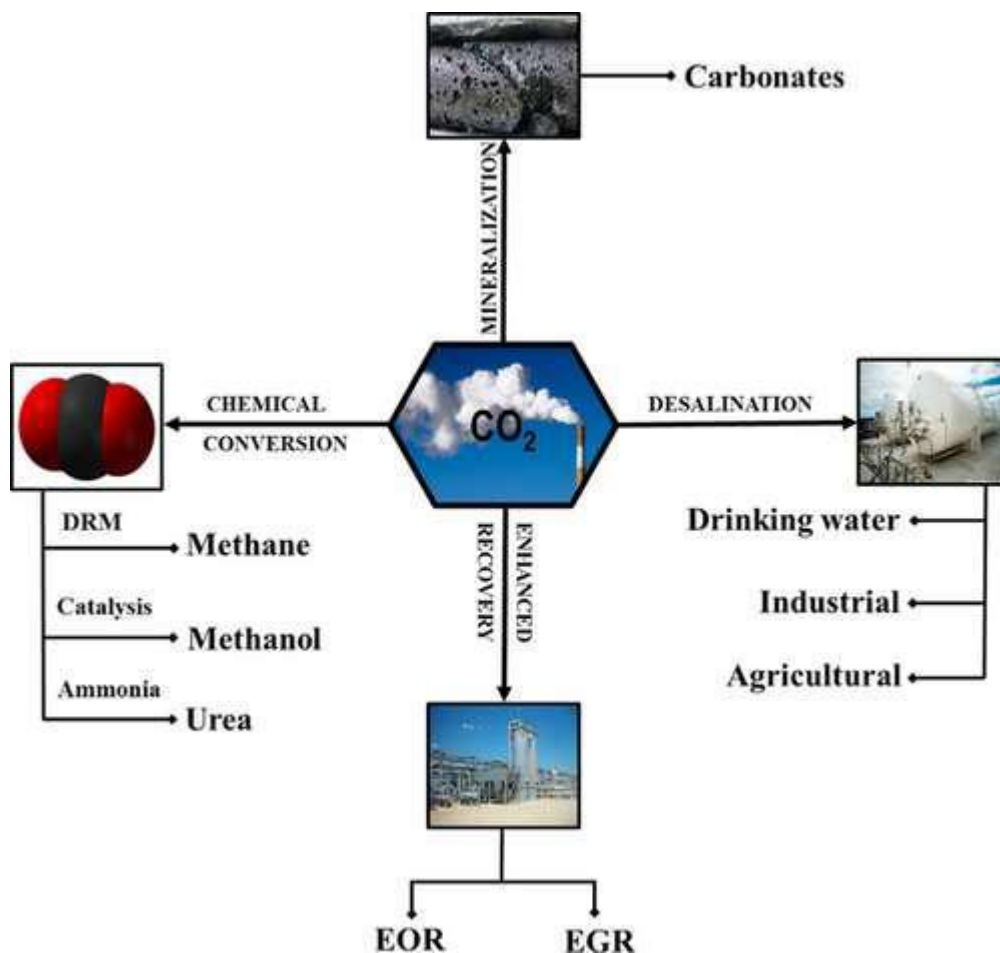
Tabelle 1. CO₂-Erfassungstechnologien und die damit verbundenen Herausforderungen und Chancen.

| Capture-Technologie | Herausforderungen | Chancen |
|---------------------|--|---|
| Absorption | Gerätekorrosion | Verbesserung der im Handel erhältlichen Absorptionstechnologien |
| | Aminabbau | die Verwendung von ILs |
| | hoher Regenerationsenergiebedarf | die Verwendung von fortgeschrittenen Aminen |
| | hohe Gesamtenergiestrafe | |
| | Umweltbelastung | |
| Membran | energieintensiv für die Anwendung nach der Verbrennung | Hohlfasermembranen aus Verbundwerkstoffen |
| | hohe Herstellungskosten für neuartige Membranen | MMMs |
| | Nicht für Hochtemperaturanwendungen geeignet | Hybridmembran-Kryogen-Prozesse |

| Capture-Technologie | Herausforderungen | Chancen |
|----------------------------|--|---|
| | Kompromiss zwischen Reinheit und Rückgewinnung | |
| | geringe Selektivität | |
| Adsorption | Langzeitstabilität gegen Verunreinigungen und Feuchtigkeit | Verbundadsorbentien |
| | Wärmemanagement | strukturierte Adsorbentien |
| | Druckabfall und Adsorbensabrieb | schnelle Schwungzyklen |
| | | Hybridmembran-PSA-Prozesse |
| chemische Schleife | Hochdruckbetrieb | zusammengesetzte Oxide als Sauerstoffträger |
| | effiziente und stabile Sauerstoffträgermaterialien | Änderungen des Prozessdesigns |
| direkte Luftaufnahme | ultradilute CO ₂ Gehalt | DAC gekoppelt mit erneuerbaren Energiequellen |
| | energieintensiv | strukturierte Adsorbentien |
| | Entwicklung langlebiger Materialien | |
| hybride Erfassungsprozesse | weniger studiert | Membrandestillation |
| | Verbesserung der Synergie und Prozessoptimierung | Membran-PSA |
| | Entwicklung von Hybridmaterialien | PTSA |

3 CO₂-Nutzungsoptionen: Herausforderungen und Chancen

Die Nutzung von CO₂ kann als praktikable Option für die Bereitstellung einer erneuerbaren Energiequelle für die Herstellung verschiedener wertvoller Produkte angesehen werden. Der Prozess muss wirtschaftlich, sicher und umweltfreundlich sein. ⁹⁵ Der primäre Verwertungsweg kann als verbesserte Öl / Gas-Rückgewinnung, chemische Umwandlung, Mineralisierung und Entsalzung klassifiziert werden. Abbildung 2 zeigt verschiedene Möglichkeiten, wie CO₂ genutzt werden kann. Das US-Energieministerium (US Department of Energy, DOE) unterteilt die CO₂-Nutzungstechnologien in vier Hauptforschungsbereiche, die das CCS-Programm unterstützt: Zement, Polycarbonat-Kunststoffe, Mineralisierung und verbesserte Kohlenwasserstoffrückgewinnung.



Figur 2

[Im Figure Viewer öffnen](#) [Power Point](#)

Verschiedene Wege zur Kohlenstoffverwertung.

CO₂ wird typischerweise als Nebenprodukt während der Ammoniaksynthese gebildet. Zusätzlich wird es während der Synthese von Ethylenoxid in einer Ö Raffinerie und während des Fermentationsprozesses hergestellt. **3** Als Rohstoff wird CO₂ üblicherweise in der Getränkeindustrie, in der Lebensmittelkonservierung, bei der Harnstoffproduktion, bei der Wasseraufbereitung, bei der verbesserten Ölrückgewinnung, bei der chemischen Produktion und bei der Polymersynthese mit einem weltweiten Verbrauch von 232 Mio. t pro Jahr verwendet⁻¹. **4**, **96** Derzeit wird jedoch weniger als 1% des in die Atmosphäre emittierten CO₂ als Rohstoff in den oben genannten Branchen verwendet. **97**, **98** Es sollten Anstrengungen unternommen werden, um das bereits eingefangene CO₂ für wertvolle Güter wie Kraftstoffe und Feinchemikalien zu nutzen.

3.1 Verbesserte Öl / Gas-Rückgewinnung

Eine verbesserte Öl / Gas-Rückgewinnung (EOR / EGR) bezieht sich auf ein Verfahren, bei dem eine Substanz in ein Reservoir injiziert wird, um die Gesteinsformation wieder unter Druck zu setzen und möglicherweise in der Formation eingeschlossenes Öl / Gas freizusetzen. Während des CO₂ EOR-Prozesses mischt sich das eingespritzte CO₂ mit dem Öl und setzt es aus seiner ansonsten schwer wiedergewinnbaren Gesteinsformation frei. Dieser Strom wird dann an die Oberfläche gepumpt, und das mit dem Öl austretende CO₂ wird abgetrennt und erneut in den Kreislauf eingespeist, um den Vorgang zu wiederholen. Dieser Prozess liefert häufig mehr Barrel pro Reservoir als die herkömmlichen Ölrückgewinnungsmethoden. **99**, **100** Grundsätzlich CO₂ Hochwasser ist eine der häufigsten und effizientesten Methoden in EOR, da es sich mit dem Öl mischt, wodurch es expandiert und leichter und leichter zu gewinnen ist. **101** Die meisten CO₂ EOR-Systeme verwenden natürlich vorkommendes CO₂, aber in letzter Zeit hat sich die Forschung auf die Verwendung von CO₂ konzentriert, das aus potenziell gefährlichen Gasströmen wie Rauchgas und anderen Industriegasabwässern gewonnen wird. **102** Zwei häufig verwendete CO₂ EOR-Methoden sind die kontinuierliche Gasinjektion (CGI) und das Wasserwechselgas (WAG). Die letztere Methode führt zu einer besseren Ölrückgewinnung. **103** In CO₂ EOR kann die Zugabe eines intermediären Kohlenwasserstoffs wie Propan die Verdrängungseffizienz und den Diffusionskoeffizienten verbessern, wodurch die Rückgewinnungseffizienz weiter erhöht wird. **104** Im Allgemeinen hängt der Wirkungsgrad von CO₂ EOR weitgehend von der Temperatur und dem Druck des betreffenden Reservoirs ab. **105**

CO₂ EOR-Methoden stehen vor zahlreichen Herausforderungen. Beispielsweise verringern aufgrund der Heterogenität der Gesteinsbildung zwischen den Bohrlöchern die Fluideigenschaften und der Kapillardruck die Wirksamkeit der CO₂-Flutung. **106** Darüber hinaus sind eine große Anzahl von Parametern wie Fluidproduktionsraten, kompensiertes Neutronenprotokoll (CNL) und Produktionsprotokoll für eine effiziente Ausführung erforderlich. **106** Trotz dieser Defizite hat CO₂ EOR / EGR erhebliche Aufmerksamkeit auf

sich gezogen und wird in naher Zukunft voraussichtlich rasch ansteigen. Insgesamt ist CO₂ EOR / EGR ein vielversprechender Ansatz für eine verbesserte Öl / Gas-Rückgewinnung mit Anwendungen in den meisten Arten von Lagerstätten. Trotzdem trägt EOR derzeit nur zu 3% zum CO₂ bei Nutzung. Obwohl die Fortschritte auf diesem Gebiet durch den Preis von CO₂ verzögert wurden, nimmt seine Verwendung stetig zu, und zahlreiche Einrichtungen haben diese Methode in ihren Lagerstätten implementiert. **107 - 109**

3.2 CO₂ als Ausgangsmaterial für die Herstellung von Kraftstoffen und Chemikalien

Die CO₂-Nutzung wird voraussichtlich die bekannten Herausforderungen im Zusammenhang mit CCS wie hohe Kosten, öffentliche Akzeptanz und langfristige Unsicherheit bewältigen. Darüber hinaus macht es die CO₂-Abscheidung wertvoll und kann teilweise fossile Brennstoffe als Hauptenergiequelle ersetzen. **110** Es kann neue Wege für die Entwicklung nachhaltiger Technologien eröffnen, die die konventionellen fossilen Ressourcen ergänzen.

3.2.1 Kraftstoffproduktion

Die Umwandlung von CO₂ in Kraftstoffe wird als der beste Weg zur CO₂-Nutzung angesehen. Methan, Methanol, Synthesegas und Alkane sind einige der Verbindungen, die unter Verwendung von eingefangenen CO₂ als Ausgangsmaterial hergestellt werden können. Der erzeugte Brennstoff kann in verschiedenen Sektoren verwendet werden, einschließlich Brennstoffzellen, Kraftwerken und Transport. **4** Es gibt enorme Wege zur Herstellung von Kraftstoffen durch CO₂-Nutzung. Da CO₂ ein thermodynamisch stabiles Molekül ist, erfordert seine Verwendung die Anwendung einer großen Menge an Wärme und Katalysatorinventar, um hohe Kraftstoffausbeuten zu erzielen. **97** Im Zusammenhang mit der Herstellung von Kraftstoffen aus gebundenem CO₂ Die Hydrierung und die Trockenreformierung von Methan (DRM) sind die beiden wichtigsten Wege. **111**

Die CO₂-Hydrierung ist ein vielversprechender Weg für die CO₂-Nutzung, vor allem, weil sie die Möglichkeit bietet, CO₂ zu recyceln, H₂ zu speichern, Kraftstoff zu produzieren und das Problem der Speicherung elektrischer Energie zu lösen. **98** DRM gilt auch als einer der wichtigsten Wege zur Herstellung von Methanol und einer Vielzahl anderer flüssiger Brennstoffe nach dem Fischer-Tropsch-Verfahren (FT). **112 - 114** Bei der Hydrierung von CO₂ zu Methan, **115** Methanol, **116** Kohlenmonoxid, **115** und Ameisensäure, **117** Die Wasserstoffquelle aus fossilen Brennstoffen scheint problematisch zu sein, da dies selbst zu einem Anstieg der CO₂-Emissionen in die Atmosphäre führen kann. Erneuerbare Energien (z. B. Sonne, Wind, Biomasse) können jedoch Alternativen zu fossilen Quellen sein, um zusätzliche CO₂-Emissionen während der Hydrierung zu verringern. **3** Vor kurzem hat das

Audi-Unternehmen „E-Gas“ in Deutschland 1000 Mt Jahr⁻¹ Methan durch CO₂-Hydrierung produziert. **118**

Für den Transport ist Methan als Kraftstoff nicht wertvoll, da es eine geringe volumetrische Gasdichte aufweist. Außerdem beträgt sein globales Erwärmungspotential (GWP) 30. **97** **Die** Produktion von mehr Methan ist aufgrund seiner Verfügbarkeit für die CO₂-Abscheidung nicht rentabel (Methan ist in Erdgas, Schiefergas, Kohlegas und Deponiegas reichlich vorhanden). Vielmehr scheint die CO₂-Hydrierung zu Methanol ein besserer Weg zu sein. **119** Die Aktivierung von CH-Bindungen über aktuelle (hauptsächlich auf Cu basierende) Katalysatoren für die Methanolherstellung ist jedoch sehr schwierig, und die bisher getesteten Katalysatoren sind wirtschaftlich nicht attraktiv. **120 - 122** Obwohl Methanol viele Anwendungen in Farben, Kunststoffen, Verbrennungsmotoren und organischen Lösungsmitteln hat, **97** seine Produktion trägt dazu bei, die CO₂-Emissionen nur um 0,1% zu reduzieren. **123** **Die** Umwandlung von CO₂ in CO aus der umgekehrten Wasser-Gas-Shift-Reaktion (RWGS) ist einer der wichtigsten Wege für die CO₂-Nutzung, da CO ein Rohstoff für die Synthese von Methanol- und Kohlenwasserstoffbrennstoffen durch die FT-Reaktion ist. **122** Trotzdem sind die endotherme Natur der RWGS-Reaktion und die geringe Umwandlung bei moderaten Temperaturen die beiden Hauptengpässe bei der Bereitstellung einer Methanolproduktion in großem Maßstab aus CO₂ durch den FT-Prozess. Darüber hinaus stellt die Entwicklung aktiver Katalysatoren, die die Reaktionskinetik beschleunigen und die Ausbeute maximieren können, eine weitere signifikante Barriere dar.

In jüngster Zeit hat DRM ein erhebliches Forschungsinteresse hinsichtlich der Verwendung von CO₂ für die Synthesegasproduktion auf sich gezogen. **124 - 126** Typischerweise ist die Reinheit von Synthesegas, das durch DRM erzeugt wird, höher als die, die durch partielle Oxidation und Dampfreformierung erzeugt wird. **127** Darüber hinaus beträgt die Menge an nicht umgesetztem Methan im DRM-Prozess nur 2%, was weniger ist als bei der Dampfreformierung, und dies ermöglicht die Anwendung von DRM an entfernten Erdgasstandorten zur Herstellung flüssiger Brennstoffe, die einfacher sind zu transportieren als gasförmige Brennstoffe. **113** Ni, Ni-Co, Ru, Ir und Rh auf Siliciumdioxid, Aluminiumoxid und Lanthanoxid wurden in der DRM-Reaktion eingehend untersucht. **128** Trotz erheblicher Fortschritte bei der Entwicklung von Katalysatoren mit hoher Aktivität und optimaler Stabilität für DRM bleibt die Suche nach einem geeigneten Katalysator für diese Reaktion eine große Hürde, insbesondere bei hohen Betriebstemperaturen, da eine Deaktivierung durch Koksbildung bei hohen Temperaturen (> 700 °C) unvermeidlich ist. **129 - 133**

Die oxidative Dehydrierung von leichten Alkanen zu Alkenen (ODA) mit CO₂ als weichem Oxidationsmittel (anstelle von O₂, das typischerweise in Dehydrierungsprozessen verwendet wird) ist ein weiterer attraktiver Ansatz, der die Menge an Koksbildung verringern und die Stabilität von Katalysatoren bei aufrechterhalten kann erhöhte Temperatur. **134 - 138** Darüber

hinaus verbessert CO₂ die Gleichgewichtsumwandlung der oxidativen Dehydrierung von leichten Alkanen durch Entfernen von Wasserstoff durch die RWGS-Reaktion. **139** Bei der Überwachung der Temperatur ist jedoch Vorsicht geboten, da übermäßige Hitze zu einer Überoxidation der Olefine führen kann, die Kohlenoxide ergibt und zu einer geringen Selektivität führt. **140** CO₂ bildet auch den Redoxzyklus und produziert aktive Sauerstoffspezies. Die Rolle von CO₂ in der ODA und der Mechanismus dieser Reaktion sind unklar und hängen von der Art der aktiven Zentren und der Reduzierbarkeit des Metalls und seines Trägermaterials ab. **141** Trotz anfänglich hoher Aktivität weisen die bisher untersuchten Katalysatoren eine geringe Stabilität auf.

Aus der obigen Diskussion geht hervor, dass die Haupthürde bei der Verwendung von eingefangenenem CO₂ als Ausgangsmaterial für die Herstellung synthetischer Brennstoffe in der Konstruktion und Entwicklung neuer Katalysatoren liegt, die nicht nur unter verschiedenen Reaktionsbedingungen eine hohe katalytische Aktivität aufweisen, sondern auch beständig sind Koksbildung und langfristige chemische und strukturelle Stabilität zu zeigen.

3.2.2 Herstellung von Chemikalien

Neben synthetischen Kraftstoffen kann CO₂ als Ausgangsmaterial zur Herstellung einer Vielzahl von Feinchemikalien verwendet werden. Die wichtigsten Anwendungen sind Harnstoff (~ 160 Mt Jahr⁻¹), anorganische Carbonate (~ 60 Mt Jahr⁻¹), Polyurethan (~ 18 Mt Jahr⁻¹), Acrylsäure und Acrylate (10 Mt Jahr⁻¹), Polycarbonate (4 Mt Jahr⁻¹) und Alkylencarbonate (einige kt Jahr⁻¹). **4** Harnstoff hat als Hauptdünger den größten Markt für die CO₂-Nutzung. **4**, **142** Es wird auch häufig als Ausgangsmaterial in der Polymersynthese, in Pharmazeutika, Feinchemikalien und anorganischen Chemikalien wie Melamin- und Harnstoffharzen verwendet. **143**, **144**

Organische Carbonate wie acyclische (lineare) Carbonate [z. B. Dimethylcarbonat (DMC), Diallylcarbonat (DAC), Diethylcarbonat (DEC) und Diphenylcarbonat (DPC)], cyclische Carbonate [z. B. Ethylencarbonat (EC), Propylen Carbonat (PC), Cyclohexencarbonat (CC) und Styrolcarbonat (SC)] sowie Polycarbonate [z. B. Poly (propylencarbonat) und Bisphenolpolycarbonat (BPA-PC)], die viele Anwendungen in Pharmazeutika, Agrochemikalien, Polymeren, Schmiermitteln haben, Beschichtung und katalytische Reaktionen sind eine weitere Klasse von Chemikalien, die aus eingefangenenem CO₂ hergestellt werden können. **95**, **124** Die Herausforderungen dieses Verfahrens ergeben sich aus dem Betrieb bei hohen Temperaturen und Drücken und der Notwendigkeit eines hohen Katalysatorbestands. Darüber hinaus ist die Trennung des Katalysators von den Produkten eine weitere Herausforderung in diesem Verfahren. **95**, **124** Bei der Herstellung von Polycarbonaten aus der Reaktion von CO₂ mit Epoxiden werden häufig handelsübliche Katalysatoren auf Al-Basis verwendet, die jedoch nicht umweltfreundlich sind. In dieser

Hinsicht ist der oxidative Carboxylierungsweg eine Alternative mit großem Potenzial zur Synthese von Polycarbonaten aus CO₂ und Olefinen. **113** Polyurethan ist eine weitere Chemikalie, die durch die Reaktion von CO₂ entsteht mit cyclischen Aminen wie Aziridinen und Azetidinen oder den N-Analoga von Epoxiden. **113**, **145**

Eine weitere wichtige Chemikalie, die durch CO₂-Verwertung erhalten werden kann, ist Ameisensäure. Die Hydrierung von CO₂ zu Ameisensäure hat in letzter Zeit ein gewisses Interesse auf sich gezogen, hauptsächlich aufgrund der milden Reaktionsbedingungen, der fehlenden Bildung von Nebenprodukten, der Fähigkeit, Wasserstoff in flüssiger Form zu speichern, und der leichten Zersetzung von Ameisensäure in Wasserstoff und CO₂. **98**, **143**

Die biologische Nutzung von CO₂ bietet einen weiteren Weg für die Herstellung von Biodiesel und verschiedenen aus Biomasse gewonnenen Rohstoffchemikalien (die als Lebensmittel, Silage, Biogas und Dünger verwendet werden). **146** Die Vorteile dieses Ansatzes umfassen eine höhere Wachstumsrate, einen kürzeren Wachstumszyklus, keinen Wettbewerb an Land mit anderen Pflanzen und die Produktion verschiedener wertvoller Nebenprodukte. Das eingefangene CO₂ sollte jedoch vor dem Einspeisen in einen Photobioreaktor gereinigt werden, um Schadstoffe wie SO_x, NO_x und Schwermetalle zu entfernen, die für das Wachstum von Mikroalgen toxisch sind. **9**

Zusätzlich zu EOR hat die Verwendung von CO₂ als technologisches Fluid ohne Umwandlung in Chemikalien in vielen Branchen Anwendung gefunden, einschließlich der Klima- (als Kühlmittel), Lösungsmittel-, Trockenwasch-, Lebensmittelkonservierungs- und Getränkeindustrie. **4**, **96**, **98** **Im** Allgemeinen verbraucht EOR 50 Mt Jahr⁻¹ CO₂, während 8 Mt Jahr⁻¹ CO₂ in der Lebensmittel- und Getränkeindustrie verbraucht wird. **147**

Obwohl es einen großen Markt für die Umwandlung von eingefangenen CO₂ in Chemikalien und Kraftstoffe gibt, sind die vorgeschlagenen Technologien im Labormaßstab noch weit von einer industriellen Kommerzialisierung entfernt. Der Grund dafür liegt zum einen darin, dass die bisher untersuchten Materialien teuer in der Herstellung und dennoch nicht chemisch stabil sind, und zum anderen darin, dass in den meisten Fällen die CO₂-Umwandlungsraten und die Gesamtausbeuten der Hauptprodukte niedrig sind und daher die Anforderungen für nicht erfüllen Bereitstellung in großem Maßstab. Darüber hinaus gibt es noch ein begrenztes Verständnis der Reaktionsmechanismen, die an den chemischen Umwandlungen von CO₂ beteiligt sind. Die Bewertung der Prozessanforderungen und -überlegungen wird in diesem Bereich ebenfalls übersehen.

3.3 Nichtgeologische Speicherung von CO₂ (Mineralisierung)

Die nichtgeologische Lagerung oder Mineralkarbonatisierung von CO₂ führt zur Bildung stabiler Mineralkarbonate durch Behandlung von CO₂ mit Metalloxiden wie Calcium- und Magnesiumoxiden, die von Natur aus in Form von Mineralsilikaten reichlich vorhanden sind. **7** Die Karbonatisierung von Magnesium- und Calciumsilikaten durch spontane Reaktion mit atmosphärischem CO₂ unter Umgebungsbedingungen ist ein natürlich vorkommender Prozess (bekannt als natürliche Verwitterung), der thermodynamisch bevorzugt und dennoch sehr langsam ist. **4 Eine** künstliche Verbesserung der Karbonatisierungskinetik kann durch Injizieren von Flüssigkeiten mit einer höheren CO₂-Konzentration erreicht werden und durch Erhöhen der Temperatur. Trotz erheblicher Anstrengungen zur Beschleunigung dieser Reaktion ist die langsame Kinetik immer noch der Hauptnachteil bei der Beschleunigung des Mineralisierungsprozesses. **4** Darüber hinaus ist dieser Prozess energieintensiv, da die Gewinnung, Verarbeitung und der Transport der Gesteine sowie hohe Drücke (10,0–15,0 MPa) und Temperaturen (150–600 °C) erforderlich sind, um eine höhere Karbonatisierungseffizienz als zu erreichen 80%. **148** Auch die Dauer der Karbonatisierungsreaktion ist sehr lang (6–24 h), und die Gesteine sollten abgebaut werden (<37 µm). Große Pflanzengrößen und die Notwendigkeit von Additiven zur Extraktion reaktiver Spezies und zur Trennung (oder Entsorgung) von Reaktionsprodukten sind weitere Komponenten mit hohen Kosten. **148** In gewissem Sinne kann der Mineralisierungsprozess als Sequestrierungsmethode angesehen werden, da er auf die dauerhafte Fixierung von CO₂ abzielt. Im Gegensatz zu CCS, das unter Leckage leidet (geologische Speicherung von CO₂), sind die Carbonate stabil und sicher. **149** Auch die exotherme Natur der Mineralisierungsreaktion sowie der geothermische Gradient (bis zu 20 °C km⁻¹) tragen zur Reduzierung des Energieverbrauchs bei. Da für diesen Prozess kein reines CO₂ erforderlich ist, kann Rauchgas direkt verwendet werden, ohne Verunreinigungen wie SO_x und NO_x zu entfernen. **147**

Um die betrieblichen und technologischen Nachteile des direkten Karbonisierungsprozesses zu beheben, kann die indirekte Karbonisierung (indirekte Speicherung) in mehreren Reaktoren implementiert werden. Bei diesem Verfahren kann eine hohe Karbonatisierungseffizienz und Reinheit in Gegenwart von Additiven unter milden Bedingungen und kurzen Zeiträumen erhalten werden. **149**, **150** Ein weiterer Vorteil dieses Verfahrens ist die Herstellung verschiedener Waren wie Magnesium / Calciumcarbonat, Eisenoxid und Kieselsäure, die die Prozesskosten kompensieren können. Da dieser Prozess jedoch komplex ist, sollte die Optimierung der Betriebsbedingungen für jeden Schritt separat durchgeführt werden. **4** Darüber hinaus sind die Energiekosten nach wie vor ein Haupthindernis für die Vermarktung. **7**, **149** Um die Energiekosten zu senken, können Materialien wie Essigsäure, Ammoniumsalze und Natriumhydroxid anstelle von Salzsäure

verwendet werden, die typischerweise in diesem Verfahren verwendet wird. **149** , **151**
Die Beschleunigung der Reaktionskinetik durch fortschrittliche Materialien ist eine
Möglichkeit, die Effizienz des Prozesses zu verbessern. **150** **Die** indirekte
Mineralkarbonatisierung wird als das nützlichste Verfahren angesehen und kann in naher
Zukunft möglicherweise erweitert werden. **152** Vor kurzem wurde innerhalb von zwei
Jahren ein nahezu vollständiger In-situ-CO₂-Mineralisierungsprozess in Basaltgesteinen
erreicht. **153**

Die Möglichkeit, Alkalimetallabfälle durch Carbonisierung zu Produkten mit hoher
kommerzieller Wertschöpfung wie hochreinem gefälltem CaCO₃ zu verarbeiten, ist ein
vielversprechender Ansatz, der im Mittelpunkt künftiger Forschungen auf diesem Gebiet
stehen sollte. **149** - **151** , **154** Beispielsweise führt die Karbonatisierung von Ca-tragenden
zementhaltigen Materialien durch Reaktion mit CO₂ zur Entwicklung einer hohen Festigkeit
im Frühstadium für Baustoffanwendungen, und eine CO₂-Aufnahme von 7–12% wird in der
EU erreicht Prozess. **155** Bisher sind nur wenige Projekte, die auf der Verwertung
anorganischer Abfälle beruhen, in die kommerzielle oder kleine Demonstrationsphase
übergegangen. Zum Beispiel die Nachrüstung eines Zementwerks in Texas durch SkyMine
(Capitol Aggregates), um die Kohlenstoffemissionen durch die direkte Umwandlung von
Rauchgas in marktfähige Produkte wie Natriumbicarbonat, Salzsäure um 15% (83 000 t Jahr⁻¹)
zu reduzieren. und Bleichen nähert sich dem Kommerzialisierungsschritt. In einem anderen
Beispiel wurde in einem 2120-MW-Kohlekraftwerk in Point of Rocks, WY, USA, eine
Pilotdemonstration des Mineralkarbonisierungsprozesses auf der Grundlage der Verwendung
von Flugasche zur Reduzierung der CO₂-Emissionen installiert. **156**

3.4 Entsalzung und Wasserproduktion

Als weiterer vielversprechender Verwendungsansatz kann eingefangenes CO₂ verwendet
werden, um insgesamt gelöste Feststoffe (TDS) zu entfernen und Salzlösung in Wasser
umzuwandeln. **157** - **159** Das entstehende Trinkwasser kann an Orten verwendet werden, an
denen ein Mangel besteht. **6** Während die meisten Entsalzungsanlagen aus wirtschaftlichen
Gründen kein CO₂ zur Entsalzung verwenden, werden neue Technologien für die
kostengünstige und effiziente Nutzung von CO₂ in diesem Prozess entwickelt. Wenn
Meerwasser, gemischt mit Ammoniak (um die Salzmoleküle zu schwächen), CO₂ ausgesetzt
wird, beginnen sich bereits schwache Bindungen zu bilden, die zur Entfernung der Ionen aus
der Wasserphase führen. **159** Die gebildeten Produkte Na₂CO₃ und NH₄Cl sind schwer und
können sich daher leicht am Boden des Tanks absetzen. Das letztere NH₄Cl kann durch
thermische Operationen mit Calciumoxid recycelt oder als Ausgangsmaterial für die Synthese
von Ammoniak und Chlor verwendet werden. Die Hydratbildungsmethode ist eine weitere
Technik, die zur Entsalzung verwendet wird. Dabei werden Hydrate gebildet, indem CO₂
verwendet wird, um die Salze von Wasser zu trennen. **160** , **161** Bei diesem Ansatz kann

CO₂ entweder in gasförmiger oder flüssiger Form vorliegen. Die CO₂-Hydrate werden entweder in den Ozean abgeladen oder an einen anderen Ort transportiert. **162** Der Ammoniak-Kohlendioxid-Vorwärtsosmoseprozess ist eine weitere Entsalzungstechnik, bei der CO₂ verwendet wird. **158** Bei diesem Prozess ist die treibende Kraft der osmotische Druck anstelle des hydraulischen Drucks bei der Umkehrosmose, und durch Verwendung einer Ziehlösung werden die Sole und das Frischwasser getrennt.

Ein Problem, mit dem Entsalzungsprozesse häufig konfrontiert sind, ist der Soleabfall, der während des Prozesses in sehr großen Mengen anfällt. **163** Darüber hinaus können hohe Salzkonzentrationen, chemische Lösungsmittelrückstände und Metallkorrosion das lokale Ökosystem destabilisieren. **164** Um diese Probleme zu überwinden, wurde die Verwendung von drei Haupteinheiten vorgeschlagen, nämlich Carbonisierung, Filtration und Rückgewinnung für Chlorid- und Aminverbindungen. **165**

Es ist unwahrscheinlich, dass die Entsalzung ohne wesentliche Kostenvorteile in den Markt eindringt. Laut einem kürzlich veröffentlichten DOE-Bericht aus dem Jahr 2013 werden die Kosten für die Trinkwasserproduktion mit ungefähr 21 ppm TDS aus 233 000 ppm Salzlösung unter Verwendung von drei Stufen der CO₂-basierten Clathratentsalzung auf 3,17 USD Kgal⁻¹ .kilogallon (1) geschätzt gal ~ 3,8 l). **166** Je nach Solequelle können die Kosten erheblich variieren. Die geschätzten Entsalzungskosten sind derzeit höher als die landwirtschaftlichen oder kommunalen Wasserkosten, was die Entsalzungstechnologie auf CO₂-Basis für den Wassermarkt weniger attraktiv macht. Insbesondere angesichts der hohen Kosten für die Bereitstellung von Wasser in landwirtschaftlicher Qualität durch CO₂ Aufgrund der Entsalzung ist es höchst unwahrscheinlich, dass diese Technologie zur Versorgung mit landwirtschaftlichem Wasser eingesetzt werden kann. Obwohl CO₂ eine attraktive Option für die Entsalzung bleibt, sind die derzeitigen Kosten für Trinkwasser, die mit den CO₂-bezogenen Technologien erzeugt werden, alles andere als wettbewerbsfähig.

3.5 Zusammenfassung

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die Zukunftsaussichten von Technologien zur Kohlenstoffverwertung vielversprechend sind und dass in verschiedenen Branchen ein großes Potenzial besteht, die Nutzung von gebundenem CO₂ als erneuerbare Ressource zu vermarkten, anstatt es dauerhaft unter der Erde oder in den Ozeanen zu binden. Es wird erwartet, dass bei der künftigen Forschung und Entwicklung zu den oben diskutierten Schlüsselkomponenten der CO₂-Nutzung die Mehrheit der vorgeschlagenen oder aufkommenden Technologien im Zusammenhang mit der CO₂-Nutzung weiterhin niedrigere Kosten verursachen wird, wodurch mehr Feinchemikalien, Kraftstoffe, und Wassermärkte, die mit nachhaltigen CO₂-basierten Prozessen adressiert werden können. Die Einführung dieser neuen Technologien hängt in hohem Maße von ihrer Kosteneffizienz ab. Bisher nur ein

kleiner Teil des CO₂ aus Gasabwässern gewonnen wurde tatsächlich zur Energieversorgung oder zur Herstellung anderer Mehrwertprodukte verwendet. Die geschätzten hohen Kosten sowie die geringe Effizienz dieser Technologien sind die beiden Schlüsselfaktoren für einen derart langsamen Fortschritt. Tabelle 2 enthält eine Zusammenfassung der aktuellen Herausforderungen und zukünftigen Chancen im Zusammenhang mit verschiedenen in diesem Abschnitt erörterten CO₂-Nutzungsrouten.

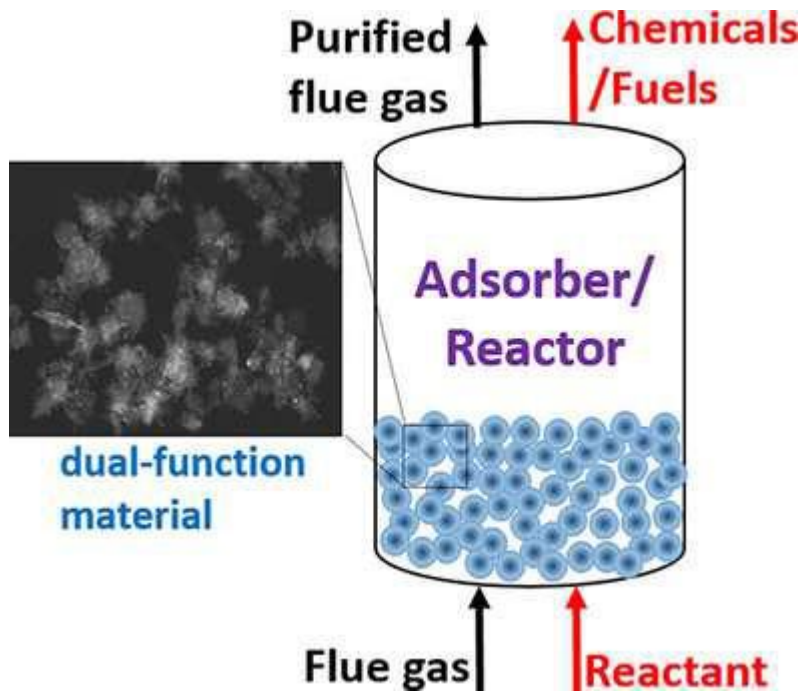
Tabelle 2. CO₂-Nutzungstechnologien und die damit verbundenen Herausforderungen und Chancen.

| Nutzungstechnologie | Herausforderungen | Chancen |
|------------------------------------|--|--|
| chemische Umwandlung | hohe Betriebsbedingungen | Trockenreformierung von Methan |
| | Komplexität der Reaktionswege | katalytische Reduktion zu Ameisensäure und ihren Derivaten |
| | Stabilität der Katalysatoren gegen Koksbildung | Edelmetall-dotierte Übergangsmetallkatalysatoren |
| | niedrige Umwandlungs- und Produktausbeuteraten | biologische Wege zu synthetischen Kraftstoffen |
| | Katalysatorregeneration | oxidative Dehydrierung |
| | Entwicklung hochselektiver Katalysatoren | |
| verbesserte Öl / Gas-Rückgewinnung | Transport von CO ₂ | Wasserwechselgas (WAG) |
| | große Anzahl von Parametern beteiligt | kompensiertes Neutronenprotokoll (CNL) |
| | Schwankungen des Ölpreises | |
| Mineralisierung | langsame Kinetik | indirekte Karbonatisierung |
| | Hochdruck- und Hochtemperaturbetrieb | Verwertung anorganischer Abfälle |

| Nutzungstechnologie | Herausforderungen | Chancen |
|---------------------|-----------------------------|---|
| Entsalzung | teuer zu implementieren | |
| | Gerätekorrosion | Bereitstellung von Trinkwasser für Privat- und Kommunalkunden |
| | teurer Betrieb | mögliche Umsetzung ist verschiedene Regionen |
| | große Menge an Soleabfällen | modifizierter Solvay-Prozess |

4 Kombinierte CO₂-Abscheidung und -Verwendung

Die Kombination von Erfassung und Nutzung bietet eine effiziente Strategie zur Minimierung des hohen Energiebedarfs für die direkte Produktion von Chemikalien / Kraftstoffen aus Abgasströmen, insbesondere wenn die Erfassung und Nutzung bei derselben Temperatur durchgeführt werden. Eine solche Prozessintensivierung wird zu kleineren, saubereren und energieeffizienteren Technologien führen. Das Konzept von Hybridprozessen bei der Gastrennung und -reaktion wurde bereits auf mehrere Anwendungen angewendet. Beispielsweise kombinieren Membranreaktoren (MRs) die Membrantrennung mit einer chemischen Reaktion in einer Einheit. MRs können einen Reaktionsprozess fördern, indem sie selektiv mindestens eines der Produkte durch die Membran aus der Reaktionszone entfernen, wodurch sich die Gleichgewichtsreaktion auf die Produktseite verschiebt. **167 - 169** Die sorptionsverstärkte Reaktion (SER) ist ein ähnliches Konzept, das Adsorption mit einer Reaktion in einer Einheit kombiniert. SER wurde in großem Umfang auf die Wasser-Gas-Shift-Reaktion (WGS) zur Herstellung von hochreinem Wasserstoff angewendet. **170 - 176** Bei diesem Verfahren ermöglicht die In-situ-Abscheidung von CO₂, dass das thermodynamisch beschränkte WGS-Verfahren bei höheren Temperaturen (dh 350 ° C) arbeitet, bei denen die Reaktionskinetik günstiger ist. **175** Solche neuartigen Konzepte könnten für die gleichzeitige Abscheidung und Nutzung von CO₂ in verschiedenen Branchen übernommen werden. Das Schema des vorgeschlagenen Capture-Use-Prozesses ist in Abbildung **3 dargestellt**.



Figur 3

[Im Figure Viewer öffnen](#) [Power Point](#)

Schema des vorgeschlagenen kombinierten Prozesses zur Kohlenstoffabscheidung und -verwertung.

Das Konzept der Herstellung von Chemikalien und Brennstoffen direkt aus industriellen Rauchgasen über einem Doppelfunktionsmaterial wurde bereits auf die Herstellung von Synthesegas (CO und H_2) angewendet, einem nützlichen Reaktanten für die Methanolsynthese. [114](#), [177](#), [178](#) Bei diesem als Tri-Reforming von Methan bezeichneten Prozess findet eine synergetische Kombination aus CO_2 -Reformierung, Dampfreformierung und partieller Oxidation von Methan in einem einzelnen Reaktor bei 850°C mit Nickel-Trägerkatalysatoren statt. [114](#), [180](#), [181](#) In einem anderen Beispiel die In-situ-Abscheidung und Methanisierung von CO_2 wurde an einem Doppelfunktionsmaterial in Form eines beschichteten Monolithen untersucht, um synthetisches CH_4 unter Verwendung von H_2 bei 320°C herzustellen. [179](#) - [182](#) Die Hydrierung von CO_2 ist ein weiteres Beispiel für die kombinierte Abscheidung und Reduktion, über die kürzlich berichtet wurde. [183](#) Die gleichzeitige Abscheidung und Mineralisierung von CO_2 aus der Kohleverbrennung ist ein weiteres Beispiel für ein Hybridverfahren, das in den USA im Pilotmaßstab demonstriert wurde. [156](#)

Solche integrierten Systeme könnten eine Lösung für die derzeit weltweit auftretenden Energie- und Umweltprobleme bieten. Die Entwicklung neuartiger In-situ-Capture-Conversion-Technologien erfordert jedoch Fortschritte sowohl in der Materialwissenschaft als auch in der Verfahrenstechnik. Angesichts der unterschiedlichen Natur der Adsorption und

Katalyse sollten die grundlegenden Aspekte der Eigenschaften von Hybridadsorbens / Katalysator in Verbindung mit Prozessüberlegungen und Betriebsbedingungen sorgfältig untersucht werden, um eine hocheffiziente und kostengünstige Technologie zu erhalten. Für die direkte Nutzung von Abgasströmen kann der spezifische Widerstand von Materialien (insbesondere Katalysatoren) gegenüber Verunreinigungen eine Herausforderung darstellen, und es sollten Anstrengungen unternommen werden, um die Zuverlässigkeit der Materialien für eine lange Lebensdauer sicherzustellen.

5 Ausblick

In diesem kurzen Rückblick wurden die aktuellen Herausforderungen und zukünftigen Möglichkeiten der Technologien zur Kohlenstoffabscheidung und -verwertung unter dem Gesichtspunkt der Effizienz und der Kosten vorgestellt und diskutiert. In den letzten Jahren wurden erhebliche Fortschritte beim Design und der Entwicklung verschiedener CCU-Technologien erzielt, wobei einige Fälle im industriellen Maßstab eingesetzt wurden. Die meisten bisher in Betracht gezogenen Technologieoptionen befinden sich jedoch noch im Entwicklungsstadium im Labormaßstab. In beiden Szenarien wird die kommerzielle Implementierung neuartiger Materialien, die den aktuellen Stand der Technik in den jeweiligen Techniken übertreffen, den Energiebedarf sowohl der Erfassungs- als auch der Nutzungsprozesse sicherlich senken. Jedoch, die Erforschung und Entwicklung von Materialkonzepten sollte mit Überlegungen zur Prozessleistung verbunden werden, um deren Potenzial unter realen Bedingungen besser bewerten zu können. Eine solch ganzheitliche Sicht auf Materialien und Prozesse sowie eine gegenseitige Kommunikation zwischen Materialwissenschaftlern und Ingenieuren werden dazu beitragen, das Scale-up von CCU-Technologien dramatisch zu beschleunigen. Darüber hinaus sollten bei der Bewertung von Materialien oder Prozessen im kleinen Maßstab die Anforderungen an die Implementierung im großen Maßstab berücksichtigt werden, um eine realistische Bewertung der Leistung zu ermöglichen und die Unsicherheiten bei der Schätzung der damit verbundenen Kosten zu verringern. Die Kosteneffizienz ist der entscheidende Faktor für die Machbarkeit der Einführung vieler neuer CCU-Technologien.

Die Langzeitstabilität der in den meisten CCU-Methoden verwendeten Materialien ist ein wichtiger Gesichtspunkt, der nicht nur die Systemleistung, sondern auch die Wirtschaftlichkeit des Prozesses beeinflusst. Im Zusammenhang mit der Nutzung können insbesondere die Herstellung von Kraftstoffen und Chemikalien sowie die Nutzung erneuerbarer Energiequellen die Gesamtkosten senken und gleichzeitig einen nachhaltigen Ansatz für die Herstellung von Mehrwertprodukten bieten. In den meisten Technologien ermöglichen die Systemintegration und Prozessintensivierung einen kostengünstigen Ansatz zur Verbesserung der Trennung und der thermodynamischen Effizienz. Die Komplexität des

Vorgangs und andere damit verbundene Probleme sollten jedoch ebenfalls berücksichtigt werden.

Hybridprozesse, die entweder CO₂-Erfassungs-Subsysteme koppeln oder simultane Erfassungs- und Nutzungsansätze bieten, sollten im Mittelpunkt künftiger Forschung stehen, da thermodynamische Analysen solcher Systeme ihre Energieeffizienz und Kosteneffizienz (durch Reduzierung der Kapital- und Betriebskosten) hervorgehoben haben. Obwohl die aufkommenden Hybridsysteme viele Merkmale der CCU-Technologien der nächsten Generation zu haben scheinen, sind für diese aufkommenden Technologien mehr Forschung (z. B. Materialentwicklung, Anforderungen an den Prozessbetrieb) und Entwicklung (z. B. synergistische Bewertungsstudien und Prozessskalierung) erforderlich in naher Zukunft im Handel erhältlich sein. Jede Machbarkeitsstudie sollte auch andere Überlegungen in Bezug auf Umweltauswirkungen, Risikobewertung und Lebenszyklusanalyse enthalten.

Danksagung

Die Finanzierung erfolgte teilweise durch das Research Board der University of Missouri (UMRB).

[Verweise](#)

Biografische Informationen

Ahmed Al-mamoori erhielt seinen B.Sc. in Chemieingenieurwesen an der Al-Nahrain-Universität in Bagdad im Jahr 2005 und sein M.Sc. von der Al-Nahrain-Universität in Bagdad im Jahr 2009. Derzeit promoviert er zum Dr. in Chemieingenieurwesen an der Missouri University of Science and Technology. Seine Forschungsinteressen umfassen die Abscheidung und Nutzung von CO₂, Adsorption, Katalyse und Reaktionstechnik.



Biografische Informationen

Anirudh Krishnamurthy erhielt seinen Btech. Er studierte Chemieingenieurwesen am Alagappa College of Technology der Anna University in Indien im Jahr 2014 und macht derzeit seinen MS in Chemieingenieurwesen an der Missouri University of Science and Technology. Seine Forschungsinteressen umfassen die CO₂-Abscheidung, Adsorbensmaterialien und die Kontrolle der Emissionen flüchtiger organischer Kohlenstoffatome.



Biografische Informationen

Dr. Rownaghi ist Assistenzprofessor für Chemieingenieurwesen und Bioverfahrenstechnik an der Missouri University of Science and Technology. Er erhielt seinen Ph.D. Abschluss in Katalyse an der Universität Putra Malaysia (UPM) im Jahr 2008. Nach seiner Postdoktorandenforschung an der Georgia Tech begann er 2014 seine akademische Karriere bei Missouri S & T. Die Forschung in seiner Gruppe konzentriert sich auf die Schaffung, das Verständnis und die rationale Entwicklung fortschrittlicher Materialien für die Katalyse, Membran- und Barriereanwendungen durch innovative und skalierbare Verarbeitungsstrategien.



Biografische Informationen

Dr. Rezaei ist Assistenzprofessor für Chemieingenieurwesen und Bioverfahrenstechnik an der Missouri University of Science and Technology. Sie erhielt ihren Ph.D. 2011 Abschluss in Chemieingenieurwesen an der Monash University in Australien und der Luleå University of Technology (LTU) in Schweden. Sie arbeitete als Postdoktorandin bei Georgia Tech, bevor sie 2014 zu Missouri S & T kam. Ihr Forschungsschwerpunkt liegt weitgehend an der Schnittstelle zwischen Chemie und Chemie. Materialwissenschaft und Umwelttechnik, wo das allgemeine Ziel ihrer Arbeit darin besteht, fortschrittliche Materialien und Verfahren für saubere Energie und nachhaltige chemische Prozesse zu entwickeln.



Verweise:

1 US Energy Information Administration (EIA), *Jährlicher Energie-Ausblick 2015 (AEO2015), mit Projektionen bis 2040*, April 2015, DOE / EIA-0383 (2015), S. 1–154 [http://www.eia.gov/outlooks/aeo/pdf/0383\(2015\).pdf](http://www.eia.gov/outlooks/aeo/pdf/0383(2015).pdf).

Google Scholar

2 21. Tagung der Konferenz der Vertragsparteien des Rahmenübereinkommens der Vereinten Nationen über Klimaänderungen (COP

21), 2015 , <http://www.c2es.org/international/negotiations/cop21-paris/summary> , abgerufen am 15. November 2016.

Google Scholar

3 P. Markewitz , W. Kuckshinrichs , W. Leitner , J. Linssen , P. Zapp , R. Bongartz , A. Schreiber , TE Müller , *Energy Environ. Sci.* 2012 , **5** , 7281 - 7305 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

4 M.E. Boot-Handford , JC Abanades , EJ Anthony , MJ Blunt , S. Brandani , N. Mac Dowell , JR Fernández , M.-C. Ferrari , R. Gross , JP Hallett , RS Haszeldine , P. Heptonstall , A. Lyngfelt , Z. Makuch , E. Mangano , RTJ Porter , M. Pourkashanian , GT Rochelle , N. Shah , JG Yao , PS Fennell , *Energieumgebung. Sci.* 2014 , **7** , 130 - 189 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

5 IEA, *Technologie-Roadmap: Kohlenstoffabscheidung und -speicherung* , <https://www.iea.org/publications/freepublications/publication/technologyroadmapcarboncaptureandstorage.pdf> , 2013 .

Google Scholar

6 P. Styring, D. Jansen, H. de Coninck, H. Reith, K. Armstrong, *Kohlenstoffabscheidung und -nutzung in der grünen Wirtschaft* , Zentrum für kohlenstoffarme Futures, 2011 , <http://co2chem.co.uk/carbon-Erfassung-und-Nutzung-in-der-grünen-Wirtschaft> .

Google Scholar

7 R.M. Cuéllar-Franca , A. Azapagic , *J. CO2 Util.* 2015 , **9** , 82 - 102 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

8 N. von der Assen , P. Voll , M. Peters , A. Bardow , *Chem. Soc. Rev.* 2014 , **43** , 7982 - 7994 .

Crossref CAS PubMed Web of Science®Google Scholar

9 F.D. Meylan , V. Moreau , S. Erkman , *J. CO2 Util.* 2015 , **12** , 101 - 108 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

10 Z. Yuan , MR Eden , R. Gani , *Ind. Eng. Chem. Res.* 2016 , **55** , 3383 - 3419 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

11 D.C. Miller , J.T. Litynski , LA Brickett , BD Morreale , *AIChE J.* 2016 , **62** , 2 - 10 .

Wiley Online-Bibliothek CAS Web of Science®Google Scholar

12 M. Songolzadeh , M. Soleimani , M. Takht Ravanchi , R. Songolzadeh , *Sci. World J.* 2014 , **2014** , 1 - 34 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

13 M. Abotalib , F. Zhao , A. Clarens , *ACS Sustainable Chem. Eng.* 2016 , **4** , 4743 - 4751 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

14 Y. Ahn , SJ Bae , M. Kim , SK Cho , S. Baik , JI Lee , JE Cha , *Nucl. Eng. Technol.* 2015 , **47** , 647 - 661 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

15 *World Energy Outlook* , 2015 , S. 1–12, http://www.oecd-ilibrary.org/energy/world-energy-outlook-2014_weo-2014-de , abgerufen am 25. November 2016.

Google Scholar

16 *Demonstrationsprojekt zur integrierten Kohlenstoffabscheidung und -speicherung von Boundary Dam* , 2015 , <http://www.saskpower.com/our-power-future/carbon-capture-and-storage/> , abgerufen am 25. November 2016.

Google Scholar

17 Y. Kong , X. Shen , M. Fan , M. Yang , S. Cui , *Chem. Eng. J.* 2016 , **283** , 1059 - 1068 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

18 B. Arstad , H. Fjellvåg , KO Kongshaug , O. Swang , R. Blom , *Adsorption* 2008 , **14** , 755 - 762 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

19 S. Builes , P. López-Aranguren , J. Fraile , LF Vega , C. Domingo , *Energy Fuels* 2015 , **29** , 3855 - 3862 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

20 A. Goeppert , M. Czaun , RB May , GKS Prakash , GA Olah , SR Narayanan , *J. Am. Chem. Soc.* 2011 , **133** , 20164 - 20167 .

Crossref CAS PubMed Web of Science®Google Scholar

21 M.C. Corvo , J. Sardinha , T. Casimiro , G. Marin , M. Seferin , S. Einloft , SC Menezes , J. Dupont , EJ Cabrita , *ChemSusChem* 2015 , **8** , 1935 - 1946 .

Wiley Online-Bibliothek CAS PubMed Web of Science®Google Scholar

22 C. Cadena , JL Anthony , JK Shah , TI Morrow , JF Brennecke , EJ Maginn , *J. Am. Chem. Soc.* 2004 , **126** , 5300 - 5308 .

Crossref CAS PubMed Web of Science®Google Scholar

23 E.D. Bates , RD Mayton , I. Ntai , JH Davis , *J. Am. Chem. Soc.* 2002 , **124** , 926 & ndash ; 927 .

Crossref CAS PubMed Web of Science®Google Scholar

24 G. T. Rochelle , *Science* 2009 , **325** , 1652 - 1654 .

Crossref CAS PubMed Web of Science®Google Scholar

25 T. C. Merkel , H. Lin , X. Wei , R. Baker , *J. Membr. Sci.* 2010 , **359** , 126 - 139 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

26 S. Japip , H. Wang , Y. Xiao , TS Chung , *J. Membr. Sci.* 2014 , **467** , 162 - 174 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

27 Q. Huang , M. Eić , *Sep. Purif. Technol.* 2013 , **103** , 203 - 215 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

28 S. Han , Y. Huang , T. Watanabe , Y. Dai , KS Walton , S. Nair , DS Sholl , JC Meredith , *ACS Comb. Sci.* 2012 , **14** , 263 - 267 .

Crossref CAS PubMed Web of Science®Google Scholar

29 R.P. Lively , DP Leta , BA DeRites , RR Chance , WJ Koros , *Chem. Eng. J.* 2011 , **171** , 801 & ndash ; 810 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

30 A. A. Rownaghi , A. Kant , X. Li , H. Thakkar , A. Hajari , Y. Er , PJ Brennan , H. Hosseini , WJ Koros , F. Rezaei , *ChemSusChem* 2016 , **9** , 1166 - 1177 .

Wiley Online-Bibliothek CAS PubMed Web of Science®Google Scholar

31 W.J. Koros , GK Fleming , *J. Membr. Sci.* 1993 , **83** , 1 - 80 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

32 M.R. Kosuri , WJ Koros , *Ind. Eng. Chem. Res.* 2009 , **48** , 10577 - 10583 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

33 E. Favre , *J. Membr. Sci.* 2007 , **294** , 50 - 59 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

34 US-Energieministerium, Membranverfahren zur Abscheidung von CO₂ aus Rauchgas aus Kohlekraftwerken , NETL-Bericht, **2009** , Projekt 593 <https://www.netl.doe.gov/File%20Library/Research/Coal/ewr/co2/Proj593.pdf> .

Google Scholar

35 W. J. Koros , *AIChE J.* 2004 , **50** , 2326 - 2334 .

Wiley Online-Bibliothek CAS Web of Science®Google Scholar

36 T.J. Kim , H. Vrålstad , M. Sandru , MB Hägg , *J. Membr. Sci.* 2013 , **428** , 218 - 224 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

37 S. Li , Z. Wang , W. He , C. Zhang , H. Wu , J. Wang , S. Wang , *Ind. Eng. Chem. Res.* 2014 , **53** , 7758 - 7767 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

38 H. Z. Chen , Z. Thong , P. Li , T.-S. Chung , *Int. J. Hydrogen Energy* 2014 , **39** , 5043 - 5053 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

39 T.-H. Bae , JR Long , *Energy Environ. Sci.* 2013 , **6** , 3565 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

40 Y. Zhao , WSW Ho , *Ind. Eng. Chem. Res.* 2013 , **52** , 8774 - 8782 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

41 K. Ramasubramanian , H. Verweij , WSW Ho , *J. Membr. Sci.* 2012 , **421-422** , 299 - 310 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

42 H. B. Tanh Jeazet , C. Staudt , C. Janiak , *Dalton Trans.* 2012 , **41** , 14003 - 14027 .

Crossref CAS PubMed Web of Science®Google Scholar

43 R.P. Lively , RR Chance , BT Kelley , HW Deckman , JH Drese , CW Jones , WJ Koros , *Ind. Eng. Chem. Res.* 2009 , **48** , 7314 - 7324 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

44 Y. Labreche , RP Lively , F. Rezaei , G. Chen , CW Jones , WJ Koros , *Chem. Eng. J.* 2013 , **221** , 166 - 175 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

45 Y. Fan , RP Lively , Y. Labreche , F. Rezaei , WJ Koros , CW Jones , *Int. J. Greenh. Gas Control* 2014 , **21** , 61 - 71 .

Crossref CAS PubMed Web of Science®Google Scholar

46 A. Phan , CJ Doonan , FJ Uribe-Romo , CB Knobler , M. O'Keeffe , OM Yaghi , *Acc. Chem. Res.* 2010 , **43** , 58 - 67 .

Crossref CAS PubMed Web of Science®Google Scholar

47 H. Liu , P. Guo , T. Regueira , Z. Wang , J. Du , G. Chen , *J. Phys. Chem. C* 2016 , **120** , 13287 - 13294 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

48 X. Ma , L. Li , S. Wang , M. Lu , H. Li , W. Ma , TC Keener , *Appl. Surfen. Sci.* 2016 , **369** , 390 - 397 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

49 K. T. Chue , JN Kim , YJ Yoo , SH Cho , RT Yang , *Ind. Eng. Chem. Res.* 1995 , **34** , 591 - 598 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

50 H. A. Patel , F. Karadas , A. Canlier , J. Park , E. Deniz , Y. Jung , M. Atilhan , CT Yavuz , *J. Mater. Chem.* 2012 , **22** , 8431 - 8437 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

51 T.E. Reich , S. Behera , KT Jackson , P. Jena , HM El-Kaderi , *J. Mater. Chem.* 2012 , **22** , 13524 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

52 S. Choi , JH Drese , CW Jones , *ChemSusChem* 2009 , **2** , 796 - 854 .

Wiley Online-Bibliothek CAS PubMed Web of Science®Google Scholar

53 D. M. Ruthven , *Prinzipien von Adsorptions- und Adsorptionsprozessen* , Wiley, Hoboken, NJ , 1984 .

CAS Google Scholar

54 L. Hauchhum , P. Mahanta , *Int. J. Energy Environ.* 2014 , **5** , 349 - 356 .

Crossref CAS Google Scholar

55 K. T. Leperi , RQ Snurr , F. You , *Ind. Eng. Chem. Res.* 2016 , **55** , 3338 - 3350 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

56 F. Rezaei , S. Lawson , H. Hosseini , H. Thakkar , A. Hajari , S. Monjezi , AA Rownaghi , *Chem. Eng. J.* 2017 , **313** , 1346 - 1353 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

57 S.E. Agarwal , A. Biegler , LT Zitney , *AIChE J.* 2010 , **56** , 1813 - 1828 .

Wiley Online-Bibliothek CAS Web of Science®Google Scholar

58 J. Merel , M. Clausse , F. Meunier , *Ind. Eng. Chem. Res.* 2008 , **47** , 209 - 215 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

59 A. L. Chaffee , GP Knowles , Z. Liang , J. Zhang , P. Xiao , PA Webley , *Int. J. Greenhouse Gas Control* 2007 , **1** , 11 - 18 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

60 D. Marx , L. Joss , M. Hefti , M. Mazzotti , *Ind. Eng. Chem. Res.* 2016 , **55** , 1401 - 1412 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

61 T. IT Takeguchi , W. Tanakulrungsank , *Gas Sep. Purif.* 1993 , **7** , 3 - 9 .

Crossref CAS Google Scholar

62 F. Rezaei , P. Webley , *Sep. Purif. Technol.* 2010 , **70** , 243 & ndash ; 256 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

63 F. Rezaei , RP Lively , Y. Labreche , G. Chen , Y. Fan , WJ Koros , CW Jones , *ACS Appl. Mater. Interfaces* 2013 , **5** , 3921 - 3931 .

Crossref CAS PubMed Web of Science®Google Scholar

64 R.P. Lively , R. Chance , WJ Koros , *Ind. Eng. Chem. Res.* 2010 , **49** , 7550 - 7562 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

65 J. Mérel , M. Clausse , F. Meunier , *Environ. Prog.* 2006 , **25** , 327 - 333 .

Wiley Online-Bibliothek CAS Web of Science®Google Scholar

66 A. Ntiamoah , J. Ling , P. Xiao , PA Webley , Y. Zhai , *Ind. Eng. Chem. Res.* 2016 , **55** , 703 - 713 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

67 N. Tlili , G. Grévillet , C. Vallières , *Int. J. Greenhouse Gas Control* 2009 , **3** , 519 - 527 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

68 M.G. Plaza , S. García , F. Rubiera , JJ Pis , C. Pevida , *Chem. Eng. J.* 2010 , **163** , 41 - 47 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

69 J. Kärger , DM Ruthven , *Diffusion in Zeolithen und anderen mikroporösen Feststoffen* , Wiley, New York , 1992 .

Google Scholar

70 G. Li , P. Xiao , PA Webley , J. Zhang , R. Singh , *Energie Procedia* 2009 , **1** , 1123 - 1130 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

71 D. M. Ruthven , S. Farooq , KS Knaebel , *Druckwechseladsorption* , VCH, Weinheim , 1994 .

Google Scholar

72 M.M. Hossain , HI de Lasa , *Chem. Eng. Sci.* 2008 , **63** , 4433 - 4451 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

73 L. M. Romeo , S. Usón , A. Valero , JM Escosa , *Int. J. Greenhouse Gas Control* 2010 , **4** , 647 & ndash ; 654 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

74 I. Martínez , R. Murillo , G. Grasa , JC Abanades , *Energie Procedia* 2011 , **4** , Jahre 1699 - Jahre 1706 .

Crossref Web of Science®Google Scholar

75 A. Martínez , Y. Lara , P. Lisbona , LM Romeo , *Int. J. Greenhouse Gas Control* 2012 , **7** , 74 - 81 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

76 D. C. Ozcan , A. Macchi , DY Lu , AM Kierzkowska , H. Ahn , CR Müller , S. Brandani , *Int. J. Greenh. Gas Control* 2015 , **43** , 198 - 212 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

77 R. T. Symonds , DY Lu , V. Manovic , EJ Anthony , *Ind. Eng. Chem. Res.* 2012 , **51** , 7177 - 7184 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

78 N. Rodríguez , M. Alonso , JC Abanades , *AIChE J.* 2011 , **57** , 1356 - 1366 .

Wiley Online-Bibliothek CAS Web of Science®Google Scholar

79 A. Charitos , C. Hawthorne , AR Bidwe , S. Sivalingam , A. Schuster , H. Spliethoff , G. Scheffknecht , *Int. J. Greenhouse Gas Control* 2010 , **4** , 776 - 784 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

80 K. S. Lackner , *Eur. Phys. J. Spec. Oben.* 2009 , **176** , 93 - 106 .

Crossref Web of Science®Google Scholar

81 K. S. Lackner , P. Grimes , H. Ziock , Abfangen von *Kohlendioxid aus der Luft* , http://www.netl.doe.gov/publications/proceedings/01/carbon_seq/7b1.pdf , abgerufen am 20. Oktober 2016.

Google Scholar

82 K. S. Lackner , S. Brennan , JM Matter , A.-HA Park , A. Wright , B. van der Zwaan , *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* 2012 , **109** , 13156 - 13162 .

Crossref CAS PubMed Web of Science®Google Scholar

83 C. W. Jones , *Annu. Rev. Chem. Biomol. Eng.* 2011 , **2** , 31 - 52 .

Crossref CAS PubMed Web of Science®Google Scholar

84 E. S. Sanz-Pérez , CR Murdock , SA Didas , CW Jones , *Chem. Rev.* 2016 , **116** , 11840 - 11876 .

Crossref CAS PubMed Web of Science®Google Scholar

85 R.P. Lively , MJ Realff , *AIChE J.* 2016 , **62** , 3699 - 3705 .

Wiley Online-Bibliothek CAS Web of Science®Google Scholar

86 I. AAC Esteves , JPB Mota , *Desalination* 2002 , **148** , 275 - 280 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

87 B. Belaissaoui , Y. Le Moullec , D. Willson , E. Favre , *J. Membr. Sci.* 2012 , **415-416** , 424 - 434 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

88 C. A. Scholes , MT Ho , DE Wiley , GW Stevens , SE Kentish , *Int. J. Greenhouse Gas Control* 2013 , **17** , 341 - 348 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

89 L. Zhao , E. Primabudi , D. Stolten , *Energie Procedia* 2014 , **63** , Jahre 1756 - Jahre 1772 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

90 M. Scholz , B. Frank , F. Stockmeier , S. Falß , M. Wessling , *Ind. Eng. Chem. Res.* 2013 , **52** , 16929 - 16938 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

91 D. Hasse , J. Ma , S. Kulkarni , P. Terrien , JP Tranier , E. Sanders , T. Chaubey , J. Brumback , *Energie Procedia* 2014 , **63** , 186 - 193 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

92 C. Song , Y. Kansha , Q. Fu , M. Ishizuka , A. Tsutsumi , *J. Taiwan Inst. Chem. Eng.* 2016 , **64** , 69 - 78 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

93 J.A. Wurzbacher , C. Gebald , A. Steinfeld , *Energy Environ. Sci.* 2011 , **4** , 3584 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

94 J.A. Wurzbacher , C. Gebald , S. Brunner , A. Steinfeld , *Chem. Eng. J.* 2016 , **283** , 1329 - 1338 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

95 *Kohlendioxid als chemisches Ausgangsmaterial* (Hrsg.: M. Aresta) , Wiley-VCH, Weinheim , 2010 .

Wiley Online-Bibliothek Google Scholar

96 *Rückgewinnung und Nutzung von Kohlendioxid* (Hrsg.: M. Aresta) , Kluwer Academic, Dordrecht , 2003 .

Google Scholar

97 B. Hu , C. Guild , SL Suib , *J. CO2 Util.* 2013 , **1** , 18 - 27 .

Crossref CAS PubMed Web of Science®Google Scholar

98 M. Aresta , A. Dibenedetto , A. Angelini , *Chem. Rev.* 2014 , **114** , Jahre 1709 - Jahre 1742 .

Crossref CAS PubMed Web of Science®Google Scholar

99 L. S. Melzer *Verbesserte Kohlendioxid-Ölrückgewinnung (CO₂-EOR): Faktoren, die bei der Verbesserung der Kohlenstoffabscheidung, -nutzung und -speicherung (CCUS) zur verbesserten Ölrückgewinnung eine Rolle spielen* , **2012** , http://neori.org/Melzer_CO2EOR_CCUS_Feb2012.pdf .

Google Scholar

100 L.W. Lake , R. Johns , W. Rossen , G. Pope , *Grundlagen der verbesserten Ölgewinnung* , Society of Petroleum Engineers, Richardson, TX , 2014 .

Google Scholar

101 S. Q. Tunio , AHT Mehran , NA Ghirano , ZM El Adawy , *Int. J. Appl. Sci. Technol.* 2011 , **1** , 143 - 153 .

Google Scholar

102 M. Perera , R. Gamage , T. Rathnaweera , A. Ranathunga , A. Koay , X. Choi , *Energies* 2016 , **9** , 481 .

Crossref Web of Science®Google Scholar

103 F. Gozalpour , SR Ren , B. Tohidi , *Oil Gas Sci. Technol.* 2005 , **60** , 537 - 546 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

104 J. Cho , T.H. Kim , K.S. Lee , *Modellierung des CO₂-EOR-Prozesses in Kombination mit intermediären Kohlenwasserstofflösungsmitteln für eine höhere Rückgewinnungseffizienz* , SPE EOR-Konferenz bei Oil and Gas West Asia , **2016** , DOI: [10.2118 / 179778-MS](https://doi.org/10.2118/179778-MS) .

Google Scholar

105 M. A. Klins , *Kohlendioxidflutung: Grundmechanismen und Projektdesign* , International Human Resources Development Corporation, Boston , 1984 .

Google Scholar

106 M. Panda , D. Nottingham , D. Lenig , *SPE Reservoir Eval. Eng.* 2011 , **14** , 299 - 309 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

107 S. Al Hajeri, S. Negahban, G. Al-yafei, A. Al Basry, *Entwurf und Implementierung des ersten CO₂-EOR-Piloten in Abu Dhabi, Vereinigte Arabische Emirate* , SPE EOR-Konferenz bei Oil & Gas West Asia, **2010** , DOI: [10.2118 / 129609-MS](https://doi.org/10.2118/129609-MS) .

Google Scholar

108 J.O.D.S.A. Pizarro, C.C.M. Branco, *EOR-Gebäude für nachhaltiges Wachstum* , EOR-Konferenz der Society of Petroleum Engineers bei Oil and Gas West Asia, **2012** , 2, 954–966 DOI: [10.2118 / 155665-MS](https://doi.org/10.2118/155665-MS) .

Google Scholar

109 W. Ampomah, R. S. Balch, R. B. Grigg, P. Recovery, R. Will, *Titel* , **2016** DOI: [10.2118 / 179528-MS](https://doi.org/10.2118/179528-MS) .

Google Scholar

110 A. Goepfert , M. Czaun , GKS Prakash , GA Olah , *Energy Environ. Sci.* 2012 , **5** , 7833 - 7853 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

111 *Übersicht über Treibhausgase* , **2014** , <https://www3.epa.gov/climatechange/ghgemissions/gases.html> , abgerufen am 3. Oktober 2016.

Google Scholar

112 M. S. Fan , AZ Abdullah , S. Bhaia , *ChemCatChem* 2009 , **1** , 192 - 208 .

Wiley Online-Bibliothek CAS Web of Science®Google Scholar

113 M. Aresta , A. Dibenedetto , *Dalton Trans.* 2007 , 2975 - 2992 .

Crossref CAS PubMed Web of Science®Google Scholar

114 C. Song , *Catal. Heute* 2006 , **115** , 2 - 32 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

115 J.C. Matsubu , VN Yang , P. Christopher , *J. Am. Chem. Soc.* 2015 , **137** , 3076 - 3084 .

Crossref CAS PubMed Web of Science®Google Scholar

116 J. Graciani , K. Mudiyansele , F. Xu , AE Baber , J. Evans , SD Senanayake , DJ Stacchiola , P. Liu , J. Hrbek , JF Sanz , JA Rodriguez , *Wissenschaft* 2014 , **345** , 546 - 550 .

Crossref CAS PubMed Web of Science®Google Scholar

117 G. Laurenczy , *Chimia* 2011 , **65** , 663 - 666 .

Crossref CAS PubMed Web of Science®Google Scholar

118 P. F. Tropschuh , E. Pham , *nachhaltige Automotive Technologies 2013: Proceedings der 5. Internationalen Konferenz ICSAT 2013* (Hrsg. : J. Wellnitz, A. Subic, R. Trufin), Springer, Cham, Schweiz , 2013 , pp. 185 - 190 .

Google Scholar

119 S. Kuld , C. Conradsen , PG Moses , I. Chorkendorf , J. Sehested , *Angew. Chem. Int. Ed.* 2014 , **53** , 5941 - 5945 ;

Wiley Online-Bibliothek CAS PubMed Web of Science®Google Scholar

Angew. Chem. 2014 , **126** , 6051 - 6055 .

Wiley Online-Bibliothek Google Scholar

120 W. J. Cai , PR de la Piscina , J. Toyir , N. Homs , *Catal. Heute* 2015 , **242** , 193 - 199 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

121 A. Bansode , A. Urakawa , *J. Catal.* 2014 , **309** , 66 - 70 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

122 M.D. Porosoff , BH Yan , JGG Chen , *Energy Environ. Sci.* 2016 , **9** , 62 - 73 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

123 S. Kattel , W. Yu , X. Yang , B. Yan , Y. Huang , W. Wan , P. Liu , JG Chen , *Angew. Chem. Int. Ed.* 2016 , **55** , 7968 - 7973 ;

Wiley Online-Bibliothek CAS PubMed Web of Science®Google Scholar

Angew. Chem. 2016 , **128** , 8100 - 8105 .

Wiley Online-Bibliothek Google Scholar

124 Y. Li, B. Markley, A. R. Mohan, V. Rodriguez-Santiago. D. Thompson, D. V. Niekerk, *Verwendung von Kohlendioxid aus Kohlekraftwerken zur Herstellung von Mehrwertprodukten, Kurs Konstruktionstechnik für Energie- und Geoumwelt-Systeme (EGEE 580)* , Internes Dokument für einen Kurs, College of Earth and Mineral Science, **2006** , 27. April.

Google Scholar

125 R. Dayton , DC Turk , B. Gupta , *Thermochemische Verarbeitung von Biomasse: Umwandlung in Brennstoffe, Chemikalien und Energie* (Hrsg.: R. C. Brown), Wiley, Chichester , 2011 , S. 78 - 123 .

Wiley Online-Bibliothek Google Scholar

126 P. Gangadharan , KC Kanchi , HH Lou , *Chem. Eng. Res. Des.* 2012 , **90** , 1956 - 1968 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

127 M. Hartley, I. Tam, *Nicht-Sequestrierungs-Nutzungsoptionen für Kohlendioxid (CO₂)* , **2012** , http://thinking.nexant.com/sites/default/files/report/field_attachment_abstract/201202/0910S10_abs_R1.pdf , Zugriff auf den 21. September 2016.

Google Scholar

128 *ACS Symposium Series, Vol. 809: Umwandlung und Verwendung von CO₂* (Hrsg.: C. Song, A. M. Gaffney, K. Fujimoto), American Chemical Society, Washington, DC , 2000 .

Google Scholar

129 O. DQF Araújo , JL De Medeiros , RMB Alves , *CO₂-Nutzung: Eine Vision der Prozesssystemtechnik, CO₂-Sequestrierung und -Verwertung* , InTech, Rijeka, Kroatien 2014 , S. 35 - 88 .

Google Scholar

130 Z. Jiang , X. Liao , Y. Zhao , *Appl. Petrochem. Res.* 2013 , **3** , 91 - 99 .

Crossref CAS Google Scholar

131 L. CS Kahle , T. Roussière , L. Maier , KH Delgado , G. Wasserschaff , SA Schunk , O. Deutschmann , *Ind. Eng. Chem. Res.* 2013 , **52** , 11920 - 11930 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

132 P. Kaiser , RB Unde , C. Kern , A. Jess , *Chem. Ing. Technik.* 2013 , **85** , 489 - 499 .

Wiley Online-Bibliothek CAS Web of Science®Google Scholar

133 J. RH Ross , *Catal. Heute* 2005 , **100** , 151 - 158 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

134 F. Urlan , I.-C. Marcu , I. Sandulescu , *Catal. Kommun.* 2008 , **9** , 2403 - 2406 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

135 H. Liu , Z. Zhang , H. Li , Q. Huang , *J. Nat. Gas Chem.* 2011 , **20** , 311 - 317 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

136 D.P. Estes , C. Copéret , *Chimia* 2015 , **69** , 321 - 326 .

Crossref CAS PubMed Web of Science®Google Scholar

137 Y. Cheng , F. Zhang , Y. Zhang , C. Miao , W. Hua , Y. Yue , Z. Gao , *Chinese J. Catal.* 2015 , **36** , 1242 - 1248 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

138 R. Koirala , R. Büchel , F. Krumeich , SE Pratsinis , A. Baiker , *ACS Catal.* 2015 , **5** , 690 - 702 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

139 K. Müller , A. Baumgärtner , L. Mokrushina , W. Arlt , *Chem. Eng. Technol.* 2014 , **37** , 1261 - 1264 .

Wiley Online-Bibliothek CAS Web of Science®Google Scholar

140 S. Wang , ZH Zhu , *Energy Fuels* 2004 , **18** , 1126 - 1139 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

141 M. B. Ansari , S.-E. Park , *Energieumwelt. Sci.* 2012 , **5** , 9419 - 9437 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

142 A. GN MacDowell , N. Florin , A. Buchard , J. Hallett , NSG Jackson , CS Adjiman , CK Williams , P. Fennell , *Energy Environ. Sci.* 2010 , **3** , Jahre 1645 - Jahre 1669 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

143 K. Armstrong , P. Styring , D. Jansen , H. Reith , H. de Coninck , *Kohlenstoffabscheidung und -nutzung in der grünen Wirtschaft: Verwendung von CO2 zur Herstellung von Kraftstoff, Chemikalien und Materialien* , Zentrum für kohlenstoffarme Zukunft, 2011 .

Google Scholar

144 A. T. Bell , TJ Marks , *Kohlenstoffmanagement: Auswirkungen auf Forschung und Entwicklung in den chemischen Wissenschaften und Technologien (Ein Workshop-Bericht an den Runden Tisch der chemischen Wissenschaften)* , National Academies Press 2001 .

Google Scholar

145 IHS, *nach starkem Abschwung , weltweit steigende Nachfrage nach Polycarbonat , sagt IHS Chemical Report* , 2012 , <http://news.ihsmarkit.com/press-release/commodities-pricing-cost/after-major-downturn-global-demand -Polycarbonat-Anbau-Agai> , abgerufen am 2. Februar 2017.

Google Scholar

146 E. Angunn , A. Nada , B.-C. Gaëlle , *Energy Procedia* 2014 , **63** , 8010 - 8016 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

147 B. Metz , O. Davidson , H. De Coninck , M. Loos , L. Meyer , *Sonderbericht über die Abscheidung und Speicherung von Kohlendioxid* , Zwischenstaatliches Gremium für Klimawandel, Cambridge University Press, Cambridge, 2005 , https://www.ipcc.ch/pdf/special-reports/srccs/srccs_wholereport.pdf .

Google Scholar

148 A. Sanna , M. Uibu , G. Caramanna , R. Kuusik , MM Maroto-Valer , *Chem. Soc. Rev.* 2014 , **43** , 8049 - 8080 .

Crossref CAS PubMed Web of Science®Google Scholar

149 S.-Y. Pan , A. Chiang , E.-E. Chang , Y.-P. Lin , H. Kim , P.-C. Chiang , *Aerosol Air Qual. Res.* 2015 , **15** , 1072 - 1091 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

150 A. Sanna , MR Hall , M. Maroto-Valer , *Energieumgebung. Sci.* 2012 , **5** , 7781 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

151 W.J.J. Huijgen , R.N.J. Comans , *Kohlendioxid-Sequestrierung durch Mineralkarbonatisierung* , 2005 , <https://www.ecn.nl/docs/library/report/2005/c05022.pdf> .

Google Scholar

152 W. Bao , H. Li , *Treibhausgase Sci. Technol.* 2014 , **4** , 785 - 799 .

Wiley Online-Bibliothek Web of Science®Google Scholar

153 J. M. Matter , M. Stute , S. Ó. Snæbjörnsdóttir , EH Oelkers , SR Gislason , ES Aradóttir , B. Sigfusson , I. Gunnarsson , H. Sigurdardóttir , E. Gunnlaugsson , G. Axelsson , HA Alfredsson , D. Wolff-Boenisch , K. Mesfin , D. Fernandez de la Reguera Taya , J. Hall , K. Dideriksen , WS Broecker , *Science* 2016 , **352** , 1312 - 1314 .

Crossref CAS PubMed Web of Science®Google Scholar

154 E. Georgakopoulos , RM Santos , YW Chiang , V. Manovic , *Treibhausgase: Sci. Technol.* 2016 , **6** , 470 - 491 .

Wiley Online-Bibliothek CAS Web of Science®Google Scholar

155 S. Monkman , Y. Shao , *J. Mater. Civ. Eng.* 2006 , **18** , 768 - 776 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

156 K. J. Reddy , S. John , H. Weber , MD Argyle , P. Bhattacharyya , DT Taylor , M. Christensen , T. Foulke , P. Fahlsing , *Energie Procedia* 2011 , **4** , Jahre 1574 - 1583 Bild .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

157 D.L. Bijl , PW Bogaart , T. Kram , BJM de Vries , DP van Vuuren , *Environ. Sci. Policy* 2016 , **55** , 75 - 86 .

Crossref Web of Science®Google Scholar

158 J.L. McCutcheon, R.L. McGinnis, M. Elimelech, „Der Ammoniak-Kohlendioxid-Vorwärtsosmose-

Entsalzungsprozess“, *Wasseraufbereitungsreinigung* 2006 , <http://mccutcheon.lab.uconn.edu/wp-content/uploads/sites/1184/2015>

[/05/McCutcheon_McGinnis_Elimelech_WCP_Oct2006.pdf](http://mccutcheon.lab.uconn.edu/wp-content/uploads/sites/1184/2015/05/McCutcheon_McGinnis_Elimelech_WCP_Oct2006.pdf) .

Google Scholar

159 P. I. Rongved (EnPro AS, Norwegen), [US6180012](#) , 2001 .

Google Scholar

160 V. C. Williams (Sweet Water Dev. Company, Dallas, TX), [US 3155610](#) , 1964 .

Google Scholar

161 M.D. Max (Marine Desalination Systems Llc., St. Petersburg, FL) [US 6475460](#) , 2002 .

Google Scholar

162 D. F. Spencer , WJ North , [US 5562891A](#) , 1996 .

Google Scholar

163 M.A. Dawoud , MM Al Mulla , *Int. J. Environ. Nachhaltigkeit* 2012 , **1** , 22 - 37 .

Crossref Google Scholar

164 S. Latteman , *Entwicklung eines Systems zur Umweltverträglichkeitsprüfung und Entscheidungsunterstützung für Meerwasserentsalzungsanlagen* , CRC Press, Boca Raton , 2010 .

Crossref Google Scholar

165 A. Dindi , DV Quang , MRM Abu-Zahra , *Appl. Energy* 2015 , **154** , 298 - 308 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

166 *Neuartige Konzepte zur CO₂-Nutzung: Arbeitspapier* , National Energy Technology Laboratory,

Energieministerium, 2013 , http://www.canadiancleanpowercoalition.com/files/9313/9334/8325/CU1_-_2013-12-5_-_150_03_03_-_Final_Report_-_Working_Paper.pdf .

Google Scholar

167 M.G. Buonomenna , G. Golemme , *Fortgeschrittene Materialien für die Membranherstellung* , Bentham, Potomac, MD , 2012 .

Crossref Google Scholar

168 H. Chen , H. Zhang , Y. Yan , *Ind. Eng. Chem. Res.* 2013 , **52** , 12819 - 12826 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

169 A. M. Avila , Z. Yu , S. Fazli , JA Sawada , SM Kuznicki , *Microporous Mesoporous Mater.* 2014 , **190** , 301 - 308 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

170 J. R. Hufton , S. Mayorga , S. Sircar , *AIChE J.* 1999 , **45** , 248 - 256 .

Wiley Online-Bibliothek CAS Web of Science®Google Scholar

171 B.T. Carvill , JR Hufton , M. Anand , S. Sircar , *AIChE J.* 1996 , **42** , 2765 - 2772 .

Wiley Online-Bibliothek CAS Web of Science®Google Scholar

172 H.M. Jang , KB Lee , HS Caram , S. Sircar , *Chem. Eng. Sci.* 2012 , **73** , 431 - 438 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

173 E.R. Van Selow , PD Cobden , PA Verbraecken , JR Hufton , RW Van Den Brink , *Ind. Eng. Chem. Res.* 2009 , **48** , 4184 - 4193 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

174 R.W. Stevens , A. Shamsi , S. Carpenter , R. Siriwardane , *Fuel* 2010 , **89** , 1280 - 1286 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

175 M. S. Duyar , RJ Farrauto , MJ Castaldi , TM Yegulalp , *Ind. Eng. Chem. Res.* 2014 , **53** , 1064 - 1072 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

176 P. Gruene , AG Belova , TM Yegulalp , RJ Farrauto , MJ Castaldi , *Ind. Eng. Chem. Res.* 2011 , **50** , 4042 - 4049 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

177 C. Song , W. Pan , *Catal. Heute* 2004 , **98** , 463 - 484 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

178 M. Minutillo , A. Perna , *Int. J. Hydrogen Energy* 2009 , **34** , 4014 & ndash ; 4020 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

179 M. S. Duyar , MA Arellano-Treviño , RJ Farrauto , *Appl. Catal. B* 2015 , **168** , 370 - 376 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

180 M. S. Duyar , SX Wang , MA Arellano-Treviño , RJ Farrauto , *J. CO2 Util.* 2016 , **15** , 65 - 71 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

181 Q. Zheng , R. Farrauto , AC Nguyen , *Ind. Eng. Chem. Res.* 2016 , **55** , 6768 - 6776 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

182 S. I. Im , KB Lee , *Ind. Eng. Chem. Res.* 2016 , **55** , 9244 - 9255 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar

183 D. B. Lao , BR Galan , JC Linehan , DJ Heldebrant , *Green Chem.* 2016 , **18** , 4871 - 4874 .

Crossref CAS Web of Science®Google Scholar



Carbon Capture and Utilization Update

Ahmed Al-Mamoori, Anirudh Krishnamurthy, Ali A. Rownaghi, and Fateme Rezaei*[a]

In recent years, carbon capture and utilization (CCU) has been proposed as a potential technological solution to the problems of greenhouse-gas emissions and the ever-growing energy demand. To combat climate change and ocean acidification as a result of anthropogenic CO₂ emissions, efforts have already been put forth to capture and sequester CO₂ from large point sources, especially power plants; however, the utilization of CO₂ as a feedstock to make valuable chemicals, materials, and transportation fuels is potentially more desirable and provides a better and long-term solution than sequestration. The products of CO₂ utilization can supplement or replace chemical feedstocks in the fine chemicals, pharmaceutical, and polymer industries. In this review, we

first provide an overview of the current status of CO₂-capture technologies and their associated challenges and opportunities with respect to efficiency and economy followed by an overview of various carbon-utilization approaches. The current status of combined CO₂ capture and utilization, as a novel efficient and cost-effective approach, is also briefly discussed. We summarize the main challenges associated with the design, development, and large-scale deployment of CO₂ capture and utilization processes to provide a perspective and roadmap for the development of new technologies and opportunities to accelerate their scale-up in the near future.

1. Introduction and Motivation

It is widely accepted that fossil fuels will remain the main source of energy for at least the next 50 years, and the CO₂ emissions derived from such energy sources contribute greatly to global climate change.^[1] This will require the deployment of advanced low-carbon fossil-energy technologies in the short term. The December 2015 U.N. Climate Change Conference in Paris agreed on a long-term goal of keeping average warming below 2 °C, and this can be accomplished by considering two long-term emission goals: first, a peaking of emissions as soon as possible, and then, a goal of net greenhouse gas neutrality (expressed as a balance between anthropogenic emissions by sources and removals by sinks) in the second half of this century.^[2] Therefore, it is imperative to reduce such anthropogenic emissions.

On the other hand, with the increase in the world population, the demand for energy supply is expected to increase significantly over the next decades, and thus, new and renewable energy sources are required to meet this demand. Captured CO₂ can be treated as a valuable feedstock for the production of many value-added chemicals and fuels, which thus provides a solution to both emission-control and energy-supply challenges.^[3]

The concepts of CO₂ capture, utilization, and sequestration (CCUS) are commonly used in the context of carbon management and climate change. Carbon capture and storage (CCS) refers to technologies that focus on the selective removal of CO₂ from gas streams, its compression into a supercritical condition, and finally its transportation and sequestration in geologic formations, including depleted oil and gas reservoirs or oceans.^[4] Despite promises for mitigating large volumes of CO₂ and despite extensive government incentives

and regulatory drivers, the high cost of CCS has largely impacted its large-scale deployment. The high cost of CCS comes primarily from capture and compression, which accounts for 75% of the total cost of CCS. According to the International Energy Agency (IEA) report published in 2013,^[5] CCS will greatly contribute to emissions reduction from all applicable processes in power generation and industrial applications (e.g., cement, iron and steel, oil refining, pulp and paper, and biofuels sectors) through implementing 3000 CCS projects around the world, with over 7000 Mt CO₂ annually stored in the process.

As a more attractive alternative, carbon capture and utilization (CCU) technologies have recently received a great deal of attention for turning captured CO₂, as a renewable carbon feedstock, into valuable products instead of permanently sequestering it. In fact, CCU treats captured CO₂ as a renewable resource to complement or alternate the conventional petrochemical feedstocks.^[6] Moreover, the long-term effects of sequestration are not a concern for this approach. Despite the significant advantages offered by CCU in comparison to CCS, converting CO₂ and utilizing it in chemical reactions is very challenging mainly because of the thermodynamically stable nature of CO₂ itself.

[a] A. Al-Mamoori, A. Krishnamurthy, A. A. Rownaghi, Dr. F. Rezaei
Department of Chemical and Biochemical Engineering
Missouri University of Science & Technology
1101 N. State Street
Rolla, MO 65409 (USA)
E-mail: rezaeif@mst.edu

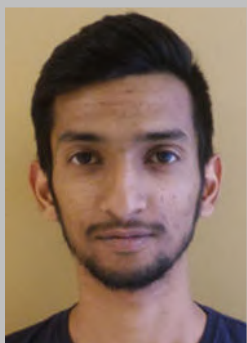


This publication is part of a Special Issue on "CO₂ Utilization". To view the complete issue, visit: <http://dx.doi.org/10.1002/ente.v5.6>

Ahmed Al-mamoori received his B.Sc. in chemical engineering from Al-Nahrain University, Baghdad in 2005 and his M.Sc. from Al-Nahrain University, Baghdad in 2009. He is currently pursuing his Ph.D. in chemical engineering at Missouri University of Science and Technology. His research interests include CO₂ capture and utilization, adsorption, catalysis, and reaction engineering.



Anirudh Krishnamurthy received his Btech. in chemical engineering from Alagappa College of Technology, Anna University, India in 2014 and is currently doing his M.S. in chemical engineering at Missouri University of Science and Technology. His research interests include CO₂ capture, adsorbent materials, and volatile organic carbon emissions control.



Dr. Rownghi is an assistant research professor of Chemical and Biochemical Engineering at Missouri University of Science and Technology. He obtained his Ph.D. degrees in Catalysis from University Putra Malaysia (UPM) in 2008. Following his postdoctoral research at Georgia Tech, he began his academic career at Missouri S&T in 2014. Research in his group is focused on creating, understanding, and rationally engineering advanced materials for catalysis, membrane, and barrier applications through innovative and scalable processing strategies.



Dr. Rezaei is an assistant professor of Chemical and Biochemical Engineering at Missouri University of Science and Technology. She obtained her Ph.D. degrees in Chemical Engineering from Monash University in Australia and Luleå University of Technology (LTU) in Sweden in 2011. She worked as a postdoctoral fellow at Georgia Tech before she joined Missouri S&T in 2014. Her research focus broadly lies at the interface of chemical, materials science, and environmental engineering, where the general goal of her work is to develop advanced materials and processes for clean energy and sustainable chemical processes.



The purpose of this paper is to review the most recent developments in the field of carbon capture and utilization while providing an overview of current challenges and future opportunities in the context of carbon management. Detailed descriptions of various capture and utilization technologies fall outside the scope of this review, and the interested reader is referred to previously published reviews that, in addition to providing a detailed description, address life-cycle analysis, risk assessments, and industrial ecology considerations of CCU technologies.^[7–11]

2. CO₂-Capture Options: Challenges and Opportunities

CO₂-capture technologies are either related to direct CO₂ removal from flue gas streams (referred to as postcombustion) or the development of advanced low carbon-intensive combustion systems (referred to as precombustion), which include an integrated gasification combined cycle (IGCC), as well as oxyfuel combustion that employs pure oxygen to reduce the carbon intensity of power generation.^[12] Technoeconomic analyses have indicated that the current CO₂-capture technologies are energy intensive and result in a significant decrease in combustion efficiency as well as an increase in the electricity price. The choice of capture technology differs widely across industries, depending on the source of CO₂ and the industrial processes generating CO₂. Capturing CO₂ from different sources has different energy penalties; for example, some industries such as ethanol-production plants produce high-concentration CO₂ streams, whereas thermal power plants produce CO₂ at very low concentrations, and thus much more energy is required for its recovery.^[13] The latter, however, is the largest source of CO₂, which is a conundrum in the industry. Moreover, advanced supercritical CO₂ combustion processes that employ recycled CO₂ and operate over the supercritical pressure of CO₂ have been recognized as additional promising methods to address anthropogenic CO₂ emissions. The use of supercritical CO₂ as a working fluid in a power cycle has been investigated in a variety of scenarios and has been found to make the plant more energy efficient relative to the conventional steam cycle.^[14] Studies have also shown an increase in steam turbine efficiency if the supercritical CO₂ is compared to oil as a working fluid. The drawback of this process is that oxygen must be completely purified before use. Further, there are two pathways that can be used: liquid CO₂ and gaseous CO₂ recirculation, the former of which involves cryogenically treated CO₂ in liquid form.

Typically, power plants alone account for approximately 45% of the worldwide CO₂ emissions, which thus offers significant opportunities for CCU and CCS options as main sources of captured CO₂.^[15] The industrial deployment of postcombustion CO₂-capture technologies will have a larger economic impact on the reduction of capture costs than the other options. However, in the best scenario, for a new power plant equipped with the current postcombustion capture technologies, the cost of capture is estimated to be ap-

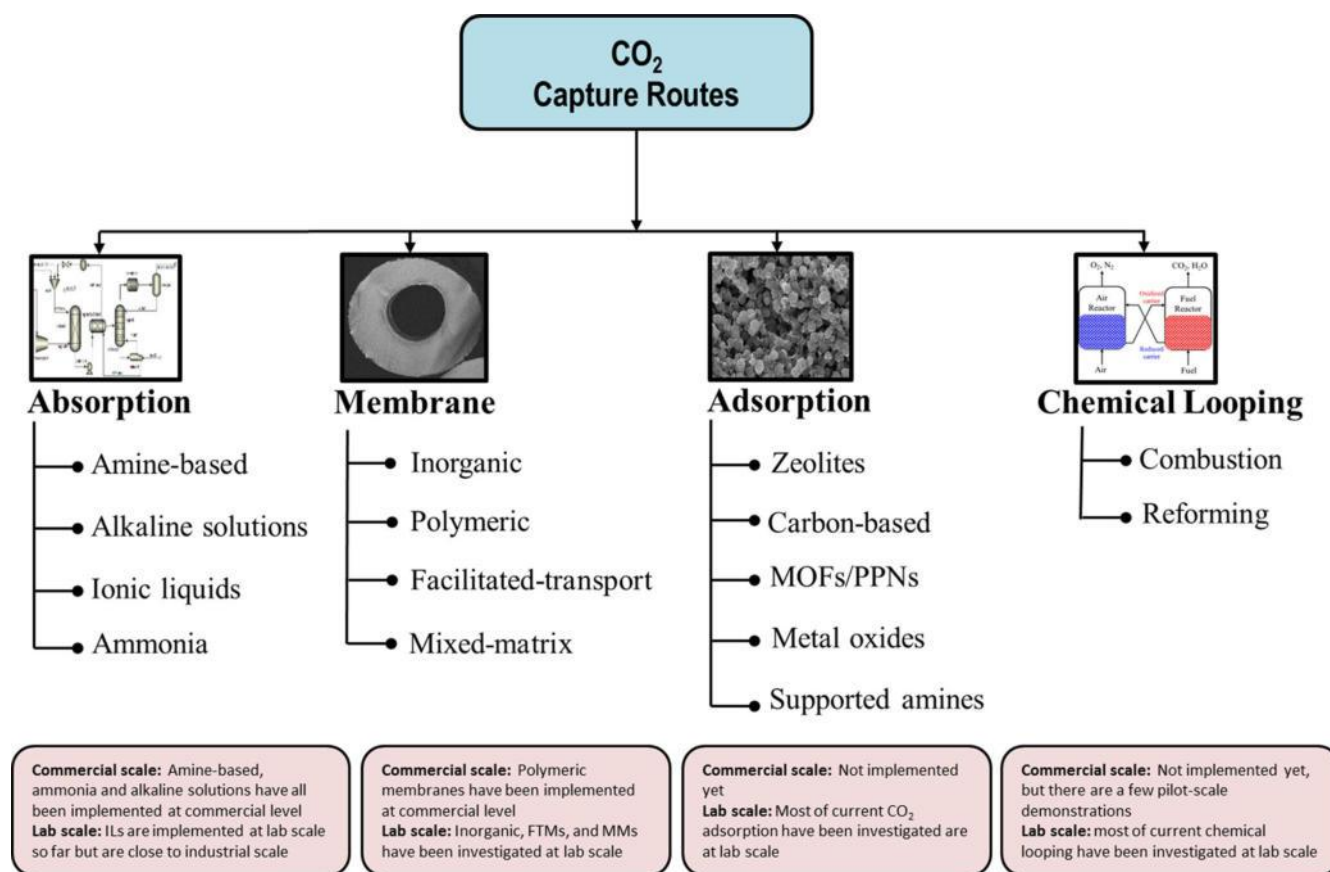


Figure 1. Various carbon-capture technologies and the corresponding materials currently under investigation.

proximately 56 USD t⁻¹, which incurs an energy penalty of 62% to the power plant.^[11] Carbon capture has already been commercialized in chemical production and the natural gas industry. Recently in 2014, SaskPower demonstrated post-combustion CO₂ capture from coal-fired flue gas on an industrial scale in the Boundary Dam 110 MW Power Station.^[16] Shown in Figure 1 are the various capture routes that have been investigated in industry and academia within the past few decades and that will be discussed in the next section.

2.1. Absorption-based CO₂ capture

The most mature separation method in the oil and chemical industries involves absorption by chemical or physical solvents.^[3] This technology has been used intensively for both postcombustion (with chemical solvents) and precombustion capture (with physical solvents). Chemical absorption by aqueous ammonia, amine-based solvents such as monoethanolamine (MEA), diethanolamine (DEA), and *N*-methyldiethanolamine (MDEA) and alkaline solvents such as Ca(OH)₂ and NaOH is the most common method for post-combustion capture in various industries, including cement, iron and steel, power plants, and oil refineries.^[17–20] The well-established commercial physical absorption technologies for precombustion CO₂ capture include Selexol, Rectisol, Puri-

sol, and Fluor. Recently, ionic liquids (ILs) have been identified as suitable alternatives to the conventional physical solvents used in the above processes as a result of their inherent properties, which include low volatility, low vapor pressure, high thermal stability at elevated temperatures, and low regeneration energy requirements.^[21–23] However, their low working capacity is a main obstacle toward their widespread use in CO₂ capture.

Although absorption is a mature and well-established separation method that results in high capture efficiency, the energy penalty incurred is very high mainly because of the high energy requirements for the solvent regeneration option.^[3] Although heat integration can reduce the need for energy in some industries such as power plants, other industries such as cement or iron and steel cannot provide such heat integration. Besides, other known operational limitations such as corrosion and a large volume of water makeup represent significant barriers. Typically, chemical absorption relies upon thermal swing regeneration, and thus, optimal selection of solvents with an optimum combination of thermal and physical properties is of paramount importance in developing energy-efficient absorption-based CO₂ capture. For instance, piperazine (PZ) and PZ derivatives have been suggested as alternatives to conventional chemical solvents on the basis of their superior performance such as fast reaction kinetics, low chemical reactivity, and low regeneration

energy.^[24] Another opportunity is to enhance the working capacity of ILs through incorporation of functional groups (such as perfluoroalkyl groups, amine and amino acid groups, or carboxylate anions), which could eventually pave the way toward their utilization as solvents for CO₂ absorption.^[3] The trade-off between heat of reaction and kinetics is another important consideration. Typically, for chemical absorption the employment of solvents with a high heat of absorption (> 60 kJ mol⁻¹) could reduce energy consumption, whereas the use of thermally stable solvents with low regeneration energy requirements can greatly improve the thermodynamic efficiency of the separation process.^[4] Poisoning by impurities present in flue gas or other effluent streams is another challenge that reduces the stability of chemical solvents, and thus, tolerance to impurities in addition to resistance to solvent oxidation and vapor losses should be considered as key performance metrics in developing novel aqueous solvents for CO₂ absorption. Increasing the concentration of amines in aqueous solutions could also help to increase the capture capacity of amine solutions.

In addition to advancements in materials development and optimal selection of solvents with better energy performance, process improvements are of equal importance for scaling up the next generation of absorption technologies. In that regard, next-generation absorption processes with optimized process configurations and intensifications that provide heat integration strategies such as interheated strippers (to recover effectively the heat from the stripper overhead) and inter-cooled absorbers (to provide more reversible absorber operation with greater rich and lean loading) could offer a competitive CO₂-capture solution.

2.2. CO₂ capture by membrane separation

Generally, the use of membranes for gas-separation applications can offer an approach that is more energy efficient and environmentally friendly than other separation methods. Furthermore, membrane-based CO₂ separation is usually operated under continuous, steady-state conditions, and a pressure difference across the membrane drives the permeation process. The material of the membrane in addition to its configuration, morphology, composition, and operating conditions are all key factors that dictate its gas-separation performance to a great extent. Membrane separation for the removal of CO₂ from power plant flue gas streams has been the subject of many studies.^[25–28] The application of membrane technology for postcombustion CO₂ capture is very challenging mainly because of the low pressure of flue gas streams. In contrast, membranes are more suitable for high-pressure pre-combustion processes such as IGCC. Notably, unlike other capture routes, membrane-based CO₂ separation involves multistage operation and streams recycling, which are often perceived as challenges that make this operation difficult and complex.

Various porous inorganic membranes typically composed of zeolites, metal–organic frameworks (MOFs), carbon molecular sieves (CMS), ceramics, and a few oxides (e.g., alumi-

na, titania, zirconia) have been extensively studied for CO₂ capture from flue gas or other effluent streams. Although inorganic membranes can withstand high temperatures and often have mechanical stability, their high costs still hamper their commercialization. Inorganic membranes have not yet been demonstrated on a large scale, and in fact, they are still far from scale-up. The main challenges associated with their large-scale utilization stem from their fabrication routes, which are very expensive, and their long-term stability and reliability.

Conversely, polymeric membranes that can be easily formulated in hollow-fiber modules have shown tremendous potential for large-scale industrial applications. In addition, inorganic membranes cannot reach the high packing density offered by polymeric membranes, as in the case of polymeric composite hollow-fiber membranes assembled in the modules, which have a filtration area that reaches up to 10000 m² in a 1 m³ reactor at a low production cost, crack-free thin membranes, and large-scale production.^[29–32] However, polymeric composite membranes have low separation performance relative to inorganic membranes. For example, CO₂ capture by current polymeric membranes still suffers from several drawbacks, such as low CO₂/N₂ selectivity and permeability for postcombustion processes, the trade-off limitation between permeability and selectivity, swelling, aging, sensitivity to impurities, and mechanical stability, especially for high-pressure operations. For polymeric membranes to be cost effective for postcombustion CO₂ capture, a minimal CO₂/N₂ selectivity of 200 is required and a relatively high permeability must be maintained.^[33] High permeability eliminates the need for a high membrane area for an acceptable separation rate, which thus reduces the capital costs of the separation process. One way to address the challenges inherent with traditional polymeric membranes is to utilize polymers of intrinsic microporosity (PIMs) that contain large free pores within the polymer matrix that allow for higher CO₂ flux. Polymeric membranes have been commercialized for CO₂ capture in natural gas sweetening. Membrane Technology & Research, Inc. (MTR) has implemented a pilot-scale membrane-based process for postcombustion CO₂ capture from flue gas coming from a 880 MW pulverized coal power plant with a capture rate of 90%.^[34]

Facilitated-transport membranes (FTMs) such as liquid membranes, ion-exchange membranes, and fixed-carrier membranes have proven to be highly selective for CO₂; however, they are subject to poisoning by trace amounts of acid gases, such as NO_x and SO_x, present in the flue and suffer from long-term stability.^[35–37] Among various commercially available membrane types, hollow-fiber membranes provide the highest surface-to-volume ratio, optimum geometry for high production rates, and provide more compact modules than flat-sheet or spiral-wound units.^[35] Composite hollow-fiber membranes comprising a thin selective layer with a thickness lower than a micrometer supported on a highly porous polymeric substructure provide opportunities for advanced membrane development.^[38]

Mixed-matrix membranes (MMMs) formed by dispersing highly selective molecular-sieve particles such as zeolites, carbon nanotubes, layered silicates, and MOFs in a polymer matrix are promising contactors that combine the scaling up and processing of polymeric membranes with the advantages of separation performance of molecular-sieving materials. In comparison to porous zeolites, MOFs as fillers exhibit better properties such as higher pore volume and lower density, better affinity to polymer chains, and easily tuning cavities in terms of size and shape by choosing appropriate ligands with different functionalities. MMMs provide a solution to go beyond the known upper-bound trade-off limit of polymeric membranes as well as the inherent obstacles associated with the costs and processing of inorganic membranes.^[39–45] However, they are still in their early stages of development and are far from industrial deployment. Besides, their current fabrication processes are costly and complex.

In the context of membrane CO₂ capture, the future opportunities should therefore focus on composite membranes that take advantage of both polymeric and inorganic constituents and that are capable of surpassing the current best-performing membranes. Strategies to improve composite systems by alternate chemistries, re-engineering the material systems, and processing techniques will provide critical insight into the barriers to engineering sophisticated composite systems for future membrane-based CO₂ separation.

2.3. Adsorption-based CO₂ capture

CO₂ capture over porous solid materials offers a promising approach to remove CO₂ selectively from gas streams in various industries. To date, a variety of adsorbents have been extensively evaluated for CO₂ capture from precombustion and postcombustion gas effluents. Generally, the adsorbents used are classified as either high-temperature or low-temperature materials. The primary classes of high-temperature materials include hydrotalcites, alkali or alkaline-earth oxides such as calcium oxides, alkali silicates and zirconates, as well as double salts, whereas low-temperature adsorbents cover conventional porous materials such as zeolites, carbon-based materials (e.g., activated carbon, carbon nanotubes, carbon nanofibers, graphene), and molecular sieves, as well as recent classes such as MOFs, porous polymer networks (PPNs), and covalent organic frameworks (COFs).^[46–51] The high-temperature adsorbents are all chemisorbents, whereas the low-temperature adsorbents are chiefly physisorbents.^[52] Supported amines are among the low-temperature adsorbents, but they are chemisorbents that have strong interactions with CO₂.

The efficiency and economics of adsorption processes such as pressure/temperature swing adsorption (PSA/TSA) are largely dictated by the characteristics of the adsorbents in addition to process design and operation factors.^[53,54] Generally, for any gas-separation application, adsorbents are required to satisfy several criteria to be efficient for large-scale separation. These metrics include high working capacity and selectivity, low cost, low regeneration requirements, long-term stability, and fast kinetics.^[52] In addition to the physiochemi-

cal properties of the adsorbents, cycle configuration, number of steps, cycle time, operating pressures or temperatures, and number of beds are some of the other important process parameters that need to be optimized for optimum capture efficiency.

In the context of adsorptive CO₂ capture, the majority of laboratory-scale studies often overlook the performance of adsorbents under practical conditions. For instance, competitive water adsorption; the structural, mechanical, and chemical stability to moisture that often exists in gas effluents; and the stability in the presence of other pollutants such as SO_x, NO_x (especially for postcombustion process), and fly ash are often not investigated. Retaining working capacity over many adsorption–desorption cycles and thermal management are other important criteria that are often overlooked in the design or screening of the adsorbents. In addition, most of the current studies fail to consider the ultimate process performance metrics in developing new materials. Although the conventional zeolite 13X material is still the best choice in terms of capture costs for postcombustion under dry flue gas conditions, relative to that of the best MOFs, such as HKUST-1 and Mg-MOF-74,^[55,56] its water coadsorption is still problematic and requires a guard bed or a dehydration unit before the PSA or TSA unit. Further, although several MOF materials show outstanding capacity and selectivity towards CO₂, their large-scale production and water stability remain a challenge for their wide-spread adoption in industry. The design of composite adsorbents (such as zeolite or MOF-functionalized amines) could address the known problems of conventional adsorbents and enable a cost-effective and highly efficient capture approach for postcombustion CO₂ capture.

Adsorption-based CO₂ capture by PSA has attracted a great deal of attention owing to the simple process, low energy required, and low cost.^[57] However, low recovery for CO₂ is still challenging for this approach.^[54] Generally, for postcombustion CO₂ capture, vacuum swing adsorption (VSA) and TSA are more appropriate than PSA, whereas (mainly because of large pressure drops in flue gas application), PSA is more promising for the precombustion process.^[58–61] Attrition of adsorbent particles is another common issue with the process operation. The use of structured adsorbents such as monoliths or hollow fibers can address both pressure-drop and attrition problems and still allow for rapid operation of cycles. Rapid swing cycles can enhance process throughput, which thus allows for smaller adsorbent inventory and column size. The TSA process for CO₂ capture is still far from large-scale implementation as a result of the high energy requirement for adsorbent regeneration and the long cooling step time. Novel approaches that offer heat-management options such as hollow-fiber adsorbents with a cooling medium flow in the bore side or monolithic structures with optimum thermal management could address these scale-up challenges.^[43,62–64] Moreover, in terms of process design, modifications to the original design that include novel indirect heating techniques such as heating jackets, heat exchangers, or coils could be implemented to reduce the

energy consumption further and/or to shorten the required cooling time in the TSA process.^[58,65–68]

Although adsorption-based separation can address most of the limitations of the absorption processes, the current technologies developed/proposed so far are not cost effective at their current stages of development. Furthermore, no large-scale operation has been fully deployed yet.^[69–71] The design, development, and evaluation of high-performance adsorbents should be tightly coupled with evaluation of their practical performances and process considerations. Moreover, cycle design, configuration, and optimization of any cyclic process should take into account the characteristics of the specific adsorbent to be eventually used.

2.4. CO₂ capture by chemical looping

Chemical-looping combustion (CLC) and chemical-looping reforming (CLR) are two processes that are considered to be potentially cost-effective CO₂-capture options with minimum energy losses, in which both CO₂ and H₂O are inherently separated from flue gas.^[72] They can also largely minimize NO_x formation during the reaction. For precombustion CO₂ capture, chemical looping can be combined with IGCC to produce syngas as a valuable byproduct. These technologies use a metal oxide as an oxygen carrier to circulate oxygen between the air and fuel reactors; thus, their large-scale applications are highly dependent upon the availability of suitable oxygen carriers. High oxidation/reduction activity, mechanical stability (in fluidized beds), resistance to agglomeration, high melting point (to withstand the reaction temperature and avoid agglomeration), long-term stability under repeated oxidation/reduction, as well as cost and environmental impacts are key characteristics of metal oxides (mainly transition-metal oxides such as Fe, Cu, Co, Mo, Mn, Cr, Nb, V, Ce, and In oxides) for chemical-looping processes.^[72] Of these properties, reactivity in both oxidation and reduction cycles is the most important criterion that should be considered. Moreover, these oxides should be capable of completely combusting the fuel to achieve maximum combustion efficiency. None of the current oxygen carriers investigated so far are capable of fulfilling all of the above requirements at once.

Another challenge associated with chemical-looping processes is the high-pressure operation required to achieve high overall efficiency, though high pressures may be favorable for CCS applications. Recent energy analyses have indicated that the calcium-looping postcombustion process in particular can incur an efficiency penalty of only 6–8%.^[73–76] Such a low energy penalty stems from improvements in the original design of the two-bed (carbonator and calciner) Ca-looping process such as incorporating an extra heat-recovery bed to exchange heat between the CO₂ stream and the solid particles entering the calciner. Currently, most of the chemical-looping technologies considered for the power-generation sector are at the laboratory or concept stage of development with a few pilot-scale studies currently under investigation,^[77–79] and it is projected that their full deployment will

not take place before 2030.^[5] The technical hurdles from materials development and process design should be overcome to improve the current state-of-the-art chemical-looping technologies. In that regard, novel chemical-looping processes based on composite metal oxides such as Ca/Cu that provide the possibility of coupling endothermic and exothermic reactions in the same solid matrix could result in higher capture efficiency and lower equipment cost.

2.5. Direct capture of CO₂ from air

Direct removal of CO₂ from ambient air, referred to as direct air capture (DAC), has recently gained significant attention among researchers, because it could minimize the problems associated with transporting large volumes of CO₂ from point-source emitters to sites suitable for geological sequestration.^[80–84] In addition, unlike conventional capture processes that target only large-point sources and can, at best, slow the rate of increase in the atmospheric CO₂ concentration, DAC, if widely adopted, can reduce atmospheric CO₂ levels. Although the concept is essentially similar to that of adsorption-based CO₂ capture, owing to the ultradilute nature of CO₂ in air (≈ 400 ppm), the DAC technology has daunting technological challenges. As a result of the ultralow concentration of CO₂, materials with strong binding affinities (sharp uptake at low partial pressures) and high CO₂/N₂ selectivities are required for this technology. Various aqueous hydroxides such as calcium hydroxide solution, NaOH and KOH solutions, and solid materials including alkali and alkali-supported carbonates, anionic-exchange resins, amine-functionalized metal oxides, and MOFs have been evaluated for DAC.^[84] Notably, not every high-performance material that works well for large point source CO₂ capture would necessarily perform at an acceptable level for the DAC process, mainly because of the differences pointed out above.

Recent thermodynamic analyses have indicated that the TSA process is thermodynamically more efficient than the PSA process for DAC applications, as the heat of adsorption or adsorbate affinity increases at dilute CO₂ concentrations.^[85] At this point, the estimated DAC cost is significantly higher than that of capture from large point sources (30–1000 and 30–100 USD ton⁻¹, respectively). Such a huge uncertainty in the design considerations and economic analysis of the DAC process must be addressed by clearly laying out the underlying assumptions. Moreover, to apply air capture on a large scale, materials that are low costing with high durability are required. Although still in the early stages of development, any DAC process must minimize the cost for its adoption and implementation in society. Using a minimal amount of energy, ideally from a distributed renewable source such as solar thermal energy, would be a potential pathway toward enhancing the feasibility of the DAC process.

2.6. CO₂ capture by hybrid processes

One of the promising approaches that offers a cost-effective, scalable, and sustainable capture path involves hybrid separations that combine two or more capture subsystems. The concept of hybrid processes in gas separation and reaction has been previously applied to several applications. Hybrid technologies take advantages of having two or more separation units in parallel or in series with the aim to enhance separation efficiency while at the same time decreasing the overall cost of separation. The feasibility of several hybrid concepts for CO₂ capture such as membrane–PSA and membrane–distillation have been investigated.^[86–90] A promising hybrid system with potential energy savings has recently been developed by American Air Liquide, by which subambient-temperature (–50 to –20°C) CO₂ capture is performed through a hybrid membrane–cryogenic distillation process.^[91] This hybrid process aims at retrofitting existing pulverized coal-fired power plants and is sought to enhance both the productivity and selectivity of the membrane module, which thus reduces both the energy and capital costs of the capture process. For this technology to be widely adopted at a large scale, a good heat-integration strategy is crucial, as all of the feed gas needs to be cooled to subambient temperatures.

For hybrid membrane–PSA systems, the idea is to use the high-pressure membrane permeation stream in the pressurization and high-pressure adsorption steps of a typical PSA process. In addition, membrane permeation could be incorporated into the blowdown step of the PSA cycle so that the operating pressure of the PSA can be used as the driving force for membrane permeation. Both these options can result in significant savings by eliminating the need for high-duty pumps.

Another example of such an integrated system is the hybrid pressure–temperature swing adsorption process (PTSA), which can be operated at moderate pressures and temperatures and thus leads to a lower energy cost for capture.^[92,93] For this configuration, the need for the high vacuum level that is typically required in PSA to achieve high-purity CO₂ or the high temperature that is often essential in TSA to achieve high recovery can be dramatically avoided, which thus leads to less expensive operation, faster cycles, and longer service life of the adsorbent.^[92] The general idea for designing PTSA is to obtain effective mass transfer during the adsorption step and effective heat transfer during the desorption step.^[94]

Overall, on the basis of the current status of state-of-the-art technologies, hybrid processes that combine two or more capture routes should be considered as a novel approach to improve separation efficiency and cost. However, it is imperative that the future of related research focuses on the complete understanding of these hybrid processes from the perspectives of feasibility, process design, materials selection, environmental impact, and overall cost reductions by taking into account uncertainty factors.

2.7. Summary

In summary, despite significant progress within the past few years, most CO₂-capture technologies still have a long way to go to become commercially available in various industries. It appears that a bridge between materials scientists and engineers is crucial to fill the gap between characteristics of the materials and process performance. Thus, investigation of the relationship between properties of the materials and the hybrid process parameters is crucial to build a unique and comprehensive strategy for the design of highly efficient and

Table 1. CO₂-capture technologies and their associated challenges and opportunities.

| Capture technology | Challenges | Opportunities |
|--------------------------|---|---|
| absorption | equipment corrosion amine degradation high regeneration energy requirement high overall energy penalty environmental impact | improvement in commercially available absorption technologies the use of ILs the use of advanced amines |
| membrane | energy intensive for postcombustion application high fabrication cost of novel membranes not suitable for high-temperature applications trade-off between purity and recovery low selectivity | composite hollow-fiber membranes MMMs hybrid membrane–cryogenic processes |
| adsorption | long-term stability to impurities and moisture thermal management pressure drop and adsorbent attrition | composite adsorbents structured adsorbents rapid swing cycles hybrid membrane–PSA processes |
| chemical looping | high-pressure operation efficient and stable oxygen-carrier materials | composite oxides as oxygen carriers process-design modifications |
| direct air capture | ultradilute CO ₂ content energy intensive development of durable materials | DAC coupled with renewable energy sources structured adsorbents |
| hybrid capture processes | less studied enhancement of synergy and process optimization development of hybrid materials | membrane–distillation membrane–PSA PTSA |

cost-effective next-generation capture technologies that greatly contribute to reducing CO₂ emissions. Table 1 provides a summary of the current challenges and future opportunities related to various CO₂-capture methods discussed in this section.

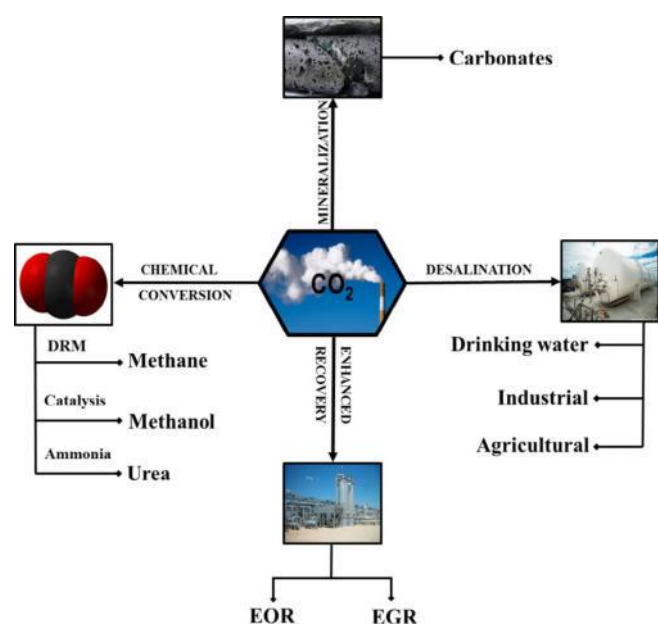


Figure 2. Various carbon-utilization pathways.

3. CO₂ Utilization Options: Challenges and Opportunities

The utilization of CO₂ can be considered as a viable option for providing a renewable energy source for the production of various valuable products. The process is required to be economically viable, safe, and ecofriendly.^[95] The primary utilization route can be classified as enhanced oil/gas recovery, chemical conversion, mineralization, and desalination. Figure 2 shows various ways in which CO₂ can be utilized. Notably, the U.S. Department of Energy (DOE) categorizes CO₂-utilization technologies into four main research areas that the CCS program supports: cement, polycarbonate plastics, mineralization, and enhanced hydrocarbon recovery.

CO₂ is typically formed as a byproduct during ammonia synthesis. Additionally, it is produced during the synthesis of ethylene oxide in oil refinery and during the fermentation process.^[3] As a raw material, CO₂ is commonly used in the beverages industry, in food conservation, in urea production, in water treatment, in enhanced oil recovery, in chemical production, and in polymer synthesis with a current global usage of 232 Mt year⁻¹.^[4,96] However, currently, less than 1% of CO₂ emitted into the atmosphere is utilized as a raw material in the above industries.^[97,98] Efforts should be put forth to utilize the already-captured CO₂ into valuable commodities such as transportation fuels and fine chemicals.

3.1. Enhanced oil/gas recovery

Enhanced oil/gas recovery (EOR/EGR) refers to a procedure in which a substance is injected into a reservoir to repressurize rock formation and to release any oil/gas that may have been trapped in the formation. During the CO₂ EOR process, the injected CO₂ mixes with the oil and releases it from its otherwise hard-to-recover rock formation. This stream is then pumped to the surface, and the CO₂ emerging with the oil is separated and resupplied into the cycle to repeat the process. This process often yields more barrels per reservoir than the traditional oil-recovery methods.^[99,100] Basically, CO₂ flooding is one of the most common and efficient methods used in EOR, as it mixes with the oil, which expands it and makes it lighter and easier to recover.^[101] Most CO₂ EOR systems use naturally occurring CO₂, but lately, research has focused on using CO₂ captured from potentially hazardous gas streams, such as flue gas and other industrial gas effluents.^[102] Two commonly used CO₂ EOR methods are continuous gas injection (CGI) and water alternating gas (WAG), and the latter method yields better oil recovery.^[103] In CO₂ EOR, the addition of an intermediate hydrocarbon such as propane can improve displacement efficiency and the diffusion coefficient, which thereby further increases the recovery efficiency.^[104] In general, the efficiency of CO₂ EOR depends largely upon the temperature and pressure of the reservoir involved.^[105]

There are numerous challenges faced by CO₂ EOR methods. For instance, owing to the heterogeneity of the rock formation between the wells, fluid properties and capillary pressure reduce the effectiveness of CO₂ flooding.^[106] Furthermore, a large number of parameters such as fluid production rates, compensated neutron log (CNL), and production log are required for efficient execution.^[106] Despite these shortfalls, CO₂ EOR/EGR has drawn significant attention and is predicted to rise rapidly in the near future. Overall, CO₂ EOR/EGR is a promising approach in enhanced oil/gas recovery, with applications in most type of reservoirs. Despite this, EOR currently contributes to only 3% of CO₂ utilization. Although advances in this field have been retarded by the price of CO₂, its use is steadily growing, and numerous facilities having implemented this method in their reservoirs.^[107–109]

3.2. CO₂ as feedstock for production of fuels and chemicals

CO₂ utilization is expected to overcome the known challenges associated with CCS such as high cost, public acceptance, and long-term uncertainty. Additionally, it makes CO₂ capture worthy and can be substituted partially for fossil fuels as the main source of energy.^[110] It can open up new avenues for developing sustainable technologies that supplement the conventional fossil-based resources.

3.2.1. Fuels production

CO₂ conversion into fuels is considered the best route in CO₂ utilization. Methane, methanol, syngas, and alkanes are some of the compounds that can be produced by utilizing captured CO₂ as a feedstock. The fuel produced can be used in various sectors, including fuel cells, power plants, and transportation.^[4] There are tremendous pathways for producing fuels by CO₂ utilization. Given that CO₂ is a thermodynamically stable molecule, its utilization requires the application of a large amount of heat and catalyst inventory to obtain high fuel yields.^[97] In the context of fuels production from captured CO₂, hydrogenation and the dry reforming of methane (DRM) are the two most-important pathways.^[111]

CO₂ hydrogenation is a very promising route for CO₂ utilization, mainly because it offers the possibility of recycling CO₂, storing H₂, producing fuel, and solving the issue of electric energy storage.^[98] DRM is also considered one of the most-important pathways for the production of methanol and a variety of other liquid fuels by the Fischer–Tropsch (FT) process.^[112–114] In the hydrogenation of CO₂ into methane,^[115] methanol,^[116] carbon monoxide,^[115] and formic acid,^[117] the source of hydrogen from fossil fuel appears to be problematic, as this can itself lead to an increase in CO₂ emissions to the atmosphere. However, renewable energy (e.g., solar, wind, biomass) can be alternatives to fossil sources to mitigate additional CO₂ emissions during hydrogenation.^[3] Recently, Audi motor company's "e-gas" in Germany has produced 1000 Mt year⁻¹ of methane by CO₂ hydrogenation.^[118]

For transportation, methane is not valuable as a fuel, because it has a low volumetric gas density. Besides, its global warming potential (GWP) is 30.^[97] Producing more methane will not be profitable to CO₂ capture because of its availability (methane is plentiful in natural gas, shale gas, coal gas, and landfill gas). Rather, CO₂ hydrogenation to methanol appears to be a better pathway.^[119] However, C–H bond activation over current (mainly Cu-based) catalysts for methanol production is very challenging, and the catalysts tested so far are not economically attractive.^[120–122] Although methanol has many applications in paints, plastics, combustion engines, and organic solvents,^[97] its production contributes to reducing CO₂ emissions by only 0.1%.^[123] CO₂ conversion into CO from the reverse water–gas–shift (RWGS) reaction is one of the most-important routes for CO₂ utilization, because CO is a raw material for the synthesis of methanol and hydrocarbon fuels through the FT reaction.^[122] Despite this, the endothermic nature of the RWGS reaction and the low conversion at moderate temperatures are the two main bottlenecks to deploying large-scale methanol production from CO₂ through the FT process. Additionally, developing active catalysts that can accelerate the reaction kinetics and maximize the yield represents another significant barrier.

Recently, DRM has attracted significant research interest in terms of using CO₂ for syngas production.^[124–126] Typically, the purity of syngas that is produced by DRM is higher than that produced by partial oxidation and steam reforming.^[127]

In addition, the amount of unreacted methane in the DRM process is only 2%, which is less than that in steam reforming, and this makes it possible to apply DRM at remote natural gas sites for the production of liquid fuels, which are easier to transport than gaseous fuels.^[113] Ni, Ni–Co, Ru, Ir, and Rh supported on silica, alumina, and lanthanum oxide have been extensively evaluated in the DRM reaction.^[128] Despite significant advances in the development of catalysts with high activity and optimum stability for DRM, finding a suitable catalyst for this reaction still remains a big hurdle, especially at high operation temperatures, as deactivation by coke formation is inevitable at high temperatures (> 700 °C).^[129–133]

Oxidative dehydrogenation of light alkanes to alkenes (ODA) with CO₂ as a soft oxidant (instead of O₂, which is typically used in dehydrogenation processes) is another attractive approach that can reduce the amount of coke formation and maintain the stability of catalysts at elevated temperature.^[134–138] Moreover, CO₂ enhances the equilibrium conversion of the oxidative dehydrogenation of light alkanes by removing hydrogen through the RWGS reaction.^[139] However, care must be taken in monitoring the temperature, as excess heat can cause the olefins to undergo overoxidation, which yields carbon oxides and results in low selectivity.^[140] CO₂ also forms the redox cycle and produces active oxygen species. The role of CO₂ in the ODA and the mechanism of this reaction are unclear and are dependent on the nature of the active sites and the reducibility of the metal and its supporting material.^[141] Despite initial high activity, the catalysts investigated so far suffer from low stability.

It is apparent from the above discussion that the main hurdle in utilizing captured CO₂ as a feedstock for the production of synthetic fuels lies in the design and development of novel catalysts that not only exhibit high catalytic activity under different reaction conditions but that are also resistant to coke formation and show long-term chemical and structural stability.

3.2.2. Chemicals production

In addition to synthetic fuels, CO₂ can be used as a feedstock to produce a large array of fine chemicals. The most important applications are urea (≈ 160 Mt year⁻¹), inorganic carbonates (≈ 60 Mt year⁻¹), polyurethane (≈ 18 Mt year⁻¹), acrylic acid and acrylates (10 Mt year⁻¹), polycarbonates (4 Mt year⁻¹), and alkylene carbonates (a few kt year⁻¹).^[4] Urea, as a major fertilizer, has the largest market for CO₂ utilization.^[4, 142] It is also widely used as a feedstock in polymer synthesis, pharmaceuticals, fine chemicals, and inorganic chemicals such as melamine and urea resins.^[143, 144]

Organic carbonates such as acyclic (linear) carbonates [e.g., dimethyl carbonate (DMC), diallyl carbonate (DAC), diethyl carbonate (DEC), and diphenyl carbonate (DPC)], cyclic carbonates [e.g., ethylene carbonate (EC), propylene carbonate (PC), cyclohexene carbonate (CC), and styrene carbonate (SC)], and polycarbonates [e.g., poly(propylene carbonate) and bisphenol polycarbonate (BPA-PC)] that

have many applications in pharmaceuticals, agrochemicals, polymers, lubricants, coating, and catalytic reactions are another class of chemicals that can be produced from captured CO₂.^[95,124] The challenges of this process arise from operation at high temperatures and pressures and the need for high catalyst inventory. Moreover, the separation of the catalyst from the products is also another challenge in this process.^[95,124] In the production of polycarbonates from the reaction of CO₂ with epoxides, commercially available Al-based catalysts are widely used, but they are not environmentally friendly. In this regard, the oxidative carboxylation route is an alternative with great potential to synthesize polycarbonates from CO₂ and olefins.^[113] Polyurethane is another chemical produced by the reaction of CO₂ with cyclic amines such as aziridines and azetidines or the N-analogues of epoxides.^[113,145]

Another important chemical that can be obtained through CO₂ utilization is formic acid. Hydrogenation of CO₂ into formic acid has recently attracted some interest mainly due to the mild reaction conditions, the lack of formation of by-products, the ability to store hydrogen in liquid form, and the easy decomposition of formic acid into hydrogen and CO₂.^[98,143]

Biological utilization of CO₂ offers another pathway for the production of biodiesel and various biomass-derived commodity chemicals (used as food, silage, biogas, and fertilizer).^[146] The advantages offered by this approach include higher growth rate, shorter growth cycle, no competition on land with other plants, and the production of different valuable byproducts. However, captured CO₂ should be purified prior to feeding into a photobioreactor to remove pollutants such as SO_x, NO_x, and heavy metals that are toxic to the growth of microalgae.^[9]

In addition to EOR, utilizing CO₂ as a technological fluid without conversion into chemicals has found applications in many industries, including the air-conditioning (as coolant), solvent, dry-washing, food-preservation, and beverage industries.^[4,96,98] Generally, EOR consumes 50 Mt year⁻¹ CO₂, whereas 8 Mt year⁻¹ CO₂ is consumed in the food and beverage industries.^[147]

Overall, although there is a great market for turning captured CO₂ into chemicals and fuels, the proposed laboratory-scale technologies are still far from industrial commercialization. The reason for this is partly because the materials investigated so far are expensive to make yet are not chemically stable and partly because, in most cases, CO₂ conversion rates and overall yields of the main products are low and thus do not meet the requirements for large-scale deployment. Moreover, there still exists limited understanding of the reaction mechanisms involved in the chemical transformations of CO₂. Evaluation of the process requirements and considerations is also overlooked in this field.

3.3. Nongeologic storage of CO₂ (mineralization)

Nongeologic storage or mineral carbonation of CO₂ results in the production of stable mineral carbonates by treating

CO₂ with metal oxides such as calcium and magnesium oxides that are naturally abundant in the form of mineral silicates.^[7] The carbonation of magnesium and calcium silicates through spontaneous reaction with atmospheric CO₂ under ambient conditions is a naturally occurring process (known as natural weathering) that is thermodynamically favored yet very slow.^[4] Artificial improvement in the carbonation kinetics can be achieved by injecting fluids with a higher concentration of CO₂ and by increasing the temperature. Despite significant efforts devoted to accelerating this reaction, the slow kinetics are still the main drawback in scaling up the mineralization process.^[4] Additionally, this process is energy intensive, as it requires the extraction, processing, and transportation of the rocks, as well as high pressures (10.0–15.0 MPa) and temperatures (150–600 °C) to achieve a carbonation efficiency higher than 80%.^[148] Also, the duration of the carbonation reaction is very long (6–24 h), and the rocks should be mined (<37 μm). Large plant sizes and the need for additives to extract reactive species and separate (or dispose of) reaction products are other components with high cost penalties.^[148] In a sense, the mineralization process may be viewed as a sequestration method, because it aims at permanently fixing CO₂, but unlike CCS, which suffers from leakage (geological storage of CO₂), the carbonates are stable and safe.^[149] Also, the exothermic nature of the mineralization reaction along with the geothermal gradient (up to 20 °C km⁻¹) contribute to a reduction in energy consumption. Moreover, as pure CO₂ is not required for this process, flue gas can be used directly without removing impurities such as SO_x and NO_x.^[147]

To address the operational and technological drawbacks associated with the direct carbonation process, indirect carbonation (indirect storage) can be implemented in multiple reactors. In this method, high carbonation efficiency and purity can be obtained in the presence of additives under mild conditions and short time periods.^[149,150] Another advantage of this process is the production of diverse commodities such as magnesium/calcium carbonate, iron oxide, and silica that can compensate the process cost. However, as this process is complex, optimizing the operation conditions should be performed separately for each step.^[4] In addition, the energy cost is still a main obstacle that prohibits its commercialization.^[7,149] To reduce energy costs, materials such as acetic acid, ammonium salts, and sodium hydroxide can be used instead of hydrochloric acid, which is typically used in this process.^[149,151] Accelerating the reaction kinetics through advanced materials is one way to improve the efficiency of the process.^[150] Indirect mineral carbonation is considered to be the most useful process, and it has the potential to be scaled up in the near future.^[152] A near-complete *in situ* CO₂ mineralization process in Basaltic rocks has recently been achieved within a two-year timeframe.^[153]

The possibility to upgrade alkali-metal wastes into high commercial value-added products such as high-purity precipitated CaCO₃ through carbonization is a promising approach that should be the focus of future research in this field.^[149–151,154] As an example, carbonation of Ca-carrying ce-

mentitious materials through reaction with CO₂ results in the development of high early-stage strength for building materials applications, and a CO₂ uptake of 7–12% is achieved in the process.^[155] To date, only a few projects based on the utilization of inorganic wastes have moved to the commercial or small-scale demonstration phase. For example, retrofitting a cement plant in Texas by SkyMine (Capitol Aggregates) to reduce its carbon emissions by 15% (83 000 t year⁻¹) through the direct transformation of flue gas into marketable products, such as sodium bicarbonate, hydrochloric acid, and bleach, is approaching the commercialization step. In another example, a pilot-scale demonstration of the mineral carbonation process on the basis of the utilization of coal fly ash to reduce CO₂ emissions has been installed at a 2120 MW coal-fired power plant in Point of Rocks, WY, USA.^[156]

3.4. Desalination and water production

As another promising utilization approach, captured CO₂ can be used to remove total dissolved solids (TDS) and to transform brine into water.^[157–159] The resulting potable water can be utilized in places for which there is a deficiency.^[6] Whereas most desalination plants do not employ CO₂ to perform desalination owing to economic constraints, new technologies are being developed for the cheap and efficient utilization of CO₂ in this process. If sea water, mixed with ammonia (to weaken the salt molecules), is exposed to CO₂, already-weak bonds start to form, which leads to the removal of the ions from the water phase.^[159] The products formed, Na₂CO₃ and NH₄Cl, are heavy and, thus, can easily settle to the bottom of the tank. The latter NH₄Cl can be recycled by thermal operations with calcium oxide or be used as a feedstock for the synthesis of ammonia and chlorine. The hydrate-forming method is another technique that is used for desalination, and it involves the formation of hydrates by using CO₂ to separate the salts from water.^[160,161] In this approach, CO₂ can be in either the gas or liquid form. The CO₂ hydrates are either dumped into the ocean or transported elsewhere.^[162] The ammonia–carbon dioxide forward osmosis

process is yet another desalination technique that employs CO₂.^[158] In this process, the driving force is osmotic pressure instead of hydraulic pressure in reverse osmosis, and by using a “draw” solution, the brine and fresh water are separated.

One problem commonly faced by the desalination processes is the brine waste that is generated in very large quantities during the process.^[163] Additionally, high salt concentrations, solvent chemical residues, and metal corrosion have the capacity to destabilize the local ecosystem.^[164] To overcome these problems, the use of three main units, namely, carbonation, filtration, and recovery, has been proposed for chloride and amine compounds.^[165]

Desalination is unlikely to penetrate the market without any significant cost advantages. According to a recent DOE report published in 2013, the cost of potable water production with approximately 21 ppm TDS from 233 000 ppm brine by using three stages of CO₂-based clathrate desalination is estimated to be 3.17 USD Kgal⁻¹.kilogallon (1 gal ≈ 3.8 L).^[166] Depending on the source of brine, the cost could vary significantly. The estimated desalination costs are currently higher than agricultural or municipal water costs, which thus makes CO₂-based desalination technology less attractive to address the water market. In particular, given the high cost of providing agricultural-quality water by CO₂-based desalination, it is highly unlikely that this technology could be adopted to supply agricultural water. Overall, although CO₂ remains an attractive option for desalination, the current cost of potable water produced by the CO₂-related technologies is far from being competitive.

3.5. Summary

In summary, the future prospects of carbon-utilization technologies are bright, and there is huge potential in various industries to market the utilization of captured CO₂ as a renewable resource instead of permanently sequestering it underground or in the oceans. It is expected that with future research and development on the key components of CO₂ uti-

Table 2. CO₂-utilization technologies and their associated challenges and opportunities.

| Utilization technology | Challenges | Opportunities |
|---------------------------|--|---|
| chemical conversion | high operating conditions complexity of reaction pathways stability of catalysts to coke formation low conversion and product yield rates catalyst regeneration development of highly selective catalysts | dry reforming of methane catalytic reduction to formic acid and its derivatives noble-metal-doped transition-metal catalysts biological pathways to synthetic fuels oxidative dehydrogenation |
| enhanced oil/gas recovery | transportation of CO ₂ large number of parameters involved fluctuations in oil price | water alternating gas (WAG) system compensated neutron log (CNL) |
| mineralization | slow kinetics high-pressure and high-temperature operation expensive to implement | indirect carbonation utilization of inorganic wastes |
| desalination | equipment corrosion expensive operation large amount of brine waste | providing potable water to residential and municipal customers possible implementation in various regions modified Solvay process |

lization discussed above, the majority of proposed or emerging technologies related to CO₂ utilization will continue to have lower costs, which will make more of the fine chemicals, fuels, and water markets addressable with sustainable CO₂-based processes. Adopting these emerging technologies depends to a great extent upon their cost effectiveness. To date, only a small fraction of CO₂ captured from gas effluents has actually been used to provide energy or to produce other value-added products. The estimated high costs along with the low efficiency of these technologies are the two key factors responsible for such a slow progress. Table 2 provides a summary of the current challenges and future opportunities associated with various CO₂-utilization routes discussed in this section.

4. Combined CO₂ Capture and Utilization

Combining capture and utilization offers an efficient strategy to minimize the high energy requirements for direct chemicals/fuels production from waste-gas streams, especially if the capture and utilization are performed at the same temperature. Such process intensification will lead to smaller, cleaner, and more energy-efficient technologies. The concept of hybrid processes in gas separation and reaction has been previously applied to several applications. For instance, membrane reactors (MRs) combine membrane separation with a chemical reaction in one unit. MRs are capable of promoting a reaction process by selectively removing at least one of the products through the membrane from the reaction zone, which makes the equilibrium reaction shift to the product side.^[167–169] The sorption-enhanced reaction (SER) is a similar concept that combines adsorption with a reaction in a single unit. SER has been widely applied to the water–gas-shift (WGS) reaction for the production of high-purity hydrogen.^[170–176] In this process, the in situ capture of CO₂ allows the thermodynamically constrained WGS process to operate at higher temperatures (i.e., 350 °C), at which the reaction kinetics are more favorable.^[175] Such novel concepts could be adopted for simultaneous CO₂ capture and utilization in various industries. The schematic of the proposed capture–utilization process is illustrated in Figure 3.

The concept of producing chemicals and fuels directly from industrial flue gases over a dual-function material has been previously applied to the production of syngas (CO and H₂), a useful reactant for methanol synthesis.^[114,177,178] In this process, called tri-reforming of methane, a synergetic combination of CO₂ reforming, steam reforming, and partial oxidation of methane occurs in a single reactor at 850 °C with supported nickel catalysts.^[114,180,181] In another example, the in situ capture and methanation of CO₂ has been studied over a dual-function material in the form of a coated monolith to produce synthetic CH₄ by using H₂ at 320 °C.^[179–182] Hydrogenation of CO₂ is another example of combined capture and reduction that has been recently reported.^[183] Simultaneous capture and mineralization of coal combustion flue gas CO₂ is another example of a hybrid process that has been demonstrated at a pilot scale in the USA.^[156]

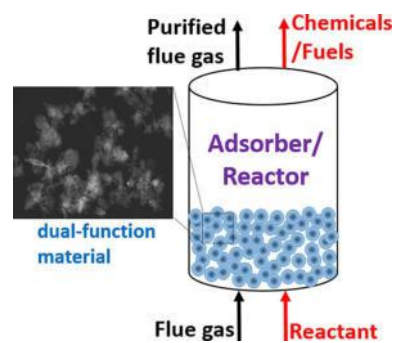


Figure 3. Schematic of the proposed combined carbon capture–utilization process.

Such integrated systems could provide a solution to both the energy and environmental problems currently encountered worldwide. However, creation of novel in situ capture–conversion technologies requires advancements in both materials science and process engineering. Given the different natures of adsorption and catalysis, the fundamental aspects of hybrid adsorbent/catalyst characteristics in conjunction with process considerations and operation conditions should be carefully studied to obtain a highly efficient and cost-effective technology. Also, for the direct utilization of waste-gas streams, the resistivity of materials (especially catalysts) to impurities may pose a challenge, and efforts should be undertaken to ensure the reliability of the materials for a long service life.

5. Outlook

In this short review, the current challenges and future opportunities of carbon capture and utilization technologies were presented and discussed from perspectives of efficiency and cost. Indeed, recent years have witnessed significant advancements in the design and development of various CCU technologies with a few cases being deployed on an industrial scale. However, the majority of technology options being considered so far are still at the laboratory-scale stage of development. In both scenarios, commercial implementation of novel materials that outperform the current state-of-the-art materials in each respective technique will certainly decrease the energy requirements of both capture and utilization processes. However, the research and development of materials concepts should be coupled with process performance considerations to evaluate better their potential under real conditions. Having such a holistic view of both materials and processes and a mutual communication between materials scientists and engineers will help to accelerate dramatically the scale-up of CCU technologies. In addition, small-scale evaluation of materials or processes should take into account the large-scale implementation requirements to provide a realistic evaluation of the performance and to reduce the uncertainties in estimating the associated costs. Cost effectiveness is the ultimate factor determining the feasibility of the adoption of many emerging CCU technologies.

The long-term stability of the materials used in most CCU methods is an important consideration that not only impacts the system performance but also affects the economics of the process. In the context of utilization, the production of fuels and chemicals and the use of renewable energy sources in particular can bring down the total cost while providing a sustainable approach for the production of value-added products. In most technologies, system integration and process intensification will enable a cost-effective approach to improve the separation and thermodynamic efficiency; however, the complexity of the operation and other related issues should also be considered.

Hybrid processes that either couple CO₂-capture subsystems or offer simultaneous capture and utilization approaches should be the focus of future research, as thermodynamic analyses of such systems have highlighted their energy efficacy and cost effectiveness (by reducing both capital and operating costs). Although the emerging hybrid systems appear to have many hallmarks of next-generation CCU technologies, more research (e.g., materials development, processes operation requirements) and development (e.g., synergistic assessment studies and process scale-up) are required for these emerging technologies to become commercially available in the near future. Any feasibility study should also include other considerations related to environmental impacts, risk assessment, and life-cycle analysis.

Acknowledgements

Funding was provided in part by the University of Missouri Research Board (UMRB).

Keywords: atmospheric chemistry • CO₂ capture • CO₂ utilization • hybrid processes • sustainable chemistry

- [1] U.S. Energy Information Administration (EIA), *Annual Energy Outlook 2015 (AEO2015)*, with projections to 2040, April 2015, DOE/EIA-0383(2015), pp. 1–154 [http://www.eia.gov/outlooks/aeo/pdf/0383\(2015\).pdf](http://www.eia.gov/outlooks/aeo/pdf/0383(2015).pdf).
- [2] 21st Session of the Conference of the Parties to the United Nations Framework Convention on Climate Change (COP 21), 2015, <http://www.c2es.org/international/negotiations/cop21-paris/summary>, accessed 15 November 2016.
- [3] P. Markewitz, W. Kuckshinrichs, W. Leitner, J. Linssen, P. Zapp, R. Bongartz, A. Schreiber, T. E. Müller, *Energy Environ. Sci.* **2012**, *5*, 7281–7305.
- [4] M. E. Boot-Handford, J. C. Abanades, E. J. Anthony, M. J. Blunt, S. Brandani, N. Mac Dowell, J. R. Fernández, M.-C. Ferrari, R. Gross, J. P. Hallett, R. S. Haszeldine, P. Heptonstall, A. Lyngfelt, Z. Makuch, E. Mangano, R. T. J. Porter, M. Pourkashanian, G. T. Rochelle, N. Shah, J. G. Yao, P. S. Fennell, *Energy Environ. Sci.* **2014**, *7*, 130–189.
- [5] IEA, *Technology Roadmap: Carbon Capture and Storage*, <https://www.iea.org/publications/freepublications/publication/technology-roadmapcarboncaptureandstorage.pdf>, 2013.
- [6] P. Styring, D. Jansen, H. de Coninck, H. Reith, K. Armstrong, *Carbon Capture and Utilisation in the Green Economy*, Centre for Low Carbon Futures, 2011, <http://co2chem.co.uk/carbon-capture-and-utilisation-in-the-green-economy>.
- [7] R. M. Cuéllar-Franca, A. Azapagic, *J. CO₂ Util.* **2015**, *9*, 82–102.
- [8] N. von der Assen, P. Voll, M. Peters, A. Bardow, *Chem. Soc. Rev.* **2014**, *43*, 7982–7994.
- [9] F. D. Meylan, V. Moreau, S. Erkman, *J. CO₂ Util.* **2015**, *12*, 101–108.
- [10] Z. Yuan, M. R. Eden, R. Gani, *Ind. Eng. Chem. Res.* **2016**, *55*, 3383–3419.
- [11] D. C. Miller, J. T. Litynski, L. A. Brickett, B. D. Morreale, *AIChE J.* **2016**, *62*, 2–10.
- [12] M. Songolzadeh, M. Soleimani, M. Takht Ravanchi, R. Songolzadeh, *Sci. World J.* **2014**, *2014*, 1–34.
- [13] M. Abotalib, F. Zhao, A. Clarens, *ACS Sustainable Chem. Eng.* **2016**, *4*, 4743–4751.
- [14] Y. Ahn, S. J. Bae, M. Kim, S. K. Cho, S. Baik, J. I. Lee, J. E. Cha, *Nucl. Eng. Technol.* **2015**, *47*, 647–661.
- [15] *World Energy Outlook*, 2015, pp. 1–12, http://www.oecd-ilibrary.org/energy/world-energy-outlook-2014_weo-2014-en, accessed 25 November 2016.
- [16] *Boundary Dam Integrated Carbon Capture and Storage Demonstration Project*, 2015, <http://www.saskpower.com/our-power-future/carbon-capture-and-storage/>, accessed 25 November 2016.
- [17] Y. Kong, X. Shen, M. Fan, M. Yang, S. Cui, *Chem. Eng. J.* **2016**, *283*, 1059–1068.
- [18] B. Arstad, H. Fjellvåg, K. O. Kongshaug, O. Swang, R. Blom, *Adsorption* **2008**, *14*, 755–762.
- [19] S. Builes, P. López-Aranguren, J. Fraile, L. F. Vega, C. Domingo, *Energy Fuels* **2015**, *29*, 3855–3862.
- [20] A. Goepfert, M. Czaun, R. B. May, G. K. S. Prakash, G. A. Olah, S. R. Narayanan, *J. Am. Chem. Soc.* **2011**, *133*, 20164–20167.
- [21] M. C. Corvo, J. Sardinha, T. Casimiro, G. Marin, M. Seferin, S. Einloft, S. C. Menezes, J. Dupont, E. J. Cabrita, *ChemSusChem* **2015**, *8*, 1935–1946.
- [22] C. Cadena, J. L. Anthony, J. K. Shah, T. I. Morrow, J. F. Brennecke, E. J. Maginn, *J. Am. Chem. Soc.* **2004**, *126*, 5300–5308.
- [23] E. D. Bates, R. D. Mayton, I. Ntai, J. H. Davis, *J. Am. Chem. Soc.* **2002**, *124*, 926–927.
- [24] G. T. Rochelle, *Science* **2009**, *325*, 1652–1654.
- [25] T. C. Merkel, H. Lin, X. Wei, R. Baker, *J. Membr. Sci.* **2010**, *359*, 126–139.
- [26] S. Japip, H. Wang, Y. Xiao, T. S. Chung, *J. Membr. Sci.* **2014**, *467*, 162–174.
- [27] Q. Huang, M. Eic, *Sep. Purif. Technol.* **2013**, *103*, 203–215.
- [28] S. Han, Y. Huang, T. Watanabe, Y. Dai, K. S. Walton, S. Nair, D. S. Sholl, J. C. Meredith, *ACS Comb. Sci.* **2012**, *14*, 263–267.
- [29] R. P. Lively, D. P. Leta, B. A. DeRites, R. R. Chance, W. J. Koros, *Chem. Eng. J.* **2011**, *171*, 801–810.
- [30] A. A. Rownaghi, A. Kant, X. Li, H. Thakkar, A. Hajari, Y. He, P. J. Brennan, H. Hosseini, W. J. Koros, F. Rezaei, *ChemSusChem* **2016**, *9*, 1166–1177.
- [31] W. J. Koros, G. K. Fleming, *J. Membr. Sci.* **1993**, *83*, 1–80.
- [32] M. R. Kosuri, W. J. Koros, *Ind. Eng. Chem. Res.* **2009**, *48*, 10577–10583.
- [33] E. Favre, *J. Membr. Sci.* **2007**, *294*, 50–59.
- [34] U.S. Department of Energy, *Membrane Process to Capture CO₂ from Coal-Fired Power Plant Flue Gas*, NETL Report, 2009, project 593 <https://www.netl.doe.gov/File%20Library/Research/Coal/ewr/co2/Proj593.pdf>.
- [35] W. J. Koros, *AIChE J.* **2004**, *50*, 2326–2334.
- [36] T. J. Kim, H. Vrålstad, M. Sandru, M. B. Hägg, *J. Membr. Sci.* **2013**, *428*, 218–224.
- [37] S. Li, Z. Wang, W. He, C. Zhang, H. Wu, J. Wang, S. Wang, *Ind. Eng. Chem. Res.* **2014**, *53*, 7758–7767.
- [38] H. Z. Chen, Z. Thong, P. Li, T.-S. Chung, *Int. J. Hydrogen Energy* **2014**, *39*, 5043–5053.
- [39] T.-H. Bae, J. R. Long, *Energy Environ. Sci.* **2013**, *6*, 3565.
- [40] Y. Zhao, W. S. W. Ho, *Ind. Eng. Chem. Res.* **2013**, *52*, 8774–8782.
- [41] K. Ramasubramanian, H. Verweij, W. S. W. Ho, *J. Membr. Sci.* **2012**, *421–422*, 299–310.
- [42] H. B. Tanh Jeazet, C. Staudt, C. Janiak, *Dalton Trans.* **2012**, *41*, 14003–14027.
- [43] R. P. Lively, R. R. Chance, B. T. Kelley, H. W. Deckman, J. H. Drese, C. W. Jones, W. J. Koros, *Ind. Eng. Chem. Res.* **2009**, *48*, 7314–7324.

- [44] Y. Labreche, R. P. Lively, F. Rezaei, G. Chen, C. W. Jones, W. J. Koros, *Chem. Eng. J.* **2013**, *221*, 166–175.
- [45] Y. Fan, R. P. Lively, Y. Labreche, F. Rezaei, W. J. Koros, C. W. Jones, *Int. J. Greenh. Gas Control* **2014**, *21*, 61–71.
- [46] A. Phan, C. J. Doonan, F. J. Uribe-Romo, C. B. Knobler, M. O'Keeffe, O. M. Yaghi, *Acc. Chem. Res.* **2010**, *43*, 58–67.
- [47] H. Liu, P. Guo, T. Regueira, Z. Wang, J. Du, G. Chen, *J. Phys. Chem. C* **2016**, *120*, 13287–13294.
- [48] X. Ma, L. Li, S. Wang, M. Lu, H. Li, W. Ma, T. C. Keener, *Appl. Surf. Sci.* **2016**, *369*, 390–397.
- [49] K. T. Chue, J. N. Kim, Y. J. Yoo, S. H. Cho, R. T. Yang, *Ind. Eng. Chem. Res.* **1995**, *34*, 591–598.
- [50] H. A. Patel, F. Karadas, A. Canlier, J. Park, E. Deniz, Y. Jung, M. Attilhan, C. T. Yavuz, *J. Mater. Chem.* **2012**, *22*, 8431–8437.
- [51] T. E. Reich, S. Behera, K. T. Jackson, P. Jena, H. M. El-Kaderi, *J. Mater. Chem.* **2012**, *22*, 13524.
- [52] S. Choi, J. H. Drese, C. W. Jones, *ChemSusChem* **2009**, *2*, 796–854.
- [53] D. M. Ruthven, *Principles of Adsorption and Adsorption Processes*, Wiley, Hoboken, NJ, **1984**.
- [54] L. Hauchhum, P. Mahanta, *Int. J. Energy Environ.* **2014**, *5*, 349–356.
- [55] K. T. Leperi, R. Q. Snurr, F. You, *Ind. Eng. Chem. Res.* **2016**, *55*, 3338–3350.
- [56] F. Rezaei, S. Lawson, H. Hosseini, H. Thakkar, A. Hajari, S. Monjezi, A. A. Rownaghi, *Chem. Eng. J.* **2017**, *313*, 1346–1353.
- [57] S. E. Agarwal, A. Biegler, L. T. Zitney, *AIChE J.* **2010**, *56*, 1813–1828.
- [58] J. Merel, M. Clausse, F. Meunier, *Ind. Eng. Chem. Res.* **2008**, *47*, 209–215.
- [59] A. L. Chaffee, G. P. Knowles, Z. Liang, J. Zhang, P. Xiao, P. A. Webley, *Int. J. Greenhouse Gas Control* **2007**, *1*, 11–18.
- [60] D. Marx, L. Joss, M. Hefti, M. Mazzotti, *Ind. Eng. Chem. Res.* **2016**, *55*, 1401–1412.
- [61] T. I. T. Takeguchi, W. Tanakurungsank, *Gas Sep. Purif.* **1993**, *7*, 3–9.
- [62] F. Rezaei, P. Webley, *Sep. Purif. Technol.* **2010**, *70*, 243–256.
- [63] F. Rezaei, R. P. Lively, Y. Labreche, G. Chen, Y. Fan, W. J. Koros, C. W. Jones, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **2013**, *5*, 3921–3931.
- [64] R. P. Lively, R. Chance, W. J. Koros, *Ind. Eng. Chem. Res.* **2010**, *49*, 7550–7562.
- [65] J. Mérel, M. Clausse, F. Meunier, *Environ. Prog.* **2006**, *25*, 327–333.
- [66] A. Ntiamoah, J. Ling, P. Xiao, P. A. Webley, Y. Zhai, *Ind. Eng. Chem. Res.* **2016**, *55*, 703–713.
- [67] N. Tlili, G. Grévillet, C. Vallières, *Int. J. Greenhouse Gas Control* **2009**, *3*, 519–527.
- [68] M. G. Plaza, S. García, F. Rubiera, J. J. Pis, C. Pevida, *Chem. Eng. J.* **2010**, *163*, 41–47.
- [69] J. Kärger, D. M. Ruthven, *Diffusion in Zeolites and Other Microporous Solids*, Wiley, New York, **1992**.
- [70] G. Li, P. Xiao, P. A. Webley, J. Zhang, R. Singh, *Energy Procedia* **2009**, *1*, 1123–1130.
- [71] D. M. Ruthven, S. Farooq, K. S. Knaebel, *Pressure Swing Adsorption*, VCH, Weinheim, **1994**.
- [72] M. M. Hossain, H. I. de Lasa, *Chem. Eng. Sci.* **2008**, *63*, 4433–4451.
- [73] L. M. Romeo, S. Usón, A. Valero, J. M. Escosa, *Int. J. Greenhouse Gas Control* **2010**, *4*, 647–654.
- [74] I. Martínez, R. Murillo, G. Grasa, J. C. Abanades, *Energy Procedia* **2011**, *4*, 1699–1706.
- [75] A. Martínez, Y. Lara, P. Lisbona, L. M. Romeo, *Int. J. Greenhouse Gas Control* **2012**, *7*, 74–81.
- [76] D. C. Ozcan, A. Macchi, D. Y. Lu, A. M. Kierzkowska, H. Ahn, C. R. Müller, S. Brandani, *Int. J. Greenh. Gas Control* **2015**, *43*, 198–212.
- [77] R. T. Symonds, D. Y. Lu, V. Manovic, E. J. Anthony, *Ind. Eng. Chem. Res.* **2012**, *51*, 7177–7184.
- [78] N. Rodríguez, M. Alonso, J. C. Abanades, *AIChE J.* **2011**, *57*, 1356–1366.
- [79] A. Charitos, C. Hawthorne, A. R. Bidwe, S. Sivalingam, A. Schuster, H. Spliethoff, G. Scheffknecht, *Int. J. Greenhouse Gas Control* **2010**, *4*, 776–784.
- [80] K. S. Lackner, *Eur. Phys. J. Spec. Top.* **2009**, *176*, 93–106.
- [81] K. S. Lackner, P. Grimes, H. Ziock, *Capturing Carbon Dioxide from Air*, http://www.netl.doe.gov/publications/proceedings/01/carbon_seq/7b1.pdf, accessed 20 October 2016.
- [82] K. S. Lackner, S. Brennan, J. M. Matter, A.-H. A. Park, A. Wright, B. van der Zwaan, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **2012**, *109*, 13156–13162.
- [83] C. W. Jones, *Annu. Rev. Chem. Biomol. Eng.* **2011**, *2*, 31–52.
- [84] E. S. Sanz-Pérez, C. R. Murdock, S. A. Didas, C. W. Jones, *Chem. Rev.* **2016**, *116*, 11840–11876.
- [85] R. P. Lively, M. J. Realff, *AIChE J.* **2016**, *62*, 3699–3705.
- [86] I. A. A. C. Esteves, J. P. B. Mota, *Desalination* **2002**, *148*, 275–280.
- [87] B. Belaissaoui, Y. Le Moullec, D. Willson, E. Favre, *J. Membr. Sci.* **2012**, *415–416*, 424–434.
- [88] C. A. Scholes, M. T. Ho, D. E. Wiley, G. W. Stevens, S. E. Kentish, *Int. J. Greenhouse Gas Control* **2013**, *17*, 341–348.
- [89] L. Zhao, E. Primabudi, D. Stolten, *Energy Procedia* **2014**, *63*, 1756–1772.
- [90] M. Scholz, B. Frank, F. Stockmeier, S. Falß, M. Wessling, *Ind. Eng. Chem. Res.* **2013**, *52*, 16929–16938.
- [91] D. Hasse, J. Ma, S. Kulkarni, P. Terrien, J. P. Tranier, E. Sanders, T. Chaubey, J. Brumback, *Energy Procedia* **2014**, *63*, 186–193.
- [92] C. Song, Y. Kansa, Q. Fu, M. Ishizuka, A. Tsutsumi, *J. Taiwan Inst. Chem. Eng.* **2016**, *64*, 69–78.
- [93] J. A. Wurzbacher, C. Gebald, A. Steinfeld, *Energy Environ. Sci.* **2011**, *4*, 3584.
- [94] J. A. Wurzbacher, C. Gebald, S. Brunner, A. Steinfeld, *Chem. Eng. J.* **2016**, *283*, 1329–1338.
- [95] *Carbon Dioxide as Chemical Feedstock* (Ed.: M. Aresta), Wiley-VCH, Weinheim, **2010**.
- [96] *Carbon Dioxide Recovery and Utilization* (Ed.: M. Aresta), Kluwer Academic, Dordrecht, **2003**.
- [97] B. Hu, C. Guild, S. L. Suib, *J. CO₂ Util.* **2013**, *1*, 18–27.
- [98] M. Aresta, A. Dibenedetto, A. Angelini, *Chem. Rev.* **2014**, *114*, 1709–1742.
- [99] L. S. Melzer *Carbon Dioxide Enhanced Oil Recovery (CO₂ EOR): Factors Involved in Adding Carbon Capture, Utilization and Storage (CCUS) to Enhanced Oil Recovery*, **2012**, http://neori.org/Melzer_CO2EOR_CCUS_Feb2012.pdf.
- [100] L. W. Lake, R. Johns, W. Rossen, G. Pope, *Fundamentals of Enhanced Oil Recovery*, Society of Petroleum Engineers, Richardson, TX, **2014**.
- [101] S. Q. Tunio, A. H. T. Mehran, N. A. Ghirano, Z. M. El Adawy, *Int. J. Appl. Sci. Technol.* **2011**, *1*, 143–153.
- [102] M. Perera, R. Gamage, T. Rathnawera, A. Ranathunga, A. Koay, X. Choi, *Energies* **2016**, *9*, 481.
- [103] F. Gozalpour, S. R. Ren, B. Tohidi, *Oil Gas Sci. Technol.* **2005**, *60*, 537–546.
- [104] J. Cho, T. H. Kim, K. S. Lee, *Modeling of CO₂ EOR Process Combined with Intermediate Hydrocarbon Solvents for Higher Recovery Efficiency*, SPE EOR Conference at Oil and Gas West Asia, **2016**, DOI:10.2118/179778-MS.
- [105] M. A. Klins, *Carbon Dioxide Flooding: Basic Mechanisms and Project Design*, International Human Resources Development Corporation, Boston, **1984**.
- [106] M. Panda, D. Nottingham, D. Lenig, *SPE Reservoir Eval. Eng.* **2011**, *14*, 299–309.
- [107] S. Al Hajeri, S. Negahban, G. Al-yafei, A. Al Basry, *Design and Implementation of the first CO₂-EOR Pilot in Abu Dhabi, UAE*, SPE EOR Conference at Oil & Gas West Asia, **2010**, DOI: 10.2118/129609-MS.
- [108] J. O. D. S. A. Pizarro, C. C. M. Branco, *EOR Building Toward Sustainable Growth*, Society of Petroleum Engineers EOR Conference at Oil and Gas West Asia, **2012**, *2*, 954–966 DOI: 10.2118/155665-MS.
- [109] W. Ampomah, R. S. Balch, R. B. Grigg, P. Recovery, R. Will, *Title*, **2016** DOI: 10.2118/179528-MS.
- [110] A. Goeppert, M. Czaun, G. K. S. Prakash, G. A. Olah, *Energy Environ. Sci.* **2012**, *5*, 7833–7853.
- [111] *Overview of Greenhouse Gases*, **2014**, <https://www3.epa.gov/climate-change/ghgemissions/gases.html>, accessed 3 October 2016.

- [112] M. S. Fan, A. Z. Abdullah, S. Bhaia, *ChemCatChem* **2009**, *1*, 192–208.
- [113] M. Aresta, A. Dibenedetto, *Dalton Trans.* **2007**, 2975–2992.
- [114] C. Song, *Catal. Today* **2006**, *115*, 2–32.
- [115] J. C. Matsubu, V. N. Yang, P. Christopher, *J. Am. Chem. Soc.* **2015**, *137*, 3076–3084.
- [116] J. Graciani, K. Mudiyansele, F. Xu, A. E. Baber, J. Evans, S. D. Senanayake, D. J. Stacchiola, P. Liu, J. Hrbek, J. F. Sanz, J. A. Rodriguez, *Science* **2014**, *345*, 546–550.
- [117] G. Laurenczy, *Chimia* **2011**, *65*, 663–666.
- [118] P. F. Tropschuh, E. Pham, *Sustainable Automotive Technologies 2013: Proceedings of the 5th International Conference ICSAT 2013* (Eds.: J. Wellnitz, A. Subic, R. Trufin), Springer, Cham, Switzerland, **2013**, pp. 185–190.
- [119] S. Kuld, C. Conradsen, P. G. Moses, I. Chorkendorf, J. Sehested, *Angew. Chem. Int. Ed.* **2014**, *53*, 5941–5945; *Angew. Chem.* **2014**, *126*, 6051–6055.
- [120] W. J. Cai, P. R. de la Piscina, J. Toyir, N. Homs, *Catal. Today* **2015**, *242*, 193–199.
- [121] A. Bansode, A. Urakawa, *J. Catal.* **2014**, *309*, 66–70.
- [122] M. D. Porosoff, B. H. Yan, J. G. G. Chen, *Energy Environ. Sci.* **2016**, *9*, 62–73.
- [123] S. Kattel, W. Yu, X. Yang, B. Yan, Y. Huang, W. Wan, P. Liu, J. G. Chen, *Angew. Chem. Int. Ed.* **2016**, *55*, 7968–7973; *Angew. Chem.* **2016**, *128*, 8100–8105.
- [124] Y. Li, B. Markley, A. R. Mohan, V. Rodriguez-Santiago, D. Thompson, D. V. Niekerk, *Utilization of Carbon Dioxide from Coal-Fired Power Plant for the Production of Value-Added Products, Design Engineering of Energy and Geo-Environmental Systems Course (EGEE 580)*, Internal document for a course, College of Earth and Mineral Science, **2006**, April 27.
- [125] R. Dayton, D. C. Turk, B. Gupta, *Thermochemical Processing of Biomass: Conversion into Fuels, Chemicals and Power* (Ed.: R. C. Brown), Wiley, Chichester, **2011**, pp. 78–123.
- [126] P. Gangadharan, K. C. Kanchi, H. H. Lou, *Chem. Eng. Res. Des.* **2012**, *90*, 1956–1968.
- [127] M. Hartley, I. Tam, *Non-Sequestration Utilization Options for Carbon Dioxide (CO₂)*, **2012**, http://thinking.nexant.com/sites/default/files/report/field_attachment_abstract/201202/0910S10_abs_R1.pdf, accessed 21 September 2016.
- [128] *ACS Symposium Series, Vol. 809: CO₂ Conversion and Utilization* (Eds.: C. Song, A. M. Gaffney, K. Fujimoto), American Chemical Society, Washington, D.C., **2000**.
- [129] O. D. Q. F. Araújo, J. L. De Medeiros, R. M. B. Alves, *CO₂ Utilization: A Process Systems Engineering Vision, CO₂ Sequestration and Valorization*, InTech, Rijeka, Croatia **2014**, pp. 35–88.
- [130] Z. Jiang, X. Liao, Y. Zhao, *Appl. Petrochem. Res.* **2013**, *3*, 91–99.
- [131] L. C. S. Kahle, T. Roussière, L. Maier, K. H. Delgado, G. Wasserschaff, S. A. Schunk, O. Deutschmann, *Ind. Eng. Chem. Res.* **2013**, *52*, 11920–11930.
- [132] P. Kaiser, R. B. Unde, C. Kern, A. Jess, *Chem. Ing. Tech.* **2013**, *85*, 489–499.
- [133] J. R. H. Ross, *Catal. Today* **2005**, *100*, 151–158.
- [134] F. Urlan, I.-C. Marcu, I. Sandulescu, *Catal. Commun.* **2008**, *9*, 2403–2406.
- [135] H. Liu, Z. Zhang, H. Li, Q. Huang, *J. Nat. Gas Chem.* **2011**, *20*, 311–317.
- [136] D. P. Estes, C. Copéret, *Chimia* **2015**, *69*, 321–326.
- [137] Y. Cheng, F. Zhang, Y. Zhang, C. Miao, W. Hua, Y. Yue, Z. Gao, *Chinese J. Catal.* **2015**, *36*, 1242–1248.
- [138] R. Koirala, R. Buechel, F. Krumeich, S. E. Pratsinis, A. Baiker, *ACS Catal.* **2015**, *5*, 690–702.
- [139] K. Müller, A. Baumgärtner, L. Mokrushina, W. Arlt, *Chem. Eng. Technol.* **2014**, *37*, 1261–1264.
- [140] S. Wang, Z. H. Zhu, *Energy Fuels* **2004**, *18*, 1126–1139.
- [141] M. B. Ansari, S.-E. Park, *Energy Environ. Sci.* **2012**, *5*, 9419–9437.
- [142] A. G. N. MacDowell, N. Florin, A. Buchard, J. Hallett, N. S. G. Jackson, C. S. Adjiman, C. K. Williams, P. Fennell, *Energy Environ. Sci.* **2010**, *3*, 1645–1669.
- [143] K. Armstrong, P. Styring, D. Jansen, H. Reith, H. de Coninck, *Carbon Capture and Utilisation in the Green Economy: Using CO₂ to Manufacture Fuel, Chemicals and Materials*, Centre for Low Carbon Futures, **2011**.
- [144] A. T. Bell, T. J. Marks, *Carbon Management: Implications for R & D in the Chemical Sciences and Technology (A Workshop Report to the Chemical Sciences Roundtable)*, National Academies Press **2001**.
- [145] IHS, *After Major Downturn, Global Demand for Polycarbonate Growing Again, Says IHS Chemical Report*, **2012**, <http://news.ihs-markit.com/press-release/commodities-pricing-cost/after-major-downturn-global-demand-polycarbonate-growing-again>, accessed 2 February 2017.
- [146] E. Angunn, A. Nada, B.-C. Gaëlle, *Energy Procedia* **2014**, *63*, 8010–8016.
- [147] B. Metz, O. Davidson, H. De Coninck, M. Loos, L. Meyer, *Special Report on Carbon Dioxide Capture and Storage*, Intergovernmental Panel on Climate Change, Cambridge University Press, Cambridge, **2005**, https://www.ipcc.ch/pdf/special-reports/srccs/srccs_wholereport.pdf.
- [148] A. Sanna, M. Uibu, G. Caramanna, R. Kuusik, M. M. Maroto-Valer, *Chem. Soc. Rev.* **2014**, *43*, 8049–8080.
- [149] S.-Y. Pan, A. Chiang, E.-E. Chang, Y.-P. Lin, H. Kim, P.-C. Chiang, *Aerosol Air Qual. Res.* **2015**, *15*, 1072–1091.
- [150] A. Sanna, M. R. Hall, M. Maroto-Valer, *Energy Environ. Sci.* **2012**, *5*, 7781.
- [151] W. J. J. Huijgen, R. N. J. Comans, *Carbon Dioxide Sequestration by Mineral Carbonation*, **2005**, <https://www.ecn.nl/docs/library/report/2005/c05022.pdf>.
- [152] W. Bao, H. Li, *Greenhouse Gases Sci. Technol.* **2014**, *4*, 785–799.
- [153] J. M. Matter, M. Stute, S. Ó. Snæbjörnsdóttir, E. H. Oelkers, S. R. Gislason, E. S. Aradóttir, B. Sigfusson, I. Gunnarsson, H. Sigurdardóttir, E. Gunnlaugsson, G. Axelsson, H. A. Alfredsson, D. Wolff-Boenisch, K. Mesfin, D. Fernandez de la Reguera Taya, J. Hall, K. Dideriksen, W. S. Broecker, *Science* **2016**, *352*, 1312–1314.
- [154] E. Georgakopoulos, R. M. Santos, Y. W. Chiang, V. Manovic, *Greenhouse Gases: Sci. Technol.* **2016**, *6*, 470–491.
- [155] S. Monkman, Y. Shao, *J. Mater. Civ. Eng.* **2006**, *18*, 768–776.
- [156] K. J. Reddy, S. John, H. Weber, M. D. Argyle, P. Bhattacharyya, D. T. Taylor, M. Christensen, T. Foulke, P. Fahlsing, *Energy Procedia* **2011**, *4*, 1574–1583.
- [157] D. L. Bijl, P. W. Bogaart, T. Kram, B. J. M. de Vries, D. P. van Vuuren, *Environ. Sci. Policy* **2016**, *55*, 75–86.
- [158] J. L. McCutcheon, R. L. McGinnis, M. Elimelech, “The Ammonia–Carbon Dioxide Forward Osmosis Desalination Process” *Water Conditioning Purification* **2006**, http://mccutcheon.lab.uconn.edu/wp-content/uploads/sites/1184/2015/05/McCutcheon_McGinnis_Elmelech_WCP_Oct2006.pdf.
- [159] P. I. Rongved (EnPro AS, Norway), US6180012, **2001**.
- [160] V. C. Williams (Sweet Water Dev. Company, Dallas, TX) US 3155610, **1964**.
- [161] M. D. Max (Marine Desalination Systems Llc., St. Petersburg, FL) US 6475460, **2002**.
- [162] D. F. Spencer, W. J. North, US 5562891A, **1996**.
- [163] M. A. Dawoud, M. M. Al Mulla, *Int. J. Environ. Sustainability* **2012**, *1*, 22–37.
- [164] S. Latteman, *Development of an Environmental Impact Assessment and Decision Support System for Seawater Desalination Plants*, CRC Press, Boca Raton, **2010**.
- [165] A. Dindi, D. V. Quang, M. R. M. Abu-Zahra, *Appl. Energy* **2015**, *154*, 298–308.
- [166] *Novel CO₂ Utilization Concepts: Working Paper*, National Energy Technology Laboratory, Department of Energy, **2013**, http://www.canadiancleanpowercoalition.com/files/9313/9334/8325/CU1_-_2013-12-5_-_150_03_03_-_Final_Report_-_Working_Paper.pdf.
- [167] M. G. Buonomenna, G. Golemme, *Advanced Materials for Membrane Preparation*, Bentham, Potomac, MD, **2012**.
- [168] H. Chen, H. Zhang, Y. Yan, *Ind. Eng. Chem. Res.* **2013**, *52*, 12819–12826.
- [169] A. M. Avila, Z. Yu, S. Fazli, J. A. Sawada, S. M. Kuznicki, *Microporous Mesoporous Mater.* **2014**, *190*, 301–308.
- [170] J. R. Hufton, S. Mayorga, S. Sircar, *AIChE J.* **1999**, *45*, 248–256.
- [171] B. T. Carvill, J. R. Hufton, M. Anand, S. Sircar, *AIChE J.* **1996**, *42*, 2765–2772.

- [172] H. M. Jang, K. B. Lee, H. S. Caram, S. Sircar, *Chem. Eng. Sci.* **2012**, *73*, 431–438.
- [173] E. R. Van Selow, P. D. Cobden, P. A. Verbraeken, J. R. Hufton, R. W. Van Den Brink, *Ind. Eng. Chem. Res.* **2009**, *48*, 4184–4193.
- [174] R. W. Stevens, A. Shamsi, S. Carpenter, R. Siriwardane, *Fuel* **2010**, *89*, 1280–1286.
- [175] M. S. Duyar, R. J. Farrauto, M. J. Castaldi, T. M. Yegulalp, *Ind. Eng. Chem. Res.* **2014**, *53*, 1064–1072.
- [176] P. Gruene, A. G. Belova, T. M. Yegulalp, R. J. Farrauto, M. J. Castaldi, *Ind. Eng. Chem. Res.* **2011**, *50*, 4042–4049.
- [177] C. Song, W. Pan, *Catal. Today* **2004**, *98*, 463–484.
- [178] M. Minutillo, A. Perna, *Int. J. Hydrogen Energy* **2009**, *34*, 4014–4020.
- [179] M. S. Duyar, M. A. Arellano-Treviño, R. J. Farrauto, *Appl. Catal. B* **2015**, *168*, 370–376.
- [180] M. S. Duyar, S. X. Wang, M. A. Arellano-Treviño, R. J. Farrauto, *J. CO₂ Util.* **2016**, *15*, 65–71.
- [181] Q. Zheng, R. Farrauto, A. C. Nguyen, *Ind. Eng. Chem. Res.* **2016**, *55*, 6768–6776.
- [182] S. I. Im, K. B. Lee, *Ind. Eng. Chem. Res.* **2016**, *55*, 9244–9255.
- [183] D. B. Lao, B. R. Galan, J. C. Linehan, D. J. Heldebrant, *Green Chem.* **2016**, *18*, 4871–4874.

Manuscript received: December 2, 2016

Revised manuscript received: January 19, 2017

Accepted manuscript online: January 23, 2017

Version of record online: March 21, 2017