

# Eindrapportage

## TEHE-119045 - Vamine



**Versie:** 1.0

**Status:** Definitief

**Datum:** 25-5-2023

**Opgesteld door:** CCS Energie-advies B.V.  
Ir. Jordie Eskes  
Prof. Dr. Ir. D.W.F. Brillman

**Projectleider:** CCS Energie-advies B.V.  
Ir. Jordie Eskes

# Colofon

Bibliotheekgegevens rapport:

## **Eindrapportage TEHE-119045 - Vamine**

Deventer, CCS Energie-advies B.V., 2023

Verspreiding van CCS Energie-advies B.V. publicaties geschiedt door:

CCS Energie-advies B.V.

7411 CC Deventer

Tel: 0570 - 667000

Fax: 0570 - 667001

E-mail: [info@ccsenergieadvies.nl](mailto:info@ccsenergieadvies.nl)

Website: <https://www.ccsenergieadvies.nl/>

Meer informatie over dit rapport is te verkrijgen bij

René Cornelissen

[Cornelissen@ccsenergieadvies.nl](mailto:Cornelissen@ccsenergieadvies.nl)

CCS B.V. Energie-advies

# Inhoudsopgave

<b>1. SAMENVATTING</b>	<b>4</b>
<b>2. INLEIDING</b>	<b>1</b>
2.1 VAN BIOGAS NAAR GROENGAS	1
2.2 VAN VLOEIBAAR NAAR VAST	4
2.3 BESCHRIJVING VAN DE TESTLOCATIE	6
2.4 PROJECTLEDEN	6
2.5 ONDERZOEKSVRAGEN	7
<b>3. MATERIALEN, METHODE EN THEORIE</b>	<b>8</b>
3.1 ALGEMENE BESCHRIJVING VAN HET PROCES EN THEORIE	8
3.1 GEDETAILLEERDE BESCHRIJVING VAN DE TESTOPSTELLING EN BIJBEHORENDE INSTRUMENTATIE	20
3.2 BESCHRIJVING VAN TESTRONDES	24
<b>4. RESULTATEN EN INTERPRETATIE</b>	<b>27</b>
4.1 ALGEMENE OBSERVATIES EN INTERPRETATIES	27
4.2 OPTIMALISATIE VAN PROCESPARAMETERS	30
4.3 EFFECTIVITEIT VAN INDIVIDUELE PARAMETERS OP HET RENDEMENT	36
4.3 LIMITATIES VAN DE PROEFOPSTELLING	38
4.4 PROCESTECHNISCHE EN FINANCIËLE OVERWEGINGEN	41
4.5 ALTERNATIEVE TOEPASSINGEN VAN VASTE SORBENTS	42
<b>5. VAMINE 2.0</b>	<b>44</b>
<b>6. CONCLUSIE EN AANBEVELINGEN</b>	<b>47</b>
<b>VERWIJZINGEN</b>	<b>48</b>
<b>BIJLAGE I: P&amp;ID VAN DE TESTINSTALLATIE</b>	<b>I</b>
<b>BIJLAGE II: P&amp;ID VAN CONCEPT B</b>	<b>II</b>

# Samenvatting

De productie van groengas op boerderijschaal kan een belangrijke bijdrage leveren aan de duurzame energiedoelen van de Nederlandse overheid, maar worstelt momenteel nog met hoge investeringen en operationele kosten. De stand van de techniek (membraaninstallaties, vloeibare amine wassers) maakt groengasproductie op boerderijschaal enkel rendabel voor zeer grote veehouderijen met bijvoorbeeld 600 koeien of meer, welke slechts een klein segment van de markt zijn. Ontwikkelingen die de productie van groengas goedkoper maken (door de investering lager te maken of de operationele kosten terug te dringen) zijn hierom zeer wenselijk.

Een consortium van verschillende bedrijven en kennisinstellingen heeft een concept ontwikkeld om op kleine schaal groengas te produceren met een vast sorbent (kort: vamine). Dit styreen divinyln copolymeer met aminomethyleen ankergruppen in de vorm van een vrije base is in staat om effectief CO<sub>2</sub> af te vangen uit biogas, maar brengt nieuwe proces-technologische uitdagingen met zich mee. In dit rapport wordt ten eerste het conceptuele ontwerp van dit systeem toegelicht op basis van modelleringen en kleinschalige laboratoriumproeven. Op basis van deze modelleringen is een grotere pilotinstallatie ontwikkeld en geplaatst bij proefboerderij De Marke waar het concept getest is met werkelijk biogas en geoptimaliseerd. Tijdens de ontwikkeling van het concept zijn verschillende optimalisaties uitgewerkt om de thermische limitaties van het systeem beter beheersbaar te maken.

Uit de praktijkproeven bij De Marke blijkt dat het systeem in staat is om een cyclische capaciteit van bijna 400 mmol/kg sorbent te behalen bij optimale omstandigheden, wat lager is dan de origineel verwachte theoretische prestaties maar nog steeds voldoende is om een werkbaar concept te maken. Het systeem kon goed afgestemd worden op de specifieke gasstroom, en praktijkkennis is opgedaan over de effectiviteit van verschillende procesparameters op het rendement van de installatie.

De praktijkproeven brengen ook enkele limitaties van het systeem naar voren welke aangepast moeten worden voor een eventuele productie-installatie. De huidige implementatie van het systeem leidt tot aanzienlijk grotere hoeveelheden gemengd biogas en lucht dan theoretisch verwacht werd, mogelijk door onverwachte turbulentie in de bovenruimte van de reactoren. Deze gemengde gasstroom dient teruggeleid te worden naar een vergister, wat bij een productielocatie van het huidige concept tot een té grote dosis zuurstof voor de vergister zal leiden, met uiteindelijk als gevolg dat de vergister zal falen. Het rapport beschrijft een aantal opties waarmee deze limitatie verholpen kan worden, zoals het verhogen van de cyclische capaciteit door een derde vat toe te voegen of een nageschakeld vacuümsysteem te gebruiken om de vaten van lucht te ontdoen alvorens er biogas door stroomt. Hierbij kan er voor gekozen worden om eerst de goedkopere aanpassingen uit te voeren, en hierbij de zuurstofdoorslag te meten. Indien blijkt dat hierna nog steeds te veel gasmenging plaatsvindt kan gekozen worden om ook het vacuümsysteem in te bouwen in de pilot locatie. Naast het beoogde gebruik van het concept voor biogasreiniging wordt ook kort een toepassing beschreven voor vaste amine als Carbon Capture And Reuse (CCR).

Het concept van vaste amine is veelbelovend, maar kan in de huidige iteratie nog niet toegepast worden in een commerciële context voor groengasproductie. Doorontwikkeling van het concept met de voorgestelde aanpassingen is hierom wenselijk.

# 1. Inleiding

In dit hoofdstuk wordt de context van het project toegelicht en wordt het doel van dit onderzoek beschreven.

## 1.1 Van biogas naar groengas

De milieuschade door het gebruik van fossiele brandstoffen is inmiddels algemeen bekend, en de vraag naar duurzame alternatieven is in de laatste jaren steeds groter geworden. Hoewel de focus doorgaans op electrificatie ligt zijn er ook industriën die afhankelijk blijven van brandstoffen voor hun chemische samenstelling of verbrandingskarakteristieken, welke moeilijk over kunnen stappen op elektriciteit. De recente oorlog in Oekraïne onderstreept tevens het belang om als land zelf in staat te zijn om voldoende energie te produceren op een duurzame manier.

Tegelijkertijd speelt er in Nederland al jaren een intens debat over de toekomst van de intensieve veehouderij, en het probleem van het mestoverschot. Veel familiebedrijven hebben een onzekere toekomst, en zoeken naar nieuwe verdienmodellen. Aan de andere kant van het probleem zijn grootschalige mestverwerkers ook onzeker van hun toekomst, waardoor investeren in lange termijnsplannen voor grootschalige mestvergisting- en verwerking lastig wordt.

CCS Energieadvies heeft een andere visie op de wereld van mestvergisting. In plaats van mestoverschotten te verzamelen en op één centrale locatie te vergisten focust CCS zich op het bouwen van kleinschalige monomestvergisters bij veehouderijen. Hierbij wordt uit een bestaande meststroom duurzame energie opgewekt, wordt de methaanuitstoot van de meststroom significant teruggedrongen, en wordt tevens een extra verdienmodel gegenereerd voor de veehouder. Het concept van kleinschalige mono-mestvergisting klinkt als een win-win situatie voor de boer en de samenleving, maar komt helaas ook met moeilijkheden. De voornaamste vraag is wat er gedaan moet worden met het biogas wat de vergister produceert.

### Biogas: wat is het en wat kan je er mee?

Biogas is het gas wat in een vergister geproduceerd wordt. Hoewel het volledig duurzaam is zijn er belangrijke verschillen tussen biogas en bijvoorbeeld aardgas waar rekening mee gehouden moet worden. Zonder verwerking bevat biogas een lager methaangehalte (en dus een lagere calorische waarde) dan aardgas, bevat het hoge concentraties van het giftige en corrosieve waterstofsulfide, en is het zeer vochtig. Een kort overzicht van de belangrijkste verschillen tussen aardgas en biogas is in Tabel 1 weergegeven.

Tabel 1: Vergelijking van de gemiddelde samenstelling van ongezuiverd biogas en aardgas (gronings gas)

	Aardgas	Biogas
<b>CH<sub>4</sub> gehalte</b>	81%	55%
Overige koolwaterstoffen	3,5%	0%
<b>N<sub>2</sub> gehalte</b>	14,35%	2%
O <sub>2</sub> gehalte	0,01%	<0,5%
<b>CO<sub>2</sub> gehalte</b>	0,89%	42,5%
H <sub>2</sub> S gehalte	0 PPM	2000 PPM
<b>Vochtigheid</b>	Laag	Hoog

Om biogas beter bruikbaar te maken wordt het H<sub>2</sub>S verwijderd (vaak door middel van een actief kool filter), maar ook dan zal een gemiddelde CV ketel het gas niet kunnen gebruiken door het lage methaangehalte. Om biogas te kunnen verbranden zijn speciale ketels of WKKs

(Warmte Kracht Koppeling) nodig. Deze worden ook vaak gebruikt bij veehouderijen met hun eigen vergister, maar brengen een limitatie met zich mee. Wanneer het gas op locatie met een speciale ketel of WKK verbrand wordt is het voor een financieel rendabele installatie belangrijk dat de energie ook lokaal gebruikt kan worden. Veel verdienmodellen van kleinschalige vergisters in het verleden zijn vastgelopen op de afzet van de elektriciteit en warmte die uit de WKK komt.

Een alternatief is om het gas op te waarderen tot dezelfde kwaliteit als aardgas, en het vervolgens af te zetten op het gasnetwerk. Deze optie brengt een aanzienlijk grotere afzetmarkt met zich mee en maakt gebruik van de infrastructuur die in Nederland op hoog niveau is. Wanneer biogas wordt opgewaardeerd tot aardgaskwaliteit wordt deze aangeduid met de term "Groengas".

Het produceren van groengas is dus een betere optie voor het afzet van de geproduceerde energie, maar gaat uiteraard niet vanzelf. Naast het verwijderen van  $H_2S$  is het nu ook noodzakelijk om de calorische waarde van het gas te verhogen (door het methaangehalte te doen toenemen), het gas te drogen en er voor te zorgen dat het voldoet aan strenge kwaliteitseisen om in te mogen worden gevoed in het bestaande gasnetwerk. De normen voor het invoeden van groengas staan beschreven in de Regeling Gaskwaliteit, maar worden voor het overzicht later in dit rapport ook specifiek toegelicht.

Één van de meest gebruikte technieken voor het produceren van groengas is door de  $CO_2$  te verwijderen middels membranen. Deze wordt gekenmerkt door de relatief hoge elektrische energievraag. Membraaninstallaties werken door gas op hoge druk door een membraan te forceren, waarbij de moleculen op basis van hun grootte gescheiden worden. De noodzaak om op hoge druk te opereren vereist een (ATEX) compressor, welke veel energie verbruikt. Wanneer besloten wordt om gas in te voeden op een hoge druk netwerk is een dergelijke compressor per definitie al nodig, dus in deze situatie brengt het gebruik van een membraan installatie geen extra kostenpost met zich mee, maar veel kleinschalige mestvergisters zouden hun gas ook op het lage druknet kunnen invoeden. Om op het lage druknet in te voeden is een compressor niet nodig. Het produceren van groengas op lage druk kan ook met een ander type installatie; een aminewasser.

CCS Energieadvies heeft samen met Greenmac (nu Bright Biomethane) een installatie ontwikkeld om door middel van een vloeibare aminewasser groengas te produceren. Deze installatie (genaamd "Bio-UP") is in staat om consistent  $40 \text{ nm}^3/\text{h}$  groengas te produceren wat voldoet aan de kwaliteitseisen voor het invoeden van groengas. In deze installatie wordt allereerst het gas bemonsterd en door een actief kool filter geleid om de  $H_2S$  af te vangen. Hierna gaat het gas door een waskolom waarin een wasvloeistof de  $CO_2$  afvangt vanuit het gas. Het resultaat hiervan is een stroom van bijna pure methaan. Dit gas wordt vervolgens gedroogd, op de juiste calorische waarde gebracht door  $CO_2$  (biogas) of inert stikstof ( $N_2$ ) bij te mengen, krijgt een geurstof toegevoegd, en wordt nogmaals bemeten om de kwaliteit te garanderen. Wanneer de kwaliteit van het gas voldoende is, wordt deze ingevoerd in het gasnetwerk.

CCS Energieadvies heeft ten tijde van schrijven een drietal van deze installaties in werking, en heeft plannen om er in 2023 nog twee te realiseren.

## De prijs van groengas

Het maken van groengas produceert een beter afzetbaar product dan puur biogas, maar gebeurt uiteraard niet vanzelf. De Bio-UP bevat veel dure apparatuur waardoor een opwaardeerinstallatie ongeveer €500.000,00 aan investering vereist. Naast deze investering brengt de installatie ook operationele kosten met zich mee, zoals onderhoud en elektriciteitsverbruik. Een significant nadeel van de vloeibare aminetechniek ten opzichte van membraantechnieken is de noodzaak om de wasvloeistof thermisch te regenereren. De afgevangen CO<sub>2</sub> wordt verwijderd door de wasvloeistof te verwarmen, wat momenteel gebeurt door een deel van het geproduceerde biogas te verbranden. Hierdoor wordt ongeveer 15% van het geproduceerde biogas verbruikt en kan hier geen groengas van gemaakt worden. De afweging tussen een membraaninstallatie en een aminewasser ligt dus voornamelijk in een hogere elektriciteitsvraag, of een hogere warmtevraag. Een hoge warmtevraag kan bij een vergister vervuld worden door meer gas te produceren en deze zelf te verbranden, al brengt dit uiteraard ook kosten met zich mee. Door de hoge investering en significante operationele kosten is groengasproductie nu enkel financieel haalbaar voor grote veehouderijen (vanaf bijvoorbeeld 600 koeien) of door met meerdere kleine vergisters één opwaardeerinstallatie te voeden. Het aantal veehouderijen in Nederland wat binnen deze grootte valt is vrij gering, waardoor de adoptie van dergelijke groengasinstallaties nog achter blijft.



## 2. Van vloeibaar naar vast

De hoge operationele kosten van de installatie zijn grotendeels te wijten aan de hoge energievraag van het regeneratieproces. Vanuit een chemisch perspectief is veel van de warmte die toegevoegd wordt, niet direct nodig voor het uitdampen van de CO<sub>2</sub>. De wasvloeistof bestaat voor het grootste deel uit water, een stof met een relatief hoge warmtecapaciteit. Om de wasvloeistof op te warmen naar de gewenste procestemperatuur van >100°C is veel warmte nodig, terwijl in principe enkel de aminegroepen in de oplossing deze warmte nodig hebben. De toegevoegde warmte wordt achteraf voor een groot deel teruggewonnen middels een warmtewisselaar, maar toch blijft de grote warmtecapaciteit van water een probleem voor de operationele kosten.

Om deze kosten te verlagen wordt binnen dit project gekeken naar de mogelijkheid om een andere vorm van amine te gebruiken voor de adsorptie en desorptie van CO<sub>2</sub>. Een korrelvormig product met actieve aminegroepen onder de merknaam Lanxess Lewatit VP OC 1065 is van origine ontwikkeld als macroporeuze korrel welke gebruikt kan worden als sorbent voor bijvoorbeeld het afvangen van atmosferische CO<sub>2</sub> (Carbon capture) of zuren van processtromen.



Figuur 1: Verschillende vormen van VP OC 1065 (bron: lanxess.com)

### 2.1 Eigenschappen van VP OC 1065

VP OC 1065 is een styreen divinylbenzeen polymeer met actieve aminegroepen in de vorm van een vrije base. De korrels hebben een groot specifiek oppervlakte met actieve groepen waar CO<sub>2</sub> zich aan kan binden. De actieve groepen waaraan CO<sub>2</sub> zich kan binden kunnen ook weer CO<sub>2</sub> vrijmaken door thermisch geregenereerd te worden, net zoals de vloeibare variant. In tegenstelling tot de vloeibare variant hebben deze korrels echter een relatief lage thermische capaciteit, waardoor de juiste procestemperatuur bereikt kan worden met aanzienlijk lagere warmtevraag. Hierdoor wordt VP OC 1065 gezien als een geschikte kandidaat voor de vervanging van de vloeibare amine welke momenteel gebruikt wordt in de Bio-UP.



Bij batch-proeven in een laboratoriumomgeving is reeds aangetoond dat de stof in staat is om ook hoge concentraties CO<sub>2</sub> effectief uit een gasstroom te verwijderen, en dat deze effectief geregenereerd kunnen worden door de korrels te spoelen met een inert gas bij verhoogde temperaturen. Vanuit de ervaring van deze batch proeven is een ontwerp voorgesteld voor een pilot installatie om het concept te testen op biogas, welke in sectie 3 van dit rapport in detail wordt beschreven. Een kernpunt van dit systeem is dat gasopwerking met een immobiel vast sorbent uitgevoerd kan worden, wat lagere operationele kosten met zich mee dient te brengen ten opzichte van het gebruik van een vloeibare amine. Voor een dergelijk systeem wordt het proces echter significant anders dan bij een vloeibaar sorbent, wat uitdagingen met zich mee brengt. Een belangrijke procestechnische uitdaging betreft het wisselen tussen gasstromen in het sorbentbed tussen een adsorptiegas (biogas) en een regeneratiegas. Bij deze wisseling kan ongewenste menging van gassen plaatsvinden, wat reststromen produceert die apart verwerkt moeten worden (zoals groengas met een te hoog zuurstofgehalte om in te voeden). Het hoofdzakelijke doel van dit onderzoek is dan ook om een dergelijk systeem in een praktijkomgeving te toetsen.

## 2.2 Beschrijving van de testlocatie

De proeflocatie waarbij dit onderzoek uitgevoerd is betreft proefboerderij De Marke in Hengelo (gld). Op deze locatie staat de eerste Bio-UP van CCS Energieadvies, welke een kleinere maximale capaciteit heeft dan de huidige productiemodellen. Het gebruik van deze bestaande installatie maakte het mogelijk om dit concept relatief goedkoop te testen, aangezien veel van de nodige randapparatuur (analyzers, blowers, regelsystemen) al geïnstalleerd is. Hiernaast biedt deze locatie een vergister voor de productie van biogas in kleine hoeveelheden.

Het gebruik van een dergelijke bestaande locatie biedt echter ook zijn nadelen. Door deze locatie te gebruiken zijn alle limitaties van de originele installatie en vergister ook van toepassing bij deze proeven. Een aantal van deze limitaties worden later in dit rapport in detail toegelicht.

## 2.3 Projectleden

Het project is uitgevoerd door een consortium van verschillende belanghebbenden die ieder een eigen inbreng hebben in het project. De verschillende projectleden en hun rol binnen het project zijn weergegeven in Tabel 2.

Tabel 2: Projectleden, hun rol en contactgegevens

Projectlid	Contactpersoon	Rol
CCS Energieadvies	Jordie Eskes +31 6 31155062	Penvoerder, ontwerp-specificaties, uitvoeren van praktijkproeven, patentaanvaag en rapportage
Greenmac	Geurt Aalderink Geurtaalderink@GASS-Solutions.nl	Engineering en bouw testinstallatie
Universiteit Twente (UT)	Wim Brillman Wim.brillman@utwente.nl	Modellering, engineering, laboratoriumvalidatie
GASS-Solutions	Geurt Aalderink Geurtaalderink@GASS-Solutions.nl	Engineering, bouw testinstallatie en uitvoeren van praktijkproeven

Tijdens uitvoering van dit project is de arbeidssituatie van projectlid Geurt Aalderink gewijzigd, waardoor een deel van de activiteiten van Greenmac zijn overgenomen.

## 2.4 Onderzoeksvragen

Om het potentieel van een vaste-amine installatie in kaart te brengen moeten een aantal vragen beantwoord worden. Allereerst is het van belang dat het basisprincipe aangetoond kan worden op een grotere schaal dan een laboratorium. Het consistent produceren van gas op invoedkwaliteit is hierbij het uiteindelijke doel. Dit doel is echter niet eenvoudig te definiëren. Het behalen van dit doel hangt af van factoren zoals de maximale doorslag van zuurstof tijdens schakelmomenten, de frequentie waarmee gewisseld moet worden tussen de verschillende vaten, de mate waarin de installatie in staat is om warmte vast te houden etc. Om te bepalen of dit doel behaald is worden een aantal onderzoeksvragen opgesteld.

1. Wat is de minimale O<sub>2</sub> doorslag van het productgas bij optimale operationele omstandigheden?
2. Bij welke operationele parameters wordt de hoogste cyclische capaciteit behaald waarbij nog steeds voldaan wordt aan de randvoorwaarden voor groengas invoeding?
3. Wat is de maximale cyclische capaciteit van het systeem bij optimale operatie?
4. Wat is de maximale acceptabele regeneratietemperatuur in het sorbentbed na toevoeging van een inerte thermische buffer?
5. In hoeverre is er sprake van degradatie van het sorbentbed bij lange termijnsoperatie van het systeem?
6. Wat is de totale energievraag per m<sup>3</sup> groengas bij de testopstelling?

De bovenstaande onderzoeksvragen introduceren een aantal technische parameters welke zonder toelichting wellicht niet duidelijk zijn. In het volgende hoofdstuk wordt allereerst een theoretische achtergrond geschetst voor het proces en de verschillende proeven, waarbij deze termen ook worden toegelicht.

## 3. Materialen, methode en theorie

Dit hoofdstuk beschrijft in detail de theoretische achtergrond van de vaste amine installatie. Na de theoretische achtergrond wordt de testopstelling nog verder toegelicht, en wordt besproken hoe de verschillende proeven zijn uitgevoerd.

### 3.1 Algemene beschrijving van het proces en theorie

Een vloeibaar sorbent heeft twee principiële voordelen ten opzichte van een vast sorbent:

- Het is eenvoudig te transporteren (bijvoorbeeld van een adsorptiekolom naar een regeneratiekolom). Hiermee is een continue werkend proces te creëren.
- Het is beter bestand tegen de temperatuurschommelingen die de reactiewarmte veroorzaakt door de hoge warmtecapaciteit van het water

Een vloeibaar amine systeem werkt dan ook door het verzadigde sorbent naar een regeneratiekolom te verpompen. Bij het gebruik van een vaste amine is dit niet mogelijk (met uitzondering van een fluidized bed systeem, welke later besproken zal worden). Het gevolg is een cyclisch proces. Hierom dient het systeem ontworpen te worden met minimaal twee kolommen, welke zowel voor adsorptie als regeneratie gebruikt kunnen worden.

Een kolom voor een dergelijk systeem is in principe niet meer dan een filter wat gevuld is met het sorbentmateriaal. Door dit filter wordt van bovenaf biogas geblazen tijdens de adsorptiefase. In deze fase reageren de aminegroepen van het sorbent met  $\text{CO}_2$  uit het biogas en wordt deze vastgelegd. Het resterende gas bevat nauwelijks tot geen  $\text{CO}_2$  meer en kan verder verwerkt worden tot aardgaskwaliteit. Het adsorberen van  $\text{CO}_2$  is een exotherm proces waarbij een significante hoeveelheid warmte geproduceerd wordt, waardoor het sorbent bed opwarmt, wat te meten valt als een temperatuurstijging in het sorbentbed. Na verloop van tijd zal het sorbent verzadigd raken en is het nodig deze te regenereren. Om een continu proces te behouden wordt de biogasstroom herleid naar een ander filterbed, welke nu de adsorptiefase begint. Het originele vat begint nu de regeneratiefase, waarbij een spoelgas gebruikt wordt om de  $\text{CO}_2$  weer uit het sorbent te halen. Hiervoor wordt buitenlucht gebruikt, een gas waarin een relatief lage concentratie  $\text{CO}_2$  te vinden is (ongeveer 400ppm, ofwel 0,04%). Het desorberen van  $\text{CO}_2$  uit het sorbent gebeurt in principe spontaan door de concentratiegradiënt tussen het verzadigde sorbent en het spoelgas. Doordat er in het spoelgas weinig  $\text{CO}_2$  aanwezig is vormt dit een drijvende kracht (verschil in partieel druk) voor de desorptie, wat er voor zorgt dat het  $\text{CO}_2$  zich verplaatst naar de gasfase. Nadat het filter voor een groot deel ontdaan is van  $\text{CO}_2$  door het spoelgas kan deze opnieuw gebruikt worden om biogas te behandelen.

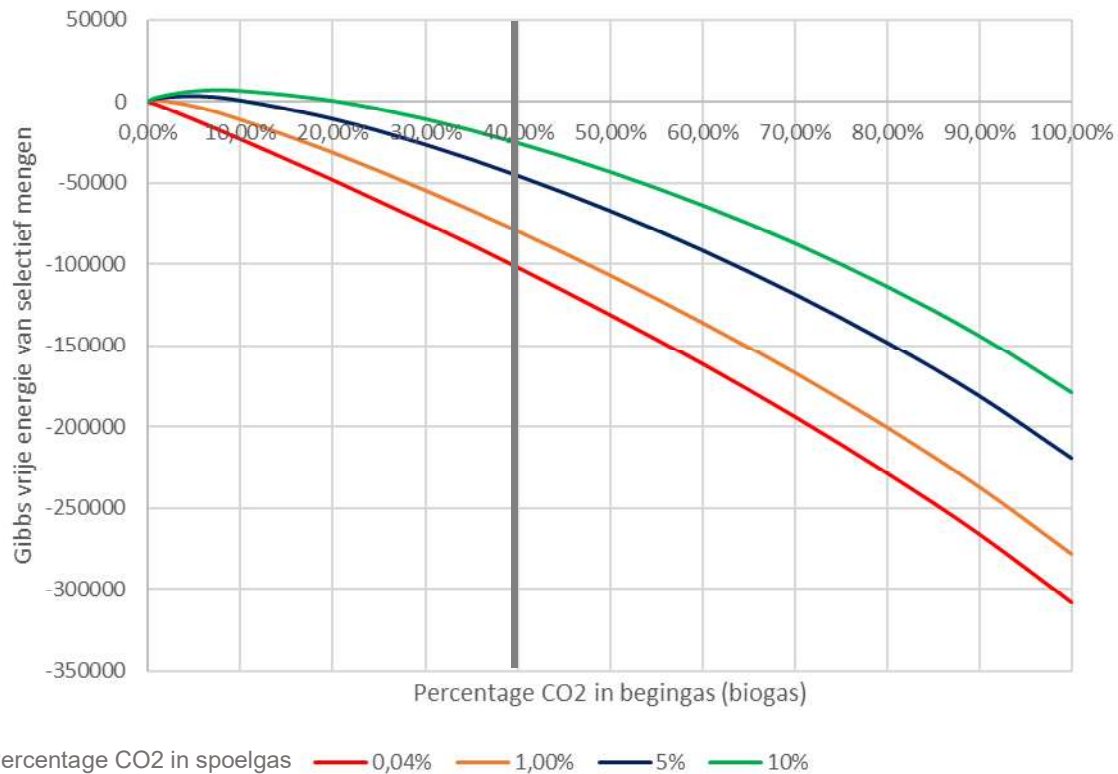
## Thermodynamische achtergrond

De volledige reactie van een cyclus bestaat in principe uit twee stappen; de exotherme adsorptiestap en de endotherme desorptiestap. Bij de adsorptiestap wordt een binding gevormd tussen de aminegroepen van het sorbent en de CO<sub>2</sub> in de gasfase. De actieve amine groepen van een (nog niet beladen) sorbent zijn per definitie instabiel en 'willen' naar een lagere energetische status gaan. Wanneer er deeltjes binden aan de actieve groepen komt er energie vrij door de attractie van de beide deeltjes, waarna de groep stabiel wordt. Bij de desorptie dient er juist energie toegevoegd te worden aan het systeem om deze stabiele verbinding weer op te breken, wat dus een endotherme reactie betreft.

De reactie enthalpie voor de endotherme desorptie wordt in deze situatie grotendeels geleverd door de Gibbs vrije energie van het mengproces. In principe wordt er gebruik gemaakt van de concentratiegradiënten waardoor er niet direct energie toegevoegd hoeft te worden (of in ieder geval minder energie) om de verbindingen bij desorptie weer te verbreken. De bepaling van de totale Gibbs vrije energie is gegeven in de volgende vergelijking.

$$\begin{aligned} \Delta G_{\text{mix,sel}} = nRT & \left( \left( \frac{n_{\text{CH}_4}}{n} \right) \ln \left( \frac{n_{\text{CH}_4} + n_{\text{CO}_2}^{\text{biogas}}}{n_{\text{CH}_4} + n_{\text{CO}_2}^{\text{biogas}} - x} \right) \right. \\ & + \left( \frac{n_{\text{CO}_2}^{\text{biogas}}}{n} \right) \ln \left( \frac{n_{\text{CO}_2}^{\text{biogas}} - x}{n_{\text{CH}_4} + n_{\text{CO}_2}^{\text{biogas}} - x} \cdot \frac{n_{\text{CH}_4} + n_{\text{CO}_2}^{\text{biogas}}}{n_{\text{CO}_2}^{\text{biogas}}} \right) \\ & + \left( \frac{x}{n} \right) \ln \left( \frac{n_{\text{CO}_2}^{\text{buitenlucht}} + x}{n_{\text{purge} \neq \text{CO}_2} + n_{\text{CO}_2}^{\text{purge gas}} + x} \cdot \frac{n_{\text{CH}_4} + n_{\text{CO}_2}^{\text{biogas}} - x}{n_{\text{CO}_2}^{\text{biogas}} - x} \right) \\ & + \left( \frac{n_{\text{CO}_2}^{\text{purge gas}}}{n} \right) \ln \left( \frac{n_{\text{CO}_2}^{\text{purge gas}} + x}{n_{\text{air}} + n_{\text{CO}_2}^{\text{purge gas}} + x} \cdot \frac{n_{\text{purge} \neq \text{CO}_2} + n_{\text{CO}_2}^{\text{purge gas}}}{n_{\text{CO}_2}^{\text{purge gas}}} \right) \\ & \left. + \left( \frac{n_{\text{purge} \neq \text{CO}_2}}{n} \right) \ln \left( \frac{n_{\text{purge} \neq \text{CO}_2} + n_{\text{CO}_2}^{\text{purge gas}}}{n_{\text{purge} \neq \text{CO}_2} + n_{\text{CO}_2}^{\text{purge gas}} + x} \right) \right) \end{aligned}$$

Waar  $x$  gelijk is aan het totale aantal mol CO<sub>2</sub> wat vanuit het biogas getransporteerd wordt naar het purge gas,  $T$  de temperatuur van het systeem in K,  $n$  het totaal aantal mol aanwezig in de beide gassen en  $R$  de gasconstante is in J/mol.K. Een plot van deze formule met verschillende concentraties CO<sub>2</sub> is gegeven in Figuur 2.

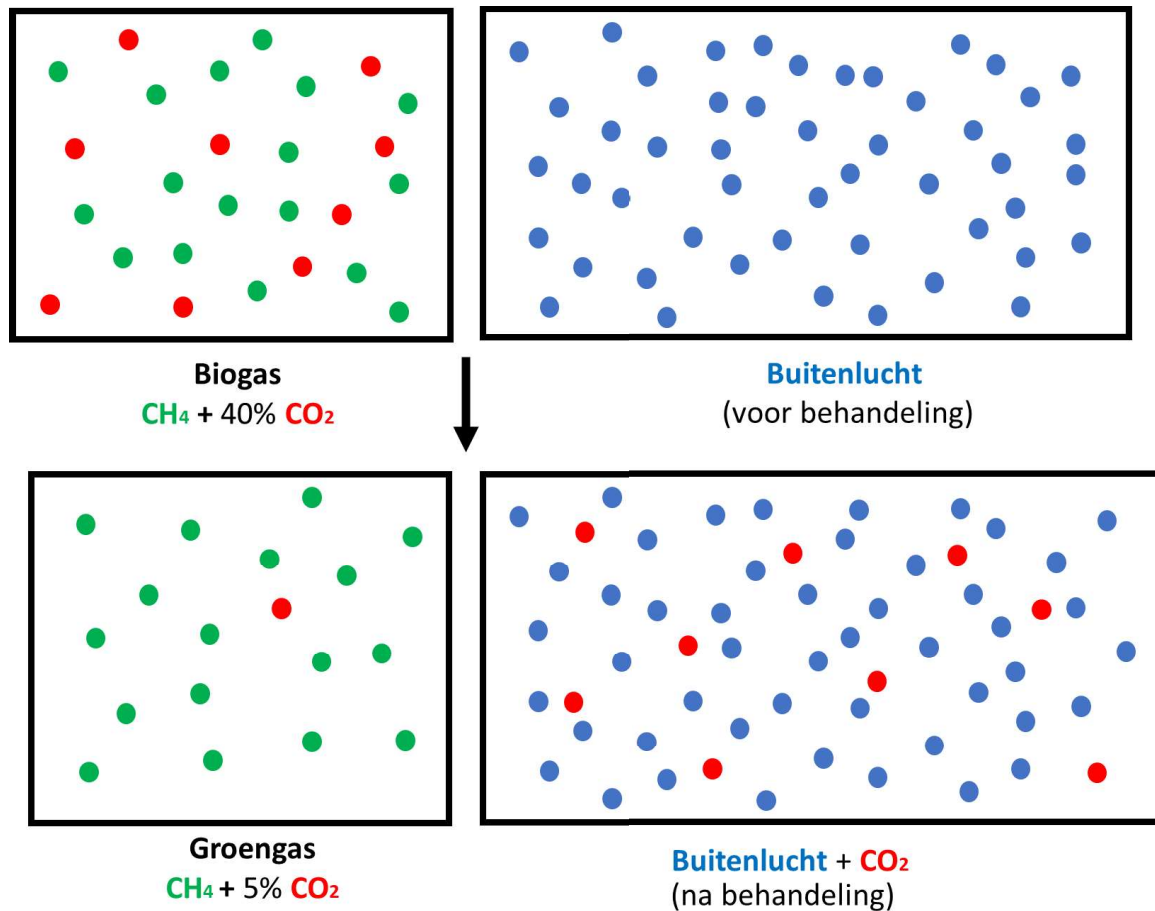


*Figuur 2: Een plot van de totale Gibbs vrije energie van het systeem in kJ mol<sup>-1</sup> bij verschillende concentraties CO<sub>2</sub> in het spoelgas (buitenlucht) en begingas (biogas). De plot toont aan dat in de meeste gevallen een negatieve Gibbs vrije energie bestaat, wat betekent dat de totale adsorptie/desorptie reactie in principe spontaan plaats vindt.*

De verticale grijze lijn in de figuur toont de situatie bij gemiddeld biogas met 40% CO<sub>2</sub>. Wanneer een spoelgas met een lage concentratie CO<sub>2</sub> wordt gebruikt zoals buitenlucht met 0,04% CO<sub>2</sub> (weergegeven met de rode lijn) is er een negatieve Gibbs vrije energie, wat betekent dat de totale reactie (adsorptie+desorptie) theoretisch gezien spontaan plaats vindt.

In werkelijkheid zijn zowel het purge gas en het biogas geen ideale gassen, en is er in het systeem sprake van warmteverliezen welke niet weergegeven zijn in dit systeem. Hierom is in de praktijk verwarming van het regeneratiegas nodig, omdat de warmte van de adsorptiereactie niet voldoende zal zijn om de benodigde energie te leveren voor de desorptie. De toegevoegde warmte, samen met de hierboven beschreven Gibbs vrije energie van selectief mengen, zorgt voor een situatie waarin de totale Gibbs vrije energie van de adsorptie/desorptie cyclus negatief is.

Om het uiteindelijke effect van deze reactie weer te geven is ook een schematische weergave van de situatie voor en na een enkele cyclus weergegeven in Figuur 3.



*Figuur 3: Schematische weergave van de situatie voor en na een volledig doorlopen cyclus. Door de twee stappen in de reactor (adsorptie van CO<sub>2</sub> uit biogas en desorptie van CO<sub>2</sub> naar lucht) wordt selectief de CO<sub>2</sub> verwijderd en komt deze uiteindelijk in de buitenlucht terecht.*

Vergeleken met een vloeibaar amine systeem is aanzienlijk minder energie nodig voor deze selectieve verwijdering, omdat er gebruik gemaakt wordt van de natuurlijke samenstelling van atmosferische buitenlucht om een drijvende kracht voor de desorptie te creëren. Hierdoor hoeft niet actief CO<sub>2</sub> uit het sorbent te worden gedreven zoals het geval is bij een vloeibare amine wasser, waarbij het desorberen van CO<sub>2</sub> min of meer plaats vindt door de CO<sub>2</sub> uit de oplossing te koken. De toevoeging van warmte is hier nodig om de reactie enthalpie te overkomen voor de desorptiereactie, wat pas bij hoge temperaturen (100°C) plaatsvindt. Bij deze temperaturen wordt ook een deel van het medium (veelal water) verdampt en verloren, wat veel energie kost die in principe niet nuttig gebruikt wordt. In een vast amine systeem wordt wel energie gebruikt voor de luchtblower welke het spoelgas aanlevert, en voor de verwarming van de lucht welke nodig is om de eerder beschreven warmteverliezen te compenseren, maar dit zal naar verwachting aanzienlijk lager liggen dan de energievraag bij een vloeibaar systeem.



## Conceptueel ontwerp van de pilot installatie

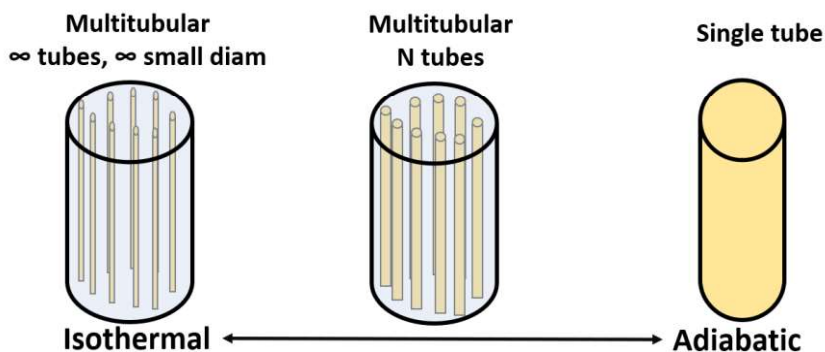
In het ontwerp wordt gebruik gemaakt van het verschil in de CO<sub>2</sub> concentratie in het ruwe biogas en het spoelgas (lucht) om een adsorptie/desorptie proces aan te drijven met een vaste stof (sor bent). Op basis van eerder onderzoek aan de UT is bekend dat het sor bent Lewatit VPOC 1065 zeer selectief CO<sub>2</sub> kan adsorberen en gebruikt kan worden voor CO<sub>2</sub> adsorptie bij zowel hoge als lage CO<sub>2</sub> concentratie.

Het verschil in CO<sub>2</sub> belading van het sor bent tijdens adsorptie condities (op evenwicht ca. 2.2 mol/kg sor bent; bij 40°C en een CO<sub>2</sub> biogas concentratie van ca. 45%) en bij desorptie condities (op evenwicht met buitenlucht ca. 0.9 mol/kg) is de zgh. 'werkcapaciteit' van het sor bent. Deze is dus maximaal 2.2 – 0.9 = 1.3 mol/kg. Op basis hiervan kan de theoretisch minimale hoeveelheid sor bent per Nm<sup>3</sup> biogas worden berekend (ca. 2.6 kg / Nm<sup>3</sup> biogas).

Het doel is het ontwerpen van een robuuste, kleinschalige biogas upgrading installatie. Met het oog op robuustheid krijgt het gebruik van 'vast bed'-technologie de voorkeur boven een concept met sor bent circulatie, zoals het fluidized bed concept wat uitgewerkt is in (Paasen, et al., 2021). Voor de desorptie van CO<sub>2</sub> van het sor bent is het voordelig om de temperatuur van het sor bent zoveel mogelijk te verhogen. Dit verlaagt de CO<sub>2</sub> evenwichtsconcentratie op het sor bent als ook de desorptiesnelheid. Echter, het vraagt warmtetransport bij opwarmen én bij afkoelen van het sor bent bed tussen de adsorptie en desorptie fase. Isotherme operatie (bij constante temperatuur) heeft daarom grote voordelen m.b.t. de efficiëntie van gebruik van de apparatuur en is daarmee goedkoper.

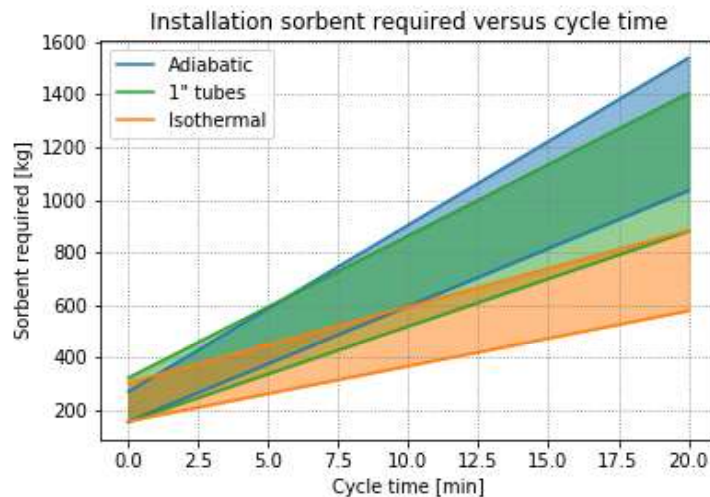
Voor een gekozen design case met een biogas capaciteit van 65 Nm<sup>3</sup>/uur biogas, kan bij een gekozen schakeltijd tussen adsorptie- en desorptiefase (bijvoorbeeld 10 minuten), direct de minimale hoeveelheid sor bent per adsorptie bed worden berekend (hier: 700 kg).

Bij de adsorptie van CO<sub>2</sub> vindt echter significante warmte-ontwikkeling plaats (door de reactie tussen CO<sub>2</sub> en het vaste amine), terwijl bij de regeneratiefase dezelfde hoeveelheid thermische energie voor regeneratie toegevoerd moet worden. Voor een zo isotherm mogelijk adsorptie bed, in combinatie met de lage warmtegeleidingscoëfficiënt van het sor bent, betekent dit dat er een heel groot warmte-uitwisselend oppervlak geïnstalleerd moet worden. Het alternatief is het toestaan van een dynamisch (wisselend) temperatuur profiel binnen in de reactor door juist géén warmte toe- of af te voeren (oftewel: adiabatisc he operatie). Dit is qua investeringen veel goedkoper en het maakt kortere schakeltijden mogelijk (en daarmee hogere systeem productiviteit) omdat er geen 'wachtijd' voor opwarmen en afkoelen nodig is. Het nadeel is mogelijk een lagere werkcapaciteit van het sor bent en het risico op té hoge lokale temperaturen. Deze afweging en optimalisatie is verder modelmatig onderzocht.



Figuur 4: Schematische weergave van verschillende reactorconcepten (met mogelijkheid tot interne warmteregulering door middel van een extern medium).

Voor de verschillende configuraties zijn modelberekeningen uitgevoerd, zoals beschreven in Figuur 5, waaruit blijkt dat bij elke gewenste schakeltijd voor de multitubular reactoren ook altijd een configuratie met adiabatise operatie mogelijk is, bij dezelfde schakeltijd. En bij niet te grote schakeltijden (tot ca. 10 minuten) kan ook de performance van een 'isotherme reactor' worden benaderd.



*Figuur 5: Afhankelijkheid van de hoeveelheid sorbent die benodigd is t.o.v. de gewenste schakeltijd voor een drietal reactorconfiguraties. De gevulde gebieden geven de spreiding van modelresultaten voor verschillende reactorconcepten weer (voor variabele desorptie)*

In deze optimalisatie is de gassnelheid en bed lengte gevarieerd tot een maximale drukval van 70 mbar tijdens adsorptie en 300 mbar tijdens regeneratie (spoelen met lucht). Er is gekozen voor een maximale bedhoogte van 1.8 m, gezien de unit in een standaard 40ft container zal worden geplaatst.

Een andere randvoorwaarde is de temperatuur. Door warmte-ontwikkeling tijdens adsorptie kan de temperatuur lokaal sterk stijgen. Omdat het sorbent bij temperaturen boven 70°C in aanwezigheid van zuurstof (in lucht aanwezig, tijdens de regeneratie fase) kan degraderen als gevolg van oxidatie, is bij de optimalisatie gesteld dat de temperatuur tijdens adsorptie nergens boven de 80°C mag uitkomen en tijdens de (endotherme) regeneratie liefst nergens (of: zo kort mogelijk) boven de 70°C. Dit levert een maximale temperatuur stijging van (ca.) 25°C op, wat zich laat vertalen (voor een amine-gebaseerd sorbent) tot een maximale/gewenste werkcapaciteit van ca. 0.5 mol/kg.

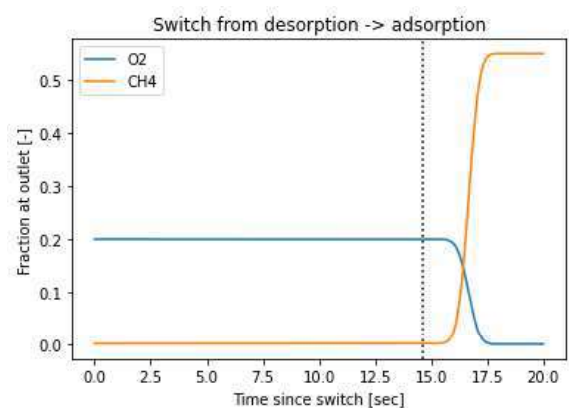
Met deze randvoorwaarden, is nu (modelmatig) gekeken of de warmte die vrijkomt bij adsorptie van het CO<sub>2</sub> uit het biogas, en tijdelijk wordt 'opgeslagen' in het sorbent bed, in de regeneratiefase weer gebruikt kan worden om het CO<sub>2</sub> van het sorbent te desorberen; recuperatieve warmte-terugwinning. De model berekeningen laten zien dat de temperatuur van het binnenkomende gas (nagenoeg) gelijk moet zijn aan de gewenste (benaderde) isotherme operatie temperatuur. Bij het 'koud voeden' van het spoelgas zal de warmte die vrijgekomen is bij adsorptie, niet langer in voldoende mate beschikbaar zijn voor de regeneratie stap. De optimale reactor temperatuur is ca. 50°C tijdens adsorptie, bij een schakeltijd van ongeveer 10 minuten en een gas snelheid van ca. 0.04 m/s tijdens adsorptie en 0.3 m/s tijdens regeneratie. Een hogere gassnelheid bij de regeneratie bevordert de desorptiesnelheid en daarmee de cyclische capaciteit. Door deze hogere snelheid is het het handigst om het bed in 'downflow' te bedrijven om fluïdisatie van het sorbent te voorkomen.

Op basis van model berekeningen zijn voor de pilot unit de volgende afmetingen en proces condities berekend (zie Tabel 3).

Tabel 3: Conceptueel ontwerp Vamine pilot unit

	Volledige doorzet	Pilot
Bed lengte [m]	1.5	1.5
Buislengte [m]	1.8	1.8
Buisdiameter [m]	0.75	0.375
Aantal adsorbers	1	1
Aantal desorbers	1	1
Benodigde sorbent [kg]	700	175
Schakeltijd [min]	11 min	11 min
<b>Adsorptie</b>		
Gassnelheid in [ $\text{Nm}^3/(\text{m}^2\text{s})$ ]		0.041
Temperatuur in [ $^{\circ}\text{C}$ ]		50
Drukval over bed [mbar]		20
Maximale temperatuur eind adsorptie [ $^{\circ}\text{C}$ ]		77
Gemiddelde temperatuur eind adsorptie [ $^{\circ}\text{C}$ ]		67
$T_{\text{bed}} > 60^{\circ}\text{C}$		93%
$T_{\text{bed}} > 70^{\circ}\text{C}$		28%
$T_{\text{bed}} > 80^{\circ}\text{C}$		0%
<b>Desorptie</b>		
Gassnelheid in [ $\text{Nm}^3/(\text{m}^2\text{s})$ ]		0.287
Temperatuur in [ $^{\circ}\text{C}$ ]		50
Drukval over bed [mbar]		220
$T_{\text{max}} > 60^{\circ}\text{C}$	58 sec (4.5% volledige cyclustijd)	
$T_{\text{max}} > 70^{\circ}\text{C}$	6 sec (0.5% volledige cyclustijd)	
$T_{\text{max}} > 80^{\circ}\text{C}$	0 sec (0.0% volledige cyclustijd)	
<b>Energiebehoefte adsorptie (voor 100% efficiency)</b>		
Drukval [ $\text{kWh}/\text{Nm}^3$ ]		0.007
Verwarming [ $\text{kWh}/\text{Nm}^3$ ]		0.0
<b>Energiebehoefte desorptie (voor 100% efficiency)</b>		
Drukval [ $\text{kWh}/\text{Nm}^3$ ]		0.18
Verwarming [ $\text{kWh}/\text{Nm}^3$ ]		0.14
<b>Energiebehoefte totaal (voor 100% efficiency)</b>		
Totale energiebehoefte [ $\text{kWh}/\text{Nm}^3$ ]		0.33
Methaanslip uit poriën [%]		1

Van belang voor het concept, maar minder eenvoudig via een model te bepalen, zijn de "schakelverliezen" bij overschakelen van adsorptie naar regeneratie en vice versa. Deze worden mede bepaald door de scherpte van het adsorptiefront, wat afhangt van reactiekinetiek, axiale dispersie en warmte geleiding in axiale richting. In de figuur hiernaast is het schakelmoment van desorptie naar adsorptie gemodelleerd. Gedurende enkele seconde wordt "off-spec" gas geproduceerd dat het beste naar de vergister teruggestuurd kan worden. Experimenteel onderzoek naar de schakel-verliezen (en vervolgens hoe dit op te vangen) is echter noodzakelijk.



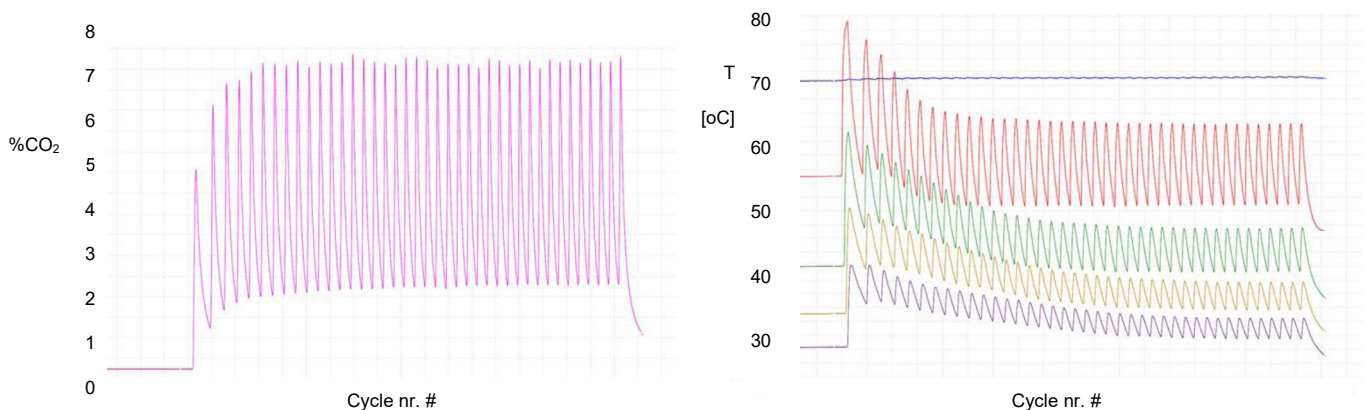
## 'Proof-of-principle' experimenten

Bij de Universiteit Twente zijn in 2021 zogeheten "proof-of-principle" experimenten gedaan volgens het "Vamine-concept" om CO<sub>2</sub> uit synthetisch biogas (40% CO<sub>2</sub> in stikstof) grotendeels te verwijderen. In de vast-bed opstelling stroomt het 'biogas' van boven naar beneden door het bed. Na een vaste, ingestelde tijd, wordt vervolgens het sorbent bed gespoeld met stikstof (N<sub>2</sub>), bij dezelfde temperatuur, om het sorbent te regenereren, waarna het proces zich herhaalt. In het bed (met interne diameter van 50 mm en lengte van ca. 40 cm) bevinden zich verschillende temperatuursensoren (op verschillende hoogte), waarmee ook het verloop van het temperatuur (en adsorptie-)front door het bed heen kan worden gevolgd.



Figuur 6: Testreactor (links), besturing (midden) en processchema (rechts) van de 'proof-of-principle' experimenten bij de Universiteit Twente

In bovenstaande figuur is de gebruikte opstelling te zien, en hieronder is ook een typisch resultaat van een duurproef met vele adsorptie/desorptie cycli opgenomen. Uit de temperatuurgrafiek blijkt dat de temperatuur verliezen naar de omgeving voor een behoorlijke temperatuur gradiënt over de reactor zorgden, zoals typerend is voor adiabatise operatie. Desalniettemin, is de CO<sub>2</sub> scheiding (in de linker grafiek) relatief stabiel over de cycli. Het benodigd aantal cycli voordat stationaire operatie is bereikt is lager voor de CO<sub>2</sub> scheiding dan voor het temperatuur profiel. In 2023 is de opstelling verbeterd door de warmteverliezen te minimaliseren (zie Bijlage 3) en worden de testen herhaald voor verhoogde nauwkeurigheid en om tot een betrouwbare model validatie te komen.

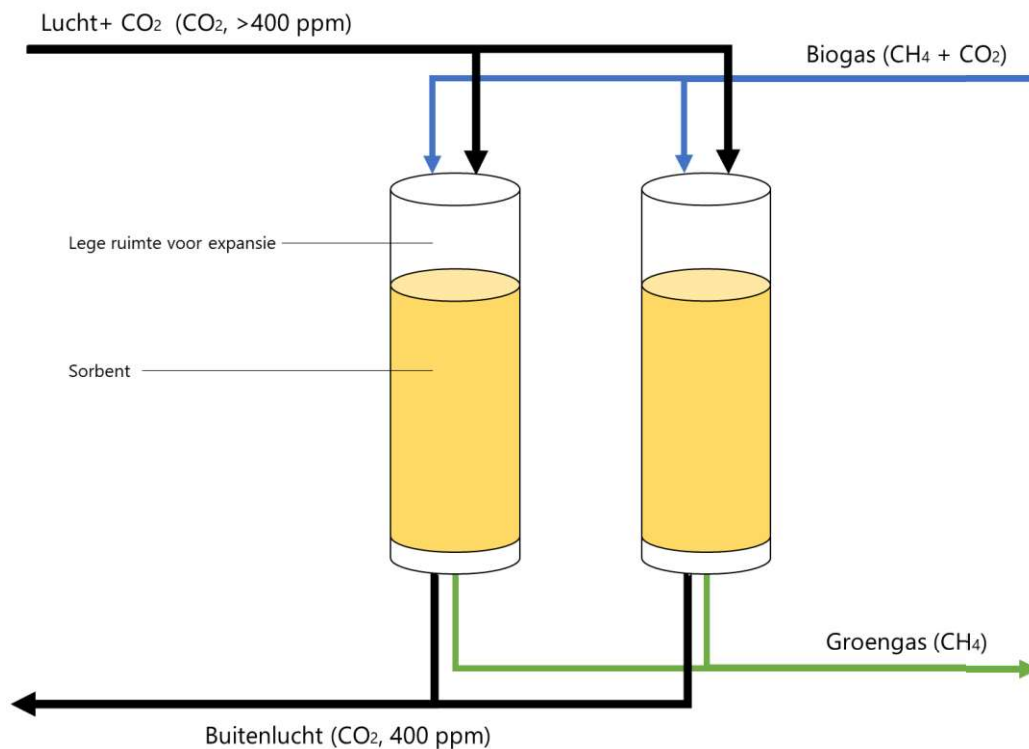


Figuur 7: CO<sub>2</sub> outlet concentration and Temperature profiles over multiple cycles, demonstrating the Vamine - Concentration Swing - separation process. Gas velocity 0.047 m/s (MSc.thesis A.Srinivas, U.Twente)

## Beschrijving van het proces in de testopstelling bij De Marke

Het conceptuele ontwerp wat in de vorige secties besproken wordt is uiteindelijk gerealiseerd in een bestaande gas-opwaardeer installatie van CCS Energieadvies bij proefboerderij De Marke. Door gebruik te maken van de bestaande installatie hoefde veel van de nodige randapparatuur (gasanalyzers, blowers, droging, vergister etc.) gebouwd of ingekocht te worden

Zoals eerder beschreven is de adsorptie een exotherme reactie en de desorptie een endotherme reactie waarvoor warmte nodig is. Deze wordt geleverd door de lucht van te voren te verwarmen, en deels vastgehouden uit de exotherme adsorptiestap. De  $\text{CO}_2$  die door deze stappen uit het biogas gehaald wordt, wordt uiteindelijk afgevoerd met de buitenlucht. Wanneer dit proces voltooid is wordt het geregenereerde vat weer gebruikt voor adsorptie en zal het andere vat gaan regenereren. Deze cyclus vindt continu plaats waardoor constant een productgas geproduceerd kan worden. Door het cyclische proces zal de productkwaliteit mogelijk wel met de tijd variëren waardoor een mengvat benodigd is om een continue productkwaliteit te genereren wat voldoet aan de invoedeisen. Het proces zoals uitgewerkt voor twee vaten die elkaar cyclisch afwisselen is grafisch weergegeven in Figuur 8.



*Figuur 8: Versimpelde weergave van het proces met twee verschillende vaten. Tijdens operatie is telkens één vat in regeneratiemodus en één vat in adsorptiemodus*

Tijdens de regeneratiefase stroomt er door een vat enkel lucht, terwijl er tijdens de adsorptiefase enkel biogas door het vat stroomt. Aan het einde van elke cyclus wordt er gewisseld tussen de beide vaten, waardoor er een kort moment ontstaat waarin een vat moet overschakelen van gas A naar gas B. Deze omschakeling brengt proces technisch een probleem met zich mee, omdat er sprake is van menging tussen gas A (biogas) en gas B (buitenlucht). Ten eerste is menging van deze gassen onwenselijk omdat hierbij een explosief mengsel gevormd wordt, en ten tweede is het mengen van gassen onwenselijk omdat hierbij een product gevormd wordt wat niet naar de atmosfeer gespuid kan worden in verband met



een hoog methaangehalte, en niet als productgas ingezet kan worden. De menging van gassen kan door goed afgestelde schakeltijden geminimaliseerd worden, maar zal nooit volledig voorkomen kunnen worden. Hierom is het van belang dat dit gemengde gas afgevoerd (of gefakkeld) kan worden. Een mengsel van biogas en buitenlucht kan in principe alleen als off-spec gas afgevoerd worden terug naar de vergister mits het aandeel zuurstof niet te hoog is. Hierom is bij de proefopstelling een schakelschema opgesteld waarin de tijden waarin gas gepurged wordt handmatig ingesteld kunnen worden. Het schakelschema wat de beide vaten gebruiken is weergegeven in Tabel 4.

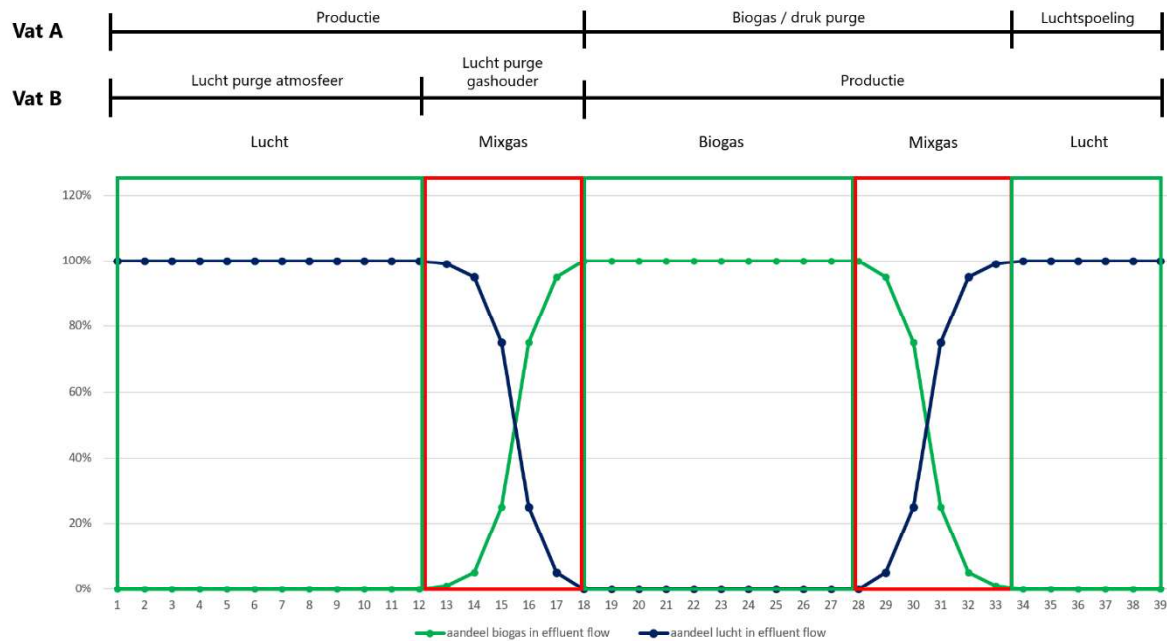
*Tabel 4: Fasen tijdens de cyclus, wat voor soort gas er aan de effluentzijde van het vat gemeten wordt en waar het heen wordt gestuurd*

Fase	Type gas effluent	Gas gaat naar...	Tijdsduur
1: Druk purge	Groengas	Productlijn	Zeer kort
2: Biogas purge	Mixgas	Vergister	Kort
3: Luchtspoeling	Lucht	Atmosfeer	Lang
4: Lucht purge atmosfeer	Lucht	Atmosfeer	Kort
5: Lucht purge gashouder	Mixgas	Vergister	Kort
6: Productie	Groengas	Productlijn	lang

Zoals de tabel weergeeft bestaat het proces uit zes individuele stappen. In de eerste stap wordt de druk van het vat gehaald. Deze stap duurt slechts enkele seconden. Hierna wordt het biogas uit het reactorvat verdrongen door er buitenlucht in te duwen. In een ideale propstroom zou het mogelijk zijn om een perfect gescheiden front tussen buitenlucht en biogas te identificeren, maar in de werkelijkheid zullen deze gassen met elkaar vermengen (al dan niet door de turbulentie die het sorbent bed veroorzaakt). Hierom wordt dit gemengde gas afgevoerd via de off-spec lijn naar de vergister. Wanneer al het biogas uit het reactorvat verdreven is begint de luchtspoelingsfase, waarin het CO<sub>2</sub> gedesorbeerd wordt. Deze fase duurt relatief lang. Na afloop van deze fase wordt de schakeling weer omgekeerd. Allereerst moet alle lucht uit het vat verdreven worden. In dit geval wordt biogas gebruikt om de lucht te verdrijven. De flow-rate van biogas is aanzienlijk lager dan lucht, waardoor het beter mogelijk is om de twee gassen van elkaar gescheiden te houden. Hierom wordt er eerste een purge stap gebruikt waarbij nog zo veel mogelijk lucht (zonder biogas!) naar de atmosfeer wordt gepurged (stap 4). De reden om toch nog zo veel mogelijk gas naar de atmosfeer te purgen is dat het niet wenselijk is om grote hoeveelheden zuurstof terug te leiden naar de vergister. Wanneer er voor het eerst gemengd gas bij het effluent zit wordt deze purge stap beëindigt en wordt het gemengde gas teruggeleid naar de vergister in stap 5. Wanneer alle lucht uit de reactor verdreven is en er enkel biogas door het sorbent stroomt begint de productiestap, waarbij groengas geproduceerd wordt.

Tijdens de lucht purge stappen wordt het biogasdebiet gesplitst over zowel het vat wat in productie is en het vat wat in de purge fase is. De mate waarin dit gas verdeeld wordt over de beide vaten is te variëren door een handklep verder open of dicht te zetten. In de besturing is het tevens mogelijk om tijdens deze stap de aansturing van de biogasblower te verhogen, om te compenseren voor het verloren debiet.

Het mengen van gassen is een onontkomelijk gevolg van dit ontwerp, wat geminimaliseerd dient te worden om een continu proces mogelijk te maken. Een grafische weergave van de verschillende stappen en de gassen die aan de uitgangszijde van het vat te vinden zijn is te vinden in Figuur 9.



*Figuur 9: Weergave van effluentgassen bij de verschillende stappen in het proces. De grafiek toont het aandeel van gas gemeten in het effluent op verschillende tijdstippen in de cyclus voor één van de vaten. De met rood gemarkeerde segmenten zijn de momenten waarop mengsels van lucht en biogas te meten zijn.*

De figuur toont dat tijdens het grootste deel van de cyclus enkel (behandeld) biogas, of buitenlucht als effluent van het sorbentvat te meten valt. Tijdens de schakelmomenten (in de figuur de met rood gemarkeerde segmenten) vindt de onwenselijke menging van gas plaats.

De exacte duur van ieder van deze stappen is lastig te voorspellen. Deze hangt af van het debiet van lucht en biogas bij specifieke instellingen, reactorafmetingen en de mate waarin het gas zich vermengt tijdens de schakelstappen. Als er weinig menging plaats vindt en het verdrijven van het gas grotendeels als een propstroom plaats vindt zijn de hoeveelheden gemengd gas (en dus de duur van de lucht purge gashouder en biogas purge stappen) minimaal. Anderzijds is het ook mogelijk dat de gassen zich juist veel met elkaar vermengen, en er dus lange purge stappen nodig zijn. Langere purge stappen produceren een groot aandeel zuurstofslip naar de vergister wat kan leiden tot falen van het vergistingsproces. Hierbij is het belangrijk om te beseffen dat bij elke schakeling van een cyclus gemengd gas geproduceerd wordt, en dus naar de vergister gespuid moet worden. Hoe lager de cyclische capaciteit van de reactor, hoe korter elke cyclus duurt. Dit betekent dat er twee manieren zijn om de hoeveelheid gemengd gas te minimaliseren; het verminderen van het aantal schakelmomenten door de cyclische capaciteit te vergroten, en het verminderen van de schakelverliezen per cyclus door de timing van de kleppen beter af te stellen. Het beter afstellen van de timing per klep zal echter maar tot een bepaalde mate effectief zijn.

Het optimaliseren van het proces betreft grotendeels het aanpassen van deze schakeltijden om zo min mogelijk van het onwenselijke mixgas te produceren, en het vinden van de parameters waarbij de hoogst mogelijke cyclische capaciteit behaald wordt zonder degradatie van het sorbent.



## Cyclische capaciteit: definitie en relevantie

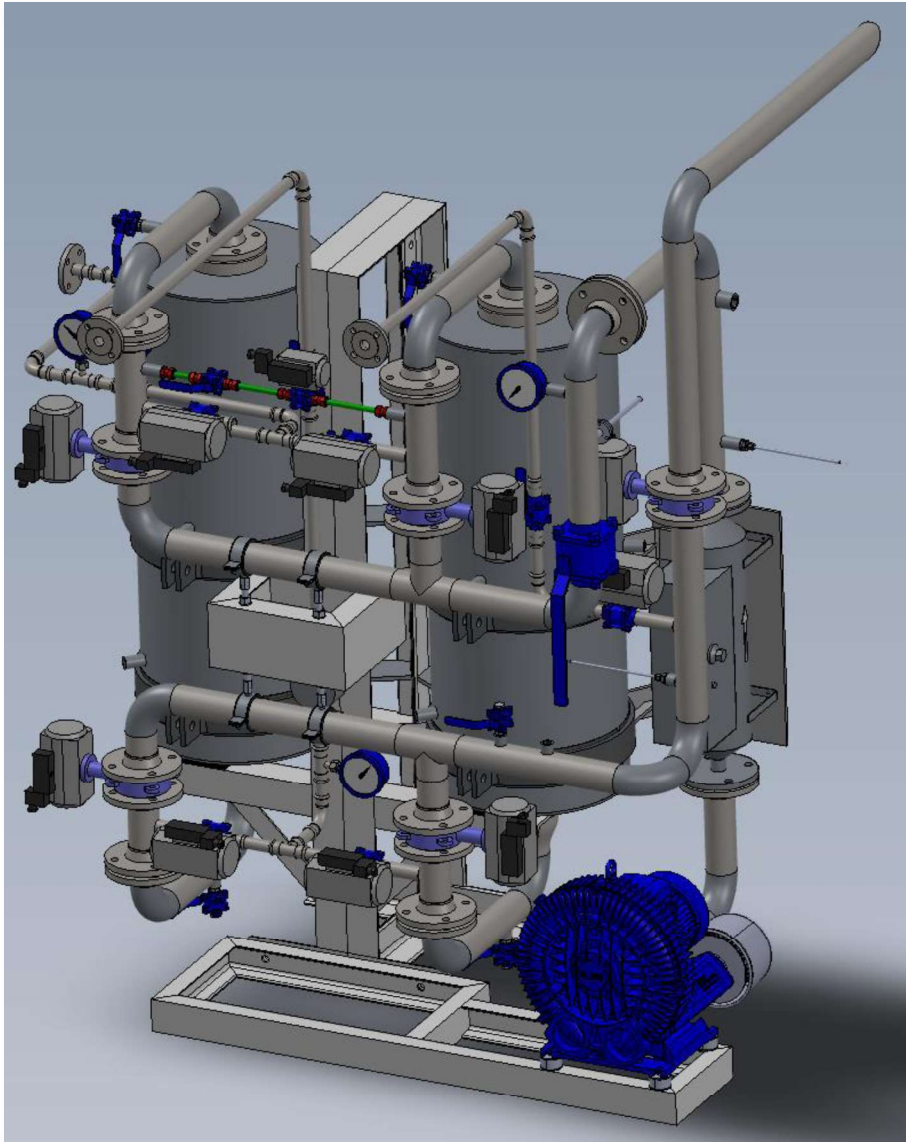
Een term die in dit rapport vaak genoemd zal worden is de cyclische capaciteit van de reactor. Deze term is al kort besproken in het conceptueel ontwerp, maar wordt hier nog specifiek toegelicht. VP OC 1065 heeft een zeer hoge theoretische adsorptiecapaciteit, maar zal in de praktijk niet volledig benut kunnen worden. In plaats van beginnen met 0% belading aan het begin van de adsorptie en 100% belading aan het einde is het bijvoorbeeld waarschijnlijker dat de regeneratiefase een deel van het sorbent beladen zal laten tot 20%. Hiernaast dient er rekening mee gehouden te worden dat een bepaalde massa sorbent voor slechts een deel van de tijd gebruikt kan worden om CO<sub>2</sub> te adsorberen. Tijdens elke cyclus is er een deel van de tijd dat het sorbent adsorbeert en een deel van de tijd dat het sorbent aan het regenereren is. Verder is de exacte duur van een cyclus of zelfs specifieke stap uit de cyclus niet consistent, en worden deze tijdens de experimenten constant geregenereerd. Hierom is de cyclische capaciteit een betere term om de efficiëntie van het sorbent te beschrijven.

De cyclische capaciteit is uitgedrukt als mmol (of mol) CO<sub>2</sub>/kg sorbent, en beschrijft hoeveel CO<sub>2</sub> een bepaalde massa sorbent heeft verwijderd uit de biogasstroom in een enkele cyclus. Dit houdt dus rekening met de effecten van een langere of kortere regeneratiestap. Een hogere cyclische capaciteit betekent dat ieder deel sorbent beter benut wordt, en dient hierom ook als een belangrijk ontwerpdoel voor een dergelijk systeem. Aangezien de capaciteit uitgedrukt wordt per kilogram sorbent is de afmeting van een reactor hierbij niet relevant, evenals het debiet van biogas. Een reactor met een cyclische capaciteit van 400 mmol/kg zou bijvoorbeeld een biogasstroom van 6 m<sup>3</sup>/h kunnen behandelen met cyclussen van 12 minuten, en een biogasstroom van 4 m<sup>3</sup>/h met cyclussen van 18 minuten. Het ontwerpdoel van de installatie, naar aanleiding van de modellering van UT, was een capaciteit van 500 mmol/kg sorbent.

De capaciteit van het systeem zou ook uitgedrukt kunnen worden per eenheid van tijd (bijvoorbeeld mmol CO<sub>2</sub>/kg sorbent/minuut). Deze definitie zou nuttig zijn voor het dimensioneren van reactoren voor specifieke vrachtstromen, maar laat het aantal cyclussen wat hier bij te pas komt achterwege. Aangezien het vanuit een procestechnologisch perspectief wenselijk is om het aantal cyclussen te minimaliseren (in verband met doorslag van zuurstof naar de vergister), en een hogere cyclische capaciteit gelijk staat aan een betere benutting van het sorbent kan gesteld worden dat de cyclische capaciteit belangrijker is dan de capaciteit per tijdseenheid. Hierbij komt dat een hogere cyclische capaciteit doorgaans ook een hogere capaciteit per tijdseenheid betekent.

### 3.1 Gedetailleerde beschrijving van de testopstelling en bijbehorende instrumentatie

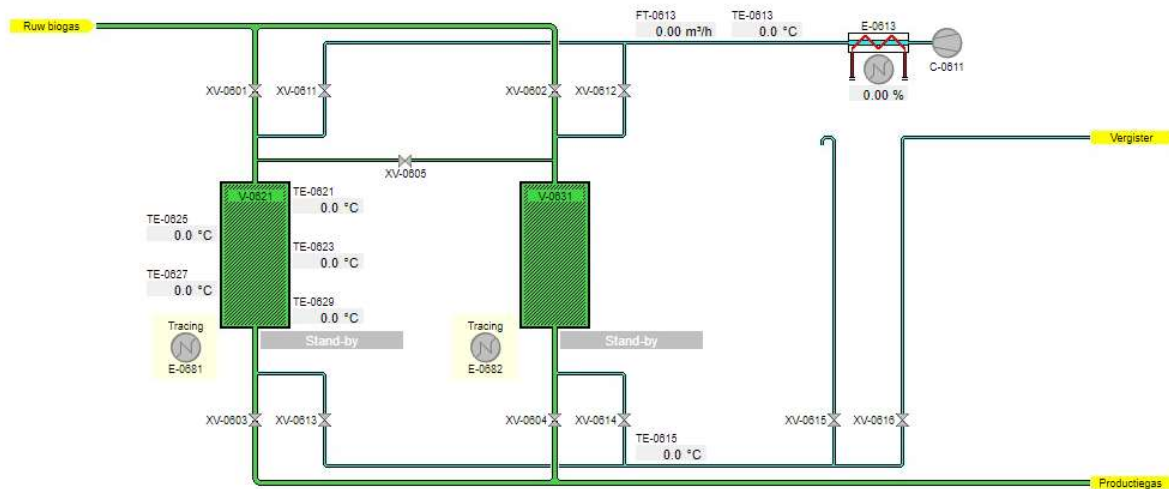
De testopstelling bij De Marke bestaat uit een skid waarop een tweetal RVS vaten, een blower, een heater, instrumentatie en een serie leidingwerk met pneumatische kleppen staat. De testopstelling is weergegeven in Figuur 10.



Figuur 10: 3D model van de testopstelling

Buiten de testskid staan nog een biogasblower en een tweetal gas totaal analysers (één ruwgasanalyser en één productgasanalyser) en een CO<sub>2</sub> analyser. Deze analysers meten de samenstelling van het ruwe biogas en het gas wat in de productgasleiding terecht komt (dit betreft zowel productgas als off-spec gas wat teruggestuurd wordt naar de vergister). Het debiet van de biogasblower is variabel en kan naar wens ingesteld worden, maar de luchtblower heeft enkel een vast debiet. Het debiet van de regeneratielucht kan gestuurd worden door een handklep deels af te sluiten, waardoor een deel van het debiet van de blower via een overdrukventiel wordt geventileerd. Hiernaast kan de verdeling van biogas over de beide vaten tijdens de lucht purge stap aangepast worden door een handklep te bedienen.

De besturing van de installatie verloopt via de bestaande besturing van de Bio-UP. Aan deze besturing zijn aanpassingen gemaakt om de vamine installatie in gebruik te kunnen nemen. Een overzicht van de besturing voor de vamine installatie is weergegeven in Figuur 11.



Figuur 11: Besturing van de vamine installatie in de Bio-UP

Een P&ID van de installatie is tevens te vinden in Bijlage I. Tijdens de proeven werden datapunten verzameld met betrekking tot de gehalten van  $\text{CH}_4$ ,  $\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{S}$  en  $\text{O}_2$  in het ruwe gas en het gas in de productleiding. Verder zijn de debieten van de verschillende gassen gemeten, en de temperaturen van de gassen op verschillende punten in de aan- en afvoerleidingen. In één van de reactorvaten zijn tevens vijf temperatuursondes geplaatst om het temperatuurprofiel tijdens de cyclus in kaart te brengen. Deze sondes zijn geplaatst op verschillende hoogtes en dieptes van het reactorbed. De reactorvaten zijn uitgerust met elektrische tracing en geïsoleerd om warmteverlies zo veel mogelijk te minimaliseren.

Het gas wat naar de atmosfeer gepurged wordt tijdens de lucht purge atmosfeer stap wordt niet direct gemeten in de installatie. Om de schakeltijden te optimaliseren is het echter wel relevant om te meten wanneer er methaan doorslag plaatsvindt bij deze stroom. Tijdens enkele proeven is hierom met een MRU Optima 7 Biogas Analyzer de concentraties van  $\text{CH}_4$ ,  $\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{S}$  en  $\text{O}_2$  in het uitgaande gas gemeten.

### Bijmenging van stalen korrels

In sectie 2 werd al gesproken over de effecten van de lage thermische capaciteit van het sorbent. Het sorbent is minder hittebestendig dan de traditionele vloeibare amine, omdat deze bij temperaturen boven  $60^\circ\text{C}$  gedeactiveerd wordt in de aanwezigheid van zuurstof (Yu, Delgado, Veneman, & Brilman, 2017). Bij de adsorptiefase van het systeem komt relatief veel warmte vrij, wat de temperatuur doet stijgen boven deze kritieke grenswaarde. Om te voorkomen dat vervolgens het sorbent degradeert moet tijdens de desorptiefase een lagere temperatuur regeneratiegas gebruikt worden om hiervoor te compenseren. Dit heeft als gevolg dat de desorptie op een lagere temperatuur plaats vindt, en dus minder volledig is. Een minder volledige desorptie betekent een lagere cyclische capaciteit, wat onwenselijk is.

Een alternatieve manier om de thermische piek van de adsorptiefase af te vlakken is door een bepaalde hoeveelheid van een inert materiaal met een (relatief) hoge thermische geleidbaarheid en capaciteit bij te mengen. Door een deel van het volume te vervangen door deze massa wordt de algehele thermische capaciteit van het mengsel groter, waardoor het regeneratiegas op een hogere temperatuur kan worden ingevoerd. Hiernaast wordt door de extra thermische massa een deel van de warmte die bij de adsorptie vrijkomt vastgehouden

en gebruikt voor de desorptie, wat een efficiënter systeem tot gevolg heeft. Voor deze proef is gekozen om 30% van het volume van de reactor te vervangen met stalen korrels ten behoeve van dit effect.



*Figuur 12: De stalen korrels die gebruikt zijn om de thermische capaciteit van het sorbent te verhogen*

De korrels die hiervoor gebruikt zijn bestaan uit C40 staal en hebben een gemiddelde korrelgrootte van 2 tot 4 mm. De relevante parameters van dit type staal zijn te vinden in

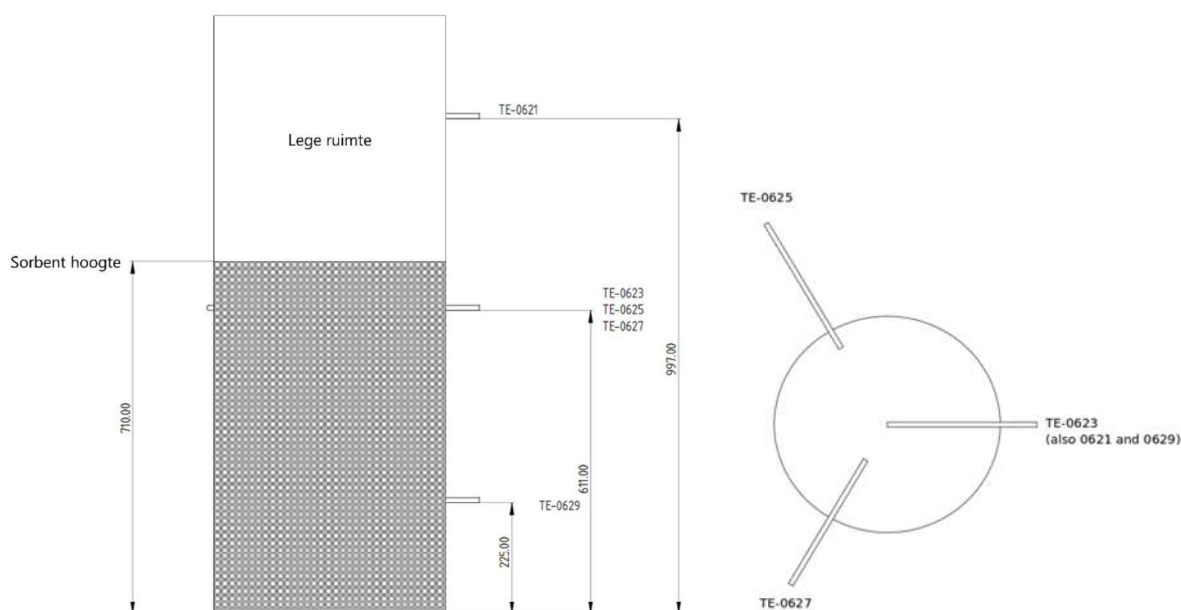
*Tabel 5: Parameters van de stalen korrels*

Thermische geleidbaarheid	32.8	W/m.K
Warmtecapaciteit	324	J/kg.K
Dichtheid	7,85	Kg/dm <sup>3</sup>
Korrelgrootte	2 - 4	mm

Het is relevant om te benoemen dat voor deze toepassing niet per se stalen korrels gebruikt hoeven te worden. Elk inert materiaal met een hogere warmtecapaciteit en thermische geleidbaarheid dan VP OC 1065 kan in principe gebruikt worden voor het beoogde effect. Voorbeelden van alternatieve materialen zijn bijvoorbeeld koperen korrels, zand, aluminium etc. Het gekozen materiaal dient in ieder geval niet te reageren met één van de bestanddelen van biogas, en dient bij voorkeur een zo hoog mogelijke volumetrische warmtecapaciteit te hebben. Voor materialen met een lagere thermische geleidbaarheid is het relevant om de korrelgrootte te verkleinen, om te garanderen dat het warmtetransport niet limiterend is. Bij een te grote korrel zal een deel van het object niet benut worden voor het vastleggen en afgeven van warmte, wat kostbare ruimte in de reactor verspild.

## Vullen van de reactoren

Bij het vullen van de reactoren is tijdens deze proeven rekening gehouden met een gelijkmatige verdeling van stalen korrels en VP OC 1065. Het vullen van de reactoren is uitgevoerd door eerst stalen korrels en VP OC 1065 met elkaar te vermengen in stappen van één liter per keer. Nadat deze handmatig vermengd waren werd de gecombineerde inhoud in de reactor geplaatst. De reactoren zijn uiteindelijk slechts deels gevuld door een tekort aan sorbent, waardoor de loze ruimte van 30% in het bovenzvlak van de reactor relatief groot is. Een loze ruimte van ca 20-25% is wel wenselijk om de uitzetting van de vamine te compenseren bij de adsorptie van vocht. Een eerder uitgevoerde laboratoriumproef toonde aan dat vaste amine tot 25% kan uitzetten in een dergelijke situatie. De hoogte tot waar het sorbent bed rijkt en de plaatsing van de verschillende temperatuursondes is terug te vinden in Figuur 13.



Figuur 13: Vulhoogte en hoogte van temperatuursensoren in de reactoren (links) en diepte van sensoren in de reactor (rechts)

De drie temperatuursondes die hoog in het sorbentbed geplaatst zijn (TE-0623, 0625 en 0627) zijn tevens op verschillende dieptes in de reactor geplaatst om inzicht te bieden in het radiale temperatuurprofiel.

Na het vullen van de reactoren is de installatie gespoeld met warme lucht voor een periode van vier uur om eventueel overtollig water in het sorbent uit te dampen. Na het spoelen waren de reactoren klaar voor gebruik en zijn de proeven begonnen.



## 3.2 Beschrijving van testrondes

Vorbereidingen aan de reactor en experimenten namen plaats aan het einde van oktober in 2022. Tussen 27-10-2022 en 25-11-2022 zijn in totaal tien dagen proeven uitgevoerd met de testinstallatie. De vergister bij De Marke werd in deze periode gevoed met slechts een kleine hoeveelheid mest, waardoor slechts kleine hoeveelheden gas beschikbaar waren. Gekozen is om het geproduceerde gas eerst te bufferen in een 60 m<sup>3</sup> gasbuffer, alvorens deze te gebruiken voor de proeven. Vanwege deze limitatie zijn overdag proeven uitgevoerd totdat de buffer leeg was. Hierna is de buffer in de nacht weer bijgevuld met gas, zodat de volgende dag nieuwe proeven konden plaatsvinden. Langere termijnproeven waren niet meer mogelijk op de locatie De Marke aangezien de proefboerderij niet langer wenste om de vergister te opereren en het niet mogelijk was om het geproduceerde gas in te voeden. Binnen deze kaders zijn zo veel mogelijk datapunten verzameld van verschillende operationele instellingen.

Voor het vinden van de optimale instellingen van de installatie zijn een aantal parameters continu gevarieerd. Een lijst met de verschillende instellingen die tijdens de proeven gevarieerd zijn is te vinden in Tabel 6.

*Tabel 6: Aangepaste parameters tijdens de proeven en hun bereik. De luchtspoelings tijd werd niet direct ingesteld, maar is gelijk aan het verschil tussen de productiestap en de overige stappen.*

Parameter	Bereik
Debiet biogas	4 - 12 m <sup>3</sup> /h
Debiet regeneratiegas	100 - 200 m <sup>3</sup> /h
Temperatuur regeneratiegas	40 - 80°C
Tijd druk purge	0 - 20 sec
Tijd biogas purge	0 - 60 sec
Tijd lucht purge atmosfeer	0 - 60 sec
Tijd lucht purge gashouder	0 - 60 sec
Tijd productie	2 - 20 min
Tijd luchtspoeling	n.v.t.
Instelling HCV-0605	Volledig dicht - volledig open
Verhoogde aansturing biogas blower tijdens purge	0% - 50%

Het doel van de proeven was om de optimale instellingen van de installatie te vinden, en hieruit lessen te trekken voor een vervolgonwerp. Hiervoor is het ten eerste relevant om toe te lichten wat gezien wordt als optimaal. De randvoorwaarde voor een succesvolle set parameters is de consistente productie van een gas wat gebruikt kan worden om groengas in te voeden. Hiervoor dient het gas te voldoen aan de volgende eisen:

- O<sub>2</sub> gehalte < 0,5% (gemiddeld)
- CO<sub>2</sub> gehalte < 10% (gemiddeld)

Kleinere variaties in de gaskwaliteit worden hierbij als acceptabel gezien, deze kunnen met een mengvat achter het vamineproces uitgemiddeld worden. Elke serie instellingen waarbij gas wordt geproduceerd wat hieraan voldoet kan gebruikt worden voor de productie van groengas. De eerste aanpassingen van instellingen waren dan ook gericht op het bereiken van dit punt. Hierna werd de focus gelegd op de onwenselijke menging van gassen en het spuien van zuurstof naar de vergister en methaan naar de atmosfeer. Deze beide aspecten kunnen beïnvloedt worden door de gasflow tijdens en duur van de purge stappen aan te passen. Hierbij is het onacceptabel om (teveel) methaan naar de atmosfeer te spuien tijdens de lucht purge stap, en kan slechts een kleine vracht zuurstof per cyclus naar de vergister

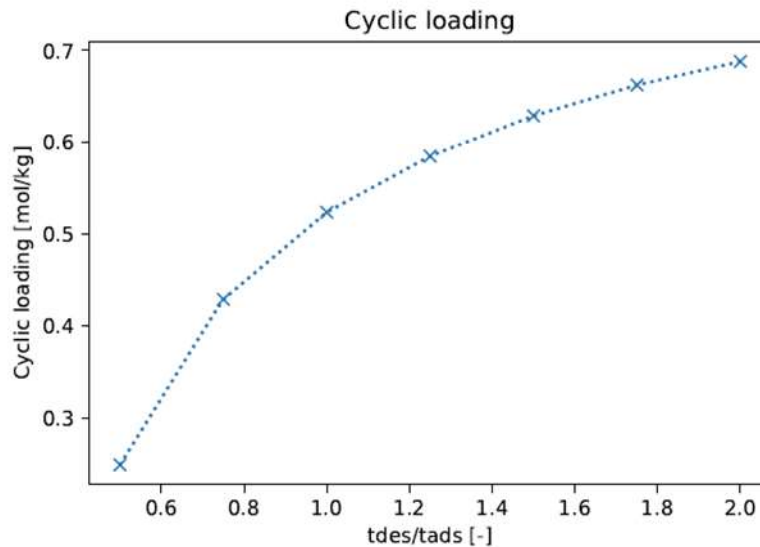
gespuid worden ( $O_2$  gehalte na opwerking moet  $< 0,5\%$  zijn. Na het optimaliseren van de purge stappen werd de focus gelegd op het maximaliseren van de productie door een zo hoog mogelijke cyclische capaciteit te bereiken zonder degradatie van het sorbent. Een exacte lijst van aanpassingen en setpoints is op aanvraag beschikbaar, maar het is relevant om te benoemen dat het een iteratief proces was waarbij van dag tot dag bepaald werd welke aanpassingen doorgevoerd dienden te worden.

Tijdens de opstart van de reactor aan het begin van de dag werd telkens de data van de eerste cyclussen verworpen. In de nacht koelt de massa in de reactor namelijk significant af (zelfs met gebruik van de elektrische tracing van de reactorvaten), waardoor de temperatuur tijdens de eerste cyclussen (en dus de efficiëntie van de regeneratiestap) lager is dan eigenlijk bij de ingestelde setpoints hoort. Na ongeveer anderhalf uur operatie was de reactor doorgaans op temperatuur met stabiele meetwaarden en begonnen de variaties van setpoints voor die dag.

### Bepaling van de limiterende factor bij specifieke instellingen

Het is relevant om bij iedere instelling te bepalen wat de reden is dat het  $CO_2$  na een bepaalde tijd doorslaat. In een ideale situatie begint de reactor zijn adsorptiecyclus met sorbent wat volledig ontdaan is van  $CO_2$ . In werkelijkheid blijft het sorbent tijdens cyclussen echter continu deels beladen. Eerdere laboratoriumproeven hebben aangetoond dat de cyclische capaciteit in de reactor grotendeels afhangt van de volledigheid waarmee de regeneratie plaats vindt, in het bijzonder in een situatie waarbij de regeneratietijd relatief kort is (zoals bij een cyclische installatie met twee reactoren). Bij de praktijkopstelling is het niet mogelijk om de regeneratietijd bij een continu proces langer te maken dan de adsorptietijd, omdat er altijd één vat in adsorptie en één vat in regeneratiemodus moet zijn. Wanneer de regeneratie dus onvolledig is heeft dit een wederkerend effect. Een minder volledige regeneratie betekent dat de reactor minder capaciteit heeft tijdens zijn adsorptiecyclus. Door de verminderde capaciteit in de adsorptiecyclus is het vat eerder verzadigd en wordt de totale cyclus korter (bijvoorbeeld van 11 minuten naar 9 minuten). Een verkorte cyclus betekent tevens een verkorte regeneratiestap, wat in de volgende cyclus weer minder capaciteit betekent en dus weer een verkorte cyclus. Het proces kan enkel stabiliseren bij een specifieke instelling door de regeneratie te balanceren met de adsorptie, wat een harde limite stelt aan het debiet van biogas wat de reactor kan verwerken in een specifieke tijd. Een theoretische benadering van de maximale cyclische capaciteit bij specifieke verhoudingen van desorptie en adsorptietijd in een cyclus is te vinden in Figuur 14.





*Figuur 14: Maximale cyclische belading als functie van de verhouding van adsorptie en desorptietijd. Als bij een cyclus naar verhouding meer desorptietijd beschikbaar is dan adsorptietijd, stijgt de cyclische capaciteit omdat de reactor beter geregenereerd wordt voor de adsorptiefase weer begint. De proeven van met de praktijkopstelling zijn uitgevoerd bij Tdes/Tads tussen 0.8 en 1.0*

De figuur toont dat het effect van verminderde regeneratietijd onder een verhouding van  $T_{des}/T_{ads} = 1$  een significant effect heeft op de cyclische capaciteit van het sorbent. Bij deze situatie is de desorptie niet volledig, waardoor de adsorptiefase ook steeds korter duurt. Een kortere adsorptiefase betekent op zijn beurt dat de desorptiefase (welke al slechts een fractie van de adsorptiefase is) weer korter wordt.

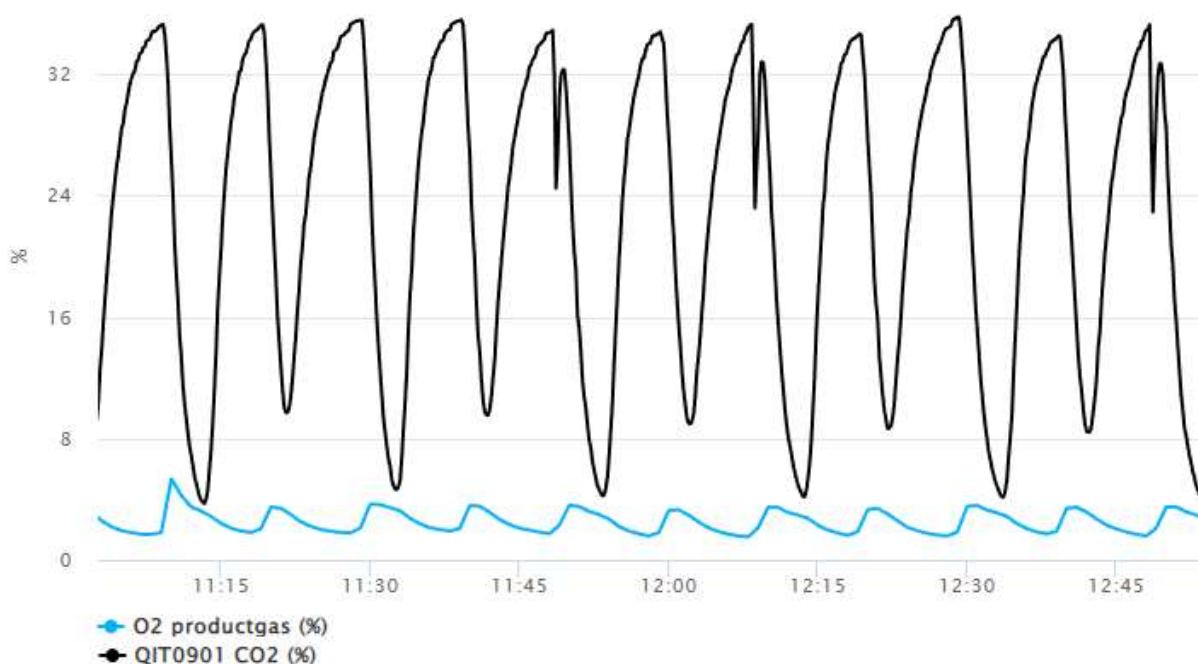
Tijdens de experimenten kan op basis van Figuur 14 aangenomen worden dat de cyclische capaciteit niet gelijk zal zijn aan de maximale theoretische capaciteit van het sorbent, en dat de mate waarin het sorbent geregenereerd wordt limiterend zal zijn. Hier kan nog onderscheid gemaakt worden tussen een situatie waar de kinetiek limiterend is, en een situatie waarin de massaoverdracht limiterend is. Het desorberen van  $CO_2$  van het sorbent hangt principieel af van twee factoren; hoe 'sterk' de drijvende kracht is die de  $CO_2$  vrij maakt van het sorbent, en het concentratiegradient tussen het sorbent en het regeneratiegas. Dit concentratiegradient hangt er van af hoe snel de vrijgekomen  $CO_2$  afgevoerd kan worden, wat enkel aangepast kan worden door het regeneratiegasdebiet te verhogen. De desorptiekinetiek kan beïnvloed worden door de temperatuur van het sorbent tijdens de regeneratiefase te verhogen, waardoor de desorptie sneller verloopt. Tijdens de praktijkproeven is gekozen voor een significant groter regeneratiegasdebiet dan biogasdebiet dat er in principe geen limitatie van massaoverdracht kan zijn. Hierom is de focus bij het verhogen van de desorptiekinetiek gelegd op het beter behouden van warmte uit de adsorptiefase en het verhogen van de temperatuur van het regeneratiegas.

## 4. Resultaten en interpretatie

De resultaten van de proeven welke in het vorige hoofdstuk beschreven zijn worden in dit hoofdstuk gepresenteerd. Hiernaast worden een aantal observaties en interpretaties met betrekking tot het systeem toegelicht, welke uiteindelijk leiden tot een voorgesteld ontwerp voor de volgende installatie.

### 4.1 Algemene observaties en interpretaties

Bij het opstarten van de reactor bij de eerste cyclussen lag de focus op het testen van alle onderdelen, regelapparatuur en veiligheidsmaatregelen. Bij deze ronde werd de installatie opgestart bij een aanzienlijk hoger biogasdebiet dan de installatie kon verwerken. Het resultaat hiervan is een hoge belasting van de reactor welke snel verzadigd raakt en CO<sub>2</sub> laat doorslaan naar het productgas. Figuur 15 toont de CO<sub>2</sub> en O<sub>2</sub> profielen van meerdere cyclussen bij deze instelling.



*Figuur 15: CO<sub>2</sub> en O<sub>2</sub> profiel tijdens eerste cyclussen. De significant hoge pieken van CO<sub>2</sub> in het productgas tonen aan dat bij deze instelling teveel belading van het bed plaatsvindt voor deze overgaat op de regeneratiefase*

Hoewel het doorslaande CO<sub>2</sub> deze instellingen niet geschikt maakt voor continue operatie, toont dit het algemene werkingsprincipe van de reactor. Tijdens het begin van de cyclus wordt duidelijk CO<sub>2</sub> geabsorbeerd uit het biogas (te zien in de grafiek door de scherpe daling van de lijn naar ~5% CO<sub>2</sub>). De reactor raakt echter snel verzadigd (te zien door de abrupte stijging hier direct op volgend), waarna er geen of weinig CO<sub>2</sub> meer geabsorbeerd wordt en de volledige 35% CO<sub>2</sub> weer terug te vinden is in het effluent. Deze rondes tonen aan dat er in ieder geval op principieel gebied geen problemen waren met het systeem, en dat het mogelijk is om afwisselend tussen de beide vaten CO<sub>2</sub> te adsorberen.

De grafiek toont tevens dat er een verschil is in de capaciteit tussen de beide reactorvaten. De minimale CO<sub>2</sub> concentratie is bij één van de vaten aanzienlijk lager (<5%) dan bij het andere vat (10%). Bij het vullen van de vaten is er rekening mee gehouden dat beide vaten gelijkmatig gevuld zijn, en is de beschikbare vracht vaste amine telkens afwisselend in vat A of B gestort om te voorkomen dat verschillen tussen zakken een effect hebben op het effect van de reactor. Ondanks deze voorzorgsmaatregelen lijkt er dus toch een verschil te zijn

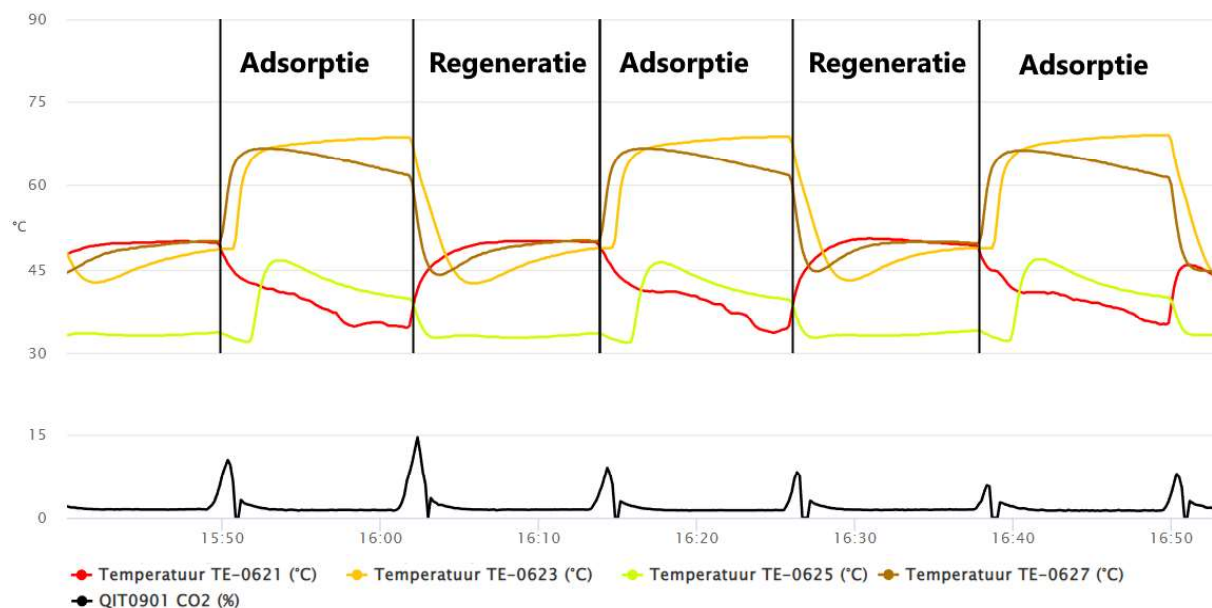
tussen de beide vaten. Tevens zijn in de grafiek een drietal korte dalingen van CO<sub>2</sub> concentratie te zien op 11:47, 12:10 en 12:48, waar de gemeten concentratie zeer kort daalt en daarna weer terug stijgt naar het originele niveau. Voor deze observatie is geen directe verklaring gevonden, maar de auteurs van dit rapport vermoeden dat dit een meetfout is.

In de hierop volgende dagen is het biogasdebiet verlaagd naar gemiddeld 6,5 Nm<sup>3</sup>/h en zijn de cyclustijden verkort om te zoeken naar het eerste punt waarbij consistent gas met minder dan 10% CO<sub>2</sub> geproduceerd kan worden. Bij een lager gasdebiet was de reactor in staat om lange tijd consistent groengas te produceren. Het cyclische profiel van de temperatuur in de reactor stabiliseert na enkele cyclussen, waardoor het mogelijk is om een continu proces te opereren. Een aanvullend document met de instellingen, variaties en bevindingen per dag is op aanvraag beschikbaar. In dit hoofdstuk zal verder een aantal relevante meetpunten individueel benoemd worden, en de beste bevonden instellingen in detail toegelicht worden.

#### 4.1.1 Temperatuurgradiënt in de reactor tijdens cyclussen

Hoewel de installatie bestaat uit twee reactorvaten is slechts één van de reactoren uitgerust met temperatuursondes. Bij het beschrijven van de observaties in de reactoren bij verschillende stadia van de cyclus is het relevant om te benoemen dat er ten alle tijden een tweede reactorvat is welke in een andere fase is. Wanneer temperaturen weergegeven worden betreft het altijd de metingen van reactor A, aangezien deze uitgerust is met meerdere temperatuursondes.

De onderstaande grafiek in Figuur 16 beschrijft het typische temperatuurprofiel in de reactor zoals geobserveerd tijdens de proeven.



*Figuur 16: Typisch temperatuurprofiel zoals geobserveerd tijdens deze proeven. De pieken in temperatuur worden veroorzaakt door de exotherme adsorptiereactie, welke aan het begin van de cyclus voor een grote stijging zorgt. Tijdens de regeneratiefase daalt de temperatuur weer sterk. De metingen in de figuur namen plaats op 11 november 2022.*

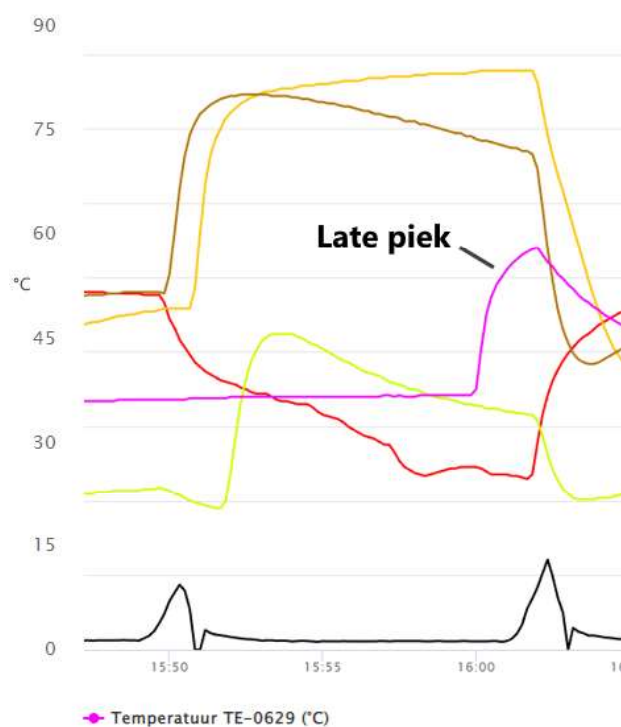
De figuur toont duidelijk het cyclische profiel van de temperatuur in de reactor. Opvallend is dat de temperatuur van TE-0627 en TE-0623 (beiden aan de bovenzijde van het sorbent bed geplaatst) vrijwel direct een hoge temperatuur bereiken. Dit deel van het sorbent adsorbeert als eerste CO<sub>2</sub>, en warmt op door de exotherme reactie. Hierna blijven deze punten consistent op temperatuur terwijl het front van verzadiging door het reactorbed heen naar beneden verplaatst. TE-0625 is ook aan de bovenzijde van het sorbentbed geplaatst, maar bevindt zich

dichter bij de buitenste rand van de reactor. De temperatuurpiek bij dit deel van het sorbent vindt iets later plaats, wat aangeeft dat het middelpunt van de reactor eerder en meer beladen wordt dan de buitenrand. Hiernaast is het opvallend dat de temperatuur gemeten bij deze sensor hetzelfde profiel volgt als dat van de andere sensoren, maar stabiel wordt op een aanzienlijk lagere temperatuur. Hieruit blijkt dat er een sterk verschil in temperatuur is aan de buitenzijde van de reactor vergeleken met de kern van de massa. De reactorvaten zijn weliswaar geïsoleerd en omringd met elektrische tracers, maar blijktbaar is er nog steeds sprake van significant warmteverlies in de reactor.

Aan het einde van de adsorptiefase wordt de biogasstroom afgeschakeld en vervangen door verwarmde buitenlucht (eerst in de purge stappen, en direct hierop aansluitend in de luchtspoelingsfase). De temperaturen gemeten in het reactorbed dalen hierbij sterk, wat aangeeft dat er desorptie plaatsvindt aangezien deze reactie juist endotherm is.

De grafiek toont ook het profiel van TE-0621. Deze sensor is geplaatst in de lege ruimte boven het sorbentbed. Aangezien deze sensor niet in de sorbentmassa geplaatst is toont deze dus de temperatuur van het gas in deze ruimte (biogas tijdens adsorptie, regeneratielucht tijdens de regeneratiefase). Deze temperatuur stijgt tijdens de regeneratiefase omdat er voorverwarmde lucht wordt geleverd.

In de grafiek van Figuur 16 ontbreekt de onderste temperatuursonde van de reactor: TE-0629. Deze sensor is in het onderste deel van het sorbentbed geplaatst en zou in theorie als laatste warm moeten worden. Aan het begin van de adsorptiefase, als het sorbentbed nog niet verzadigd is, zou namelijk een front van verwarming moeten vormen wat steeds dieper door het bed heen reist naarmate meer en meer van de vaste amine verzadigd raakt. Men zou dus verwachten dat TE-0629 bij een goed afgesteld systeem pas een warmtepiek toont aan het einde van de adsorptiecyclus. Deze stelling komt overeen met observatie, zoals getoond in Figuur 17 als aanvulling op Figuur 16.



Figuur 17: Temperatuurprofiel van TE-0629, met een vertraagde warmtepiek. De vertraging is indicatief van het verplaatsende warmtefront door de reactor.

De temperatuurpiek betekent dat het verzuigingsfront het einde van de reactor bereikt heeft. Bij een toekomstige opstelling zou een dergelijke temperatuursensor gebruikt kunnen worden om het bepalen van de schakeltijden te automatiseren. Wanneer deze sonde immers een sterke stijging constateert is het sorbent bijna volledig verzadigd. Een dergelijke regeling zou ook automatisch kunnen compenseren voor de geleidelijke degradatie van het sorbent.

## 4.2 Optimalisatie van procesparameters

### Bepaling purge tijden – asymmetrisch debiet

Het bepalen van de lengte van de purge stappen is uitgevoerd door handmatig de schakeltijden aan te passen en te meten in hoeverre er doorslag van (ongewenst) gas plaats vindt in de productleiding of luchtspuileiding. Tijdens de biogas purge stap wordt biogas uit de reactor verdreven door de luchtblower, waarbij een te lange ingestelde tijd er voor zorgt dat teveel buitenlucht naar de vergister wordt geleid. Bij een te korte biogas purge wordt echter methaan uitgestoten naar de atmosfeer. Beide situaties zijn uiteraard onwenselijk.

Tijdens de lucht purge stappen wordt juist lucht gespuid door deze te verdrijven met de biogasblower. Te korte lucht purge stappen betekent dat er aan het begin van de productiefase nog lucht in het vat aanwezig is, wat er voor zorgt dat het geproduceerde gas niet ingevoerd kan worden en naar de vergister afgevoerd moet worden. Te lange lucht purge stappen veroorzaken echter weer overtollige luchtdosering in de vergister. De lucht purge stappen zijn gesplitst in twee fasen om beter te sturen hoeveel lucht er naar de vergister gaat. Eerst wordt er zo veel mogelijk lucht naar de atmosfeer gespuid, totdat er gemengd gas in het effluent zit. Vanaf dit punt wordt het gas naar de vergister geleid tot alle lucht verdreven is en het gas naar de productieleiding kan worden geleid.

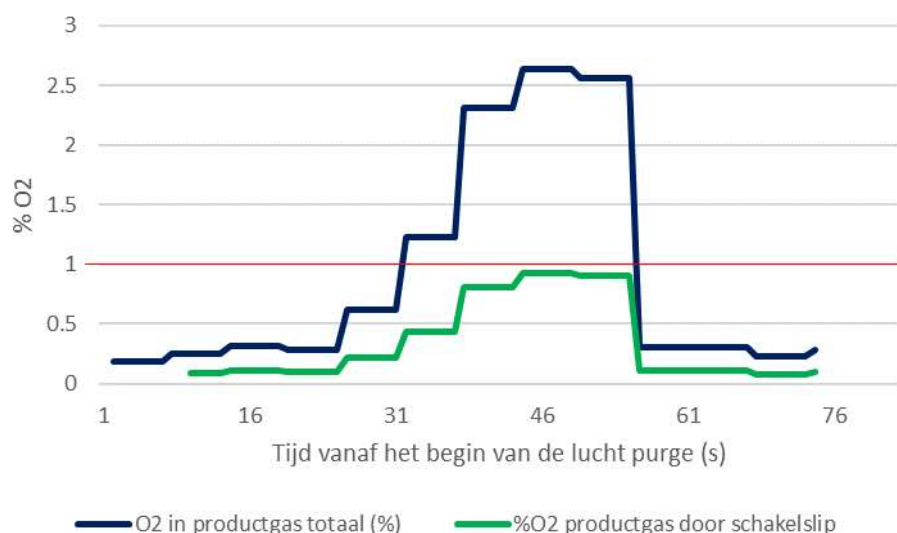
De biogasblower heeft een aanzienlijk lagere capaciteit dan de luchtblower, waardoor de luchtpurge stappen meer tijd nodig hebben om de volledige reactorinhoud te verdrijven. Hiernaast wordt tijdens de luchtpurge stappen slechts een deel van de biogasstroom door het te purgen vat geleid, en het overige deel nog over het productievat. Het gevolg hiervan is dat de optimale schakeltijden asymmetrisch zijn. De biogaspurge is voltooid in aanzienlijk kortere tijd.

### Bepaling van minimale purge tijden – biogas purge

De exacte benodigde duur van de biogas purge stap hangt af van de reactordimensies en het ingestelde luchtdebiet. Bij een debiet van 200 Nm<sup>3</sup>/h is gemeten dat bij een purge tijd van 10 seconden minder dan 1% methaan gemeten wordt in het uitgaande gas. Om deze concentratie significant lager te krijgen was een aanzienlijke langere biogas purge nodig. Na 30 seconden biogas purge werd een methaanconcentratie van nog 0,3% gemeten. Het dusdanig verlengen van de biogas purge stap zou een grote hoeveelheid extra buitenlucht naar de vergister brengen bij elke cyclus. Bij een biogas purge van 10 seconden en een totale cyclustijd van 11 minuten wordt er elk uur door de biogas purge 3 Nm<sup>3</sup> lucht naar de vergister geleid. Indien deze stap verlengd zou worden met 20 seconden om het restant methaan ook naar de vergister te leiden zal er nog eens 6 Nm<sup>3</sup> lucht naar de vergister geleid worden. Ter vergelijking, de hoeveelheid methaan die naar de atmosfeer wordt gespuid door de biogas purge niet te verlengen is ongeveer 7,5 gram per uur. Om deze redenen is gekozen de biogas purge niet langer dan 10 seconden te laten duren bij dit debiet. In Hoofdstuk 5 wordt ingegaan op mogelijke ontwerpverbeteringen die zowel de zuurstofslip naar de vergister als de methaanslip naar de atmosfeer kunnen terugdringen.

## Bepaling minimale hoeveelheid O<sub>2</sub> slip naar productgas bij de testopstelling

Door limitaties aan de omliggende infrastructuur is het lastig te bepalen hoeveel zuurstof doorslaat naar het productgas door de schakelstappen van de testopstelling. Bij het verhoogde biogasdebiet in de purge stappen wordt door een poreuze biogasleiding van de vergister buitenlucht (en dus zuurstof) aangezogen, wat er voor zorgt dat het productgas een hoog gehalte aan zuurstof krijgt voor een korte periode tijdens en direct na de purge stappen. Dit is ook het moment waarop eventuele doorslag van zuurstof uit de schakelstappen gemeten zou worden. Door de hoeveelheid zuurstof in de ruwgasmeting te vergelijken met de productgasmeting is bepaald hoeveel van de doorgeslagen zuurstof afkomstig is van het schakelmoment. Hiervoor is per meetpunt berekend hoeveel massa zuurstof gemeten is in het ruwgas en het productgas, door de gemeten concentraties te vermenigvuldigen met de debieten. Hiervoor zijn de gemeten concentraties gecorrigeerd voor de vertraging van de analyzers. Het resultaat van deze bepaling is teruggerekend naar het percentage zuurstof op een specifiek moment wat niet toe te wijten is aan de poreuze leiding, en is weergegeven in Figuur 18.



Figuur 18: Vergelijking tussen gemeten zuurstofgehalte en gecorrigeerd zuurstofgehalte

De figuur toont de gemeten zuurstofpiek tijdens het schakelmoment met de blauwe lijn, welke rond de 2,5% piekt. Deze concentratie is vijfmaal de toegestane hoeveelheid zuurstof om in te voeden. Na correctie voor de hoeveelheid aangezogen buitenlucht blijft hier echter nog maar 0,9% piekconcentratie van over. Deze concentratie is nog steeds te hoog om in te voeden, maar kan in het groengas mengvat opgemengd worden tot een zuurstof concentratie < 0,5%.

De totale zuurstofvracht die naar de vergister teruggeluid mag worden is te herleiden uit de maximale zuurstofconcentratie in het biogas. Het zuurstofgehalte in het biogas dient niet boven 0,5% te komen. Een installatie welke 6 Nm<sup>3</sup>/h biogas verwerkt zou dus maximaal 38,4 gram zuurstof (ofwel 183 gram lucht) per uur kunnen verwerken (op basis van een soortelijk gewicht voor biogas van 1,28 kg/m<sup>3</sup>). In werkelijkheid kan dit maximale gehalte iets hoger zijn in verband met oxidatie van waterstofsulfide en is een kleine hoeveelheid oxidatie van organische stof ook acceptabel (doch onwenselijk). Om te bepalen hoeveel massa zuurstof er door schakelslip naar de vergister wordt geleid dient het off-spec gas continu gemeten te worden (zowel de concentratie als het debiet). In de huidige testopstelling is het echter niet mogelijk om het off-spec gas te meten, aangezien de analyser monsters neem na de aftakking



naar de productgasleiding. Hierom kan niet bepaald worden hoeveel zuurstof er bij de huidige opstelling teruggeleid wordt naar de vergister door de off-spec leiding. Een schatting op basis van het gemiddelde percentage zuurstof in het off-spec gas en het variabele debiet in deze tijd geeft een zuurstofdoorslag naar de vergister van 141 gram zuurstof per uur, ongeveer 3,6 keer zoveel als acceptabel is.

### Combinatie van droging en adsorptie/desorptie

Het gebruikte sorbent is niet alleen geschikt om CO<sub>2</sub> uit de lucht af te vangen, maar heeft ook een zeer hoge capaciteit om water af te vangen. Één van de belangrijke stappen van het gasopwerkingsproces is de droging waarbij het gas teruggebracht wordt naar een laag dauwpunt. Het is mogelijk dat de adsorptie/desorptiecyclus van de vaste amine installatie voldoende water uit het biogas afvangt (wat tevens minder water bevat dan het normaliter bevat na de vloeibare aminewasser) om de droging over te slaan. Dit zou bij een uiteindelijke productielocatie significant de investering kunnen reduceren. Hoewel dit geen direct ontwerpdoel was, is er tijdens de proeven toch aandacht aan besteed door de bestaande dauwpuntanalyse te verplaatsen tot direct na de vaste amine installatie. Bij deze meting bleek echter dat het dauwpunt van het biogas nog altijd hoger licht dan toegestaan voor de invoeding van groengas, waardoor een na-geschakelde droger toch nodig blijkt te zijn.



## Bepaling van de maximale cyclische capaciteit (met purge)

Het bepalen van de maximale cyclische capaciteit is uitgevoerd door de hiervoor bepaalde purge tijden in te stellen, de reactortemperaturen zo hoog mogelijk te laten worden zonder de kritieke grens te overschrijden en met een relatief hoog regeneratiedebiet van ca 200 Nm<sup>3</sup>/h. Hiernaast is een relatief laag biogasdebiet van 6 Nm<sup>3</sup>/h (50% verhoogd aangestuurd tijdens purge stappen) ingesteld. De elektrische tracing was ingesteld op 60°C en de regeneratielucht temperatuur was ingesteld op 65°C. De maximale duur van de productiestap is vervolgens bepaald door de CO<sub>2</sub> concentratie in het effluent te meten en de productiestap in te korten wanneer deze concentratie doorslaat. Na elke aanpassing werd het proces enkele cyclussen gestabiliseerd en geobserveerd. De maximale cyclische capaciteit is te vinden bij de instelling waarbij consistent over meerdere cyclussen gas zonder een overdaad aan zuurstof en een overdaad aan CO<sub>2</sub> geproduceerd werd.

Deze maximale capaciteit is gevonden op 11 november 2022. De gebruikte instellingen zijn weergegeven in Tabel 7.

Tabel 7: Instellingen waarbij de hoogste cyclische capaciteit gemeten is

Parameter	Instelling
Debiet biogas	6 Nm <sup>3</sup> /h
Debiet regeneratiegas	200 Nm <sup>3</sup> /h
Temperatuur regeneratiegas	65°C
Tijd druk purge	0 sec
Tijd biogas purge	5 sec
Tijd lucht purge atmosfeer	15 sec
Tijd lucht purge gashouder	20 sec
Tijd productie	11 min
Tijd luchtspoeling	8 min 54 sec
Instelling HCV-0605	Volledig open
Verhoogde aansturing biogas blower tijdens purge	50%

Bij deze instellingen was de maximaal gemeten reactortemperatuur 73°C. Deze temperatuur werd gemeten voor een periode van 5 seconden waarna deze geleidelijk aan weer daalde. De cyclische capaciteit is bepaald door de volledige vracht CO<sub>2</sub> die verwijderd is te berekenen (op basis van het ruwgasdebiet en CO<sub>2</sub> gehalte, en het productgasdebiet en CO<sub>2</sub> gehalte). Deze capaciteit komt uit op 389 mmol/kg sorbent, wat iets lager is dan de originele ontwerpwaarde maar niet significant lager is. Met een dergelijke cyclische capaciteit en cyclussen van 11 minuten heeft een reactor waarmee 40 m<sup>3</sup>/h groengas geproduceerd wordt ongeveer 288 kg VP OC 1065 nodig (uitgaande van biogas met 40% CO<sub>2</sub>).

Bij deze instellingen is het methaanslip naar de atmosfeer minimaal. In de luchtspoelleiding kan aan het begin van de luchtspoelingsstap voor enkele seconden een methaanconcentratie van <1% (daalt snel tot 0,2% en daarna 0%) zichtbaar. Deze methaanslip kon niet verder gereduceerd worden door het aanpassen van purge tijden. Naar verwachting is het gemeten methaan te wijten aan een kleine hoeveelheid biogas wat in de spoelleiding aanwezig blijft. Desalniettemin betreft het een zeer kleine vracht methaan (ruim onder de grens van 0,5% van het totale methaan). Deze methaanslip kan verder gereduceerd worden door de cyclische capaciteit van het systeem te vergroten (en dus het aantal schakelmomenten verder te reduceren).

## Energieverbruik van de installatie vergeleken met een traditionele aminewasser

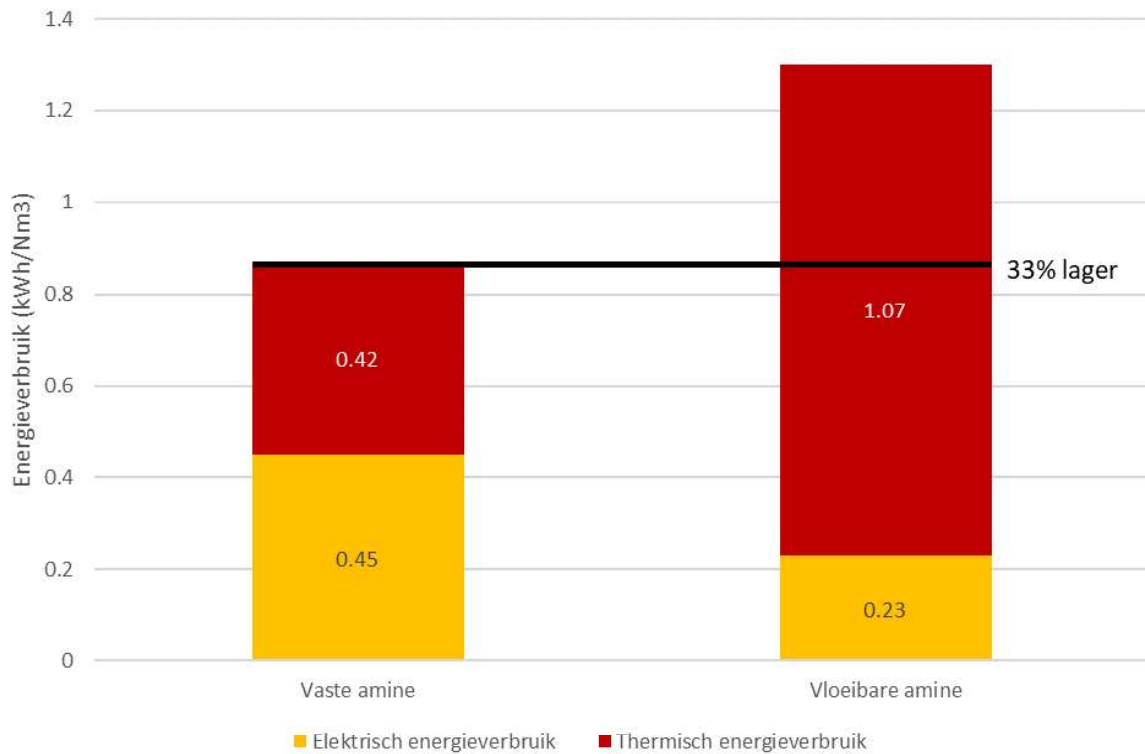
Het energieverbruik van de vaste amine installatie is een belangrijke indicator van de economische rendabiliteit van het concept. Zoals beschreven in Hoofdstuk 3 is het voornaamste voordeel van de techniek dat er efficiënt gebruik gemaakt kan worden van een thermodynamisch principe waardoor de grote thermische energievraag van de vloeibare aminewasser vervalt. Het vertalen van het energieverbruik bij de praktijkinstallatie en een vloeibare aminewasser is echter niet direct eenvoudig. De proefinstallatie verbruikt relatief veel energie per  $\text{Nm}^3$  geproduceerd groengas doordat veel van de apparatuur (meet- en regelapparatuur, droging, verlichting, ventilatie etc.) ook bij een kleine doorzet energie verbruikt. De besturing van de installatie verbruikt bijvoorbeeld evenveel stroom bij een 40  $\text{Nm}^3/\text{h}$  installatie als bij een kleinschalige pilot. Voor een correcte vergelijking tussen het energieverbruik dient hierom onderscheid gemaakt te worden tussen het variabele energieverbruik en het non-variabele energieverbruik.

De traditionele 40  $\text{Nm}^3/\text{h}$  vloeibare aminewasser van CCS Energieadvies verbruikt tijdens normale operatie 9,2 kW elektrische energie en gebruikt hiernaast 42,8 kW thermische energie voor de regeneratie van de aminevloeistof. Het vloeibare aminesysteem vervangt deze thermische energievraag voornamelijk door een elektrische energievraag voor de regeneratieblower, regeneratie heater en elektrische tracing. Hiernaast wordt een klein deel extra energie verbruikt door de compressor/stikstofgenerator aangezien er meer pneumatische kleppen schakelen.

Het elektrische vermogen van de toegevoegde onderdelen in de vaste amine installatie is in totaal verantwoordelijk voor gemiddeld 3,8 kW elektrisch vermogen (licht variabel afhankelijk van het exacte moment in de cyclus). Het totale elektrische vermogen van de installatie is gemeten op 12,4 kW. Op basis hiervan wordt gesteld dat 8,6 kW van het elektrische verbruik uitwisselbaar is tussen het vaste en vloeibare aminesysteem. Dit verbruik wordt toegeschreven aan de gemeenschappelijke onderdelen zoals de biogasblower, droging, chiller en stuurkasten.

Met uitzondering van het gemeenschappelijke deel van het elektrische energieverbruik valt dus te stellen dat het toegevoegde elektrische energieverbruik bij de vaste amine opstelling de relatief grote thermische energievraag van de vloeibare amine installatie vervangt. Op basis van het gemeenschappelijke deel valt te stellen dat de proefinstallatie voor het produceren van 6  $\text{Nm}^3/\text{h}$  groengas in totaal 3,8 kW elektrische energie verbruikt heeft (12,4 kW – 8,6 kW), wat per  $\text{Nm}^3$  groengas uitkomt op 0,63 kWh (waarvan 0,42 kWh door de heater verbruikt wordt om warmte te leveren). Bij de vloeibare amine installatie is het (thermische) energieverbruik 1,07 kWh/ $\text{Nm}^3$  geproduceerd groengas. Hierbij dient benoemd te worden dat elektrische energie en thermische energie niet evenveel waard zijn. Bij de proefopstelling wordt de thermische energie door de heater geleverd, maar bij een productielocatie zou overwogen kunnen worden om dit vermogen niet direct elektrisch te leveren.

Het gezamenlijke elektrische verbruik komt uit op 0,23 kWh/ $\text{Nm}^3$ , en is tussen beide systemen identiek. In totaal verbruikt de vaste amine installatie dus 0,45 kWh/ $\text{Nm}^3$  elektrisch en 0,42 kWh/ $\text{Nm}^3$  thermisch ten opzichte van 0,23 kWh/ $\text{Nm}^3$  elektrisch en 1,07 kWh/ $\text{Nm}^3$  thermisch bij een vloeibare amine installatie. Deze getallen zijn visueel weergegeven in Figuur 19.



Figuur 19: Vergelijking tussen het energieverbruik in een vloeibare aminewasser en de vaste amine pilot

Hoewel het totale energieverbruik lager ligt dient er te worden benoemd dat de vaste amine installatie aanzienlijk meer elektriciteit verbruikt. Sterker nog, in het geval van de proefinstallatie wordt de warmte ook direct elektrisch geleverd. Uitgaande van een elektriciteitsprijs van €0,14/kWh en een warmteprijs van €0,08/kWh (de waarde van biogas, uitgaande dat deze in een biogasketel verbrandt wordt) zijn de energiekosten van een vloeibaar aminesysteem gelijk aan €0,12/Nm<sup>3</sup> geproduceerd groengas. De energiekosten van het vaste aminesysteem komt uit op of €0,10/Nm<sup>3</sup> wanneer de warmte geleverd wordt door biogas, en zelfs €0,12/Nm<sup>3</sup> wanneer de warmte uit elektriciteit wordt gehaald zoals het geval is bij de proefinstallatie. Hoewel het systeem vanuit een energetisch perspectief dus efficiënter is betekent dit nog niet direct dat de kosten lager uitvallen.

Bij een vaste amine installatie zijn nieuwe investeringen nodig. Dit betreft kleppen, een regeneratiegasblower, nieuwe kolommen en het daadwerkelijk gebruikte sorbent. Aan de andere kant kan een deel van de investering van de originele installatie weer worden weggestreept (namelijk de absorber, inclusief sorbent en relevante pompen). De verwachting is dat de investering van de beide technieken gelijk zal zijn, waardoor het voornaamste verschil te vinden zal zijn in de operationele kosten.

## 4.3 Effectiviteit van individuele parameters op het rendement

### Effectiviteit van een derde adsorptievat

Een mogelijke verbetering voor het systeem is het plaatsen van een derde filtervat. Met een derde filtervat is het mogelijk om twee vaten te laten regenereren terwijl één vat in productie is. Effectief betekent dit dat de regeneratietijd verdubbeld wordt ten opzichte van de adsorptietijd. Het effect van een derde vat is gesimuleerd door handmatig een cyclus te draaien waarbij de desorptie verlengd werd, en hierna de productiefase door te laten gaan tot doorslag van CO<sub>2</sub> gemeten wordt. Deze meting is uitgevoerd op 25 november 2022 en gebruikte dezelfde instellingen zoals beschreven in Tabel 7, met als uitzondering de handmatig verlengde regeneratiestap welke 18 minuten en 9 seconden duurde. De cyclische capaciteit is weer op dezelfde manier bepaald en komt hier uit op 471 mmol/kg sorbent, een verbetering van 21%.

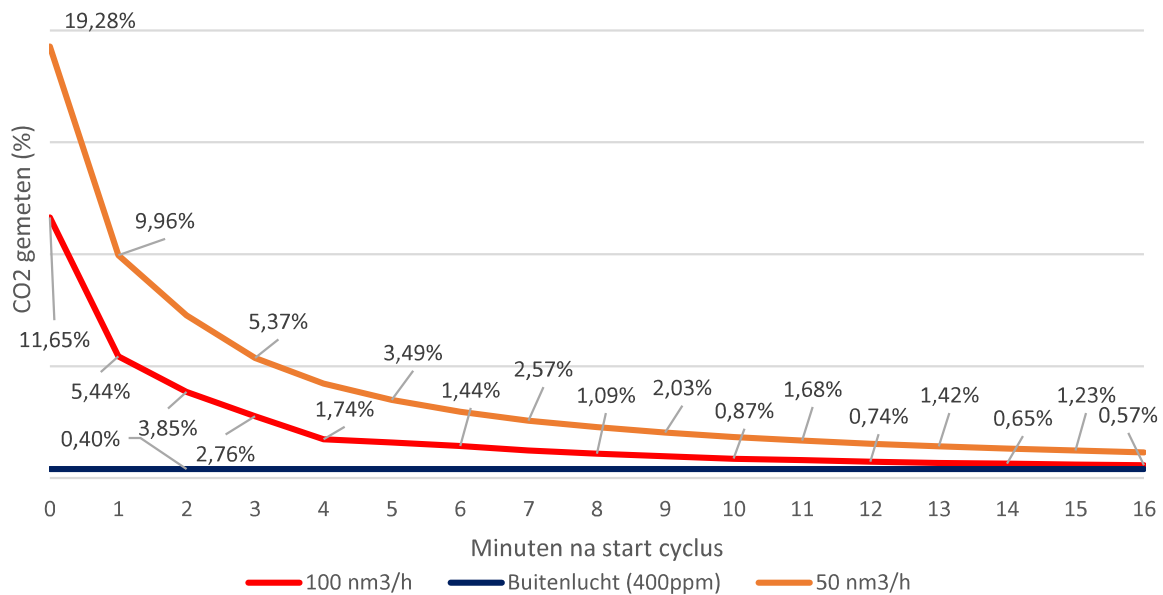
### Effectiviteit van het verhogen of verlagen van de regeneratiegastemperatuur

Het verhogen (of verlagen) van de regeneratiegastemperatuur heeft een significant effect op de cyclische capaciteit van het systeem. Door deze temperatuur te laten dalen wordt de cyclische capaciteit aanzienlijk minder. Op basis van deze observaties en de effectiviteit van het verhogen van het regeneratiedebiet wordt geconcludeerd dat de cyclische capaciteit van het systeem momenteel voornamelijk gelimiteerd wordt door de verwijdering van CO<sub>2</sub> uit het filter, specifiek door de desorptiekinetiek. Bij hogere temperaturen zal naar verwachting de cyclische capaciteit nog verder stijgen, maar de verwachte sorbentdegradatie maakt een dergelijk systeem niet realistisch.

### Effectiviteit van grotere regeneratieflow

Het blijkt dat de cyclische capaciteit van het systeem bij de huidige opstelling voornamelijk gelimiteerd wordt door de effectiviteit van de regeneratie. Deze effectiviteit kan vergroot worden door de temperatuur van de regeneratiestap te vergroten, of door de regeneratiegas capaciteit te verhogen. Het vergroten van het regeneratiedebiet zal echter slechts tot een bepaalde hoogte voordeel leveren. Om de effectiviteit hiervan in kaart te brengen is tijdens de regeneratiestap het CO<sub>2</sub> gehalte van het spoelgas gemeten aan de buitenzijde van de installatie. Deze meting is bij verschillende debieten uitgevoerd en vergeleken.

In Figuur 20 is een grafiek te vinden met de metingen over een enkele luchtspoelingsstap van 16 minuten, uitgevoerd op 23 november 2022. In de grafiek zijn twee lijnen weergegeven, welke het gehalte van CO<sub>2</sub> weergeven wat gemeten werd.



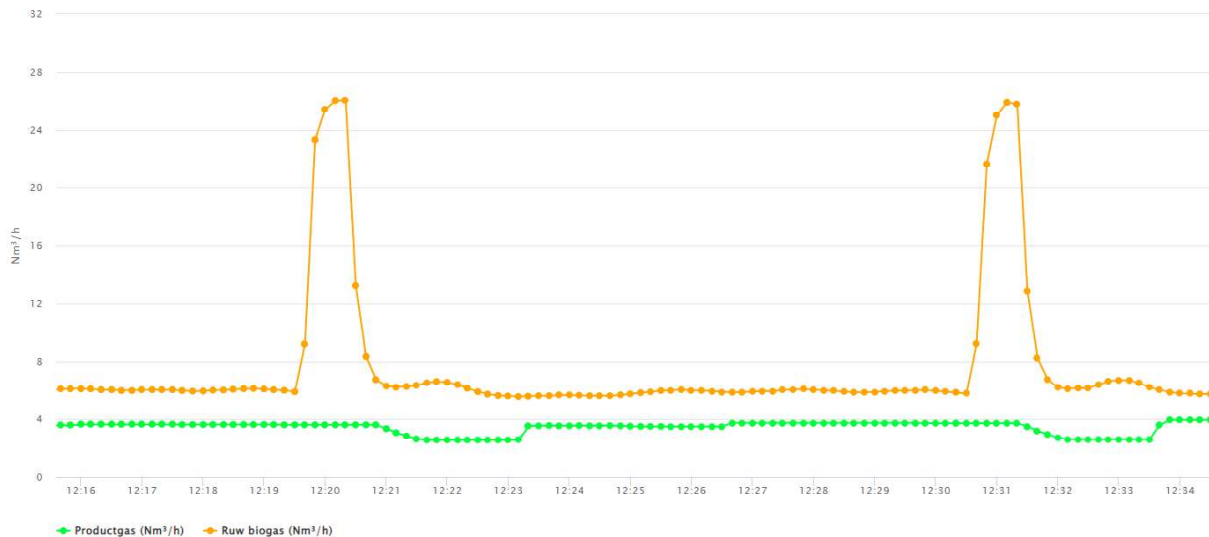
Figuur 20: Vergelijking van CO<sub>2</sub> in het effluent van de regeneratiestap bij verschillende debieten. Het percentage CO<sub>2</sub> is gemeten met de handanalyser en in de grafiek vergeleken met het CO<sub>2</sub> gehalte van 'normale' buitenlucht

De grafiek toont aan dat het begin van de regeneratiefase een zeer hoge CO<sub>2</sub> concentratie in het effluent teweegbrengt. Dit is logisch, aangezien de hoeveelheid gebonden CO<sub>2</sub> in het sorbent op dit moment zeer hoog is en er een sterke drijvende kracht is voor de desorptie naar de spoellucht. Op dit moment van de regeneratiefase is de temperatuur tevens het hoogste, zoals eerder beschreven. Na verloop van tijd wordt het gehalte steeds lager. Bij een oneindig lange regeneratiestap zou de concentratie uiteindelijk gelijk worden aan de concentratie in het spoelgas, wat in dit geval buitenlucht is (dus: een gehalte van ~400ppm of 0,04%). Bij deze metingen is aan het einde van de regeneratiecyclus nog steeds minimaal 0,57% CO<sub>2</sub> aanwezig in het gas, wat indicatief is dat er nog steeds CO<sub>2</sub> gebonden is aan het sorbent.

In de grafiek is te zien dat het CO<sub>2</sub> gehalte bij het lagere debiet van 50 Nm<sup>3</sup>/h aanzienlijk hoger is. Dit hogere gehalte is echter gecombineerd met een lager debiet, wat betekent dat de totale vracht verwijderde CO<sub>2</sub> juist lager is. Door de percentages en debieten te verrekenen blijkt dat het verhogen van het debiet van 50 Nm<sup>3</sup>/h naar 100 Nm<sup>3</sup>/h de verwijdering van CO<sub>2</sub> met 5,4% doet stijgen. Hoewel er dus meer CO<sub>2</sub> verwijderd wordt, is de investering die nodig is voor deze verwijdering significant.

### Noodzaak van een groengasbuffer

Bij de proefinstallatie is aan het einde van de installatie een klein mengvat voor groengas geïnstalleerd. Bij latere versies van de Bio-UP is geen buffer gebruikt, maar deze is bij de vamine installatie wel nodig. Een mengvat kan kleine verschillen in samenstelling van het groengas verhelpen, wat bij de vamine installatie voor drie zaken relevant is. Ten eerste is er ook in het gunstigste geval een kleine hoeveelheid menging van biogas en buitenlucht in de vaten, omdat de benodigde tijd voor volledige purge onrealistisch lang zou duren. Deze kleine hoeveelheid zuurstof die in het productgas terecht komt kan vermengd worden met een grotere hoeveelheid groengas om de concentratie van het productgas binnen de invoedeisen te houden. Hiernaast is bij de proefopstelling een fenomeen geconstateerd wat het debiet van groengasproductie sterk variabel maakt. Dit effect is weergegeven in Figuur 21.



Figuur 21: Verschil van debieten in ruwgas en productgas tijdens de cyclus. De data is afkomstig van meetpunten op 11 november 2022

De figuur toont dat het ruwgasdebiet tijdens het grootste deel van de cyclus stabiel blijft op 6 Nm<sup>3</sup>/h, maar tijdens de lucht purge stappen stijgt het debiet significant naar 26 Nm<sup>3</sup>/h. Dit komt deels door de verhoogde aansturing van de blower tijdens deze stap, maar komt ook voor een significant deel doordat het gas nu gesplitst wordt over de beide vaten. Het aandeel van het biogas wat nog door het productievat loopt is ook bij een volledig opengezette handklep en hoge aansturing lager dan tijdens de productiecyclus. De vermoedelijke oorzaak hiervan is dat het vat wat aangesloten is op de productieleiding aanzienlijk meer weerstand biedt (door het lange leidingtraject wat nog doorlopen moet worden) dan het vat wat aan het purgen is. Hierdoor loopt er altijd een groter debiet door het te purgen vat en wordt het productgasdebiet verminderd. In de figuur is te zien dat het productgasdebiet van ongeveer 4 nm<sup>3</sup>/h terugloopt naar ongeveer 2,5 Nm<sup>3</sup>/h. Dit verlies in debiet moet gecorrigeerd worden door productgas te bufferen in het mengvat en via een regelklep een consistente productie output te leveren. Een dergelijke regeling kan geautomatiseerd worden met een drukmeting in de productgasleiding.

Als laatste is een mengvat nodig omdat bij invoeding een zeer constante gaskwaliteit geleverd moet worden (+/- 0,5% CH<sub>4</sub>). Doordat de hoeveelheid verwijderde CO<sub>2</sub> niet constant is dient het productgas eerst in het mengvat geegaliseerd te worden.

### 4.3 Limitaties van de proefopstelling

#### Doorslag van zuurstof bij verhoogde aansturing

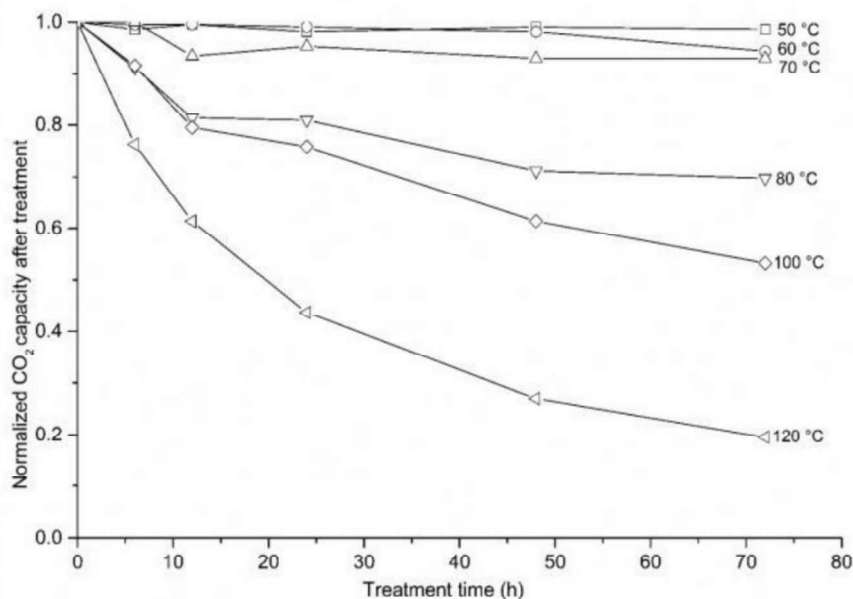
Bij de testinstallatie werd gebruik gemaakt van omliggende infrastructuur welke reeds bestond, zoals een bestaande vergister en leidingwerk. Tijdens de proeven werd duidelijk dat bij hogere gasdebieten in het ruwgas een grote hoeveelheid zuurstof werd aangezogen. De vermoedelijke oorzaak hiervoor is de leeftijd van de PVC gasleidingen tussen de Bio-UP en de vergister, welke naar verloop van tijd poreus geworden zouden zijn. Wanneer de blower een hoger debiet probeert te verpompen zorgt de onderdruk in de leidingen er voor dat er via deze lekpunten buitenlucht wordt aangezogen. Het effect hiervan is een (te) hoge concentratie zuurstof in het ruwgas en dus ook productgas, wat invoeding niet mogelijk maakt. De limitaties van de bestaande biogasleiding liggen buiten de scope van dit project en reflecteren niet op de werking van het vamine concept, maar maken het bepalen van de zuurstof doorslag bij schakelmomenten wel lastig. De meting van zuurstof in het ruwgas en productgas heeft enige vertraging, waardoor het lastig is om te verklaren of een zuurstofpiek in het productgas enkel door het ruwgas komt, of door het aanzuigen van lucht in de biogasleiding. Zoals beschreven



in paragraaf 4.3 is er een poging gedaan om te corrigeren voor dit effect door meetpunten van de ruwgasmeting en de productgasmeting met elkaar te vergelijken, maar de hoge mate van onzekerheid bij deze bepaling dient benoemd te worden.

#### Gebrek aan lange termijn metingen voor sorbent degradatie of continue metingen

Door de verschillende vertragingen in het project was het pas mogelijk om in het najaar van 2022 metingen uit te voeren welke aanvankelijk gepland stonden voor het begin van 2022. Schade aan de navergister van De Marke en problemen bij de opstart van de vergister hebben de datum van de praktijkproeven vooruit geschoven tot dit punt. Uiteindelijk is de schade aan de navergister niet gerepareerd, maar is er voor gekozen om een tijdelijke buffer te installeren op De Marke. De tijdelijke buffer betreft een 60 m<sup>3</sup> flexibele gaszak welke in een 40ft zeecontainer geplaatst is en aangesloten werd op het bestaande leidingwerk. Bij opstart van de vergister is door De Marke aangegeven dat de vergister slechts voor enkele weken in bedrijf zou zijn, waarna er geen biogas meer beschikbaar zou zijn voor verdere metingen. Door deze tijdsdruk zijn in korte tijd veel metingen uitgevoerd, maar was het niet mogelijk om een lange termijn degradatietest uit te voeren zoals aanvankelijk gepland. Een degradatietest zou de cyclische capaciteit van de reactoren over lange termijn (bijvoorbeeld 2 a 3 maanden) observeren om te bepalen of de temperatuurpieken tijdens de adsorptiefase voor degradatie van het sorbent zorgden. In het verleden zijn echter wel op laboratoriumschaal onderzoeken uitgevoerd naar de degradatie van VP OC 1065 onder verschillende temperaturen. Een relevante figuur uit deze studie is te vinden in Figuur 22.



Figuur 22: Sorbentdegradatie van VP OC 1065 onder aanwezigheid van zuurstof zoals bemeten in (Yu, Delgado, Veneman, & Brilman, 2017). Onder aanwezigheid van zuurstof werd na lange tijd geringe degradatie geobserveerd bij temperaturen tot 70°C. Temperaturen van 80°C en hoger leiden tot significant verlies van capaciteit na verloop van tijd

De figuur toont dat bij temperaturen tot en met 70°C ook na 75 uur slechts gering verlies van capaciteit geconstateerd kon worden. Het is relevant om te benoemen dat het hier gaat om 80 uur constante blootstelling aan zuurstof en hoge temperaturen. In de vamine opstelling is bij elke cyclus slechts een korte tijd sprake van blootstelling aan zuurstof en hoge temperaturen tijdens elke cyclus. Tijdens een cyclus van 11 minuten is tijdens de lucht purge nog zuurstof aanwezig in de reactor, maar stijgt de temperatuur ook significant (tot net boven 70°C) door de adsorptie van het nieuw geïntroduceerde biogas. De duur van deze situatie waarin zowel zuurstof als hoge temperatuur aanwezig is, is slechts 20 seconden (de duur van

de lucht purge biogashouder stap). Concreet betekent dit dat er bij elke cyclus van 11 minuten slechts 20 seconden zijn waarbij degradatie van het sorbent op zal treden. Uit Figuur 22 blijkt dat het sorbent na 80 uur in deze omstandigheden nog een significant deel van haar capaciteit behouden heeft (95% van de begincapaciteit). Op basis van de tijd waarin sprake is van deze omstandigheden tijdens de cyclus zou een reactor met deze instellingen dus 2475 uur kunnen opereren voordat het sorbent nog 95% van de originele capaciteit heeft. Het exacte verlies van capaciteit over nog langere periodes kan helaas niet betrouwbaar geëxtrapoleerd worden uit deze gelimiteerde dataset. Om deze cruciale ontwerpparameter verder in kaart te brengen zou verder onderzoek naar de lange termijn degradatie nog nodig zijn.

De dataset uit (Yu, Delgado, Veneman, & Brillman, 2017) toont echter wel dat er geen sprake was van meetbare degradatie bij een temperatuur van 50°C. Een systeem zou ook zo ontworpen kunnen worden dat tijdens de biogas purge de temperatuur van het sorbent niet hoger wordt dan 50°C. Een actief koelingssysteem zou bijvoorbeeld gebruikt kunnen worden om de temperatuurpiek van de adsorptiereactie af te vlakken. Een lagere temperatuur tijdens de regeneratiefase zou ook dit effect kunnen bereiken, maar is onwenselijk vanwege de significante daling van de cyclische capaciteit. Het laten dalen van de temperatuur aan het einde van de regeneratiefase is ook moeilijk te realiseren gezien de langzame aansturing van het verwarmingselement. Het regeneratiegas wordt verwarmd via een element wat niet in staat is om in korte tijd significant van temperatuur te wisselen.

#### 4.4 Procestechnische en financiële overwegingen

Het gebruiken van stalen korrels als vulmiddel van het vaste aminesysteem levert, zoals eerder beschreven, een hogere cyclische capaciteit voor het resterende sorbent door de operatietemperatuur van de regeneratiefase hoger te maken. Door een deel van de reactorinhoud te vervangen wordt echter ook een kleiner deel van de reactor gebruikt als actief oppervlakte om CO<sub>2</sub> te adsorberen, waardoor voor een gegeven gasstroom een grotere reactor nodig zal zijn. Door 30% van het sorbentvolume te vervangen met stalen korrels kan de cyclische capaciteit vergroot worden met 19% (zoals bemeten door S. Abhinav tijdens zijn masterthesis). Het resterende sorbentvolume kan dus niet voldoende meer efficiënt gemaakt worden om te compenseren voor het deel sorbent dat vervangen is met stalen korrels. Hierbij dient echter benoemd te worden dat het verminderde deel sorbent ook een voordeel heeft met betrekking tot sorbentexpansie. De bovenruimte van de reactor wordt bewust leeg gehouden in verband met expansie van het sorbent wanneer deze veel water opneemt. Op basis van expansieproeven is bepaald dat 20% van het sorbentvolume als loze ruimte bewaard dient te worden om dit effect te compenseren. Wanneer een deel van het volume gevuld wordt met stalen korrels kan de loze ruimte kleiner gemaakt worden, aangezien de stalen korrels niet uitzetten. Het effect hiervan is dat, alle aspecten meegenomen, een reactor voor een willekeurig debiet met stalen korrels slechts 14% groter hoeft te zijn dan een reactor zonder stalen korrels. Een dergelijke reactor zou wel significant besparen op de aankoop van sorbent, aangezien een relatief groot deel van de inhoud vervangen kan worden met relatief goedkope stalen korrels. Om dit effect te illustreren wordt een willekeurige gasstroom gezuiverd bij de meest ideale instellingen waarvoor 100 liter sorbent nodig blijkt te zijn. De benodigde volumes inert materiaal (stalen korrels), sorbent (vamine) en loze ruimte zijn weergegeven in Tabel 8.

*Tabel 8: Vergelijking van benodigde reactorvolume en hoeveelheden sorbent met én zonder bijmenging van 30% inert materiaal*

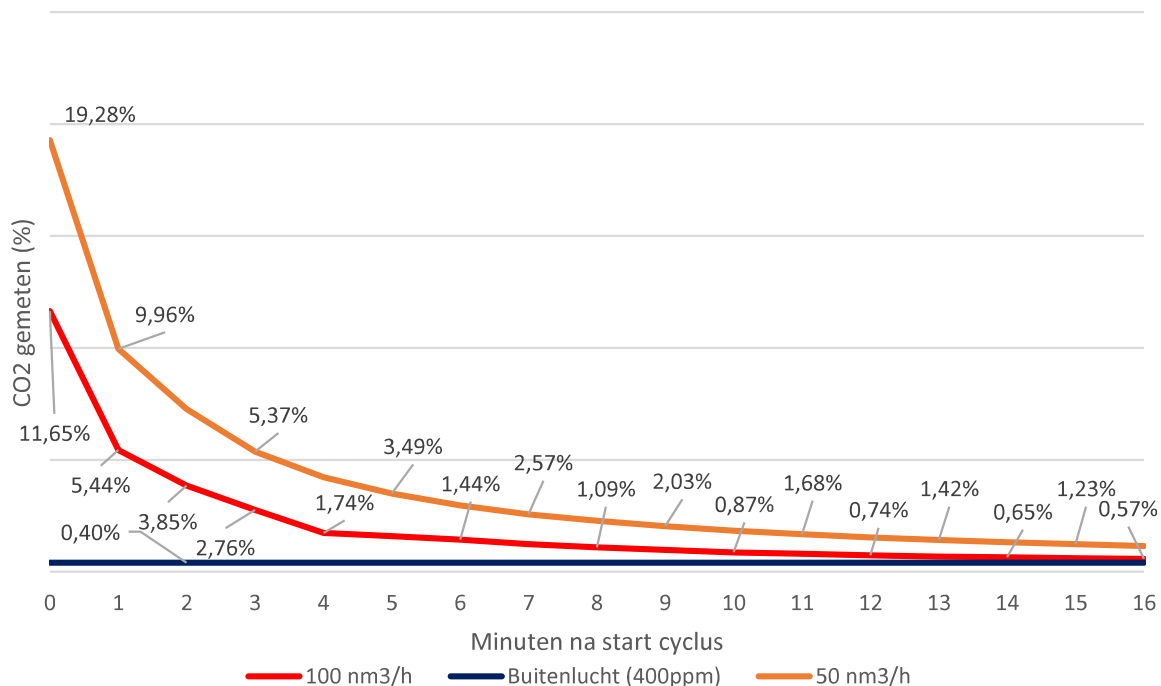
	Zonder inert materiaal	Met inert materiaal
Sorbent nodig	100 liter	84 liter
<b>Loze ruimte nodig</b>	20 liter	17 liter
<b>Inert materiaal nodig</b>	0 liter	36 liter
<b>Totaal reactorvolume</b>	<b>120 liter</b>	<b>137 liter</b>

Zoals de tabel weergeeft kan de hoeveelheid sorbent significant worden gereduceerd, en hoeft de totale reactor slechts 14% meer inhoud te hebben om dezelfde gasstroom te behandelen. Met andere woorden, een 14% grotere reactor kan compenseren voor 30% minder sorbent.

## 4.5 Alternatieve toepassingen van vaste sorbents

Binnen de context van dit project wordt vaste amine gebruikt om CO<sub>2</sub> te verwijderen uit biogasstromen, maar het afvangen van CO<sub>2</sub> is op meer vlakken toepasbaar. Carbon Capture and Storage (CCS) en Carbon Capture and Reuse (CCR) zijn twee industrieën waar veel ontwikkelingen plaatsvinden, waarbij dergelijke vaste sorbents ook toepasbaar zijn. Het hoofdzakelijke voordeel van een dergelijk vast sorbent (namelijk de lager energievraag voor het desorberen van de afgevangen CO<sub>2</sub>) kan het mogelijk maken om goedkoper CO<sub>2</sub> af te vangen uit bijvoorbeeld industriële rookgassen. Hierbij dient wel rekening gehouden te worden met de gewenste toepassing van het project.

Voor Carbon capture and Storage wordt doorgaans CO<sub>2</sub> onder hoge druk geïnjecteerd in ondergrondse ruimten voor lange termijn opslag. Voor deze techniek is het belangrijk om pure CO<sub>2</sub> als eindproduct te hebben, aangezien het onwenselijk is om de opslagruimte te vullen met atmosferische lucht of andere gassen. Voor een dergelijk proces is het concept zoals in dit rapport beschreven niet direct toepasbaar, aangezien het eindproduct hiervan een luchtstroom is met een verhoogde CO<sub>2</sub> concentratie. Zoals Figuur 20 aantoont (hieronder opnieuw weergegeven voor de overzichtelijkheid als Figuur 23) produceert dit concept een luchtstroom waarin de CO<sub>2</sub> concentratie varieert van zeer hoog (11% – 19%) aan het begin van de luchtspoelingsstap, tot relatief laag (1,23% - 0,57%) aan het einde van de luchtspoelingsstap.



Figuur 23: CO<sub>2</sub> concentratie zoals gemeten in de uitgaande luchtstroom tijdens de luchtspoelingsstap bij verschillende purgegas debieten

Dergelijke CO<sub>2</sub> concentraties zijn te laag om effectief te worden gebruikt voor Carbon Capture and Storage. Voor Carbon Capture and Storage is een traditioneel vloeibaar amine-systeem of een membraansysteem geschikter. Het is mogelijk om het vaste amine-concept aan te passen om ook pure CO<sub>2</sub> als eindproduct te leveren, bijvoorbeeld door deze te regenereren met stoom en de met CO<sub>2</sub> verrijkte stoom achteraf te laten condenseren om zo puur CO<sub>2</sub> te krijgen. Een dergelijke toepassing brengt echter een significante energievraag met zich mee,

waardoor het voordeel ten opzichte van een traditioneel vloeibaar aminesysteem minder significant is.

Dergelijke concepten op basis van een fluidised bed reactor zijn momenteel ook in ontwikkeling, zoals bijvoorbeeld de ViennaGreenCO<sub>2</sub> installatie beschreven in (Paasen, et al., 2021). Dergelijke concepten worden doorgaans toegepast in rookgasreiniging, maar zouden ook toepasbaar zijn voor grootschalige opwaardering van biogas.

Een eenvoudigere toepassing betreft het gebruik van de met CO<sub>2</sub> verrijkte lucht uit het huidige concept voor de glastuinbouw. Een gecombineerd agrarisch bedrijf waar zowel vee gehouden wordt als gewassen verbouwd worden kan gebruik maken van deze lucht om de opbrengst van specifieke gewassen te verhogen. CO<sub>2</sub> concentraties zoals gevonden in de luchtspoelingsstap kunnen in een kas bijgemengd worden om hier de gewenste CO<sub>2</sub> concentratie te bereiken van 700 – 1000 PPM. Dit is in het bijzonder interessant voor kassen waarin snelgroeiende gewassen gekweekt worden zoals eendenkroos, waarbij een relatief hoge belasting van CO<sub>2</sub> per vierkante meter oppervlakte benut kan worden.

## 5. Vamine 2.0

Naar aanleiding van de proeven bij De Marke zijn een aantal leerpunten opgedaan met betrekking tot het getoetste ontwerp. Hierbij is het ten eerste relevant om de tekortkomingen van de metingen te benoemen. Allereerst was het niet eenvoudig om de hoeveelheid zuurstof doorslag naar het productgas te meten door de eerder beschreven poreuze leidingen. Om te bepalen hoeveel zuurstofdoorslag toe te wijten valt aan de schakelmomenten (en niet de poreuze leiding) is geprobeerd een massabalans op te stellen tussen de verschillende gasstromen. Hiernaast maakt de huidige testopstelling het niet eenvoudig om de doorslag van verschillende gassen naar de atmosfeer en de vergister te meten. De methaanuitstoot naar de atmosfeer kon geminimaliseerd worden door deze met een handanalyser te meten, maar het was helaas niet mogelijk om de zuurstofvracht naar de vergister individueel te bemeten door de plaatsing van de meetpunten in de testopstelling. Ondanks het feit dat deze doorslag niet direct te bemeten viel is een schatting uitgevoerd waaruit volgt dat aanzienlijk meer zuurstof naar de vergister doorslaat dan acceptabel is in een continu opererend systeem. De auteurs van dit rapport stellen dan ook dat deze doorslag van zuurstof naar de vergister de grootste limiterende factor is voor de implementatie van het systeem.

Bij een volgend ontwerp dient de doorslag van zuurstof tijdens de schakelstappen verder te worden geminimaliseerd. Hiervoor zijn een aantal laagdrempelige oplossingen mogelijk, zoals het verder vullen van de reactor met amine. In de huidige testopstelling was een relatief groot segment van de reactor leeggelaten, wat mogelijk de turbulente mixing van gassen verergerde. Door de reactoren verder te vullen wordt niet alleen het aandeel lucht wat in de reactor aanwezig is kleiner gemaakt, maar kunnen ook de individuele cyclussen van de reactor verlengd worden (het nieuw aanwezige sorbent vergroot namelijk de capaciteit van de reactor), mits het te verwerken gasdebiet onveranderd blijft. Door het aantal schakelmomenten te minimaliseren wordt ook de hoeveelheid doorslaande zuurstof verminderd tot mogelijk acceptabele hoeveelheden.

Een vergelijkbare aanpassing betreft het vullen van de loze ruimte in de bovenzijde van de reactor met pakkingmaterialen. Dergelijke pakkingmaterialen bevorderen het propstroomkarakter van de gasstromen door grootschalige turbulentie direct na de gasinlaat te voorkomen, en het gas zo beter richting het sorbent te sturen. Door de verminderde menging is het misschien mogelijk om de purge tijden korter te maken, waardoor minder zuurstof naar de vergister geleid zal worden.

De bovengenoemde aanpassingen zijn relatief goedkoop aangezien deze gebruik maken van de bestaande opstelling zonder significante investeringen, maar de auteurs van dit rapport verwachten niet dat hiermee de zuurstofdoorslag voldoende verminderd wordt om tot een werkbaar systeem te komen. Hierom worden ook twee grondigere aanpassingen voorgesteld.

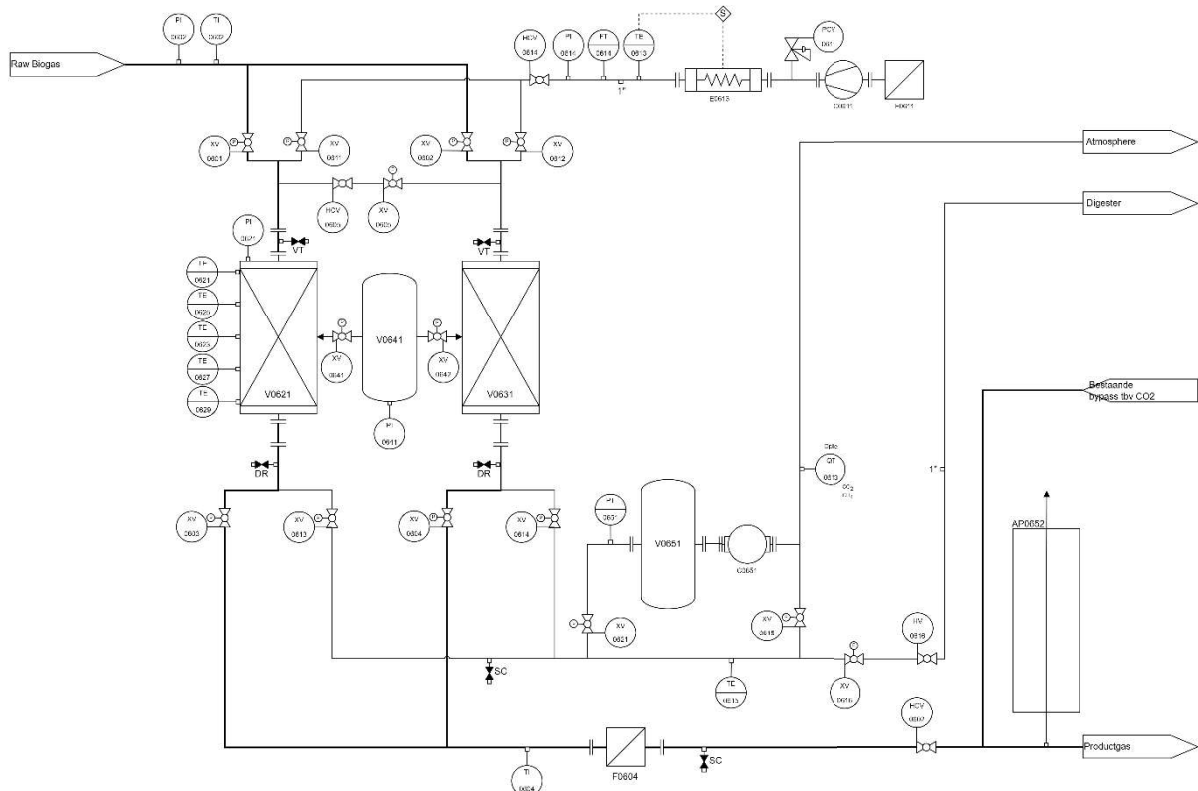
### Concept A: Loskoppelen van adsorptie en desorptietijd met een derde vat

Zoals eerder in dit rapport beschreven kan het loskoppelen van de desorptietijd de cyclische capaciteit van het sorbent vergroten, met als gevolg minder schakelmomenten en dus een verminderde zuurstofdoorslag. Door een derde vat toe te voegen wordt het mogelijk om continu twee vaten te regenereren terwijl één vat adsorbeert. Hierdoor wordt de cyclische capaciteit ongeveer 25% hoger, en wordt het aantal schakelmomenten gereduceerd met 25%. In combinatie met de andere hierboven beschreven aanpassingen (meer sorbent in de reactor, toepassen van filterpakkingen) zal de zuurstofdoorslag naar verwachting voldoende worden gereduceerd om het probleem op te lossen en tot een werkbaar proces te komen.



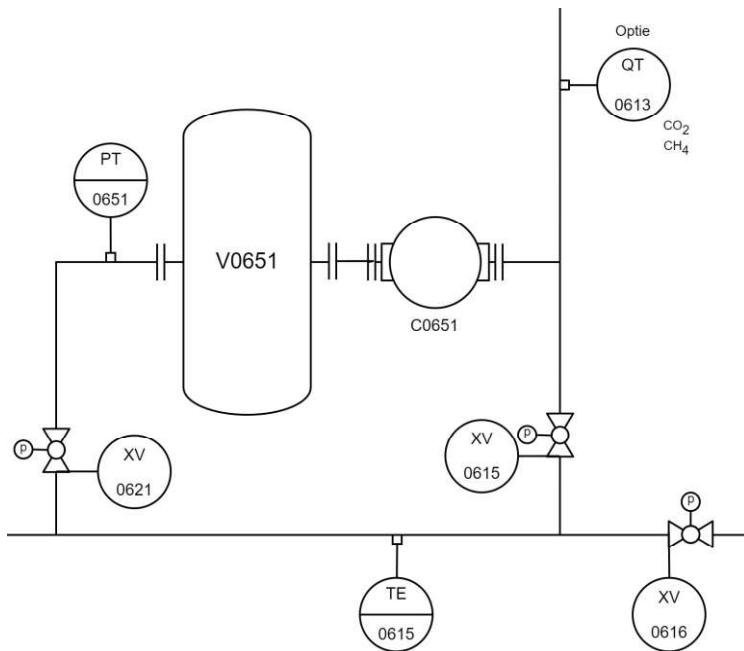
### Concept B: Toevoeging van een vacuümpomp voor evacuatie van sorbent vaten

Het tweede concept bevat meer significante aanpassingen van het systeem. De menging van lucht en biogas tijdens de lucht purge stappen is verantwoordelijk voor de hoge mate van zuurstofdoorslag naar de vergister. Een manier om deze doorslag te verminderen zou zijn door aan het einde van de luchtspoelingsstap het regenererende vat eerst (deels) te ontdoen van lucht middels een vacuümpomp. Door de hoeveelheid lucht in het vat te verminderen wordt minder lucht vermengd met biogas, waardoor minder zuurstof kan doorslaan naar de vergister. Een vacuümpomp zelf zal echter niet in staat zijn om het vat in zeer korte tijd vacuüm te trekken (of een dergelijk systeem zal dusdanig over gedimensioneerd moeten zijn dat deze te duur wordt). Hierom zal dit concept gebruik maken van een tweetal buffervaten om er voor te zorgen dat het vacuümsysteem continu kan opereren. De P&ID van dit systeem is weergegeven in Figuur 24, en wordt ook bijgevoegd in Bijlage II.



Figuur 24: P&ID van het vacuümconcept

Het ontwerp is grotendeels identiek aan de originele opstelling, maar heeft twee significante toevoegingen. Bij de lucht afvoerleiding is een parallel geschakeld circuit gekomen welke weergegeven is in Figuur 25.



Figuur 25: Vacuümpomp opstelling bij het concept

Het bovenstaande circuit bestaat uit een tweetal nieuwe pneumatische kleppen (XV0621 en XV061) welke bepalen of de luchtstroom direct naar de atmosfeer geleid wordt zoals ook nu het geval is, of dat de luchtstroom vat V0651 wordt geleid. Tijdens het grootste deel van de cyclus is XV0621 gesloten en stroomt de lucht via de bypass naar de atmosfeer. In deze tijd werkt vacuümpomp C0651 om vat V0651 op vacuüm te brengen. Wanneer de luchtspoelingsstap voorbij is wordt een nieuwe stap uitgevoerd: Lucht purge vacuumbuffer. Tijdens deze stap sluiten de invoerkleppen van het aminevat, sluiten de kleppen van de lucht atmosfeer en vergister (XV0615 en XV0616) en opent de klep van de vacuumbuffer (XV0621) voor een korte tijd. Hierdoor trekt de onderdruk van V0651 een groot deel van de lucht uit het aminevat.

Tussen de beide aminevaten is een nieuw vat gekomen (V0641) welke door middel van twee pneumatische kleppen verbonden kan worden met beide aminevaten. Vat V0641 dient als een buffer voor biogas/groengas en wordt normaliter verbonden met het aminevat wat in productiemodus is. Door de open verbinding wordt vat V0641 op druk gebracht met groengas tot een overdruk van maximaal 200 mbar ten opzichte van atmosferische druk. Aan het einde van de lucht purge vacuumbuffer die hierboven beschreven wordt opent deze klep weer om het aminevat (wat nu significante onderdruk heeft) weer bij te vullen met groengas. Wanneer de druk geëgaliseerd is kan de biogas purge beginnen zoals deze normaal ook verloopt. Hierna wordt V0641 weer op druk gebracht door het vat in productie, zodat deze bij de volgende lucht purge vacuüm buffer weer gebruikt kan worden om de druk te egaliseren. Zonder deze egalisering verwachten de auteurs van dit rapport dat de biogasblower bij het beginnen van de biogas purge problemen ervaart met de significante onderdruk aan de perszijde van de blower.

Naast het toevoegen van het vacuümcircuit is voorgesteld om een tweetal 1" aansluitingen te maken in de leiding naar de atmosfeer en de leiding naar de vergister, met eventueel een flowmeter voor de leiding naar de vergister. Het toevoegen van deze aansluiting maakt het mogelijk om een gasanalyzer aan te sluiten op alleen de retourleiding naar de vergister, en zodoende beter te kunnen kwantificeren hoeveel zuurstof teruggevoerd wordt naar de vergister.

## 6. Conclusie en aanbevelingen

Het concept van een energiezuinige opwaardeerinstallatie op basis van vaste amine waarbij thermodynamisch efficiënt CO<sub>2</sub> gescheiden kan worden is getoetst aan de hand van zowel laboratoriumopstellingen als een praktijklocatie bij een vergister. Tijdens deze metingen bleek dat het concept in staat is om groengas te produceren met een aanzienlijk lagere thermische energievraag dan een traditioneel vloeibaar aminesysteem. Het concept is echter nog niet geschikt voor commerciële toepassing door de onverwacht hoge mate waarin biogas en lucht met elkaar mengen op de schakelmomenten. Hiernaast is de lange termijn stabiliteit van het sorbent niet voldoende in kaart gebracht door de gelimiteerde beschikbaarheid van de testlocatie. Een aantal concepten zijn voorgesteld om het probleem van de zuurstofdoorslag te verhelpen bij een vervolginstallatie, welke getoetst kunnen worden door de huidige pilotopstelling aan te passen.

Indien een nieuwe testlocatie gevonden wordt kan allereerst gekozen worden om de laagdrempelige aanpassingen aan de installatie te toetsen (het verhogen van de cyclische capaciteit door de reactor verder te vullen met sorbent en het verbeteren van de propstroomkarakteristieken door de loze ruimte te vullen met pakkingmaterialen). Indien blijkt dat de zuurstofdoorslag bij deze aanpassingen nog steeds te significant zijn kan gekozen worden voor een significantere aanpassing, zoals het toevoegen van een derde vat voor verlengde desorptie of het gebruik van een parallel geschakelde vacuümpomp. Hierbij zal het gebruik van de vacuümpomp het meest significante effect behalen, maar brengt deze ook de meest significante investering en toegevoegde energievraag met zich mee. Alvorens gekozen wordt voor de gewenste aanpassing zou berekend moeten worden of een vermindering van schakelmomenten van 25% (zoals het gevolg is bij het toepassen van een 3<sup>e</sup> vat) voldoende is om de zuurstofdoorslag tot acceptabele niveaus terug te dringen. Dit kan pas bepaald worden wanneer bij een vervolgmeting vastgesteld wordt hoeveel zuurstofdoorslag gereduceerd kan worden door de laagdrempelige aanpassingen.

Bij het uitvoeren van vervolproeven is het tevens van belang dat een tweetal nieuwe aansluitpunten worden aangebracht in de luchtafvoerleiding, zodat individueel bemeten kan worden welke massastroom zuurstof naar de atmosfeer wordt geleid en naar de vergister. Het is een limitatie van de huidige testopstelling dat deze waarden niet individueel bemeten kunnen worden, en hierdoor enkel ingeschat kunnen worden op basis van een (imperfecte) massabalans.

Verdere toepassing van het vaste amineconcept in gecombineerde agrarische bedrijven kan gebruikt worden om de rendabiliteit van de techniek verder toe te laten nemen. De afgevangen CO<sub>2</sub> kan effectief benut worden voor het verhogen van de gewasopbrengst in de glastuinbouw. Directe toepassing van het beschreven concept voor CO<sub>2</sub> afvang en opslag is niet wenselijk, maar aanpassingen aan het spoelprogramma kunnen het mogelijk maken om een dergelijke installatie te gebruiken voor rookgasreiniging

## Verwijzingen

- Paasen, S., Infantino, M., Yao, J., Leenders, S., Graaf, van de, J., Klingler, A., . . . Hofbauer, H. (2021). Development of the Solid Sorbent Technology for Post Combustion CO<sub>2</sub> capture Towards Commercial Prototype. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 15 - 18.
- Yu, Q., Delgado, J. d., Veneman, R., & Brilman, D. W. (2017). Stability of a benzyl amine based CO<sub>2</sub> capture adsorbent in view of regeneration strategies. *I&EC Research*, 10-22.

