

MOOI422007

Openbare voortgangsrapportage

Verslagperiode: 11-04-2023 t/m 10-04-2024

Projecttitel: Closing Carbon Cycles with Renewable Amines (3CRA)

Projectnummer: MOOI422007

Publicatiedatum van het rapport: 09-05-2024

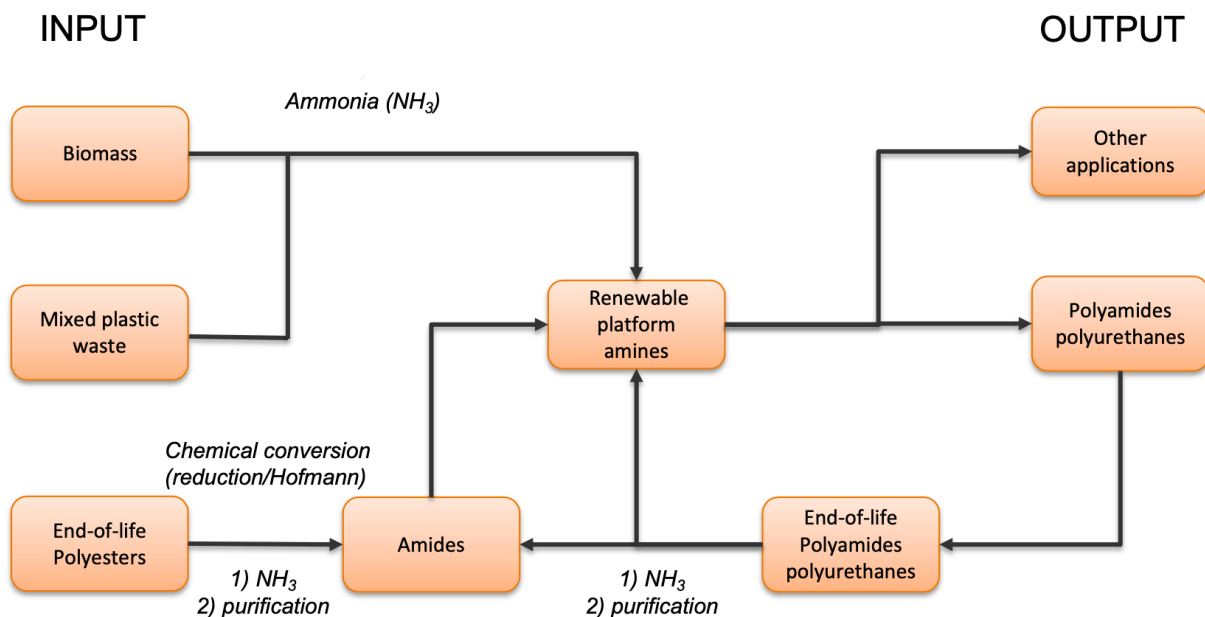
Uitgevende partner en auteur: Hanzehogeschool Groningen, dr. André Heeres

Samenvatting uitgangspunten en doelstelling van het project en de samenwerkende partijen

De productie van duurzame en circulaire bulk- en platformchemicaliën heeft zich in de afgelopen jaren met name gericht op zuurstofbevattende hernieuwbare koolstof. De duurzame synthese van zogenaamde stikstofbevattende platformchemicaliën zoals amines staat daarentegen nog in de kinderschoenen. Amines zijn belangrijke bouwstenen voor de chemische industrie en worden bijvoorbeeld gebruikt voor de synthese van polyamides (PA, markt \$30-35 miljard) en polyurethanen (PU, markt \$70-75 miljard). Veruit de meeste industrieel beschikbare amines zijn van fossiele oorsprong en het gebruik van circulaire koolstofbronnen voor hun productie zoals kunststofrecycalaat en biomassa is slechts op labschaal beschreven.

In het 3CRA project werkt een consortium van kennisinstellingen (wo, hbo) en het bedrijfsleven aan chemische re/upcycling van polyamides en polyurethanen door middel van een ammonolyse – een depolymerisatie middels ammonia (NH_3). De verkregen producten worden vervolgens gezuiverd van verontreinigingen en nevenproducten, waarbij in het geval van polyurethanen de verkregen amines opnieuw worden gebruikt voor hersynthese van het polymeer. Bij de depolymerisatie van polyamides worden de gezuiverde amides omgezet naar de overeenkomstige amines door (in situ) hydrogenering of een Hofmann-omlegging. De bovengenoemde cycli zijn met name geschikt voor end-of-life PA/PU dat niet op andere wijze gerecycled kan worden. Optredend verlies aan materiaal wordt opgevuld door synthese van amines uit biomassa (agro- of voedselreststromen) en uit end-of-life polyesters (ammonolyse). De voor de depolymerisatie benodigde ammonia kan uit groene waterstof worden gesynthetiseerd. De beoogde activiteiten voor een duurzame synthese van PU/PA en gebruik van amines voor overige bulktoepassingen staan in figuur 1 weergegeven.

Figuur 1. Duurzame synthese van polyamides/polyurethanen uit hernieuwbare amines



Door het in de keten houden van koolstof (hoge koolstof efficiency) en het aanvullen van benodigde amines voor de keten uit biomassa / end-of-life polyesters wordt, vergeleken met de huidige productieprocessen (fossiel), een significante CO₂ besparing bewerkstelligd. Het onderzoek binnen 3CRA richt zich op een aantal specifieke industrieel relevante cases/ketens en zal resulteren in economisch, ecologisch (ook veiligheid) en maatschappelijk acceptabele routes voor recycling van polyamiden en polyurethanen.

Doelstellingen

- Duurzame bereiding van een serie (di)amines uit biomassa, end-of-life kunststoffen en groene ammoniak die van belang zijn voor de synthese van polyamiden en polyurethanen (en andere toepassingen, TRL 3-4).
- Aanvaardbare (recycling)routes naar polyamiden en polyurethanen (TRL 3-5, 2026), die door (consortium)partners verder ontwikkeld kunnen worden tot commercialisatie (TRL 9, 2030-2035), waardoor deze unieke klassen van polymeren aantrekkelijk blijven voor consumentenproducten en andere toepassingen.

Onderzoeksvragen

- Zijn we in staat om nieuwe kosteneffectieve, milieuvriendelijke routes te ontwikkelen voor (di)aminen uit hernieuwbare bronnen, waaronder end-of-life (EoL) kunststoffen?
- Kunnen we oplossingen ontwikkelen voor een duurzame bereiding en EoL opties voor polyamiden en polyurethanen die voldoen aan alle eisen van circulariteit?
- Is het mogelijk om alle relevante stakeholders aan boord te krijgen voor een efficiënte implementatie en acceptatie van onze resultaten (impact)?

Ontwikkelingen die hiervoor nodig zijn

- Ontwerp van synthetische routes naar duurzame polyamiden/polyurethanen en recycling daarvan.
- Alle relevante stakeholders in een vroeg stadium van het project betrekken en aan boord houden.

Gebruik van de resultaten door de belanghebbenden na het project

- Betrokken bedrijven: Verdere ontwikkeling van 3CRA-resultaten naar commercialisering
- Betrokken kennisinstellingen: Impact creëren (publicatie, verspreiding) en implementatie van verkregen resultaten in educatieve programma's.
- Maatschappij: polyamiden en polyurethanen met unieke eigenschappen zullen op de markt blijven.

Beschrijving van de uitgevoerde activiteiten en behaalde resultaten

Binnen het project is door alle partners begonnen met experimenteel werk. Relevante grondstoffen zijn beschikbaar gesteld en er worden zowel algemene als specifieke bijeenkomsten gehouden in kleinere teams die zich bezighouden met de deelactiviteiten. Er zijn tot dusver geen knelpunten in de uitvoering van het project. Naast de technische werkzaamheden is een richtlijn opgezet voor het opzetten van een *innovation community* (IC) voor 3CRA. Voor de komende periode worden de eerste IC-focusgroepbijeenkomsten gepland rond relevante interdisciplinaire onderwerpen, inclusief de selectie en benadering van externe belanghebbenden om zich aan te sluiten en input te leveren. De connecties met belanghebbenden zijn geïdentificeerd in workshops met projectpartners via het in kaart brengen van de waardeketen en het identificeren van stakeholders.

Behaalde resultaten per mijlpaal

- *Mijlpaal 1: Synthese van een breed scala aan (di)aminen voor de bereiding van polyamiden en polyurethanen uit biomassa en afgedankte kunststoffen*
 - Verschillende kunststofafvalstromen zijn omgezet naar aromaten;
 - Biomassareststromen worden getest als feedstock voor fermentatie;
 - Fermentatie van biomassa naar 4-aminobenzoëzuur (PABA) is succesvol uitgevoerd op kleine schaal;
 - Eerste experimentele resultaten katalytische pyrolyse van biomassa en PUR grondstoffen verkregen, een nieuwe opstelling wordt voorbereid voor meer systematisch onderzoek met ammoniakbronnen;
 - Aminatie van benzeen is uitgevoerd, het materiaal wordt gecontroleerd op kwaliteit;
 - Elektrosynthese van 2,7-octaandion (2,7-OD) is uitgevoerd in een flowreactor via de Kolbe-elektrolyse van levulinezuur;
 - Proof of concept is bereikt voor de synthese van 1,8-diaminooctaan, 1,10-diaminodecaan en furaan 1,3-dipropan-1-diamine. De zuivering, optimalisatie en opschaling zijn in uitvoering.
- *Mijlpaal 2: Bereiding van duurzaam Twaron*
 - Activiteiten zijn gepland voor een latere fase van het project.

- *Mijlpaal 3: Synthese van een duurzaam polyurethaan op basis van MDI*
 - Activiteiten zijn gepland voor een latere fase van het project.
- *Mijlpaal 4: Chemische recycling van polyamiden en polyurethanen (ammonolyse)*
 - Er is speciale apparatuur voor ammonolyse-experimenten verkregen (hogedrukvat). Twaron is destructief voor kogellagers vanwege kleine harde deeltjes. Nieuwe reactordelen worden momenteel getest. Voor een controle-experiment is modelsubstraat bereid uit BHET en PPD. Conversie (depolymerisatie) is waargenomen in eerste ammonolyse-experimenten.
 - Ammonolyse van polyurethanen (op basis van MDI afkomstig van autostoelen) is succesvol uitgevoerd. Zuivering van MDA en polyolen is in uitvoering.
- *Mijlpaal 5: Isolatie van elastaan (PU) uit textiel*
 - Vanwege de effecten van de aanwezigheid van elastaan in grondstoffen voor (chemische) recycling, waaronder ernstige verkleuring van rPET, is een methode ontwikkeld voor het verwijderen van elastaan uit textiel in een voorbehandelingsproces. Dit voorbehandelingsproces wordt momenteel opgeschaald naar pilotschaal. De testen in deze opschaling zullen resulteren in monsters van het afgescheiden elastaan die geanalyseerd kunnen worden op herbruikbaarheid en recyclebaarheid. Monsters van labschaal modelsystemen zijn al gedeeld, terwijl monsters van 10kg (textielgewicht) testen momenteel worden geïsoleerd en voorbereid.
- *Mijlpaal 6: Validatie van verbeterde software voor 1-2 stellingen uit R1-R3*
 - De software is in ontwikkeling en zal worden getest met een selectie van 3CRA projectpartners.
- *Mijlpaal 7: Vragenlijst 'factoren die maatschappelijke beslissingen beïnvloeden'*
 - Er wordt een vragenlijst ontwikkeld om de belangrijkste factoren te bestuderen die duurzame beslissingen van ontwerpers, managers en andere besluitvormers binnen organisaties beïnvloeden. Op basis daarvan zullen interventies worden voorgesteld om duurzame beslissingen te bevorderen.

Perspectief voor toepassing

Amines zijn essentiële monomeren voor de productie van polyamides en polyurethanen. Polyamides vormen een belangrijke klasse van hoogwaardige kunststoffen (engineering plastics). Ook polyurethaan producten, zoals flexibele en harde schuimsoorten, zijn bruikbaar in veel verschillende toepassingen. Ze behoren tot de zes belangrijkste kunststoffen die wereldwijd worden geproduceerd en bevorderen het comfort en de veiligheid in het dagelijks leven. Beide klassen polymeren kennen tal van toepassingen in textiel, elektronica, de auto-industrie, de bouw, etc. Momenteel is recycling voor deze typen kunststof echter uitdagend en nog niet kostendekkend. Het inzamelen, scheiden, schoonmaken, verwerken en vermarkten van kunststofafval wordt door gemeenten uitbesteed aan gespecialiseerde bedrijven. Daarbij bestaat alleen een vergoeding voor gescheiden kunststofafval van verpakkingen en niet voor ander kunststof. Vooral gemengde stromen met verschillende soorten kunststof zijn verliesgevend door lage en soms negatieve prijzen. De marktprijs van de mix is zo laag vanwege beperkingen m.b.t. de kwaliteit en toepassingsmogelijkheden van gerecycled kunststof. In afwachting van gunstigere prijzen en betere recyclingtechnieken wordt een deel van het laagwaardige kunststofafval daarom nu opgeslagen of verbrand. Met chemische re/upcycling kunnen de huidige beperkingen in de toepassingsmogelijkheden van gerecycled kunststof sterk afnemen, omdat wordt teruggegaan tot de basisstoffen voor hernieuwde polymerisatie of overige toepassingen.

Om de synthese van kunststoffen als PA en PU te verduurzamen moeten er zowel nieuwe (chemische) recyclingtechnieken als duurzame syntheseroutes worden ontwikkeld en virgin amines moeten bij voorkeur uit hernieuwbare grondstoffen worden gesynthetiseerd. Het 3CRA project is met name gericht op kunststofstromen met condensatiepolymeren die op dit moment niet geschikt zijn voor mechanische/chemische recycling omdat ecologische, economische of technische aspecten niet voldoen aan de gestelde eisen. Door aangepaste regulering voor een circulaire economie mogen steeds minder virgin materialen op de markt komen. Tegelijk is de kwaliteit na huidige end-of-life methoden niet toereikend voor recycling. De beoogde processen in het 3CRA project bieden een oplossing waarmee producenten hun huidige gebruikers dezelfde kwaliteit kunnen bieden met gerecycled materiaal. Concreet worden binnen 3CRA oplossingen ontwikkeld voor het sluiten van PA en PU waardeketens waarbij hoge eisen aan het materiaal worden gesteld. Door hernieuwbare amines te winnen uit zwaar vervuilde polyesters en biomassa-reststromen worden ook deze ketens verder gesloten. Door steeds meer hernieuwbaar materiaal te hergebruiken moet gaandeweg de omslag gemaakt worden van een fossiele naar een circulaire bio-economie. Bij het project zijn relevante ketenpartners betrokken met als doel een totaaloplossing te vinden voor een duurzame synthese van platformamines uit biomassa, end-of-life polyesters en via recycling van polyamides en polyurethanen. Het einddoel is om de verkregen verbindingen vervolgens te gebruiken voor de (her)synthese van polyamides en polyurethanen.

Bijdrage van het project aan de doelstellingen van de regeling

Het 3CRA project draagt bij aan het MOOI-thema Industrie en ondersteunt MMIP6 Circulaire Kunststoffen door circulair herontwerp en processen voor de belangrijkste kunststofstromen in Nederland. Met de ontwikkeling van een combinatie van technologieën langs de gehele kunststof waardeketen wordt de basis gelegd voor gericht georganiseerde circulaire waardeketens in Nederland en Europa. Terwijl andere projecten zich vaak richten op kleine en schone afvalstromen, houdt 3CRA rekening met een breed scala aan afvalstromen (biomassa, afgedankte kunststoffen, polyesters, PU en PA) wat resulteert in een hoge milieu-impact.

Het doel van het MOOI-thema Industrie is het stimuleren van onderzoek & ontwikkeling dat bijdraagt aan de betaalbare transitie naar een schone, energiezuinige, duurzame en veilige industrie. Innovaties verminderen de milieudruk, verhogen het efficiënte gebruik van grondstoffen en leiden binnen 10 jaar tot een eerste toepassing (in 2032). MMIP6 Circulaire Kunststoffen richt zich op het verminderen van CO₂-uitstoot door de productie en het gebruik van kunststoffen. 3CRA zal naar verwachting de volgende impact hebben:

- Ontwerp van een geïntegreerd systeem van voorbehandeling, synthese en recycling van hernieuwbare materialen en end-of-life kunststofafval als grondstof voor mechanische en chemische recyclingprocessen om hoogwaardige duurzame polyamiden en polyurethanen op te leveren, resulterend in het verlagen van de koolstofvoetafdruk.
- Hoogwaardige chemische recycling. Er wordt aangenomen dat 60% van de totale hoeveelheid PA en PU in Nederlands kunststofverpakkingsafval met deze technologie kan worden gerecycled met behoud van waarde, vergeleken met de huidige prestatie van ongeveer 30%. Dit zou leiden tot een vermindering van 70 kiloton PA en PU die anders verloren zou gaan. Met deze hoogwaardige recycling worden kunststof producten niet meer gedowncycled en blijven ze als zodanig in de waardeketen, wat neerkomt op een CO₂-reductie van 160 kiloton voor elke extra recyclingcyclus.
- Er wordt een nieuw recyclingproces voor gemengd textielafval (katoenelastaan/polyesterelastaan) ontwikkeld dat leidt tot 80 kiloton gerecycled PET en een overeenkomstige CO₂-reductie van 140 kton/jaar in 2050. Ervan uitgaande dat in 2030 een fabriek van 20 kiloton wordt gebouwd, resulteert dit in een CO₂-reductie van 36 kton/jaar.
- De omzetting van 20 kiloton afgedankte polyolefinen naar een naftafractie of BTX met een hoog rendement en een laag gehalte aan onzuiverheden. Dit levert een CO₂-reductie op van 33 kton/jaar.

Samenvattend heeft 3CRA het potentieel om ~400 kiloton CO₂ eq./jaar en ~300 kiloton primaire grondstoffen in Nederland te reduceren in 2050. In 2030 verwachten we dat 50% van deze potentiële reductie gerealiseerd kan worden. Eerder werd in de Transitieagenda Kunststoffen gestreefd naar een reductie van 1 Mton CO₂ eq. in 2030 door implementatie van circulaire kunststoffen. Onlangs gaven scenarioberekeningen aan dat een doelstelling van 0,5 Mton realistischer is. Daarmee draagt 3CRA significant bij aan de klimaatdoelstellingen van het MOOI-thema Industrie.

Publicaties

- Poster gepresenteerd op de NCCCXXV, 4-6 maart 2024, Noorwijkerhout. Titel: Thermal Catalytic Cracking – Amination of Circular Feedstock for Renewable Amine, door F. Fadhli & P.J. Deuss, Rijksuniversiteit Groningen

Contactpersonen voor meer informatie

Contact kan worden opgenomen met dr. A. Heeres (06-28924846, a.heeres@pl.hanze.nl) van de Hanzehogeschool Groningen en drs. K. Zijlstra (06-14383857, kzijlstra@asqaprojecten.nl) van ASQA Projecten.