

TNO PUBLIEK

EnergietransitieWesterduinweg 3
1755 LE Petten
Postbus 15
1755 ZG Pettenwww.tno.nl

T +31 88 866 50 65

TNO-rapport**TNO 2022 R10238 | Eindrapport****Heat Integrated Distillation enabling
Innovative Ethylene crackers (HEADLINES)
Openbaar rapport**

Datum 10 februari 2022
Auteur(s) Y.C. van Delft

Aantal pagina's 24
Opdrachtgever RVO
Projectnaam HEADLINES
Projectnummer 060.33860

All rights reserved.

No part of this publication may be reproduced and/or published by print, photoprint, microfilm or any other means without the previous written consent of TNO.

In case this report was drafted on instructions, the rights and obligations of contracting parties are subject to either the General Terms and Conditions for commissions to TNO, or the relevant agreement concluded between the contracting parties. Submitting the report for inspection to parties who have a direct interest is permitted.

© 2022 TNO

BRONSWERK
HEAT TRANSFERInstitute for
Sustainable
Process Technology

TNO PUBLIEK

Samenvatting

Introductie

Het kraakproces vormt het hart van de chemie. Doordat het kraakproces weinig selectief is, dient de productstroom downstream te worden gescheiden, hetgeen leidt tot een hoog energiegebruik en daarmee tot hoge CO₂-emissies. Hoewel er vele incrementele verbeteringen zijn doorgevoerd in de loop der jaren, is de opzet van het kraakproces grotendeels gelijk gebleven. Om tot substantieel lagere CO₂-emissies te komen zijn radicale innovaties noodzakelijk.

De warmte-integratie binnen het kraak- en scheidingsproces kan sterk vereenvoudigd worden door toepassing van de Heat Integrated Distillation Column, oftewel HiDiC. Deze technologie is een zeer efficiënte distillatiekolom waarin stripper en rectifier bij verschillende drukken worden bedreven, zodat warmte overgedragen kan worden tussen de delen van de kolom. Het systeem werkt als een warmtepomp, waarbij de elektrische energie, die aan de compressor wordt geleverd, de drijvende kracht is. Behalve vereenvoudiging van de warmte-integratie en een reductie van het energiegebruik, past deze technologie ook in de doelstelling om processen in de chemie te elektrificeren waarbij (duurzame) elektriciteit de inzet van (fossiele) brandstoffen vervangt.

Doelstelling van het project

De ambitie van het HEADLINES project is om een belangrijke stap te zetten richting het op pilotschaal testen van de HiDiC-technologie. Voordat de pilotfase wordt bereikt dienen meerdere aspecten nader te worden uitgewerkt: onder andere de businesscase, ontwerpmethoden en de experimentele validatie op bench-schaal. Het doel van het HEADLINES project is om aan het einde van het project een veldtest uit te kunnen voeren.

Resultaten

De partners hebben de implementatie van de HiDiC-technologie in het kraakproces en in andere toepassingen geëvalueerd om de economische voordelen van deze nieuwe technologie voor distillatieprocessen te bepalen, zowel in greenfield- als retrofit-toepassingen. De energiebesparingen in de Nederlandse industrie zijn aanzienlijk: in 2030 kan de toepassing van HiDiC leiden tot een CO₂-emissiereductie van 110-280 kt/jaar en 2-5 PJ/jaar energiebesparing.

De belangrijkste resultaten binnen het project zijn:

- Voor destillatiekolommen zonder warmte-integratie is de toepassing van HiDiC zeer voordelig en levert de HiDiC een besparing van maximaal 81% van de totale warmtevraag van de kolom. De gemiddelde energiebesparing van een HiDiC ten opzichte van een conventionele kolom is 30 tot 50%. Dit resulteert in een 4 tot 7 keer lagere OPEX en daarmee lagere totale jaarlijkse kosten.
- In scheidingsprocessen met een sterk geïntegreerde warmtehuishouding, zoals het kraakproces, is vervanging van de scheidingssectie door een HiDiC niet gunstig. Toepassing van HiDiC in het etheen productieproces zorgt voor een kleinere reboiler en condensor. Echter de lagere reboilercapaciteit heeft een negatief effect op de koelsectie, waardoor uiteindelijk de energiebesparing met de HiDiC teniet wordt gedaan.

- De voorbereidingen voor een veldtest in een ethyleenfabriek, een proces met een sterke warmte-integratie, zijn stopgezet, maar er zijn kansrijke toepassingen met grote energiebesparingen geïdentificeerd zoals de productie van hernieuwbare methanol, ethyleenoxideproductie en MDI-productie. De toepassing van HIDiC in bioraffinage levert 80% energiebesparing op. HIDiC-toepassingen in combinatie met reactieve destillatie kunnen leiden tot meer dan 20% energiebesparing, maar zijn complexer vanwege de plaatpakking.
- De plaatpakking HIDiC presteert beter dan een standaard gepakte kolom, omdat flooding pas bij hogere dampsnelheden optreedt. Hierdoor is de capaciteit van de destillatiekolom groter of is de CAPEX bij een vaste capaciteit lager. De uiteindelijke HIDiC capaciteit is twee keer zo groot als van een standaard gepakte kolom. Verdere analyse van de experimentele resultaten is nodig om een nieuwe floodingvergelijking voor de plaatpakking HIDiC op te stellen, die gebruikt kan worden in de modellering. Ook is verder onderzoek nodig naar de impact van de verhoogde capaciteit op de proceseconomie van de voorziene toepassingen.
- Voor de ontwikkeling van de HIDiC-technologie van TRL4 naar TRL6 moeten een aantal technologische uitdagingen worden aangepakt, namelijk de ontwikkeling van een meerkanaalssysteem met integratie van strip-/rectifiersectie; verlaging van de drukval over een groot plaatoppervlak, fabricage (manifolding, afdichting, vloeistofverdeling), ontwikkeling van reinigings- en onderhoudsstrategieën en de integratie van de compressor.
- De rate-based modellering van de HIDiC was niet succesvol. Door de keuze van modelvariabelen bleef convergentie van de vergelijkingen een probleem en kon het model niet worden gevalideerd met experimentele resultaten. Dit onderwerp blijft belangrijk en verdient aandacht in een vervolgproject.

Inhoudsopgave

	Samenvatting.....	2
1	Gegevens project	5
2	Penvoerder en partners	6
3	Achtergrond en doelstelling van het project.....	7
3.1	Introductie	7
3.2	Doelstelling en scope van het project.....	8
4	Werkwijze en resultaten	9
4.1	Werkwijze.....	9
4.2	Resultaten.....	10
5	Knelpunten en perspectief op toepassing	21
5.1	Knelpunten	21
5.2	Vervolgprojecten	21
6	Bijdrage aan de doelstelling van de regeling	22
7	Disseminatie	23
8	Handtekening.....	24

1 Gegevens project

Projectnummer	TEEI117005
Projecttitel	Heat Integrated Distillation enabling Innovative Ethylene crackers (HEADLINES)
Projectleider	TNO
Projectpartners	Dow Benelux, Technip Energies, Bronswerk, ISPT
Projectduur	01.11.2017 – 01.11.2021

Dit project is gefinancierd door het Ministerie van Economische Zaken, Nationale Verordeningen EZ-subsidies, Topsector Energie uitgevoerd door de Rijksdienst van Ondernemend Nederland.

Contactpersonen

TNO	Yvonne van Delft yvonne.vandelft@tno.nl
Bronswerk	Johan van der Kamp kamp.bronswerk@gmail.com
Technip Energies	Marco van Goethem marco.vangoethem@technipenergies.com
ISPT	Nathan Bowden nathan.bowden@ispt.eu
Dow Benelux	Cees Biesheuvel cbiesheuvel@dow.com

2 Penvoerder en partners

Naam	Type	Rol in het project
Bronswerk	MKB	Apparatenbouwer, evaluatie van het mechanisch ontwerp
Technip Energies (T.EN)	Industrie	Beoordelen in hoeverre de HIDiC-technologie toepasbaar is voor innovatieve ethyleenkrakerconcepten
ISPT	MKB	Disseminatie, toegang tot industrieel netwerk, programma coördinator
Dow Benelux	Industrie	Eindgebruiker, levert de operationele eisen inclusief criteria
TNO	Kennisinstelling	Coördinator, technologieleverancier, testen

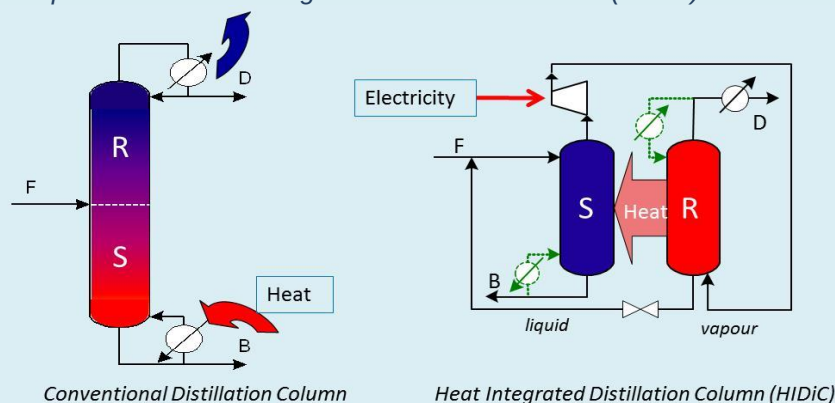
3 Achtergrond en doelstelling van het project

3.1 Introductie

Het kraakproces vormt het hart van de chemie. Doordat het kraakproces weinig selectief is, dient de productstroom downstream te worden gescheiden, hetgeen leidt tot een hoog energiegebruik en daarmee tot hoge CO₂-emissies. Om het energiegebruik te beperken is de warmtehuishouding van de plant volledig geïntegreerd. Hoewel er vele incrementele verbeteringen zijn doorgevoerd in de loop der jaren, is de opzet van het kraakproces grotendeels gelijk gebleven. De hoge mate van integratie maakt het daarbij moeilijk nieuwe unit operations te gebruiken. Om tot substantieel lagere CO₂-emissies te komen zijn radicale innovaties noodzakelijk.

De warmte-integratie binnen het kraak- en scheidingsproces kan sterk vereenvoudigd worden door toepassing van de Heat Integrated Distillation Column, oftewel HIDiC. Deze technologie is een zeer efficiënte distillatiekolom waarin stripper en rectifier bij verschillende drukken worden bedreven, zodat warmte overgedragen kan worden tussen de delen van de kolom. Het systeem werkt als een warmtepomp, waarbij de elektrische energie, die aan de compressor wordt geleverd, de drijvende kracht is. Behalve vereenvoudiging van de warmte-integratie en een reductie van het energiegebruik, past deze technologie ook in de doelstelling om processen in de chemie te elektrificeren waarbij (duurzame) elektriciteit de inzet van (fossiele) brandstoffen vervangt.

Het principe van een Heat Integrated Distillation Column (HIDiC)



Het principe van de HIDiC-technologie is weergegeven in de twee bovenstaande figuren. Het scheidingsproces in de conventionele kolom aan de linkerkant wordt aangedreven door de warmte die wordt toegevoerd aan de reboiler onderaan de kolom. De warmte wordt bij een lagere temperatuur aan de bovenzijde van de kolom afgevoerd.

In de HIDiC wordt aan de rechterkant de rectifier (R), die normaal op een lagere temperatuur werkt, op een hogere druk bedreven dan de stripper (S). Daarom kan de warmte van de condenserende stroom in de rectifier worden gebruikt om een deel van het mengsel in de stripper te verdampen. Externe warmtewisseling is beperkt tot een kleine condensor om de overtollige warmte af te voeren en indien nodig bij het opstarten van het systeem. Het systeem werkt als een warmtepomp, waarbij de elektrische energie, die aan de compressor wordt geleverd, de drijvende kracht is.

3.2 Doelstelling en scope van het project

In een HiDiC worden stripper en rectifier bij verschillende drukken bedreven, zodat warmte overgedragen kan worden tussen de delen van de kolom. Experimenteel is op bench-schaal de daarvoor benodigde goede stof- en warmteoverdracht aangetoond. Binnen het HEADLINES project wordt dit vertaald naar het ontwerp van een full-scale distillatiekolom en wordt onderzocht hoe de HiDiC technologie kan worden geïntegreerd in het kraakproces voor de productie van etheen. De hoofdvragen zijn: hoe groot de CO₂-emissie is die bereikt kan worden en hoe de CAPEX en OPEX zich verhouden tot een conventioneel ontwerp.

De impact van implementatie van HiDiC technologie in het kraakproces is groot. De ontwikkeling van de technologie vergt echter nog grote investeringen. Onzekerheden op het gebied van de business case en op het gebied het proces- en mechanisch-ontwerp dienen weggenomen te worden. Een belangrijke stap in dat traject is het uitvoeren van een veldtest. De doelstelling van het HEADLINES project is om de kennis te ontwikkelen, die nodig is voor het ontwerp van een dergelijke unit, zodat aan het eind van het project een beslissing genomen kan worden over het uitvoeren van deze cruciale stap in de ontwikkeling van de technologie. De scope van het project en de onderwerpen die zijn aangepakt om de veldtest mogelijk te maken, worden weergegeven in Tabel 1.

Tabel 1: Scope van het HEADLINES project

Onderwerp	Beschikbaar voor start pilotfase (TRL6)	Prioriteit	In scope HEADLINES
Proces integratie	- Conceptueel ontwerp kraakproces met geïntegreerde HiDiC kolommen - Positieve business case		- Positieve business case - Procesevaluatie van conceptueel ontwerp
Proces ontwerp	- Gevalideerde modellen voor HiDiC ontwerp - Ontwerp methodologie beschikbaar		- Gevalideerd HiDiC model - Ontwerp regels
Mechanisch ontwerp	- Gedetailleerd ontwerp pilot unit - Grootschalig kolom ontwerp		- Evaluatie van impact druk-resistente pakking
Prototyping	- Meer-kanaalsysteem inclusief compressor geverifieerd		- Basis ontwerp meer-kanaalsysteem
G/L distributie	- Schaalbaar ontwerp voor de vloeistofverdeler - Criteria voor maldistributie		- Criteria gedefinieerd
Operability	- Dynamisch model voor HiDiC - Robuust control strategie gevalideerd met dynamisch model		- Literatuurstudie dynamisch modellering - Criteria gedefinieerd

4 Werkwijze en resultaten

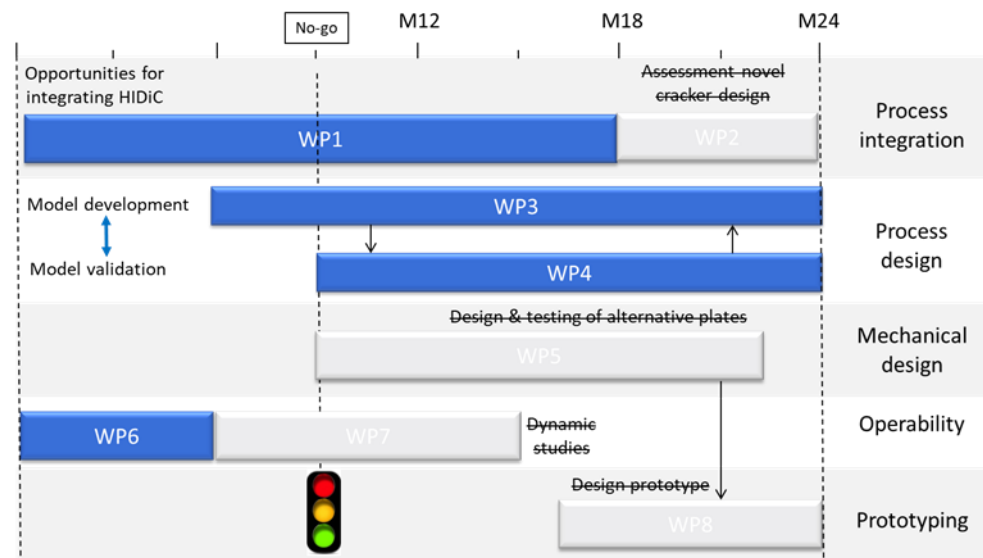
4.1 Werkwijze

Het project is verdeeld in werkpakketten. De oorspronkelijke onderverdeling in werkpakketten is weergegeven in Tabel 2.

Tabel 2: Overzicht van de oorspronkelijke werkpakketten

WP	Korte beschrijving	Partners	Resultaten
1	Mogelijkheden voor HIDiC integratie	T.EN, Dow, TNO	Integratie opties geïdentificeerd
2	Assessment nieuw krakerontwerp	T.EN, Dow	Impact op performance en economie geverifieerd
3	Modelontwikkeling	T.EN, TNO	Gevalideerde ontwerptool
4	Modelvalidatie	T.EN, TNO	Validatie HIDiC model
5	Nieuwe kolom pakking ontwerp	Bronswerk, TNO	Nieuwe pakkingen, mechanisch ontwerp, warmte en massa overdracht gekwantificeerd in het lab
6	Operationele eisen	Dow, TNO	Operationele eisen geïdentificeerd
7	Dynamische studies	Dow	Dynamische onderwerpen geadresseerd
8	Ontwerp geïntegreerde test unit	TNO	Veldtest ontwerp en kostenschatting
9	Disseminatie	ISPT, TNO, T.EN	Publicaties, netwerk, IP mogelijkheden beoordeeld
10	Project coördinatie	TNO	Passende maatregelen genomen om projectresultaten te behalen

Het project is gestart met een eerste beoordeling van het potentieel van de HIDiC-technologie in WP1. Dit heeft geleid tot een no-go beslissing. Op basis van de resultaten van WP1 hebben de partners besloten dat er geen duidelijke argumenten waren voor integratie van de HIDiC-technologie in het kraakproces. Na de no-go-beslissing is het project aangepast. Figuur 1 vat de projectstructuur na het no-go-besluit samen. De resultaten van het project zijn nu bereikt in WP1, WP3 en WP4. WP1 is verlengd tot M18 om het Nederlandse potentieel voor HIDiC in andere toepassingen te beoordelen. De activiteiten rond modelontwikkeling (WP3) en validatie (WP4) zijn later gestart en verlengd naar M24. Een eerste beoordeling van de operability is uitgevoerd in WP6, maar is niet voortgezet in WP7. De activiteiten met betrekking tot het mechanisch ontwerp, inclusief experimenteel werk aan alternatieve pakkingen in WP5, zijn niet gestart en een nieuw krakerontwerp is niet geëvalueerd (WP2) in de resterende tijd van het project.



Figuur 1: Aangepaste projectstructuur na het no-go besluit

4.2 Resultaten

WP1: Mogelijkheden voor HiDiC integratie

Doel

- Een eerste inschatting of introductie van de HiDiC-technologie in een nieuw krakerconcept zal leiden tot een substantiële energiebesparing;
- Inzicht in de concurrentiekracht van de HiDiC-technologie in nieuwe krakerconcepten;
- Beoordeling van het Nederlandse potentieel voor HiDiC.

Resultaten

- Een rapport over de mogelijke impact van HiDiC in het kraakproces;
- Een rapport over concurrerende technologieën;
- Een rapport over het HiDiC-potentieel in Nederland;
- Go/no-go beslissing voor integratie van de HiDiC technologie in het kraakproces.

Resultaatbeschrijving

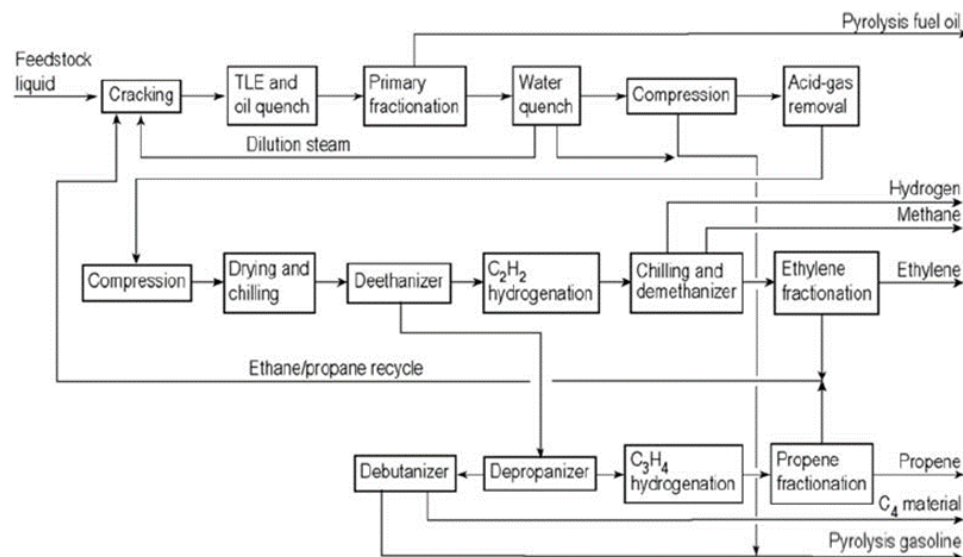
Potentiële impact van HiDiC in het etheen productieproces

Destillatie wordt veel gebruikt in de raffinage-, petrochemische, voedings- en andere procesindustrieën. Het nadeel van destillatie is dat het veel energie verbruikt. De warmte-geïntegreerde destillatiekolom (HiDiC) is een procesintensificatieconcept dat is ontwikkeld om aanzienlijke energiebesparingen te realiseren in vergelijking met conventionele kolommen.

Het doel van dit werkpakket was om een eerste inschatting te maken of de HiDiC-technologie voldoende potentie heeft voor toepassing in het etheen productieproces (zie Figuur 2). De vier onderstaande criteria zijn gebruikt om het succespotentieel te beoordelen:

- Energiebesparing;
- Bruikbaarheid voor een breed scala aan toepassingen;
- CAPEX kan hoger zijn dan in conventionele processen, maar moet verantwoord en betaalbaar zijn;
- Hoge beschikbaarheid / betrouwbaarheid en bedieningsgemak.

Ook werd overeengekomen dat in de beginfase van het project de eerste twee criteria het meest relevant zijn. Deze twee criteria zijn gebruikt om een go/no-go-beslissing te nemen over het al dan niet doorgaan met de pilot voor het etheen productieproces. De andere twee criteria zouden in een later stadium worden bekeken als het project wordt voortgezet.



Figuur 2: Schematisch overzicht van het kraakproces voor etheenproductie met een front-end de-ethanizer¹. Ethylene fractionation = C2 splitter, Propene fractionation = C3 splitter

Allereerst is het energiebesparing van een HIDIc bepaald voor de C2 splitter. De C2 splitter is namelijk de grootste energieverbruiker in het etheen productieproces. In deze kolom vindt de scheiding tussen ethaan en etheen plaats. De resultaten laten zien dat toepassing van HIDIc als C2 splitter zou leiden tot een netto toename, in plaats van de verwachte afname, van het totale energieverbruik. HIDIc leidt tot een besparing van 4677 kW aan asvermogen van de C3R-compressor, maar dit wordt te niet gedaan door de 7924 kW die vereist is voor de HIDIc compressor. Hierdoor is het stroomverbruik in de HIDIc Case 3247kW hoger dan in de Base Case (conventionele) kolom.

Vervolgens is de toepassing van HIDIc voor de de-ethanizer en de C3 splitter met warmtepomp doorerekend. Bij de de-ethanizer bleek dat HIDIc zou leiden tot een netto toename van het energieverbruik. De enige kolom waar een HIDIc energie besparing opleverde was de C3 splitter met warmtepomp, maar de besparing was vrij bescheiden.

Het ontbreken van energiebesparing in twee grote kolommen, namelijk de C2 splitter en de de-ethanizer, brengt ons tot de conclusie dat HIDIc niet voldoet aan het energiebesparingscriterium. Een HIDIc kan energiebesparing opleveren in enkele kleinere kolommen of onder bepaalde omstandigheden, zoals in het geval van de C3-splitter met warmtepomp, maar dat zijn kleine of nichetoepassingen. Daarom hebben we geconcludeerd dat de technologie ook niet voldoet aan het brede toepasbaarheidscriterium. Het consortium heeft de resultaten besproken en was het er unaniem over eens dat er niet aan de twee criteria wordt voldaan. Er is besloten

¹ H. E. Zimmermann and L. E. Division, "Ethylene," 2010, doi: 10.1002/14356007.a10.

om niet door te gaan met de voorbereidingen voor een veldtest in een ethyleenfabriek en in plaats hiervan op zoek te gaan naar andere toepassingen die baat hebben bij de toepassing van HiDiC. Hiervoor is een extra studie gedaan van het Nederlandse potentieel voor HiDiC in andere toepassingen.

Nederlands potentieel voor HiDiC

Potentiële markten voor een HiDiC-toepassing in de chemische, petrochemische industrie en bioraffinage zijn geëvalueerd. Voor HiDiC toepassing in de chemische en petrochemische industrie is gebruik gemaakt van een TNO database van destillatiekolommen in Nederland. Deze database bevat 117 kolommen van 40 processen. Hoewel deze database geen volledige lijst is van alle destillatiekolommen in Nederland, vertegenwoordigt deze een groot deel van de meest energie-intensieve destillatiekolommen in de Nederlandse industrie. Een ommissie in de database is de cryogene luchtscheiding, die apart wordt behandeld.

Kolommen die geschikt zijn voor HiDiC zijn kolommen, waarvoor warmte-integratie in het proces niet mogelijk is en waarbij het temperatuurverschil tussen condensor en reboiler $\leq 45^{\circ}\text{C}$ is. Voor grotere temperatuurverschillen is een hoge compressiecapaciteit nodig, die de besparingen door interne warmte-integratie te niet doet. Op basis van deze analyse ligt de berekende potentiële energiebesparing voor de chemische, petrochemische industrie in Nederland in de range van 2-5 PJ/j, waarbij het laatste getal inclusief cryogene luchtscheiding is. De toepassing van HiDiC is verspreid over verschillende processen, met beperkte besparingen per toepassing. De grootste besparingen zijn voor 1-buteenproductie (verschillende scheidingskolommen) en de splitter bij benzeenproductie.

Bioraffinage kan een belangrijke toekomstige markt zijn voor HiDiC. Hoewel het meeste onderzoek in bioraffinaderijen zich tot nu toe richt op conversie- of voorbehandelingsstappen, zitten de grootste kosten in de downstreamverwerking van biobased chemicaliën en biobrandstoffen vanwege de lage productconcentraties en een grote hoeveelheid onzuiverheden in de productstroom. Verschillende studies laten een potentiële energiebesparingen tot 80% zien voor HiDiC-toepassing in HMF², bio-ethanol³, bio-methanol⁴, butanol, azijnzuurproductie³ en lipide-extractie⁵. Toepassing van HiDiC in reactieve destillatie voor de productie van 2-methoxy-2-methylbutaan (TAME), ethylacetaat en ethyleenglycol is ook onderzocht. Hoewel er meer dan 20% energiebesparing wordt gevonden, is een reactieve HiDiC met een plaatpakking complexer, omdat de katalysator tussen de platen moet worden geplaatst.

HiDiC-technologie in nieuwe krakerconcepten

Om de doelstellingen voor de uitstoot van broeikasgassen te halen, overweegt de industrie om hun processen te elektrificeren. De introductie van elektrisch aangedreven naftakraken om de CO₂-uitstoot te verminderen zal leiden tot een verschuiving in de interne energiebalans van het etheen productieproces. Traditioneel kraken van nafta produceert grote hoeveelheden oververhitte

² P. Lutze, An Innovative Synthesis Methodology for Process Intensification, in, DTU, 2011.

³ B. Kiran, A.K. Jana, A hybrid heat integration scheme for bioethanol separation through pressure-swing distillation route, Separation and Purification Technology, 142 (2015) 307-315

⁴ A.A. Kiss, Ž. Olujić, A review on process intensification in internally heat integrated distillation columns, Chemical Engineering and Processing: Process Intensification, 86 (2014) 125-144.

⁵ C. Fushimi, C. Tachibana, R. Tomita, M. Sakurai, Optimization of Energy Consumption and Cost in Solvent Recovery Section for Large-Scale Biofuel Production from Microalgae, Journal of Chemical Engineering of Japan, 51 (2018) 809-816.

hogedrukstoom die wordt gebruikt in downstream scheidingsprocessen, waardoor er geen extra energievoorziening nodig is. Bij elektrisch kraken zal de hoeveelheid hogedrukstoom uit de naftakraker afnemen tot een niveau dat niet voldoende is om downstream scheidingsprocessen te verwarmen, wat resulteert in een externe energiebehoefte en bijgevolg in mogelijkheden voor energie-efficiëntiemaatregelen.

Het potentieel van HIDiC in de downstream van een geëlektrificeerde naftakraker is geëvalueerd. Hiervoor is een model van de naftakraker ontwikkeld, gebaseerd op Ullmann's ethyleen procesgegevens¹, om een energiebalans te maken van de verschillende stappen in het kraakproces. De vier kolommen in het etheen productieproces, die kunnen worden vervangen door een HIDiC zijn de de-propanizer, de de-butanizer, de C2 splitter en de C3 splitter. Daarnaast is, om analyses van de energiebalans en warmte-integratie uit te kunnen voeren, een koelcyclusmodel gemaakt.

De conclusies voor HIDiC-toepassing in de downstream van het geëlektrificeerde kraakproces zijn vergelijkbaar met de conclusies voor retrofitting van een bestaande etheen productieproces. Er is geen potentiële energiebesparing gevonden. Ondanks het lagere energieverbruik van de destillatiekolommen, wordt de totale energievraag van het proces niet minder vanwege een tweetal redenen:

1. De belangrijkste reden is dat de warmtewisselaars die door toepassing van een HIDiC niet meer nodig zijn voor de destillatie, nu worden gebruikt bij de warmte-integratie van het proces.
2. Vervanging van conventionele destillatie door HIDiC resulteert doorgaans in het weglaten van de reboiler en vermindering van de condensorcapaciteit. In het geval van cryogene destillatie is de reboiler nuttig in de koeling, waardoor er minder compressie nodig is. De voordelen van HIDiC komen dus uit de verlaging van de condensorcapaciteit. Dit wordt echter niet gedaan door een hogere energiebehoefte voor de HIDiC-compressor.

Concurrerende technologieën

De laatste stap in het etheen productieproces is de scheiding van olefinen van andere koolwaterstoffen, die traditioneel wordt uitgevoerd met destillatie. Omdat de fysisch-chemische eigenschappen, zoals vluchtigheid en kookpunt, van de verbindingen erg op elkaar lijken, is de scheiding kapitaal- en energie-intensief. Om deze nadelen te overwinnen, zijn de afgelopen jaren verschillende scheidingsmethoden onderzocht en voorgesteld. Het doel van deze studie was om een overzicht te geven van mogelijke concurrerende technologieën voor HIDiC. Er is een rapport⁶ gemaakt met een beschrijving van de potentiële technologieën met TRL niveau en een schatting van het potentiële energie- en besparingspotentieel.

Uit de literatuur blijkt dat mechanische damprecompressie (MVR) en cyclische destillatie (CyDist) concurrerende technologieën zijn voor HIDiC. Studies naar propyleen/propaan-splitters waarin MVR en HIDiC worden vergeleken, tonen aan dat de HIDiC-technologie voor een hogere energiebesparing en een lagere investeringen zorgt. Het CyDist-concept zorgt ook voor een hoge potentiële energiebesparing door verbetering van de scheidingsefficiëntie middels pseudo-stationair bedrijf. Het concept wordt al gebruikt in de voedingsindustrie. In de literatuur wordt echter geen vergelijking gevonden voor de prestaties van het CyDist- en het HIDiC-systeem voor

⁶ M. Saric, Competitive Technologies, ECN-X--18-043

de scheiding van olefine/paraffine, dus voor vergelijking van deze twee technologieën is een modelstudie nodig.

Naast de besproken geavanceerde destillatietechnologieën, wordt in de literatuur aangegeven dat permyleen membranen 30-90% reductie in OPEX en 30-75% in CAPEX geven in vergelijking met conventionele destillatie. Voor deze membraantechnologie is geen vergelijking gemaakt met andere concurrerende technologieën.

WP3: Modelontwikkeling

Doel

- Ontwikkeling van een simulatietool voor een HIDIc-kolom.

Resultaat

- Een rapport over de ontwerpmethodes voor HIDIc;
- Een gevalideerd simulatiemodel voor een HIDIc-kolom.

Resultaatbeschrijving

Het doel van dit werkpakket was om een simulatietool te ontwikkelen voor een HIDIc, die kan worden gebruikt om het beste ontwerp voor destillatiekolommen in het etheen productieproces te beoordelen. Het huidige TNO-model is gebaseerd op thermodynamische flowsheetberekeningen van twee conventionele destillatiekolommen, die thermisch gekoppeld zijn. Met het ontwikkelde model kunnen verschillende opties voor warmte-integratie en het effect van drukvariaties in de twee kolommen worden onderzocht. De nieuwe tool kan met behulp van experimenteel gevalideerde getallen voor warmte- en massaoverdracht en drukval in een vroege fase worden gebruikt om verschillende ontwerpkeuzes te onderzoeken.

Een numerieke modelleringsprocedure voor een plaatpakking HIDIc is ontwikkeld in een masterscriptie, begeleid door Technip Energies. De modelleringsprocedure is vervolgens geïmplementeerd in Python. Een rate-based modelleringsmethode is toegepast om de continue warmte- en stofoverdracht in de kolom te beschrijven. Het doel van het model is om kolomdimensies en warmtevraag te bepalen, die volgen uit de balansvergelijkingen van het model.

Helaas bleef door de keuze van modelvariabelen convergentie van de vergelijkingen een probleem. Het model moet worden gewijzigd zodat de kolomtemperatuur en de warmtevraag door de gebruiker kunnen worden vastgesteld en de refluxverhoudingen het modelresultaat zijn.

WP4: Modelvalidatie

Doel

- Studie naar de prestaties van de plaatpakking HIDIc met een focus op het bereiken van het flooding punt.

Resultaten

- Een testprogramma;
- Een rapport over de testresultaten van de plaatpakking HIDIc.

Resultaatbeschrijving

Een veelvoorkomend probleem dat zich in destillatiekolommen kan voordoen, is flooding. Door opstijgende bellen wordt veel vloeistof meegenomen, waardoor ongewenste menging in de kolom ontstaat. Het netto-effect is dat de destillatiekolom geen scheiding bewerkstelligt en het top- en bodemproduct dezelfde samenstelling hebben als de voeding. Het belangrijkste doel van de testen in dit werkpakket was het bereiken van het floodingpunt. Het testen omvat ook het meten van de impact van de vloeistofverdeler op de mate van scheiding. De resultaten van de vloeistofverdelingsexperimenten zijn gebruikt in het ontwikkelde rate-based model in WP3.

Vloeistof distributie testen

Vloeistof distributie is een belangrijk element in de ontwikkeling van Heat Integrated Distribution Column (HIDiC). Daarom is als onderdeel van het HEADLINES project een installatie ontworpen voor het testen van alternatieve vloeistofverdelers, namelijk de Distributor Test Unit (DTU). Deze installatie maakt kwantitatief onderzoek mogelijk naar de prestaties van vloeistofverdelers. Met de DTU kunnen bij omgevingstemperatuur en -druk alternatieve verdelerontwerpen onder verschillende omstandigheden worden getest met een tegenstroom gas-vloeistofsysteem. De uniformiteit van de vloeistofverdeling wordt gemeten, en de prestaties van de vloeistofverdeler worden waargenomen met een high-speed videocamera.

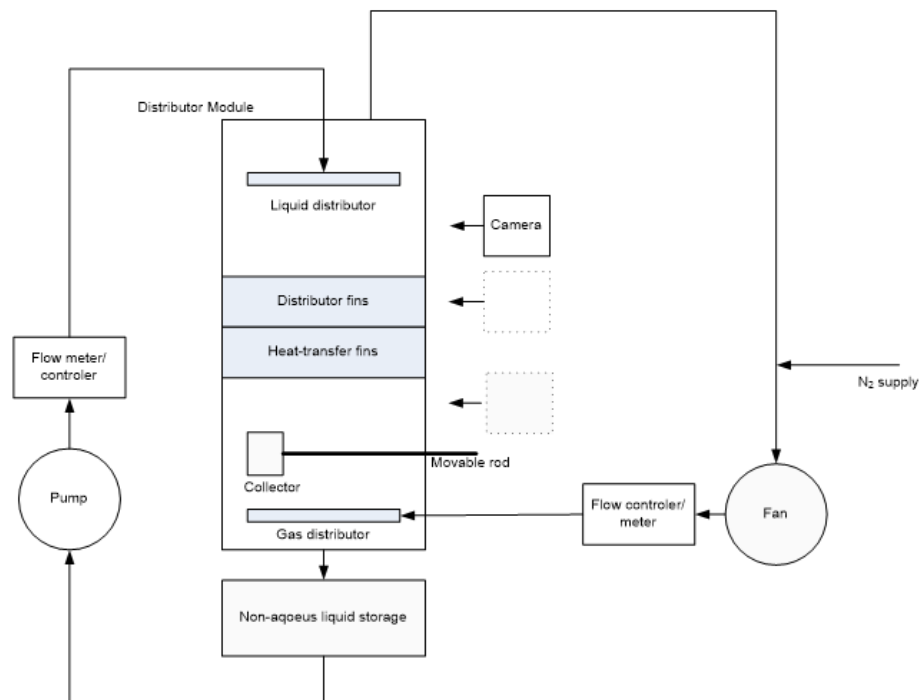
Binnen HEADLINES was het de bedoeling om de DTU te bouwen voor het testen van de alternatieve verdelerontwerpen voor de toekomstige Proof-of-Concept (PoC)-testmodule. Hierin moet vloeistof uniform worden verdeeld, niet alleen over één laag, maar over meerdere lagen van de sandwichconstructie. Uit voorlopige tests bleek echter dat de vloeistofverdeler voor de enkellaagse Proof-of-Principle (PoP)-module minder goed presteerde dan verwacht. Daarom is besloten om in eerste instantie zich te richten op enkellaagstesten in de DTU, met de flexibiliteit om in een later stadium te upgraden naar meerlaagstesten. Aanvankelijk was de DTU ontworpen voor een lucht-watersysteem, maar later is er een herontwerp gedaan om testen met niet-waterige vloeistoffen mogelijk te maken.

Het schema van een Distributor test unit (DTU) is weergegeven in Figuur 3. Het nieuwe DTU-ontwerp en de verdelermodule zijn weergegeven in Figuur 4.

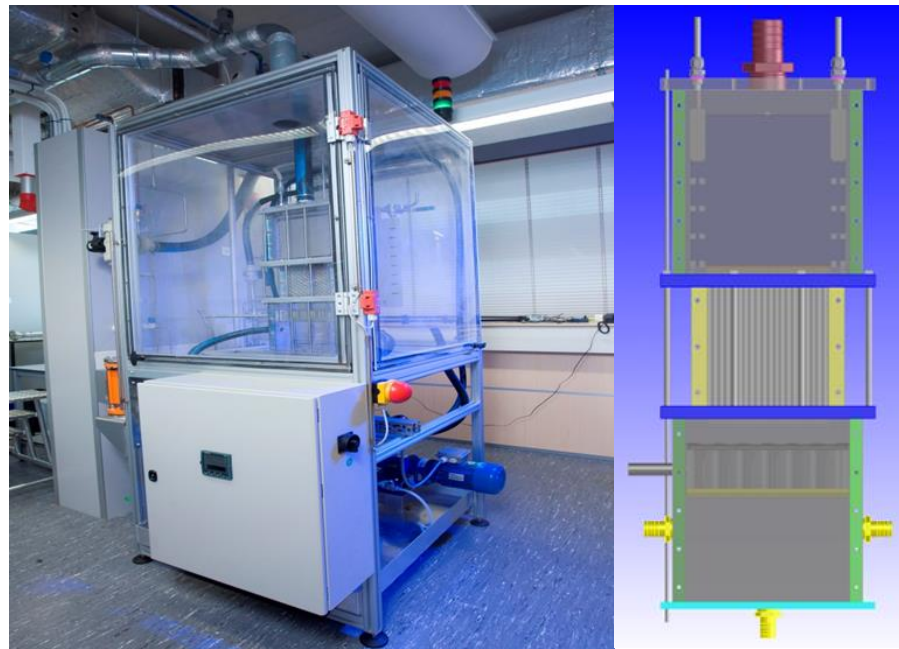
De verdelermodule is opgedeeld in 3 delen:

1. Bovenste deel met de verdeler;
2. Middendeel met de vinnen;
3. Onderste deel met de vloeistofopvangbak.

Het boven- en ondergedeelte zijn transparant gemaakt om de vloeistofverdeling te kunnen volgen. In de bodem is een opvangbak gemaakt van 6 maatbekers van elk 50 ml. Bovenop de maatbekers is een strip aangebracht met conische gaten. De verdelermodule is ontworpen om bij een lichte overdruk te werken om een luchttek in het systeem te voorkomen. In de DTU kan de temperatuur van de vloeistofstroom en de drukval over de verdeler en vinnen worden gemeten.

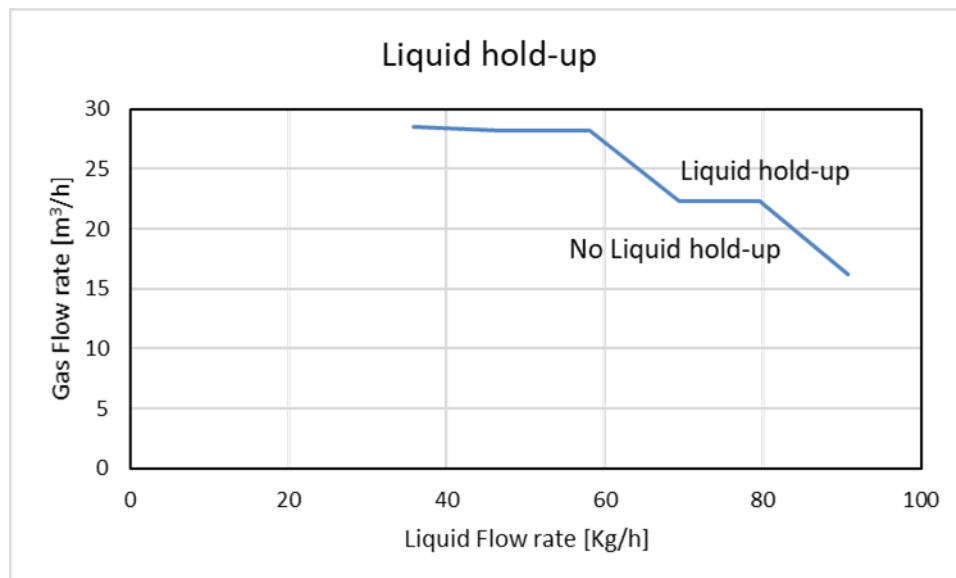


Figuur 3: Schema van de distributor test unit (DTU)



Figuur 4: Verdelermodule en de distributor test unit (DTU)

Het doel van de experimenten was het bepalen van de vloeistof hold-up en de flooding van verschillende plaatpakkingontwerpen als input voor het rate-based model in WP3. Hiervoor zijn metingen uitgevoerd met verschillende gas- en vloeistofsnelheden.



Figuur 5: Vloeistof hold-up bij verschillende gas- en vloeistof stroomsnelheden

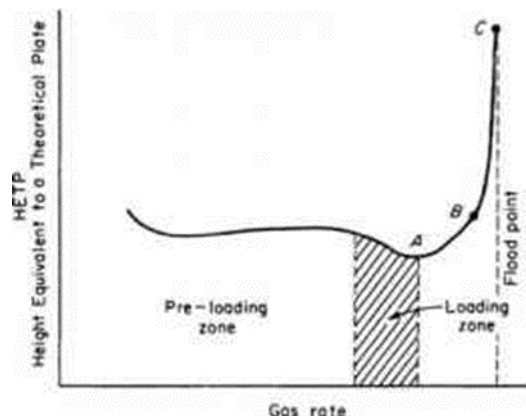
Figuur 5 toont het gebied van vloeistof hold-up bij verschillende gas- en vloeistofsnelheden. Bij vloeistofdebieten <40 kg/h kon met de huidige installatie geen vloeistof hold-up worden gemeten. De distributie van de vloeistof is te zien in Figuur 6. De meeste vloeistof is opgevangen in de middelste bekers.



Figuur 6: Vloeistofopvang onder de plaatpakking

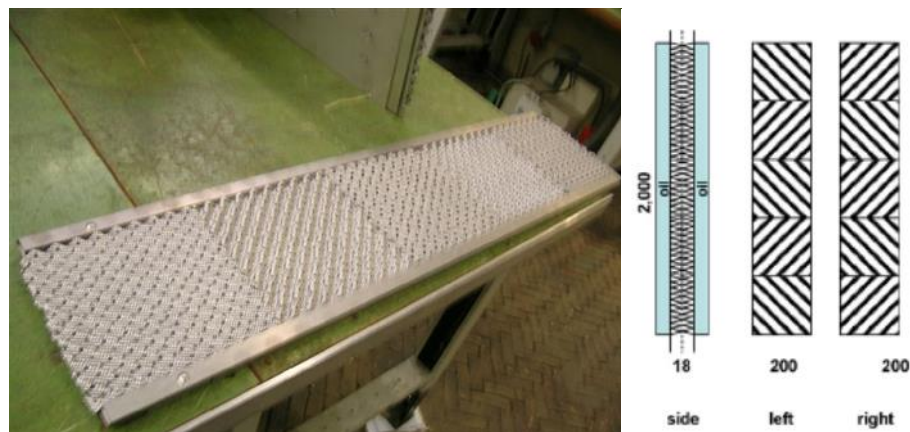
Prestaties plaatpakking HiDiC

Er zijn testen uitgevoerd met verschillende voedingssamenstellingen en bij verschillende temperaturen om het floodingpunt van de plaatpakking HiDiC te bepalen. De metingen zijn uitgevoerd in totale reflux modus met een C6-C7 mengsel (80 mol% C6) op de TNO bench-schaal HiDiC installatie (Figuur 9). In de totale reflux modus kan met alleen de warmte-input de gasstroom in de kolom worden verhoogd tot uiteindelijk het floodingpunt wordt bereikt. Het floodingpunt C kan worden geïdentificeerd aan de hand van het effect op de scheidingsefficiëntie oftewel de Height Equivalent to Theoretical Plate (HETP), zoals weergegeven in Figuur 7. Bij een hogere gassnelheid wordt door flooding geen damp-vloeistof evenwicht meer bereikt, waardoor de HETP toeneemt. De dimensies van de plaatpakking staan in Figuur 8.



Figuur 7: Scheidingsefficiëntie karakteristieken van gepakte kolommen⁷

Figuur 10 laat de gemeten scheidingsefficiëntie van de HIDiC zien met het floodingpunt. Hierin staan ter vergelijking ook de scheidingsprestaties van commerciële gepakte kolommen met Mellapak 350.Y. De HIDiC presteert beter dan de commerciële gepakte kolom omdat de gemeten floodingpunt hoger is dan 2,2 Pa^{0,5}. Dit resulteert in een hogere dampsnelheid in de kolom, waardoor de capaciteit van de kolom wordt vergroot. De toename in capaciteit is afhankelijk van de C7-concentratie. De grootste HIDiC capaciteit is met 35 kg/u, bijna twee keer zo hoog als van een commerciële gepakte kolom. De gemeten drukval over de kolom is iets hoger in vergelijking met die van een commerciële gepakte kolom.

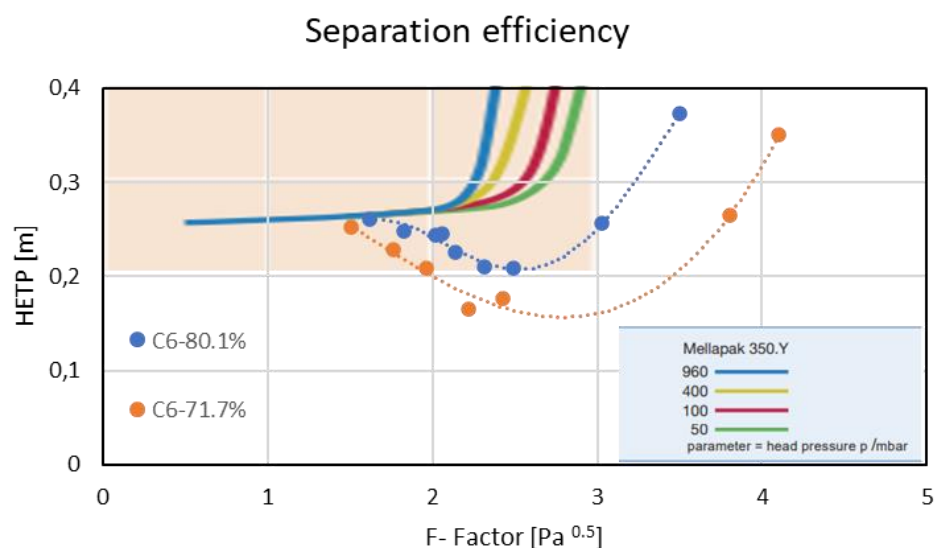


Figuur 8: Dimensies van de plaatpakking

⁷ Perry's Chemical Engineers' Handbook, Eighth Edition, Don W. Green (eds), Section 14: Equipment for Distillation, Gas Absorption, Phase Dispersion, and Phase Separation



Figuur 9: TNO bench-schaal HIDiC installatie



Figuur 10: HETP vs F-factor, vergelijking HIDiC (punten) met commerciële Mellapak kolommen (lijnen)

WP6: Operationele eisen

Doel

- Identificeer de operationele eisen voor de HIDiC.

Resultaten

- Een rapport over de operationele eisen.

Resultaatbeschrijving

Een zorg van procesoperators is dat bij warmte-integratie een complexe procesdynamiek wordt geïntroduceerd. De wens is dat bij het toepassen van interne warmte-integratie op chemische processen, de oorspronkelijke procesdynamiek niet drastisch verandert. Het is belangrijk dat het nieuwe proces zo stabiel mogelijk is, omdat er anders veel aandacht moet worden besteed aan procescontrole.

Er is een literatuurstudie uitgevoerd naar de verwachte dynamische prestaties van de HIDIc. De belangrijkste conclusies uit de literatuur (A. A. Kiss en Z.Olujić³) zijn:

1. Wanneer de condensor en de reboiler zijn opgenomen in de warmtegeïntegreerde destillatiekolom, kan de regelconfiguratie dezelfde zijn als die van een conventionele destillatiekolom;
2. Hoewel HIDIc een complexere structuur en langzamere dynamiek heeft dan een conventionele kolom, is de regelbaarheid van HIDIc vergelijkbaar met die van een conventionele kolom, zolang er maar een geschikt regelsysteem is ontworpen.

WP9: Disseminatie

Doel

- Verspreiding van projectresultaten.

Resultaten

- Publicaties, posters en presentaties over projectresultaten.
- ISPT nieuwsberichten aan begin en eind van project.

Resultaatbeschrijving

Disseminatie wordt beschreven in hoofdstuk 7.

WP10: Projectcoördinatie

Doel

- Dagelijkse projectmanagement, rapportage en controle van de projectfinanciën.

Resultaten

- Eindrapport.

Resultaatbeschrijving

Het HEADLINES project werd gecoördineerd door TNO. Er zijn verschillende projectbijeenkomsten en teleconferenties georganiseerd om de voortgang te bewaken, bevindingen/resultaten te bespreken en strategieën te bepalen. Na de no-go-beslissing is het project samen met de partners aangepast.

Binnen WP1 en WP3 zijn bijeenkomsten georganiseerd met Technip Energies en masterstudent Bas Biesheuvel, die bij Technip Energies aan de HIDIc-modellering werkte.

5 Knelpunten en perspectief op toepassing

5.1 Knelpunten

Hieronder volgt een korte lijst met knelpunten, die zich hebben voorgedaan in het project. Het moet benadrukt worden dat ondanks deze knelpunten de aangepaste doelstellingen in het project zijn behaald.

1. Eind oktober is op basis van een eerste evaluatie van de toepassing van de HiDiC technologie als vervanging van de huidige C2 splitter naar voren gekomen dat de individuele kolom een reductie in energie oplevert, maar dat dit bij integratie in het volledige proces teniet wordt gedaan. Hierdoor is er door het consortium een no-go besluit genomen m.b.t. het voorbereiden van een veldtest voor deze toepassing. Dit heeft geresulteerd in een aangepast projectplan en begroting. Het projectplan is op een aantal punten aangepast namelijk:
 - Een extra activiteit voor TNO in WP1 om het Nederlandse potentieel voor HiDiC in andere toepassingen te beoordelen;
 - Afronden van de modellering in WP3 door Technip Energies en TNO en validatie van het model door testen in WP4;
 - WP2 evaluatie nieuw cracker ontwerp, WP5 ontwerp en testen nieuwe geïntegreerde kolom, WP8 ontwerp prototype en WP7 dynamische studies, zullen niet uitgevoerd worden. Een deel van het budget is verschoven naar WP1, WP3 en WP4;
 - De eindworkshop is aangepast en is een workshop over nieuwe applicaties van de HiDiC geworden;
 - Het plan was om 2 publicaties te maken van projectresultaten.
2. Door veel technische tegenslagen zijn uiteindelijk na veel vertraging een beperkt aantal modelvalidatietesten uitgevoerd in WP4. De analyse en publicatie van de succesvolle resultaten zijn opgepakt na de project einddatum.

5.2 Vervolgprojecten

Het consortium is actief op zoek naar een industriële partner om de technologie op pilotschaal te demonstreren. Meerdere Europese partijen (universiteiten en fabrikanten) zijn geïnteresseerd in het opzetten van een Europees voorstel. Binnen TNO is een project gestart om een publicatie voor te bereiden over de succesvolle testresultaten namelijk het bereiken van flooding bij hogere gassnelheden dan standaard gepakte kolommen.

6 Bijdrage aan de doelstelling van de regeling

Het Innovatieprogramma Energie en Industrie richt zich op de verduurzaming van de industriële energiehuishouding en bestaat uit drie programmalijnen. De meest relevante programmalijnen voor het HEADLINES project zijn:

- Programmalijn 1b: Efficiënte procestechnologie: Het doel is het samen onderzoeken en ontwikkelen (O&O) van nieuwe kosteneffectieve apparaten, processen en diensten inclusief ontwerptools en ontwerp strategieën, voor eindgebruikers in de procesindustrie, die het energieverbruik ten opzichte van de oorspronkelijke technologie met 50% verlagen en toepassing voor 2030 mogelijk maken, en waarbij de impact van de industrie op de ruimtelijke kwaliteit en leefbaarheid gelijk blijft of wordt verkleind.
- Programmalijn 2: Elektrificatie van processen: Het doel is het samen onderzoeken en ontwikkelen (O&O) van nieuwe kosteneffectieve apparaten, processen en diensten inclusief ontwerptools en ontwerp strategieën, voor eindgebruikers in de procesindustrie, die het aandeel hernieuwbare energie in de industrie via elektrificatie kosteneffectief maximaliseren en de maatschappelijke kosten voor opslag en infrastructuur van hernieuwbare elektriciteit verlagen, waarbij de impact van de industrie op de ruimtelijke kwaliteit en leefbaarheid gelijk blijft of wordt verkleind.

Het HEADLINES project heeft een concrete bijdrage geleverd aan de hierboven beschreven doelstellingen. Er is veel kennis en kunde ontwikkeld betreffende warmte integratie in het etheen productieproces, in welke toepassingen energie kan worden bespaard met HIDIc, het bedrijven van een warmte-geïntegreerde destillatiekolom en de voordelen van een plaatpakking HIDIc ten opzichte van conventionele gepakte destillatiekolom.

Hiermee is de kennispositie voor Nederland op dit gebied sterk uitgebreid, hetgeen een goed uitgangspunt biedt om de toeleveringsketen voor eindgebruikers en technologieleveranciers nog beter vorm te geven in de nabije toekomst.

De te bereiken energiebesparing in de Nederlandse industrie is aanzienlijk: in 2030 kan toepassing van HIDIc leiden tot een CO₂-emissiereductie van 110-280 kt/jaar en 2-5 PJ/jaar aan energiebesparing.

7 Disseminatie

In de loop van het project zijn op verschillende gelegenheden de verkregen resultaten en kennis gedeeld:

- Op 7 februari 2020 is een workshop georganiseerd bij ISPT, waar 20 industriële en academische stakeholders aanwezig waren.
- Het werk van Technip Energies en TNO heeft geresulteerd in een gereviewde publicatie⁸ en een master thesis⁹.
- Bij de start van het project is er een nieuwsbericht¹⁰ op de ECN-website geplaatst.
- Een HEADLINES projectpagina is gemaakt op de TNO website¹¹.

⁸ P. Kagioulis, R. Ramesh, M. van Goethem, M. Saric, and Y.C. van Delft, Heat Integrated Distillation Columns as a Retrofit Cannot Bring Energy Savings to the Ethylene Plant, Eng. Chem. Res. 2021, 60, 19, 7342–7351

⁹ B.A. Biesheuvel, Rate-Based Modelling of Plate-Packed Heat Integrated Distillation Columns, Master thesis Delft University, June 25th 2019.

¹⁰ <https://www.ecn.nl/nl/nieuws/item/ecn-gaat-samenwerken-in-vijf-innovatieve-tki-projecten-voor-energie-efficiency-in-de-industrie/index.html>

¹¹ <https://www.tno.nl/nl/aandachtsgebieden/energietransitie/roadmaps/co2-neutrale-industrie/efficient-gebruik-van-energie-en-grondstoffen-in-de-industrie/headlines-warmte-geintegreerde-destillatie-die-innovatieve-ethyleenkrakers-mogelijk-maakt/>

8 Handtekening

S. van Loo
Research Manager

Y.C. van Delft
Project manager (auteur)