

**Kooldioxidewinning uit rookgassen met
membraangasabsorptie:**
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw

Referentienummer 94-107
Dossiernummer 112329-24981
Datum juni 1994
NP

Auteur
P.H.M. Feron

Bestemd voor
Novem B.V.
Electriciteitsbedrijf Zuid-Holland

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

Samenvatting

Dit rapport geeft de resultaten van een analyse van de technisch-economische haalbaarheid van membraangasabsorptie voor de produktie van CO₂ uit rookgassen van warmte/kracht centrales met als doel de inzet als bemestingsgas in de tuinbouwsector. De studie heeft zich gericht op zowel de grootschalige warmte/kracht centrales (STEG-eenheid) als de kleinschalige warmte/kracht centrales (Gasmotor).

Gebruikmakend van het flowsheeting programma ASPEN-Plus is de invloed van een aantal relevante bedrijfsparameters van de monoethanolamine absorptie/desorptie installatie op het energieverbruik vastgesteld. Vooral de concentratie van monoethanolamine blijkt van belang te zijn. Ook is een inschatting gegeven van de mogelijke verontreiniging in het CO₂-produkt. Deze blijken niet belemmerend te zijn voor toepassing als bemestingsgas.

De toepassing van absorptievloeistoffen met lagere warmtebehoefte voor regeneratie is geïnventariseerd en er lijken goede mogelijkheden te zijn voor een reductie van deze warmtebehoefte.

Een prototype van een dwarsaangestroomde holle vezel membraanmodule volgens een TNO-concept is gefabriceerd en getest. De prestaties van dit prototype blijken aan de theoretische verwachtingen te voldoen. De gebruikte membranen, daarentegen, bleken op den duur niet te voldoen, als gevolg van lekkage van de gebruikte absorptievloeistof. Dit aspect vergt nader onderzoek.

De economische analyse gaf aan het membraangasabsorptieproces bij voorkeur continu bedreven moet worden als gevolg van de doorslaggevend rol van de kapitaallasten. De CO₂-kostprijs bij volledige bedrijfstijd ligt tussen 2,6 en 5,4 ct/kg CO₂ voor de STEG-eenheid en tussen 7 en 21 ct/kg CO₂ voor de gasmotor. Dit betekent dat het proces voor een STEG-eenheid concurrerend is met de nu veelal gebezigde praktijk van CO₂-produktie uit de (bijstook)ketel (12 ct/kg CO₂). Voor de gasmotor is het proces alleen concurrerend bij lage annuïteitsfactoren (< 0,2).

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

Inhoudsopgave

	Samenvatting	2
1	Inleiding	5
1.1	CO ₂ -bemesting in kassen	5
1.2	Membraangasabsorptie	5
1.3	Doelstellingen project	7
1.4	Projectkader	7
2	Modellering van het MEA absorptie/desorptieproces met ASPEN-Plus	8
2.1	Procesbeschrijving	8
2.2	Invloed relevante procesparameters op de warmtebehoefte in stripper	9
2.2.1	Inleiding	9
2.2.2	Invloed CO ₂ -verwijderingsgraad op de warmtebehoefte	9
2.2.3	Invloed absorptietemperatuur op de warmtebehoefte	10
2.2.4	Invloed MEA-concentratie op de warmtebehoefte	11
2.2.5	Invloed desorptietemperatuur	12
2.3	Resultaten ASPEN-Plus voor CO ₂ -winning uit rookgassen ten behoeve van bemesting in kassen	13
2.3.1	Uitgangspunten berekeningen	13
2.3.2	CO ₂ -winning uit rookgassen STEG-eenheid	13
2.3.3	CO ₂ -winning uit rookgassen gasmotor	14
2.4	Vergelijking met literatuurgegevens	14
3	Onderzoek naar alternatieve absorptievloeistoffen	16
3.1	Inleiding	16
3.2	Absorptievloeistoffen met lage bindingsenergie voor CO ₂	16
3.3	Sterisch gehinderde amines	17
3.4	Niet-waterige absorptievloeistoffen	18
3.5	Mengsels van absorptievloeistoffen	18
3.6	Selectie meest kansrijke alternatieve absorptievloeistoffen	18
4	CO₂-membraangasabsorptie-experimenten met MEA-oplossingen	20
4.1	Doel experimenteel onderzoek	20
4.2	Ontwerp prototype dwarsaangestroomde membraanmodule	20
4.3	Beschrijving experimentele opstelling en werkwijze	22
4.4	Experimentele resultaten	24
4.4.1	Drukvalmetingen	24
4.4.2	Stofoverdrachtsexperimenten	24

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

5	Discussie experimentele resultaten	25
5.1	Drukvalmetingen	25
5.1.1	Gaszijdige drukval	25
5.1.2	Vloeistofzijdige drukval	25
5.2	Stofoverdrachtsexperimenten	26
5.2.1	Experimenten met 30% MEA en 4% CO ₂	26
5.2.2	Experimenten met 15% MEA en 4% CO ₂	28
5.2.3	Experimenten met 30% MEA en 7% CO ₂	29
5.2.4	Duurexperimenten met 30% MEA en 4% CO ₂	29
6	Technisch-economische evaluatie: resultaten en discussie	31
6.1	Uitgangspunten	31
6.2	Gasmotor	32
6.3	STEG-eenheid	33
7	Conclusies	36
7.1	ASPEN-Plus - modellering	36
7.2	Alternatieve absorptievloeistoffen	36
7.3	Membraangasabsorptie	36
7.4	Technisch-economische evaluatie	37
8	Aanbevelingen	38
8.1	Procesverbeteringen	38
8.2	Procesopschaling	38
8.3	Procesontwikkeling	38
9	Referenties	39
10	Verantwoording	42
<i>Bijlage A</i>	<i>Rookgasgegevens</i>	
<i>Bijlage B</i>	<i>Resultaten simulaties</i>	
<i>Bijlage C</i>	<i>Ontwerpprocedure voor prototype dwarsaangestroomde membraanmodule</i>	
<i>Bijlage D</i>	<i>Technische tekening prototype dwarsaangestroomde membraanmodule</i>	
<i>Bijlage E</i>	<i>Gegevens gebruikte meetapparatuur</i>	
<i>Bijlage F</i>	<i>Foto van meetopstelling</i>	
<i>Bijlage G</i>	<i>Resultaten verschildrukmetingen</i>	
<i>Bijlage H</i>	<i>Berekeningsmethode voor bepaling stofoverdrachtscoëfficiënt uit afname CO₂-concentratie</i>	
<i>Bijlage I</i>	<i>Resultaten stofoverdrachtsmetingen</i>	
<i>Bijlage J</i>	<i>Uitgangspunten voor dimensionering apparaten</i>	
<i>Bijlage K</i>	<i>Apparaatdimensies en investeringskosten</i>	
<i>Bijlage L</i>	<i>Beschrijving ASPEN-Plus</i>	

1 Inleiding

1.1 CO₂-bemesting in kassen

In de tuinbouwsector is het algemeen gebruik om CO₂ in de kas te brengen teneinde plantengroei te stimuleren en dus een verhoogde produktie te bewerkstelligen. In veel gevallen wordt het benodigd CO₂ geproduceerd door de bijstookketel hetgeen weliswaar een goedkope wijze van CO₂-produktie (circa 12 ct/kg CO₂, vergeleken met circa 20 ct/kg CO₂ voor flessengas) maar geen energiezuinige wijze van produktie is. Een groot aantal tuinbouwbedrijven heeft tevens een gasmotor die zorg draagt voor de warmtevoorziening en elektriciteitsvoorziening van het bedrijf. CO₂-produktie uit de uitlaatgassen van de gasmotor is per hoeveelheid geproduceerde warmte ongeveer tweemaal zo efficiënt als CO₂-produktie uit rookgassen van de bijstookketel. De uitlaatgassen van deze gasmotor zijn echter relatief vuiler (etheen, stikstofoxiden) dan de rookgassen van de ketel zodat deze niet direct gebruikt kunnen worden voor de CO₂-dosering.

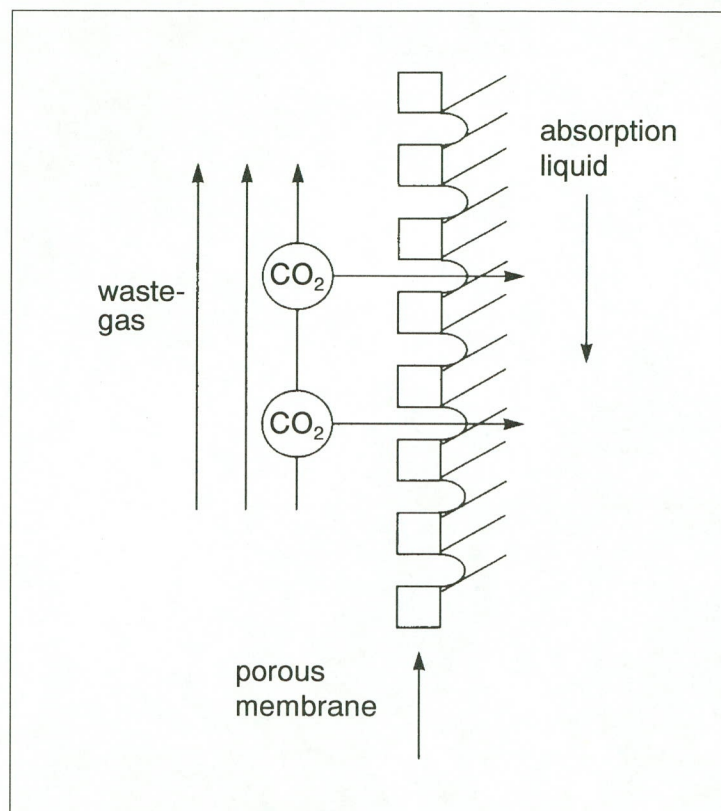
Één mogelijke oplossing voor dit probleem is het toepassen van een reinigingstechniek op de uitlaatgassen. Tengevolge van de matige gelijktijdigheid van vraag naar CO₂ en vraag naar warmte is nuttig gebruik van warmte bij CO₂-produktie door middel van rookgasreiniging echter maar beperkt mogelijk.

Een andere mogelijkheid is het toepassen van een techniek die CO₂ uit de rookgassen verwijderd en geschikt maakt voor inbreng in de kassen. Absorptieprocessen worden wereldwijd veel toegepast in de industrie bij de selectieve verwijdering van CO₂ uit gasstromen. Aangezien deze absorptieprocessen vaak geregenereerd worden met behulp van warmte lijkt het goed mogelijk om dan ook de door de gasmotor geproduceerde restwarmte toe te passen voor regeneratie. Het in dit geval geproduceerde CO₂ heeft een hoge zuiverheid zodat ook voordelen te verwachten zijn voor het CO₂-transport. Dit laatste is vooral van belang voor de grootschalige CO₂-bemesting. Hierbij worden rookgassen met een lage CO₂-concentratie (3,4%) uit een STEG-eenheid als verbrandingslucht naar een aparte bijstookketel gevoerd. De hieruit komende rookgassen hebben een aanzienlijk hogere concentratie (8,5%). Maar ook in dit geval is het CO₂ deel van de gasstroom klein. Het lijkt daarom aantrekkelijker om alleen CO₂ te transporteren aangezien dit tot een tienmaal zo kleine gasstroom aanleiding geeft met de daarmee samenhangende voordelen in compressie-energieverbruik en investeringskosten. Dit moet echter worden afgezet tegen het energieverbruik bij de absorptieprocessen en de investeringskosten van de absorptie installatie.

1.2 Membraangasabsorptie

De afdeling Procestechologie van TNO-ME is reeds een aantal jaren werkzaam op het gebied van de membraangasabsorptie. In een membraangasabsorber worden de gas- en vloeistofstroom door middel van een poreus membraan met elkaar in contact gebracht zonder dat deze met elkaar gemengd worden. Het principe is weergegeven in Figuur 1.

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*



Figuur 1 Principe membraangasabsorptie

De membraangasabsorber heeft een aantal voordelen ten opzichte van een conventioneel contactapparaat zoals een gepakte kolom:

- Compactheid door het gebruik van holle vezel membranen die een hoge pakkingdichtheid hebben.
- Hoge stofoverdracht.
- Geen operationele problemen zoals die voorkomen bij conventionele apparatuur, zoals gepakte kolommen. Deze problemen zijn met name schuimvorming en meevoering van vloeistof door de gasstroom.
- Gas- en vloeistofstromen onafhankelijk regelbaar.

Genoemde voordelen komen tot uiting in lagere apparaatkosten en lagere pompkosten zoals is aangegeven in een studie die verricht is in het kader van het Samenhangend Onderzoekspakket CO₂-opslag en -verwijdering (samengevat in [23]).

De ontwikkeling van membraangasabsorptie is ten nauwste verbonden met de ontwikkeling van geschikte membraanmodules. Commercieel beschikbare modules zijn ontworpen als filtratie-apparaat en zijn ongeschikt als contactapparaat. TNO-ME heeft inmiddels patent [19] verkregen op een nieuwe module waarin de membraanvezels dwars worden aangestroomd. De voordelen van dit moduleconcept voor gasabsorptie zijn de makkelijke opschaalbaarheid, lage drukval en de hoge stofoverdracht.

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

1.3 Doelstellingen project

Het project beoogt een eerste analyse van technische en economische haalbaarheid van membraangasabsorptie voor de produktie van CO₂ als bemestingsgas in kassen. Dit is uitgevoerd volgens een aantal deelstudies:

1. Modelleren van absorptie/desorptieproces op basis van monoethanolamine,
2. Bouw en labtesten van een prototype dwarsaangestroomde module,
3. Inventarisatie van alternatieve absorptievloeistoffen,
4. Inschatting van de rentabiliteit van het proces.

De resultaten van het project zijn relevant voor zowel de grootschalige CO₂-bemesting (STEG-eenheid) als de kleinschalige CO₂-bemesting (Gasmotor).

1.4 Projectkader

Het project is uitgevoerd in het kader van de (tender)subsidieregeling voor de Glastuinbouw (1992) die door Novem gecoördineerd wordt. Naast Novem zijn ook financiële bijdragen verleend door het Electriciteitsbedrijf Zuid-Holland en Liquid Carbonic S.A.

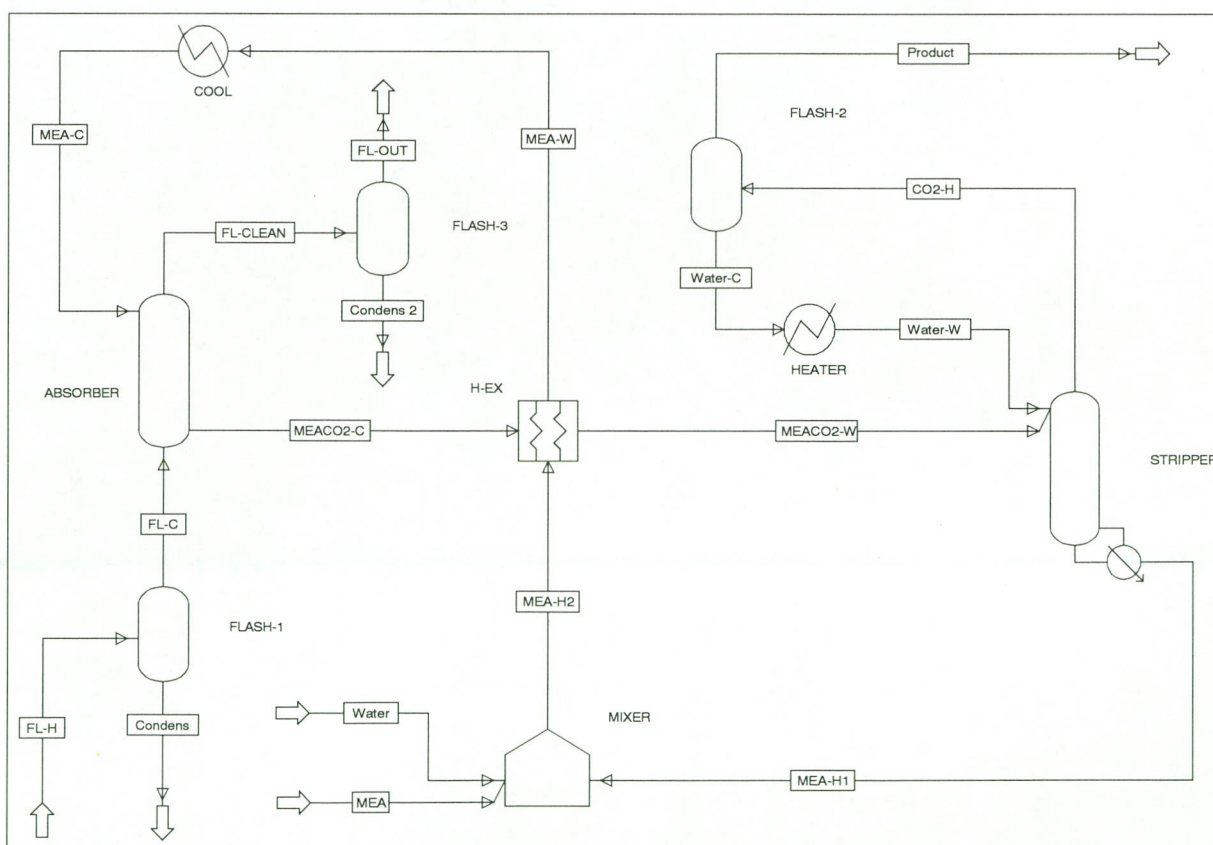
2 Modellering van het MEA absorptie/desorptieproces met ASPEN-Plus

2.1 Procesbeschrijving

Kooldioxide reageert met monoethanolamine (MEA) volgens de bruto reactie:



Het evenwicht van deze reactie ligt rechts bij lage temperaturen en links bij hoge temperaturen. Dit heeft tot gevolg dat men een kringloopproces kan doorlopen waarbij monoethanolamine beladen wordt bij lage temperaturen en geregenereerd bij hoge temperaturen. Het processchema van het kringloopproces is weergegeven in Figuur 2.



Figuur 2 Processchema van MEA absorptie/desorptieproces

Het ingaande rookgas (FL-H) wordt via een koeler (FLASH-1) naar de membraan-absorber (ABSORBER) gevoerd alwaar het in contact gebracht wordt met een wate-

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

rige oplossing van MEA (MEA-C). CO₂ reageert met MEA en wordt vervolgens via een warmtewisselaar (H-EX) naar een stripper (STRIPPER) gevoerd. Bij de in de stripper heersende temperaturen (110 °C - 120 °C) ontwijkt het CO₂ alsmede een grote hoeveelheid water. De CO₂-waterdamp (CO₂-H) stroom wordt vervolgens naar een condensor (FLASH-2) gevoerd alwaar het merendeel van de waterdamp condenseert (WATER-C) en wordt teruggevoerd naar de bovenste schotel van de stripper (WATER-W). De resulterende CO₂-stroom (PRODUCT) is vrij zuiver en bevat slechts water en minieme hoeveelheden bij de absorptiestap opgeloste permanente gassen zoals zuurstof en stikstof. Uit de bodem van de stripper komt een stroom absorptievloeistof (MEA-H1) die ontdaan is van de kooldioxide. Deze stroom wordt via een warmtewisselaar (H-EX) en koeler (COOL) teruggevoerd naar de membraan-absorber. In de warmtewisselaar wordt warmte overgedragen naar de koude met CO₂ beladen absorptievloeistofstroom (MEACO₂-C) komend van de absorber. Kleine hoeveelheden MEA tezamen met water worden in de mixer (MIXER) toegevoerd om de verliezen tengevolge van verdamping in de absorber te compenseren. Niet in processchema weergegeven is de zogenaamde MEA-reclaimer die ertoe dient om onzuiverheden in de absorptievloeistof te verwijderen.

Het totale proces is met behulp van het ASPEN-PlusTM flowsheeting programma gemodelleerd. In Bijlage L wordt een korte beschrijving van het programma gegeven. In paragraaf 2.2 en 2.3 worden de resultaten gegeven van de modellering uitgevoerd met ASPEN-Plus.

2.2 Invloed relevante procesparameters op de warmtebehoefte in stripper

2.2.1 Inleiding

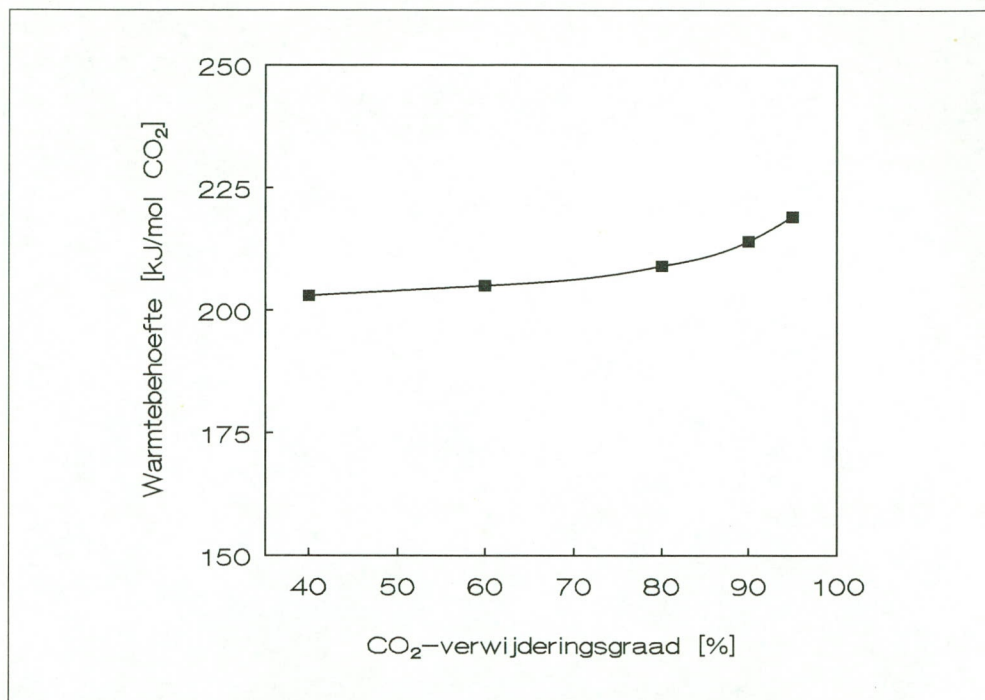
Het is van uiterst belang dat het absorptie/desorptieproces op een zo effectief mogelijke wijze en binnen de technisch-economische randvoorwaarden CO₂ produceert. Het energieverbruik van het proces wordt voornamelijk bepaald door de hoeveelheid warmte nodig voor regeneratie van de beladen absorptievloeistof. De benodigde hoeveelheid warmte kan in zekere mate gestuurd worden door een aantal parameters, te weten, de vereiste CO₂-verwijderingsgraad, de temperatuur bij absorptie, de MEA concentratie in de absorptievloeistof, en de temperatuur bij desorptie.

2.2.2 Invloed CO₂-verwijderingsgraad op de warmtebehoefte

Een lagere CO₂-verwijderingsgraad zal in het algemeen leiden tot een lager MEA-debiet en dientengevolge een lagere warmtebehoefte bij regeneratie. Ook kan een kostenbesparing verwacht worden als gevolg van een verkleining van sommige apparaten, zoals de stripper, de warmtewisselaar en de koeler. Belangrijk nadeel is echter dat de omvang van de absorber in sterke mate bepaald wordt door het te behandelen gasdebiet. Het CO₂-verwijderingspercentage heeft hierop een geringe invloed.

Figuur 3 geeft de invloed van het verwijderingspercentage op de warmtebehoefte per mol CO₂ in de stripper weer voor een bepaalde case.

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*



Figuur 3 Warmtebehoefte stripper per hoeveelheid CO₂ verwijderd als functie van de verwijderingsgraad (CO₂-ingangsconcentratie = 6,2%, $T_{abs} = 40\text{ °C}$, $T_{des} = 118\text{ °C}$, MEA-concentratie = 30%)

De stripper warmtebehoefte per mol CO₂ verwijderd blijkt slechts 8% te variëren bij verwijderingsgraden tussen 40% en 95%. De verwijderingsgraad kan dus zonder een al te grote stijging in de warmtebehoefte hoog gekozen worden. Verhoging van de verwijderingsgraad zal bij gegeven rookgasstroom echter wel leiden tot een hogere absorber en dus hogere investeringskosten. Het economisch optimum ligt volgens [9] tussen 70% en 90% procent CO₂-verwijdering.

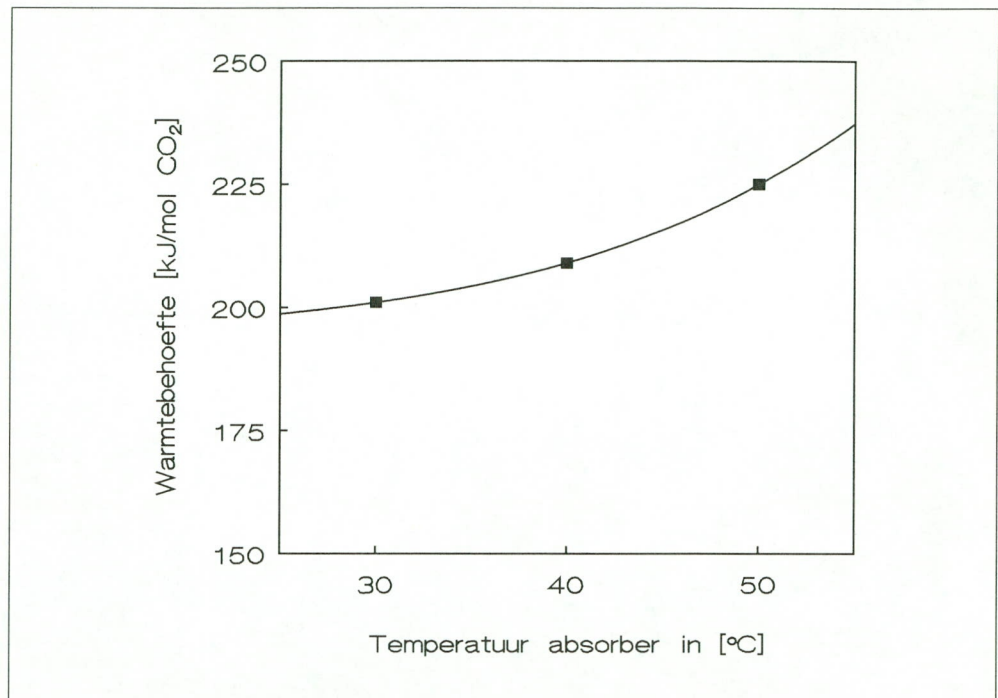
Alhoewel de gegevens berekend zijn voor een case met een CO₂-concentratie in het rookgas gelijk aan 6,2% zijn de conclusies zonder meer vertaalbaar naar andere rookgasconcentraties.

2.2.3 Invloed absorptietemperatuur op de warmtebehoefte

Aangezien het absorptie/desorptieproces volgens een chemische reactie verloopt waarbij de ligging van het evenwicht door de temperatuur bepaald wordt zal de absorptietemperatuur ook een invloed hebben op de belading van de absorptievloeistof en dientengevolge op de warmtebehoefte in de stripper.

Figuur 4 geeft de warmtebehoefte weer voor een drietal temperaturen van de ingaande gasstroom.

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*



Figuur 4 Warmtebehoefte stripper per hoeveelheid CO₂ verwijderd bij verschillende temperaturen van de ingaande gasstroom (CO₂-ingangsconcentratie = 6,2%, CO₂-verwijderingsgraad = 80%, $T_{des} = 118$ °C, MEA-concentratie = 30%)

Uit Figuur 4 blijkt dat bij lagere absorptietemperaturen de warmtebehoefte in de stripper kleiner is. Dit is het gevolg van de hogere belading van de MEA-oplossing bij lage temperaturen zodat het absorptievloeistofdebiet kleiner is. Inlaattemperaturen lager dan 30 °C zijn in de praktijk moeilijk te realiseren vanwege de beperking in koelwatertemperaturen. Oppervlaktewater heeft temperaturen variërend tussen 12 °C en 18 °C.

2.2.4 Invloed MEA-concentratie op de warmtebehoefte

De hoeveelheid absorptievloeistof die wordt gecirculeerd is afhankelijk van de MEA-concentratie. Bij eenzelfde CO₂-productie zal een lagere MEA-concentratie tot een hoger absorptievloeistofdebiet leiden hetgeen in een hoger energieverbruik in de stripper resulteert.

Tabel 1 geeft de warmtebehoefte per mol CO₂ voor een tweetal MEA-concentraties weer. Dit zijn concentraties die commercieel worden toegepast.

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

Tabel 1 Warmtebehoefte stripper per hoeveelheid CO₂ verwijderde bij twee verschillende rookgassen en MEA-concentraties (CO₂-verwijdering = 80%, T_{abs} = 40 °C, T_{des} = 118 °C)

MEA-concentratie [massa%]	Warmtebehoefte [kJ/mol CO ₂] CO ₂ in = 3,4% (STEG)	Warmtebehoefte [kJ/mol CO ₂] CO ₂ in = 6,2% (Gasmotor)
15	311	287
30	228	209

De lagere MEA concentratie geeft aanleiding tot een circa 37% hogere warmtebehoefte in de stripper. Verder volgt uit Tabel 1 dat bij de lagere CO₂-concentratie in het rookgas het energieverbruik per mol CO₂ circa 9% hoger is.

2.2.5 Invloed desorptietemperatuur

Hogere temperaturen zullen tot een hogere regeneratiegraad van de absorptievloeistof leiden. Dit resulteert in een lager vloeistofdebiet en een lagere warmtebehoefte per mol CO₂. In [1] wordt aangegeven dat de optimum regeneratietemperatuur voor een oplossing met 30% MEA uit het oogpunt van reactiekinetiek rond 150 °C ligt. Dergelijke desorptietemperaturen worden in de praktijk vanwege corrosieproblemen echter niet toegepast. De ASPEN-PlusTM simulator adviseert als maximale desorptietemperatuur 120 °C. Er zijn geen simulaties uitgevoerd bij hogere temperaturen vanwege de onmogelijkheid om bij temperaturen hoger dan 120 °C een realistisch proces te bedrijven. Tijdens de simulaties bleek dat bij de gekozen MEA-concentratie en de gekozen overdruk van 0,7 bar in de bodem van stripper de maximale temperatuur 118 °C was. Hogere temperaturen leidden tot een overmatige productie van stoom en dus een hoger energieverbruik. Tabel 2 geeft de warmtebehoefte in de stripper weer bij twee regeneratietemperaturen.

Tabel 2 Warmtebehoefte stripper per hoeveelheid CO₂ verwijderd bij twee verschillende desorptietemperaturen (CO₂-verwijdering = 80%, T_{abs} = 40 °C, CO₂-concentratie in = 6,2%, MEA-concentratie = 30%)

Desorptietemperatuur [°C]	Warmtebehoefte [kJ/mol CO ₂]
118	209
110	241

Het blijkt dat voor een energie-efficiënt desorptieproces de temperatuur zo hoog mogelijk moet zijn. De maximaal toelaatbare temperatuur wordt bepaald door de corrosie in de bodem van de stripper.

2.3 Resultaten ASPEN-Plus voor CO₂-winning uit rookgassen ten behoeve van bemesting in kassen

2.3.1 Uitgangspunten berekeningen

De samenstelling van de rookgassen werd gebaseerd op [2], waarbij is uitgegaan van een mengsel waarin de componenten aanwezig in lage concentratie (tracegassen) verwaarloosd werden. Aangezien de berekeningen tot doel hadden tot een schatting van de dimensies van de apparatuur te komen is het niet noodzakelijk deze gassen in de berekeningen mee te nemen. Tijdens de simulaties bleek tevens dat indien deze gassen in de berekening werden meegenomen werden dit tot aanzienlijk langere rekentijden en convergentieproblemen leidde. In een aparte berekening werd wel een afschatting gemaakt van de concentratie van de tracegassen in het geproduceerde kooldioxide. De berekening werd gebaseerd op de oplosbaarheid van deze gassen in de absorptievloeistof, waarbij werd aangenomen dat de opgeloste gassen in de stripper volledig desorberen. Er dient wel te worden opgemerkt dat eventueel optredende chemische interacties niet in het model kunnen worden ingebracht. Dit houdt in dat de interactie van zure gassen, zoals NO₂, met de absorptievloeistof niet gemodelleerd kan worden. De literatuurgegevens omtrent de gevolgen van de interactie tussen stikstofoxiden en MEA zijn conflicterend. In [8] worden toelaatbare NO_x-concentraties in de range 100 - 500 ppm genoemd, in [9] in de range 1 - 500 ppm, terwijl in [24] een maximaal toelaatbare concentratie van 1 ppm genoemd worden. Vroegere contacten met het ingenieursbureau KTI gaven aan dat stikstofoxiden in principe geen probleem zouden vormen. Dit is een aandachtspunt voor verder onderzoek.

Op basis van de resultaten van de oriënterende berekeningen werden de in Tabel 3 vermelde uitgangspunten voor het proces gehanteerd.

Tabel 3 *Uitgangspunten procesmodellering*

CO ₂ -verwijdering	80%
MEA-concentratie	30%
T _{abs}	40 °C
T _{des}	118 °C

2.3.2 CO₂-winning uit rookgassen STEG-eenheid

De rookgassamenstelling is weergegeven in Bijlage A [2]. De globale samenstelling is gebruikt voor de ASPEN-Plus simulaties. De simulatieresultaten zijn weergegeven in Bijlage B.

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

Het produktgas bestaat voornamelijk uit CO₂ dat verzadigd is met water. De droge gasstroom heeft een CO₂-gehalte gelijk aan 99,97% met als voornaamste verontreinigingen stikstof en zuurstof.

Berekeningen met de gedetailleerde gasstromen leidden tot aanzienlijk langere reken-tijden en convergentieproblemen. De concentraties van de verontreinigingen (CH₄, CO, NO_x, C₂H₄) in de produktstroom zijn afgeschat op basis van verdelingscoëfficiënten zoals die door ASPEN-Plus berekend worden. Hierbij wordt uitgegaan van het fysisch oplossen van deze componenten in de absorptievloeistof. Deze concentra-ties zijn lager dan de in gestelde [10] gestelde grenswaarden voor rookgassen. Gezien het feit dat de produktstroom in de kas aanzienlijk verdund wordt hoeft men op grond van deze berekeningen geen schadelijke invloed te verwachten van de verontreinigin-gen.

2.3.3 CO₂-winning uit rookgassen gasmotor

De rookgassamenstelling is weergegeven in Bijlage A [2]. De globale sa-menstelling is gebruikt voor de ASPEN-Plus simulaties. De simulatieresultaten zijn weergegeven in Bijlage B waarbij de grootheden gerelateerd zijn aan de hoeveelheid geproduceerde CO₂ waar relevant.

Het produktgas bestaat voornamelijk uit CO₂ dat verzadigd is met water. De droge gasstroom heeft een CO₂-gehalte gelijk aan 99,97% met als voornaamste verontreinigingen stikstof en zuurstof.

Berekeningen met de gedetailleerde gasstromen leidden tot aanzienlijk langere reken-tijden en convergentieproblemen. De concentraties van de verontreinigingen (CH₄, CO, NO_x, C₂H₄, C₂H₆) in de produktstroom zijn afgeschat op basis van verde-lingscoëfficiënten zoals die door ASPEN-Plus berekend worden. Hierbij wordt uitge-gaan van het fysisch oplossen van deze componenten in de absorptievloeistof. Deze concentraties zijn lager dan de in [10] gestelde grenswaarden voor rookgassen. Gezien het feit dat de produktstroom in de kas aanzienlijk verdund wordt hoeft men op grond van deze berekeningen geen schadelijke invloed te verwachten van de verontreinigin-gen. De concentraties van de verontreinigingen in de CO₂-produktstroom zijn voor de gasmotoren overigens wel groter dan voor de STEG-eenheid.

2.4 Vergelijking met literatuurgegevens

Het MEA absorptie/desorptieproces voor de verwijdering van CO₂ uit rookgassen is in de open literatuur uitvoerig beschreven. Er zijn dientengevolge gege-vens beschikbaar van het energieverbruik van het proces. Deze gegevens zijn ofwel ge-baseerd op berekeningen van de ingenieursbureaus die de absorptie/desorptieproces-sen ontwerpen ofwel gebaseerd op praktijkgegevens. In Tabel 4 is de warmtebehoefte van de stripper zoals berekend in deze studie vergeleken met de resultaten van een aantal andere studies.

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

Tabel 4 Vergelijking van simulatieresultaten met literatuurgegevens

Bron	% CO ₂ in rookgas	MEA-concentratie [massa%]	CO ₂ -verwijderingsgraad	Warmtebehoefte [kJ/mol CO ₂]
[1]	8,5	30	90	180
[3]	8,5	30	80	186
[4]	8,5	30	?	186 - 233
[5]	8,55	30	90	166
[6]	8	30	90	188
[7]	10	?	90	181
deze	3,4	30	80	228
deze	6,2	30	80	209
[8]	10 - 15	10 - 20	70 - 99	485
[9]	3 - 15	15 - 20	70 - 90	220 - 290
deze	3,4	15	80	311
deze	6,2	15	80	287

De simulaties met een 30% MEA-water mengsel resulteren in een warmtebehoefte in de stripper die hoger is dan het merendeel van de literatuurwaarden. Een mogelijke verklaring hiervoor is het gebruik van lagere CO₂-concentraties in het rookgas hetgeen leidt tot een hogere warmtebehoefte per mol CO₂.

De simulaties met een 15% MEA-water mengsel zijn gezien de variaties in de literatuurwaarden ten aanzien van opgegeven MEA-concentraties en verwijderingswaarden niet helemaal goed vergelijkbaar met literatuurwaarden. De warmtebehoefte volgens uit de simulaties zijn echter zeker qua grootte-orde in overeenstemming met de literatuurwaarden.

Ter vergelijking, indien CO₂ geproduceerd wordt door verbranding van aardgas zonder warmtebenutting kost dit 770 kJ/mol CO₂, waarbij dan ook nog wordt uitgegaan van hoogwaardige energie.

3 Onderzoek naar alternatieve absorptievloeistoffen

3.1 Inleiding

Een belangrijk nadeel van het gebruik van MEA is de grote warmtebehoefte bij regeneratie van de beladen absorptievloeistof. Uit onderzoek naar de haalbaarheid van grootschalige CO₂-verwijdering uit rookgassen van STEG-eenheden ten behoeve van de bestrijding van het broeikaseffect blijkt dat het rendement van deze centrales teruggaat naar circa 45% [11]. De rendementsdaling wordt grotendeels veroorzaakt door de warmtebehoefte van het regeneratieproces. Dit is het gevolg van een aantal eigenschappen van de absorptievloeistof MEA maar ook van het proces, namelijk,

1. de hoge bindingsenergie van CO₂ met MEA,
2. een CO₂-molecuul reageert met twee molen MEA zodat de CO₂-belading van MEA in theorie beperkt is tot 0,5 mol CO₂ per mol MEA,
3. tijdens het regeneratieproces verdampen grote hoeveelheden water die vervolgens condenseren. Dit is inherent aan het regeneratie(= strip)proces.

Het onderzoek naar alternatieve absorptie absorptievloeistoffen richt zich dan ook op mogelijke verbeteringen op deze drie punten. In principe kan het MEA-proces ook energetisch gunstiger worden indien wordt uitgegaan van MEA-concentraties hoger dan 30%. In [5] is aangetoond dat met MEA-concentraties van 40% en 50% de warmtebehoefte met 10% kan worden gereduceerd. In een latere publikatie van dezelfde onderzoekers [16] blijkt echter dat de corrosieproblemen tengevolge van toepassing van hogere MEA-concentraties onoverkomelijk worden geacht. Er wordt aan deze optie dan ook verder geen aandacht besteed.

3.2 Absorptievloeistoffen met lage bindingsenergie voor CO₂

Tabel 5 geeft een overzicht van de enthalpie voor de absorptie van CO₂ in diverse absorptievloeistoffen.

Tabel 5 Enthalpie voor absorptie van CO₂ in diverse chemische absorptievloeistoffen [12, 13]

Absorptievloeistof	Enthalpie voor absorptie [kJ/mol CO ₂]
Diglycolamine	87
Monoethanolamine	84
Diethanolamine	77
Triethanolamine	64
Methyldiethanolamine	59
Kaliumcarbonaat	30

Uit Tabel 5 blijkt dat de absorptie-enthalpie voor CO₂ in MEA hoog is. Dit heeft tot gevolg dat het relatief veel energie kost om bij het regeneratieproces de binding van CO₂ met MEA te verbreken. Tabel 5 geeft aan dat er andere chemische absorptievloeistoffen met een lagere bindingsenergie voor handen zijn, bijvoorbeeld kaliumcarbonaat of methyldiethanolamine. De alternatieve absorptievloeistoffen hebben echter als belangrijk nadeel de ten opzichte van MEA langzamere reactiekinetiek. Dit heeft tot gevolg dat de absorberdimensies aanzienlijk groter moeten worden. Dit leidt tot duurdere absorbers.

3.3 Sterisch gehinderde amines

De overall reactie van CO₂ met amines zoals gegeven in (1) bestaat in wezen uit de twee volgende reacties:



(R stelt de alkylgroep voor)

Bij reactie 2 wordt carbamaat gevormd. Het resultaat van reacties 2 en 3 is dat een molecuul CO₂ met twee aminemoleculen reageert hetgeen tot gevolg heeft dat de belading in theorie niet boven de 0,5 mol CO₂ per mol amine kan uitkomen.

Bij sommige amines is door het effect van sterische hindering reactie 2 niet mogelijk en verloopt het CO₂-absorptieproces volgens de reactie 4.



Het resultaat van dit reactieschema is dat 1 molecuul CO₂ met 1 aminemolecuul reageert onder vorming van bicarbonaat zodat in theorie een belading van 1 mol CO₂ per mol amine mogelijk is. De hogere beladingsgraad van sterisch gehinderde amines leidt tot lagere circulatiedebieten en dus een energie-efficiënter proces. Voorbeelden van dergelijke amines zijn methyldiethanolamine, triethanolamine en aminomethylpropanol. Op commerciële schaal worden sterisch gehinderde amines al toegepast bij CO₂-verwijdering uit hoge druk gasstromen in het FLEXSORB proces van Exxon [14]. Ook hier geldt als nadeel dat het effect van sterische hindering in het algemeen leidt tot lagere reactiesnelheden en dus hogere kosten voor de absorber. Voor CO₂-verwijdering uit hoge druk gasstromen zijn de sterisch gehinderde amines echter superieur aan MEA processen.

Het is nog niet vastgesteld of de voordelen sterisch gehinderde amines ook gerealiseerd kunnen worden bij CO₂-verwijdering uit rookgasstromen (lage druk, lage CO₂-concentratie). Uit [15] volgt bijvoorbeeld dat de absorptiesnelheid van CO₂ in MEA bij lage belading (< 0,3 mol CO₂/mol amine) groter is dan die van CO₂ in het sterisch gehinderde AMP.

Het onderzoek op het gebied van sterisch gehinderde amines voor CO₂-verwijdering uit rookgassen is momenteel in volle gang, met name in Japan. Recentelijk zijn er resultaten gepubliceerd van een samenwerking tussen the Kansai Electric Power Co. (Osaka) en Mitsubishi Heavy Industries (Tokyo) [16]. De door dit consortium ontwikkelde absorptievloeistoffen blijken in vergelijking met een proces gebaseerd op MEA tot een reductie in de warmtebehoefte van maximaal 20% te leiden. In de toe-

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

komst wordt zelfs een halvering van de warmtebehoefte mogelijk geacht. Dit is het gevolg van een hogere beladingsgraad, een kleinere absorptie-enthalpie en een lagere regeneratietemperatuur. Ook de corrosiviteit van de ontwikkelde absorptievloeistoffen is significant minder.

3.4 Niet-waterige absorptievloeistoffen

Er zijn CO₂-absorptieprocessen waarbij wordt uitgegaan van alcoholen in plaats van water als het oplosmiddel [17]. De grotere CO₂-oplosbaarheid in alcoholen, gekoppeld met lagere viscositeiten en lagere verdampingswarmte van de alcoholen leidt tot een in potentie interessant alternatief voor water. De regeneratie kan bij lagere temperaturen (ongeveer 80 °C) gebeuren. Een belangrijk nadeel is de grotere verdamping tijdens absorptie. Het verdampte oplosmiddel moet worden teruggewonnen door een wasstap. Lurgi biedt het AMISOL-proces aan dat gebruik maakt van methanol als het oplosmiddel. In theorie biedt een combinatie van een dergelijke absorptievloeistof met een selectief membraan als contactmedium de mogelijkheid om verdamping van het oplosmiddel tegen te gaan. Verder onderzoek naar deze mogelijkheid is gewenst.

3.5 Mengsels van absorptievloeistoffen

De commerciële interesse in het gebruik van mengsels van twee of meerdere absorptievloeistoffen is recentelijk sterk gegroeid [18]. De achtergrond is dat tijdens absorptie CO₂ wordt opgenomen door een amine met een snelle reactiekinetiek, bijvoorbeeld MEA, en daarna wordt overgedragen aan een amine of andersoortige absorptievloeistof met een lage bindingsenergie, bijvoorbeeld MDEA. Door dit 'shuttle'-mechanisme worden bij absorptie de voordelen van MEA benut, dat wil zeggen de snelle reactiekinetiek, terwijl bij desorptie de voordelen van MDEA worden benut, dat wil zeggen de lagere bindingsenergie. Door een uitgekiend mengsel te gebruiken kan men een optimaal proces ontwerpen.

3.6 Selectie meest kansrijke alternatieve absorptievloeistoffen

Er zijn in de voorgaande paragrafen een viertal alternatieven voor het gebruik van MEA gepresenteerd. Alhoewel ze in principe alle tot een reductie in het energieverbruik voor regeneratie leiden, is er uit praktisch oogpunt toch behoefte om een selectie uit de alternatieven te maken. Deze selectie kan alleen geschieden op basis van een ander criterium, namelijk ontwikkelingsperspectief op de korte termijn. De niet-waterige absorptievloeistoffen (Paragraaf 3.4) scoren op dit punt duidelijk het laagst. Er is nog verdere chemische begripsvorming nodig om tot een juiste combinatie van absorptievloeistof en oplosmiddel te komen. Op korte termijn lijken de absorptievloeistoffen met één actieve component het meeste perspectief te bieden aangezien deze reeds commercieel verkrijgbaar zijn voor hoge druk CO₂-gasabsorptie. Kennis over deze absorptievloeistoffen is ook aanwezig zij het niet in dezelfde mate als voor MEA. Dit houdt in dat absorptievloeistoffen met lagere regeneratie-energie (Paragraaf 3.2) en sterisch gehinderde amines (Paragraaf 3.3) de meeste voorkeur verdie-

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

nen. Mengsels van absorptievloeistoffen (Paragraaf 3.5) zijn echter niet minder interessant maar vergen door de meer complexe chemie een meer gedetailleerde analyse van de wisselwerking tussen de componenten.

Een belangrijk aspect in de selectie van alternatieve absorptievloeistoffen is ook de compatibiliteit van de absorptievloeistoffen met de membraanmaterialen. Dit dient proefondervindelijk te worden vastgesteld.

4 CO₂-membraangasabsorptie-experimenten met MEA-oplossingen

4.1 Doel experimenteel onderzoek

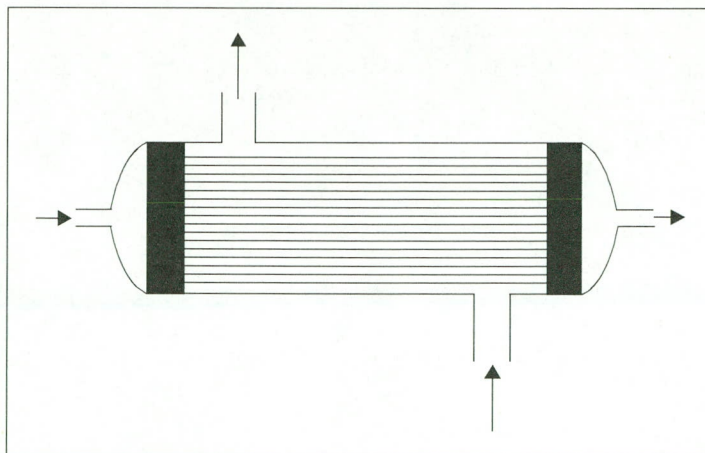
Het experimenteel onderzoek heeft als doel:

1. Technische demonstratie van het membraangasabsorptieproces voor CO₂-verwijdering uit gesimuleerde rookgassen,
2. Technische demonstratie van het dwarsaangestroomde membraanmodule concept voor CO₂-membraangasabsorptie

Een beschrijving van zowel de dwarsaangestroomde module als de experimentele opstelling is daarom van belang.

4.2 Ontwerp prototype dwarsaangestroomde membraanmodule

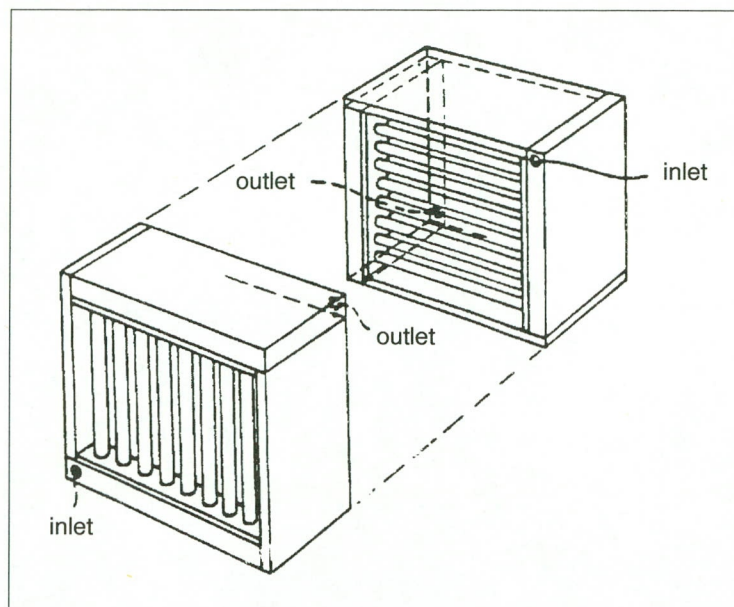
Voor de toepassing van membraangasabsorptie voor rookgasstromen is het van belang dat gezien de grote volumestromen het modululontwerp op zodanige wijze is uitgevoerd dat het proces makkelijk opschaalbaar is. Bestaande ontwerpen voor membraanmodules zijn gebaseerd op filtratietoepassingen en niet voor stofoverdrachtstoepassingen. Figuur 5 geeft een voorbeeld van een conventioneel membraanmodule-ontwerp.



Figuur 5 Conventionele membraanmodule

Opschaling op basis van conventionele membraanmodules leidt tot een parallelschakeling van vele modules hetgeen niet realistisch is. TNO heeft recentelijk een patent [19] verkregen op een membraanmodule speciaal ontworpen voor stofoverdrachtstoepassingen. De essentiële aspecten van deze module zijn de dwarsaanstroming van de holle vezel membranen en makkelijke opschaalbaarheid door het modulair karakter van het ontwerp. In Figuur 6 is het ontwerp schematisch weergegeven.

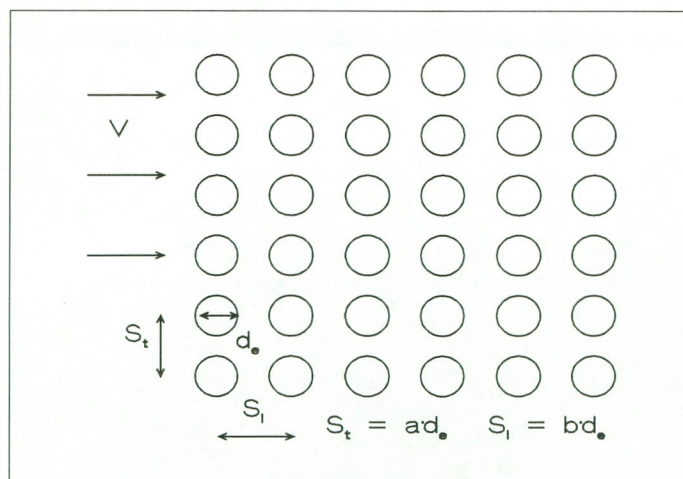
*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*



Figuur 6 Ontwerp TNO dwarsaangestroomde membraanmodule

Het ontwerp is zodanig dat een enkel element in kruisstroom bedreven wordt terwijl het totale apparaat naar keuze in tegenstroom of meestroom bedreven kan worden. In die zin is het uitermate geschikt voor stofoverdrachtsprocessen.

De relevantie van het TNO module ontwerp voor membraangasabsorptie is reeds in een eerder stadium onderzocht [20] en geven grote voordelen aan ten opzichte van conventionele contactapparaten zoals gepakte kolommen. Ook werd in deze studie geconstateerd dat uit oogpunt van optimale stofoverdracht bij gegeven pompvermogen de in-line geometrie de voorkeur verdient. Figuur 7 geeft een voorbeeld van deze geometrie.



Figuur 7 Voorbeeld van in-line geometrie

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

Voor de huidige studie werd uitgegaan van een ontwerpprocedure volgens een aantal stappen. Deze procedure is beschreven in Bijlage C. De fabricage van het prototype dwarsaangestroomde membraanmodule werd ook uitgevoerd door TNO-KRI/BC waarbij als behuizingsmateriaal van de module PVC gebruikt werd.

In Tabel 6 wordt het ontwerp van de module samengevat.

Tabel 6 Uiteindelijk ontwerp van de membraanmodule

Vezeltype	Polypropyleen
Behuizing	PVC
Vezeldiameter	0,6 mm (i) / 1,0 mm (u)
Kanaaldimensies	0,05 x 0,05 m
Membraanoppervlak	0,2748 m ²
Aantal vezels loodrecht op stromingsrichting	27
Aantal vezels in stromingsrichting	27
Spacing	a = 1,85, b = 1,85
Aantal elementen	4

Bijlage D bevat de technische tekening van het membraanmoduul prototype.

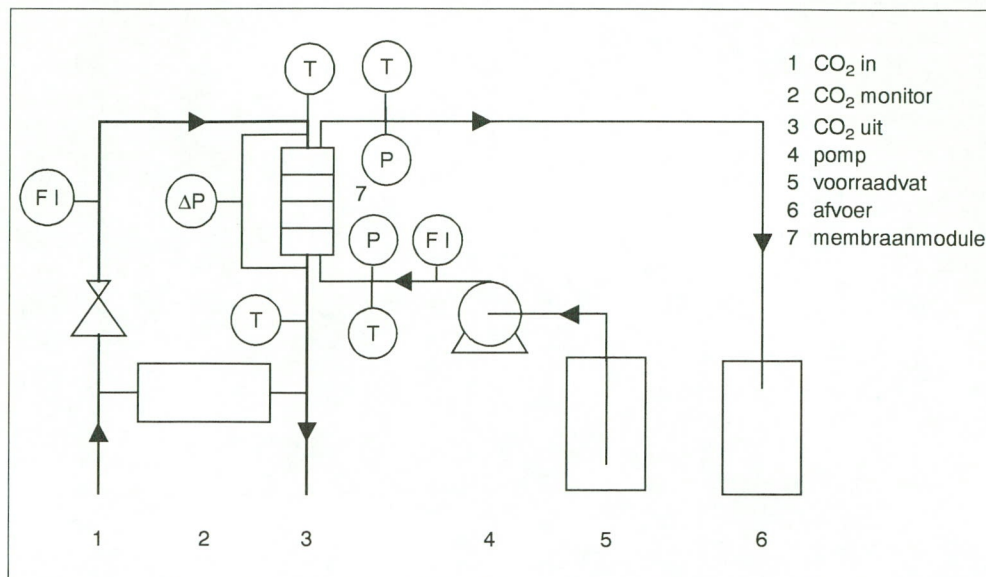
4.3 Beschrijving experimentele opstelling en werkwijze

De uitvoering van de experimentele opstelling was zodanig dat de volgende meetmogelijkheden werden opgenomen:

1. Debietmeting gaszijdig
2. Debietmeting vloeistofzijdig
3. Temperatuurmeting gaszijdig aan in- en uitgang van de membraanmodule
4. Temperatuurmeting vloeistofzijdig aan in- en uitgang van de membraanmodule
5. CO₂-concentratie meting aan in- en uitgang van membraanmodule
6. Verschil drukmeting gaszijdig
7. Verschil drukmeting vloeistofzijdig.

De opstelling inclusief de genoemde meetopties is schematisch weergegeven in Figuur 8. De gegevens van de gebruikte apparatuur staan in Bijlage E vermeld.

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*



Figuur 8 Schema van opstelling

Een gasstroom, waaraan een hoeveelheid CO₂ wordt toegevoegd via een massflow-controller, wordt via een rotameter naar de membraanmodule geleid. De gasstroom wordt om de vezels geleid. CO₂-concentraties bij de in- en uitgang kunnen continu gemeten worden via de CO₂-monitor. Voor elke meetserie werd de CO₂-monitor gekalibreerd met een ijkgas (4,5% CO₂). De absorptievloeistofstroom wordt in tegenstroom door de vezels geleid. Zowel de gasstroom als de vloeistofstroom wordt eenmalig door de vezels geleid (once-through operatie). Een foto van de opstelling is in Bijlage F opgenomen.

Tijdens twee separate experimenten werden gaszijdige (met N₂) en vloeistofzijdige (met water) verschildrukmetingen uitgevoerd. Beide drukvalmetingen werden met vooraf geijkte piezo-elektrische drukverschilmeters uitgevoerd.

De gekozen condities van de stofoverdrachtsexperimenten staan schematisch weergegeven in Tabel 7.

Tabel 7 Condities tijdens stofoverdrachtsexperimenten

CO ₂ -conc. in	circa 4% en 7%
Gasdebiet	1 - 25 Nm ³ /uur
MEA-conc.	15% en 30%
Vloeistofdebiet	37, 111, 186 l/uur ¹⁾

¹⁾ Overeenkomend met vloeistofsnelheden door de vezels van respectievelijk 0,05, 0,15, 0,25 m/s.

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

Tijdens de experimenten werd een keuze gemaakt in de combinaties van mogelijkheden teneinde op een zo doeltreffend mogelijke wijze het effect van de condities op de stofoverdrachtscoëfficiënt te bepalen.

4.4 Experimentele resultaten

4.4.1 Drukvalmetingen

De resultaten van de gaszijdige (= N₂) en vloeistofzijdige (= water) drukvalmetingen over de membraanmodule zijn weergegeven in Bijlage G.

4.4.2 Stofoverdrachtsexperimenten

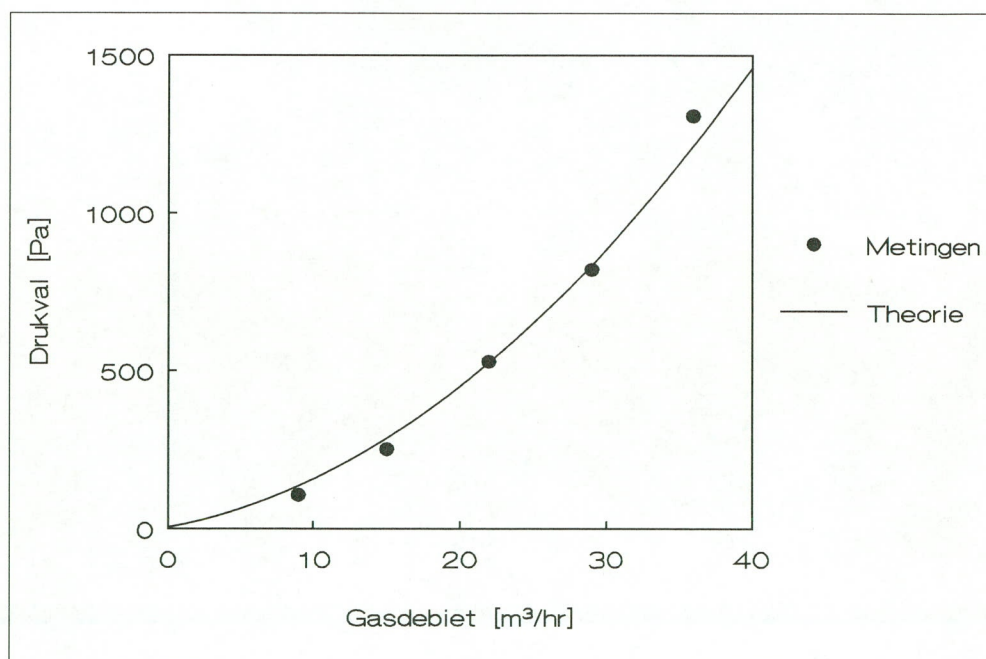
De meetresultaten en uitkomsten van stofoverdrachtsberekeningen zijn weergegeven in Bijlage I. De methodiek voor de berekening van de stofoverdrachtscoëfficiënt is schematisch weergegeven in Bijlage H. De belading van de absorptievloeistof was dusdanig gering dat voor de berekening van de stofoverdrachtscoëfficiënten de eenvoudige formule (H.2) toegepast kon worden.

5 Discussie experimentele resultaten

5.1 Drukvalmetingen

5.1.1 Gaszijdige drukval

De gaszijdige drukvalmetingen over de membraanmodule zijn in Figuur 9 vergeleken met theoretische berekeningen gebaseerd op correlaties gegeven in [21] voor drukval in omstroomde warmtewisselaarpipen. Het blijkt dat, getuige de goede overeenkomst tussen theorie en metingen, deze correlaties uitstekend bruikbaar zijn voor het afschatten van de gaszijdige drukval. De gaszijdige drukval vertoont overigens een sterke toename als functie van het gasdebiet.

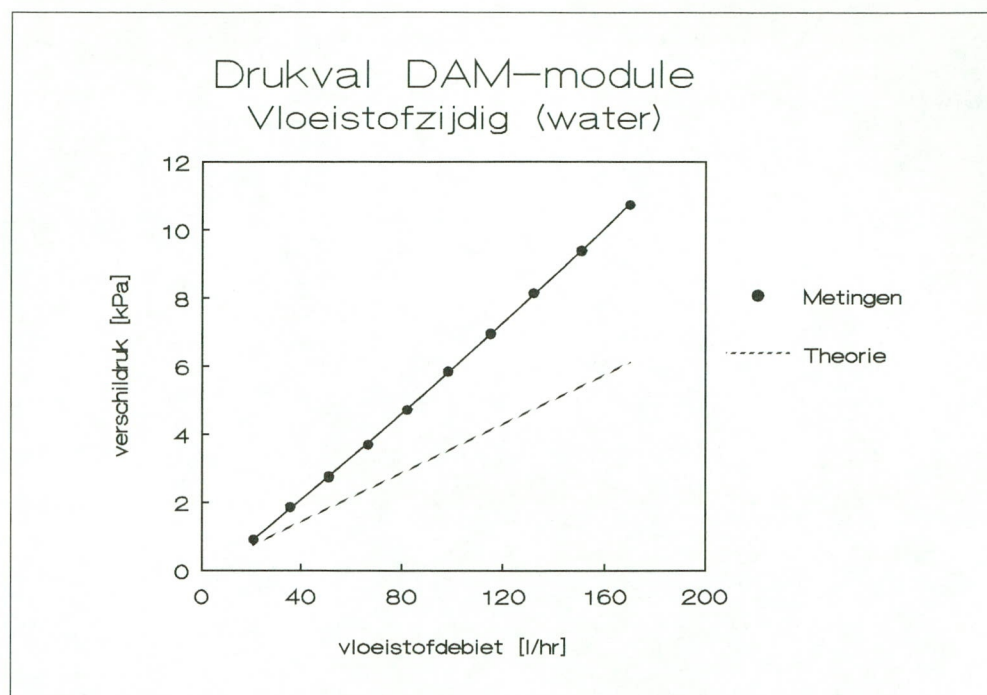


Figuur 9 Gaszijdige drukval: metingen vergeleken met theorie

5.1.2 Vloeistofzijdige drukval

De vloeistofzijdige drukval is in Figuur 10 vergeleken met de theoretische drukval voor de stroming door de holle vezels. De stroming door de holle vezels is laminair zodat de theoretische drukval op lineaire wijze toeneemt met het vloeistofdebiet. Dit geldt blijkbaar ook voor de gemeten drukval. De theoretische drukval moet echter gezien worden als een ondergrens aangezien hier niet het effect in verwerkt is van de drukval in de kamers en de verbindingsoeningen tussen de kamers. De gemeten drukval over het de membraanmodule is maximaal (bij het hoogste debiet) tweemaal zo groot als de theoretische drukval door de holle vezel.

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*



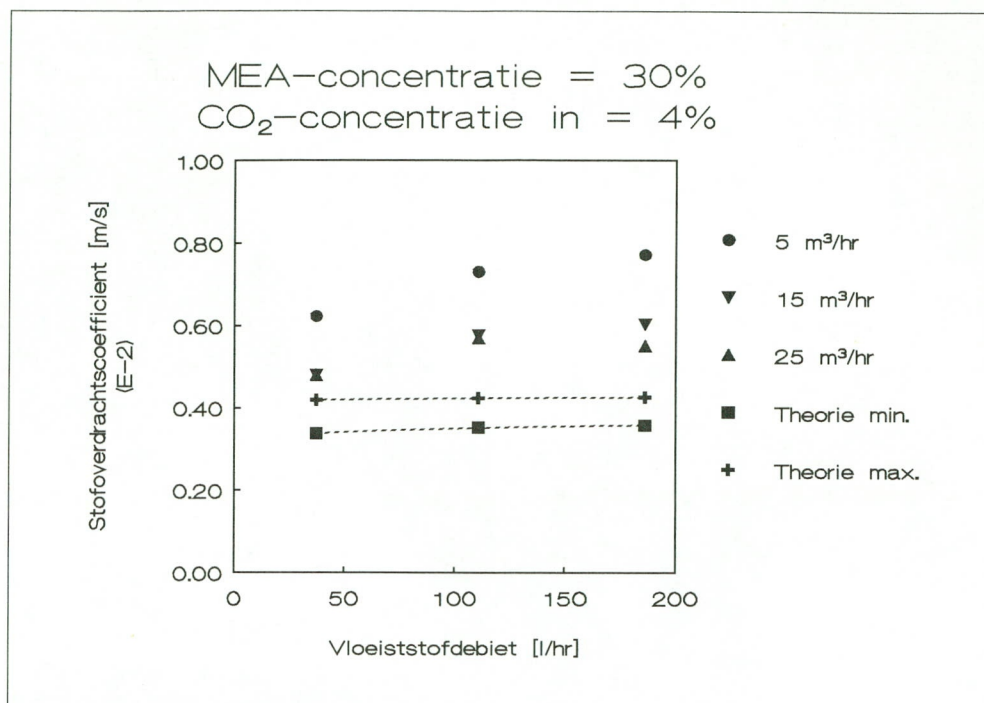
Figuur 10 Vloeistofzijdige drukval: metingen vergeleken met theorie

5.2 Stofoverdrachtsexperimenten

5.2.1 Experimenten met 30% MEA en 4% CO₂

De uit de experimenten berekende stofoverdrachtscoëfficiënten staan als functie van het vloeistofdebiet bij verschillende gasdebieten weergegeven in Figuur 11 (Experimenten 4 - 12). De gekozen CO₂-concentratie is representatief voor een rookgas afkomstig van een STEG-eenheid.

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*



Figuur 11 Stofoverdrachtscoëfficiënt voor 30% MEA en 4% CO₂

De invloed van het vloeistofdebiet bij constant gasdebiet blijkt gering te zijn; Stofoverdracht neemt iets toe bij hogere vloeistofdebieten tengevolge van de hogere vloeistofsnelheden door de vezels. Bij toenemend gasdebiet lijkt de stofoverdrachtscoëfficiënt daarentegen af te nemen, alhoewel bij de gasdebieten van 15 en 25 m³/hr de stofoverdrachtscoëfficiënten bijna identiek zijn.

Men kan op basis van een theoretisch model gebaseerd op [21, 25, 26] voor absorptie gevolgd door chemische reactie in holle vezels een afschatting maken voor de stofoverdrachtscoëfficiënt. Hierbij wordt ervan uitgegaan de stofoverdracht volledige bepaald wordt door de verschijnselen die optreden in de vloeistoffase zoals gesteld in [12]. De met dit model berekende stofoverdrachtscoëfficiënten zijn tevens weergegeven in Figuur 11. Uit de modellering volgt dat zowel een hogere temperatuur als een lagere CO₂-concentratie tot een hogere stofoverdrachtscoëfficiënt leidt. De theoretische waarden zijn bepaald voor twee extreme situaties. De maximale waarde geldt voor de hoogste temperatuur en de laagst gemeten waarde van de CO₂-concentratie, terwijl de minimale waarde geldt voor de laagste temperatuur en de hoogste waarde van de CO₂-concentratie.

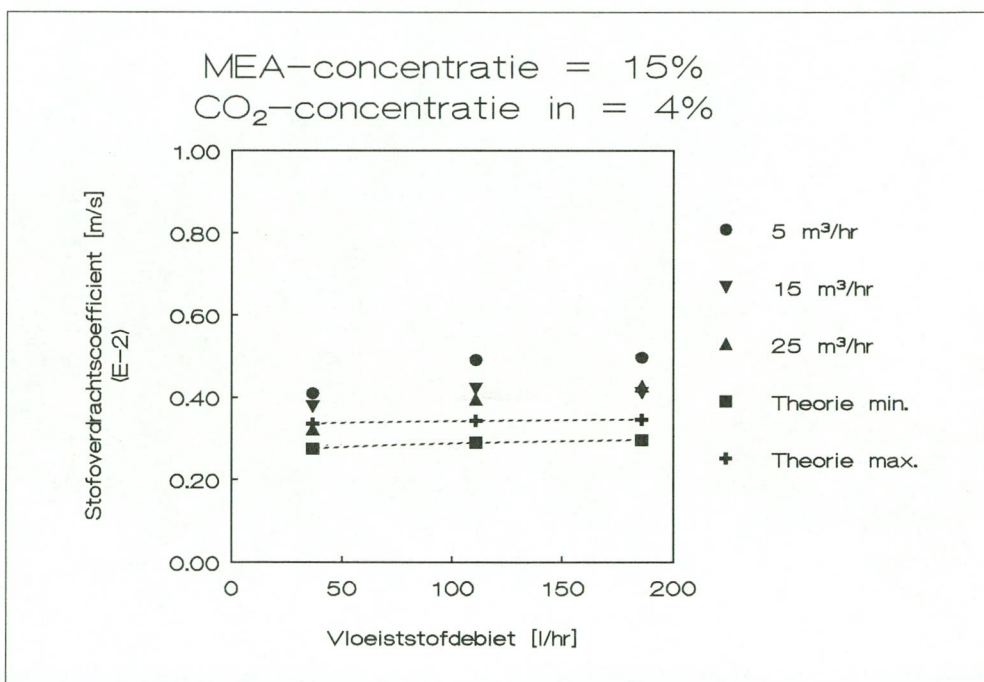
Bij de metingen met het laagste gasdebiet is de gemiddelde CO₂-concentratie lager geweest dan bij de metingen met hoger gasdebiet. Dit verklaart de hogere stofoverdracht. Alhoewel de gevonden verbanden kwalitatief overeenkomen met de theoretische verwachtingen zijn de gemeten waarden significant hoger dan de waarden volgend uit het theoretisch model.

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

De resultaten van experimenten 1 - 3 geven aan onder welke omstandigheden het mogelijk is om met de membraanmodule de aanwezige kooldioxide bijna volledig te verwijderen. Verwijderingsgraden hoger dan 99% worden reeds behaald bij een gas/vloeistof debiet verhouding gelijk aan 27. De berekende stofoverdrachtscoëfficiënten zijn niet erg nauwkeurig als gevolg van de lage CO₂-concentraties aan de uitgang.

5.2.2 Experimenten met 15% MEA en 4% CO₂

De uit de experimenten berekende stofoverdrachtscoëfficiënten staan als functie van het vloeistofdebiet bij verschillende gasdebieten weergegeven in Figuur 12 (Experimenten 13 - 21). De gekozen CO₂-concentratie is representatief voor een rookgas afkomstig van een STEG-eenheid.



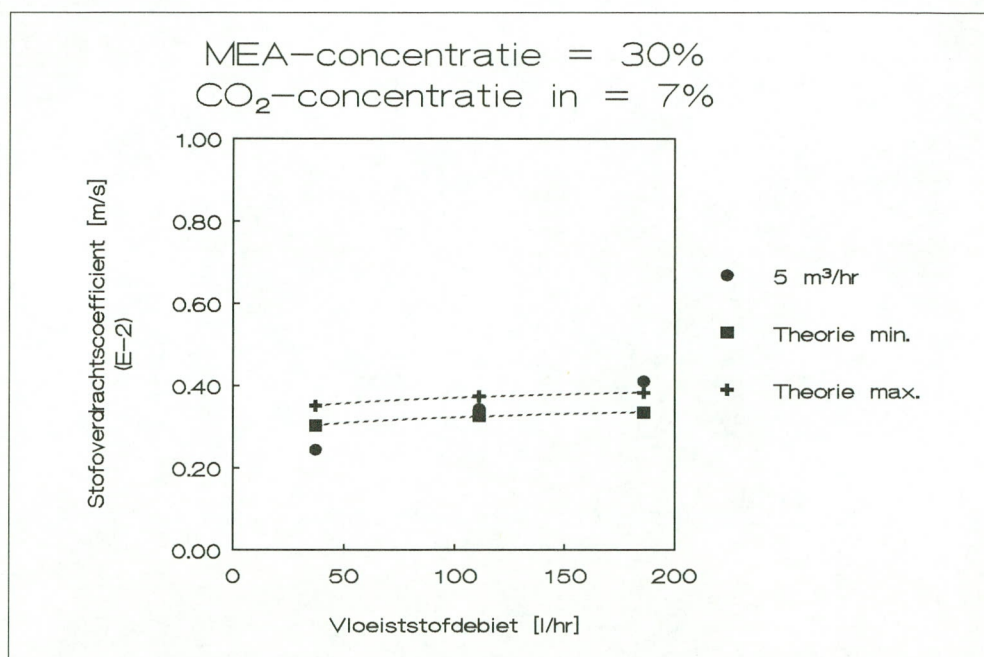
Figuur 12 Stofoverdrachtscoëfficiënt voor 15% MEA en 4% CO₂

Ook hier blijkt de invloed van het vloeistofdebiet bij constant gasdebiet gering te zijn; Stofoverdracht neemt iets toe bij hogere vloeistofdebieten tengevolge van de hogere vloeistofsnelheden door de vezels. Bij toenemend gasdebiet lijkt de stofoverdrachtscoëfficiënt daarentegen af te nemen. Dit is kwalitatief in overeenstemming met de theoretische verwachtingen, omdat de gemiddelde CO₂-concentratie bij lagere debieten lager geweest is.

In Figuur 12 zijn ook de stofoverdrachtscoëfficiënten weergegeven op basis van het theoretisch model. De gemeten waarden zijn ook voor deze experimenten hoger dan de twee extreme waarden berekend uit het theoretisch model.

5.2.3 Experimenten met 30% MEA en 7% CO₂

De uit de experimenten berekende stofoverdrachtscoëfficiënten staan als functie van het vloeistofdebiet bij verschillende gasdebieten weergegeven in Figuur 13 (Experimenten 23 - 25). De gekozen CO₂-concentratie is representatief voor een rookgas afkomstig van gasmotor.



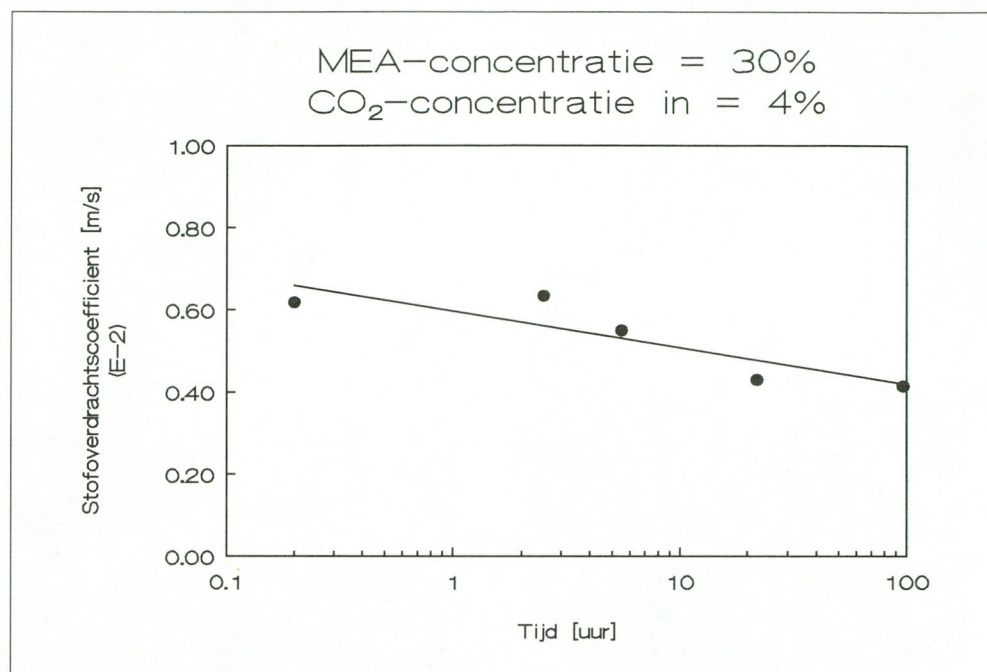
Figuur 13 Stofoverdrachtscoëfficiënt voor 30% MEA en 7% CO₂

Bij toenemend vloeistofdebiet blijkt de stofoverdrachtscoëfficiënt in geringe mate toe te nemen. De stofoverdrachtscoëfficiënten berekend volgens het theoretisch model blijken in dit geval ook kwantitatief in overeenstemming te zijn met de gemeten waarden.

5.2.4 Duurexperimenten met 30% MEA en 4% CO₂

Tijdens de experimenten bleek dat na verloop van tijd een hoeveelheid absorptievloeistof door de membranen heen lekte. Dit wordt als uiterst nadelig voor stofoverdracht gezien, omdat de poreuze holle vezel membranen dan gevuld worden met absorptievloeistof. De resulterende lagere stofoverdracht zorgt er dan voor dat de apparatuur aanzienlijk groter wordt dan verwacht. Ook andere voordelen, zoals het voorkomen van entrainment en schuimvorming komen dan niet tot uiting. Om een indruk te krijgen van de invloed van de lekkage op de stofoverdrachtscoëfficiënt werd gedurende 4 dagen absorptievloeistof (30% MEA) door de vezel gepompt en werd de stofoverdrachtscoëfficiënt onder identieke condities bepaald. De lekkage manifesteerde zich duidelijk als een daling in de stofoverdrachtscoëfficiënt getuige de experimentele resultaten in Figuur 14.

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*



Figuur 14 Verloop stofoverdrachtscoëfficiënt in de tijd

Alhoewel de daling van de stofoverdrachtscoëfficiënt in het duurexperiment nog niet desastreus is, wordt verwacht dat dit op den duur de gevolgen voor stofoverdracht wel desastreus zullen worden.

De oorzaak voor het doorlekken van de 30% MEA-oplossing door de poreuze polypropyleen membranen is nog onduidelijk. Vooralsnog moet geconcludeerd worden polypropyleen membranen niet langdurig bruikbaar zijn bij CO₂-gasabsorptie met een 30% MEA-oplossing.

Het voorkomen van absorptievloeistoflekage wordt voornamelijk gezocht in:

1. het toepassen van alternatieve absorptievloeistoffen,
2. het gebruiken van alternatieve membraanmaterialen, danwel gemodificeerde membranen.

6 Technisch-economische evaluatie: resultaten en discussie

6.1 Uitgangspunten

De resultaten van de Aspen simulaties worden gebruikt voor de dimensionering van de procescomponenten. De uitgangspunten voor de Aspen berekeningen zijn weergegeven in Tabel 3, Paragraaf 2.3.1. Op grond van de simulatieuitkomsten worden vervolgens de belangrijkste apparaten gedimensioneerd en de utilities (elektriciteit, koelwater, MEA) ingeschat. De kosten voor warmte nodig in het regeneratieproces zijn buiten beschouwing gelaten. Deze hangen namelijk sterk samen met de wijze waarop het absorptie/desorptieproces geïntegreerd wordt met de elektriciteitsopwekking. De resultaten van de Aspen berekeningen en de hieruit afgeleide grootheden zijn weergegeven in Bijlage B. De belangrijkste apparaten zijn weergegeven in Tabel 8.

Tabel 8 Belangrijkste apparaten voor het absorptie/desorptieproces

Apparaat	Type
Absorber	Membraan
Rookgaskoeler	Direct contact
Reboiler	Shell/tube warmtewisselaar
Absorptievloeistofkoeler	Shell/tube warmtewisselaar
Desorber	Gepakte kolom
MEA-warmtewisselaar	Shell/tube warmtewisselaar
Condensor	Shell/tube warmtewisselaar
Rookgasventilator	Centrifugaal
Vloeistofpomp	Centrifugaal

Voor de details aangaande de apparaatdimensionering wordt verwezen naar Bijlagen J en K. De totale investeringskosten worden verkregen door de apparaatkosten te vermenigvuldigen met een factor gelijk aan 3,2 [22].

De jaarlijkse kapitaallasten worden verkregen door de investeringskosten te vermenigvuldigen met een annuïteitsfactor. Deze factor is afhankelijk van de afschrijvingstermijn en het rentepercentage. Voor de in [10] gehanteerde afschrijvingstermijnen (3, 5, 10, 15 jaar) en rentepercentages (7%, 9%, 11%) varieert de annuïteitsfactor tussen 0,1 en 0,4.

Het aantal draaiuren van de absorptie/desorptie installatie is van groot belang voor de rentabiliteit van het proces. De bedrijfskosten worden dan ook per kg CO₂ gespecificeerd.

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

6.2 Gasmotor

De belangrijkste technisch-economische kentallen zijn weergegeven in Tabel 9. In Bijlage K worden de dimensies van de belangrijkste apparaten weergegeven.

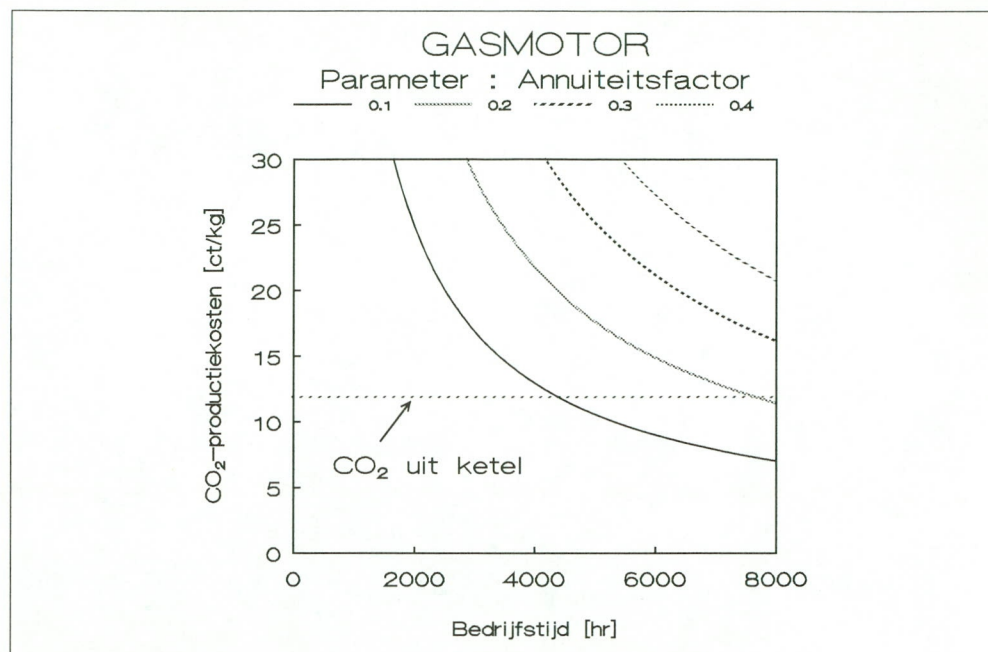
Tabel 9 Technisch-economische kentallen voor CO₂-winning uit rookgassen gasmotor

CO ₂ -ontwerp productie [kg/hr]	170
Rookgasstroom [Nm ³ /hr]	1737
CO ₂ -concentratie [%]	6,2
Totale Investeringskosten [kf]	621
Aandeel membranen	53
Kapitaallasten [kf/jaar]	
Annuïteitsfactor = 0,1	62,1
Annuïteitsfactor = 0,2	124,2
Annuïteitsfactor = 0,3	186,2
Annuïteitsfactor = 0,4	248,3
Onderhoudskosten [kf/jaar]	18,6
Bedrijfskosten [ct/kg CO ₂]	
Elektriciteit	0,33
Chemicaliën	0,22
Koelwater	0,55
Totaal	1,10

De membraanbijdrage aan de investeringskosten is circa 9% en is dus niet bepalend voor de investeringskosten. Vooral de warmtewisselaars (MEA warmtewisselaar, MEA-koeler, condensor) blijken een groot deel uit te maken van de investeringskosten.

In Figuur 15 worden de kosten per hoeveelheid geproduceerd CO₂ weergegeven als functie van de bedrijfstijd van de installatie. De berekeningsmethode wordt in Bijlage K gegeven.

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*



Figuur 15 CO₂-productiekosten in afhankelijkheid van de bedrijfstijd

Uit Figuur 15 blijkt dat de membraangasabsorptie optie vooral interessant is bij een hoge bedrijfstijd, liefst zelfs een continue procesvoering. Dan kan membraangasabsorptie concurreren met CO₂-productie uit de (bijstook) ketel. Membraangasabsorptie blijkt bij niet continue procesvoering wel concurrerend met flessengas (20 ct/kg). Afhankelijk van de annuïteitsfactor ligt het omslagpunt tussen 3000 en 8000 bedrijfsuren.

De bijdrage van de bedrijfskosten aan CO₂-kostprijs bedraagt circa 1 ct/kg en is niet van doorslaggevend belang. De kapitaallasten leveren verreweg de grootste bijdrage.

De grotere bedrijfstijd van de gasmotor zal een positieve invloed hebben op de rentabiliteit van het totale systeem van elektriciteitsproductie en CO₂-productie. Dit effect is echter in deze beschouwing niet meegenomen en vergt een meer diepgaande analyse van de integratie tussen gasmotor en CO₂-winningseenheid.

6.3 STEG-eenheid

De belangrijkste technisch-economische kentallen zijn weergegeven in Tabel 10. In Bijlage K worden de dimensies van de belangrijkste apparaten weergegeven.

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

Tabel 10 Technisch-economische kentallen voor CO₂-winning uit rookgassen STEG-eenheid

CO ₂ -ontwerp productie [kg/hr]	25000
Rookgasstroom [Nm ³ /hr]	471000 ¹⁾
CO ₂ -concentratie [%]	3,4
Totale Investeringskosten [kf]	18618
Aandeel membranen [kf]	7686
Kapitaallasten [kf/jaar]	
Annuiteitsfactor = 0,1	1862
Annuiteitsfactor = 0,2	3724
Annuiteitsfactor = 0,3	5585
Annuiteitsfactor = 0,4	7447
Onderhoudskosten [kf/jaar]	559
Bedrijfskosten [ct/kg CO ₂]	
Elektriciteit	0,60
Chemicaliën	0,23
Koelwater	0,58
Totaal	1,41

¹⁾ Dit komt overeen met circa 38% van de totale rookgasstroom van een 185 MW_e STEG-eenheid.

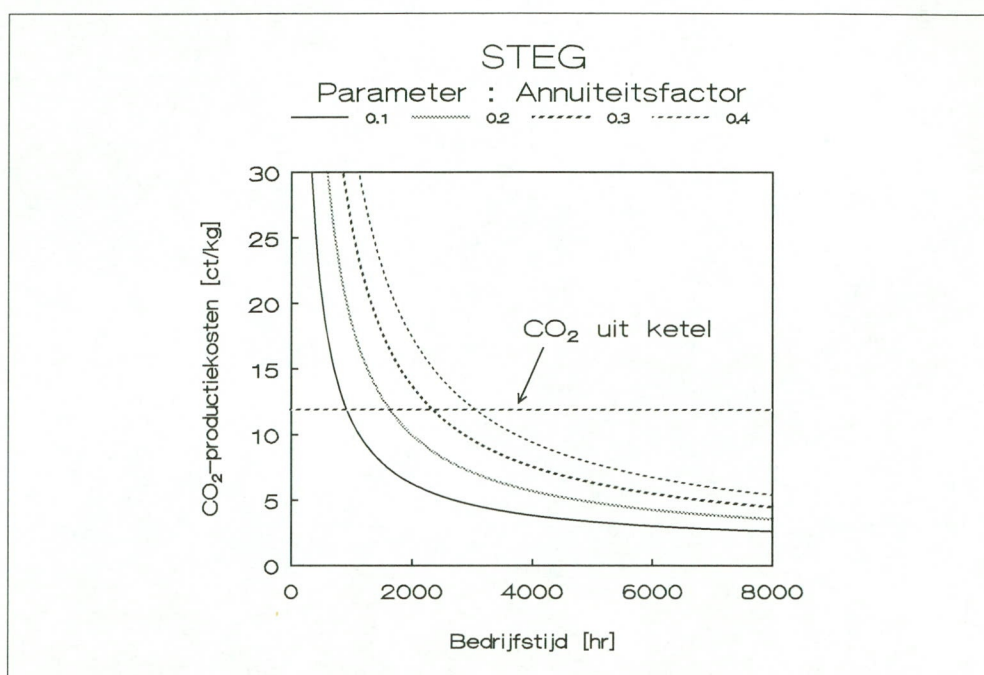
Uit Tabel 10 blijkt de membraanbijdrage aan de investeringskosten verreweg de grootste te zijn (circa 40%). Dit hangt ten eerste samen met de lage CO₂-concentratie, zodat per hoeveelheid geproduceerd CO₂ een grotere gasstroom behandeld dient te worden. Ten tweede komen opschalingseffecten bij de gekozen opzet niet tot uitdrukking in een sterk lagere membraanprijs. Dit geldt wel voor de andere apparatuur, zoals warmtewisselaars.

Voor deze optie is het mogelijk om de hier berekende investeringskosten te vergelijken met literatuurgegevens van fabrikanten [9]. Hieruit blijkt voor de gegeven CO₂-productie dat de investeringskosten circa 30 Mf zijn hetgeen significant groter is dan hier berekend. De oorzaken voor deze discrepantie zijn nog onduidelijk. Mogelijk is de gehanteerde berekeningsmethode voor installaties van dergelijke schaal te globaal en dient een nauwkeuriger inschatting te worden gegeven van belangrijke additionele activiteiten zoals de civiele werkzaamheden.

In de bedrijfskosten valt op dat vergeleken met de gasmotor de elektriciteitsbijdrage aan de bedrijfskosten groter is. Dit hangt samen met het feit dat per hoeveelheid geproduceerd kooldioxide een grotere gasstroom door de membraanabsorber moet stromen met een groter elektriciteitsverbruik voor de ventilatoren als gevolg.

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

In Figuur 16 worden de kosten per hoeveelheid geproduceerd CO₂ weergegeven als functie de bedrijfstijd van de installatie. De berekeningsmethode wordt in Bijlage K gegeven.



Figuur 16 CO₂-productiekosten in afhankelijkheid van de bedrijfstijd

Uitgaande van een annuïteitsfactor van 0,4 blijkt uit Figuur 16 dat de membraangasabsorptie optie niet interessant is bij een lage bedrijfstijd (< 3000 uren). Bij langere bedrijfstijden kan membraangasabsorptie concurreren met CO₂-productie uit de (bijstook) ketel (12 ct/kg CO₂). Voor flessengas (20 ct/kg CO₂) ligt het omslagpunt bij 1500 bedrijfsuren.

De bedrijfskosten maken in dit geval een significant deel uit van de CO₂-kostprijs, circa 25%. Overigens lijkt de gehanteerde elektriciteitsprijs van 0,20/kWh ingeval van een STEG aan de hoge kant.

De bijdrage van de membranen aan de investeringskosten kan belangrijk verkleind worden door uit te gaan van een hogere CO₂-concentratie, hetgeen inhoudt dat een kleinere gasstroom behandeld dient te worden. Als de CO₂-concentratie kan worden opgevoerd tot circa 8,5% zal de gasstroom een factor 2,5 kleiner worden. Het benodigd membraanoppervlak bedraagt dan 40% ten opzichte van de basissituatie zodat de investeringskosten circa 25% lager liggen.

7 Conclusies

7.1 ASPEN-Plus - modellering

Het flowsheeting programma ASPEN-Plus is bij uitstek geschikt voor het modelleren van CO₂-verwijdering uit rookgassen op basis van absorptie in waterige oplossingen van monoethanolamine (MEA), gevolgd door desorptie bij verhoogde temperatuur.

Uit de modellering van een aantal varianten van het proces volgt:

- Een lagere absorptietemperatuur leidt tot een kleinere warmtebehoefte bij regeneratie,
 - Een hogere verwijderingsgraad leidt tot een grotere warmtebehoefte bij regeneratie,
 - Een hogere desorptietemperatuur leidt tot een kleinere warmtebehoefte bij regeneratie,
 - Een lagere MEA-concentratie leidt tot een hogere warmtebehoefte bij regeneratie.
- Voor de bestudeerde varianten blijkt vooral de MEA-concentratie in de absorptievloeistof het belangrijkste te zijn.

7.2 Alternatieve absorptievloeistoffen

Een belangrijk nadeel van het gebruik van MEA is de grote warmtebehoefte bij regeneratie. Er zijn een viertal typen absorptievloeistoffen geïdentificeerd die als mogelijk alternatief kunnen dienen. In volgorde van afnemende toepasbaarheid op de korte termijn zijn dit:

1. Absorptievloeistoffen met een lager bindingsenergie,
2. Sterisch gehinderde amines,
3. Mengsels van absorptievloeistoffen,
4. Niet-waterige absorptievloeistoffen.

7.3 Membraangasabsorptie

De werking van een prototype membraanabsorber op basis van poreuze holle vezel membranen (polypropyleen) is getest op een aantal karakteristieken, namelijk drukval en stofoverdracht. De conclusie ten aanzien van deze karakteristieken zijn de volgende:

1. Gaszijdige drukval is zoals verwacht volgens correlaties gebaseerd op drukval in buizen warmtewisselaar,
2. Vloeistofzijdige drukval is maximaal tweemaal zo hoog als verwacht op basis van drukval door holle vezels alleen,
3. Stofoverdracht is hoger dan verwacht volgens theoretisch model bij CO₂-ingangsconcentraties gelijk aan 4% en volgens verwachting bij CO₂-ingangsconcentraties gelijk aan 7%.

Een belangrijk probleem bleek het na verloop van tijd optreden van vloeistoflekkage te zijn. Alhoewel de resulterende daling in stofoverdracht gering was, wordt toch verwacht dat dit op den duur nadelig zal zijn voor de operatie van de membraanabsorber.

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

7.4 Technisch-economische evaluatie

De technische-economische evaluatie is geschied aan de hand van twee cases, namelijk een gasmotor (kleinschalig) en een STEG-eenheid (grootschalig). De grootschalige toepassing resulteert in de laagste kosten per geproduceerde hoeveelheid CO₂.

De technische-economische evaluatie geeft aan dat toepassing van membraangasabsorptie het meest economisch is bij hoge bedrijfstijden, als gevolg van de doorslaggevende invloed van de kapitaallasten. De resulterende kosten per hoeveelheid kunnen bij hoge bedrijfstijden concurreren met CO₂ geproduceerd uit een (bijstook)ketel.

8 Aanbevelingen

8.1 Procesverbeteringen

Het proces van produktie van CO₂ uit rookgassen met membraangasabsorptie dient op een aantal punten te worden verbeterd, namelijk,

1. Voorkomen van lekkage door toepassing van alternatieve absorptievloeistoffen of andere poreuze membranen,
2. Toepassing van absorptievloeistoffen met een lagere warmtebehoefte dan monoethanolamine, waarbij ook de modellering van dit type installatie moet worden bestudeerd.

8.2 Procesopschaling

Momenteel zijn er geen geschikte dwarsaangestroomde membraanmodules commercieel verkrijgbaar. Het verdient aanbeveling om in een volgende fase van de ontwikkeling een membraanfabrikant/apparatenbouwer te betrekken die in staat is om deze modules te leveren. Alleen dan is er een basis voor verdere opschaling van het proces.

8.3 Procesontwikkeling

De in dit onderzoek uitgevoerde experimenten waren gebaseerd op modelgasstromen. In een volgende fase van de ontwikkeling dienen ook testen te worden uitgevoerd met reële rookgasstromen. Indien uitgegaan wordt van monoethanolamine als absorptievloeistof dient hiervoor een leverancier van deze absorptievloeistoffen bij het project betrokken te worden. Hierbij dient ook aandacht gegeven te worden aan de interactie van stikstofoxiden met de absorptievloeistof.

Tot slot is ook de integratie tussen de warmte/kracht eenheid en het absorptie/desorptieproces een belangrijk aandachtspunt in de verdere ontwikkeling. Uit deze integratie volgt tevens de invloed van warmtebehoefte voor regeneratie op de efficiency van de elektriciteitsopwekking.

9 Referenties

- [1] Tuke, P., Mudaliar, G.G.:
'Econamine FG technology: A new technology for CO₂ recovery from flue gas', pp. 566-572 in Proceedings of Chemeca '90, August 1990, Auckland, New Zealand.
- [2] Hr. J. Klimstra (Gasunie), fax dd. 6-10-1993.
- [3] Pauley, C.R., Simiskey, P.L., Haigh, S.:
'N-ReN recovers CO₂ from flue gas economically',
Oil & Gas Journal, pp. 87-92, May 14, 1984.
- [4] Pauley, C.R.:
'CO₂-recovery from flue gas', Chemical Engineering Progress,
pp. 59-62, May 1984.
- [5] Suda, T., et. al.:
'Development of flue gas carbon dioxide recovery technology',
Energy Convers. Mgmt. 33 (1992) 317-324.
- [6] Sander, M.T., Mariz, C.L.:
'The FLUOR DANIEL ECONAMINE FG process: Past experience and
present day focus', Energy Convers. Mgmt. 33 (1992) 341-348.
- [7] Yagi, T., Shibuya, H., Sasaki, T.:
'Application of chemical absorption process to CO₂ recovery from flue gas
generated in power plants', Energy Convers. Mgmt. 33 (1992) 349-355.
- [8] Arnold, D.S., Barrett, D.A., Isom, R.H.:
'CO₂ can be produced from flue gas', Oil & Gas Journal, pp. 130-136,
November 22, 1982.
- [9] CO₂ Recovery from flue gas, Kerr-McGee/Lummus Carbon dioxide recovery
technology, Brochure ABB Lummus Crest.
- [10] Studies en Diensten De Melker B.V.:
'Tussenrapport over rookgasbehandeling bij warmtekrachtkoppeling in de
glastuinbouw', ref.nr. R93P184.007, 16-11-1993.
- [11] Blok, K.:
'Final report of the Integrated Research Programme on Carbon Dioxide
Recovery and Storage', Report nr. 92063, Department of Science, Technology
and Society, Utrecht University, January 1993.
- [12] Kohl, A.L., Riesenfeld, F.C.:
'Gas purification', Gulf Publishing Co., Houston, 1979.

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

- [13] Carey, T.R., Hermes, J.E., Rochelle, G.T.:
'A model for acid gas absorption/stripping using methyldiethanolamine with added acid', Gas Separation & Purification 5 (1991) 95-109.
- [14] Sartori, G. et. al.:
'Sterically-hindered amines for acid gas absorption', CO₂-chemistry workshop, Hemavan, Sweden, 20-23 September 1993.
- [15] Sartori, G., Savage, D.W.:
'Sterically hindered amines for CO₂ removal from gases',
Ind. Eng. Chem. 22 (1983) 239-249.
- [16] Suda, et. al.:
'Development of flue gas carbon dioxide recovery technology',
CO₂-chemistry workshop, Hemavan, Sweden, 20-23 September 1993.
- [17] Bratzler, K., Doerges, A.:
'Amisol process purifies gases', Hydrocarbon Processing,
pp. 78-80, April 1974.
- [18] Chakravarty, T., Phukan, U.K., Weiland, R.H.:
'Reaction of acid gases with mixtures of amines',
Chemical Engineering Progress, pp. 32-36, April 1985.
- [19] Ter Meulen, B.Ph.:
'Transfer device for the transfer of matter and/or heat from one medium flow
to another medium flow', US-Patent nr. 5,230,796, July 27, 1993.
- [20] Feron, P.H.M. et. al.:
'Development of membrane based absorption and extraction processes and
equipment', TNO-rapport nr. 93-079, Februari 1993.
- [21] VDI-Wärmeatlas, 5. Auflage, VDI-verlag GmbH, Düsseldorf, 1988.
- [22] Cran, J.:
'Improved factored method gives better preliminary cost estimates',
Chemical Engineering, pp. 65-79, April 6, 1981.
- [23] Feron, P.H.M., Jansen, A.E., Klaassen, R.:
'Membrane technology in carbon dioxide removal',
Energy Convers. Mgmt. 33 (1992) 421-428.
- [24] Kwong, K.V., et. al.:
'Application of amines for treating flue gas from coal-fired power plants',
Environmental Progress (Vol. 10, No. 3), August 1991.
- [25] Den Hartog, H.J., Beek, W.J.:
'Local mass transfer with chemical reaction: I. Homogeneous reactions',
Appl. Sci. Res. 19, pp. 311-337, October 1968.

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

- [26] Van Krevelen, D.W., Hoftijzer, P.J.:
'Kinetics of gas-liquid reactions: Part I. General theory',
Rec. Trav. Chim. 67 (1948) 563-586.

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

10 Verantwoording

Naam en adres van de opdrachtgever
Novem B.V. (Ir. C. Custers)
Postbus 17
6130 AA Sittard

Namen en functies van de medewerkers
P.H.M. Feron (onderzoekleider)
H.C.H.J. van Maanen (Aspen-simulaties)
J.J. Akkerhuis (Experimentele werkzaamheden)

Namen van instellingen waaraan een deel van het onderzoek is uitbesteed
TNO Kunststoffen en Rubber Instituut/Branchecentra
(Fabricage membraanmodule)

Datum waarop, of tijdsbestek waarin, het onderzoek heeft plaatsgehad
september 1993 - maart 1994

Ondertekening



P.H.M. Feron
onderzoekleider

Goedgekeurd door



A.E. Jansen
werkgroep leider

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

Bijlage A Rookgasgegevens

1 185 MW_e STEG-eenheid

Globale rookgassamenstelling (molfractie)

N ₂	:	0,749
O ₂	:	0,133
H ₂ O	:	0,075
CO ₂	:	0,034
Ar	:	0,009

Gedetailleerde samenstelling (molfractie)

N ₂	:	0,748939
O ₂	:	0,133000
H ₂ O	:	0,075000
CO ₂	:	0,034000
Ar	:	0,009000
CH ₄	:	0,000005
CO	:	0,000020
NO _x	:	0,000035
C ₂ H ₄	:	0,000001
Rookgasdebiet	:	1226 • 10 ³ Nm ³ /hr
Temperatuur	:	120 °C

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

2 350 kW_e Gasmotor

Globale samenstelling (molfractie)

N ₂	:	0,708
O ₂	:	0,084
H ₂ O	:	0,137
CO ₂	:	0,062
Ar	:	0,008
CH ₄	:	0,001

Gedetailleerde samenstelling (molfractie)

N ₂	:	0,706860
O ₂	:	0,084000
H ₂ O	:	0,137000
CO ₂	:	0,062000
Ar	:	0,008000
CH ₄	:	0,001300
CO	:	0,000600
NO ₂	:	0,000100
NO	:	0,000065
C ₂ H ₄	:	0,000040
C ₂ H ₆	:	0,000035
Rookgasdebiet	:	1737 Nm ³ /uur
Temperatuur	:	120 °C

Bijlage B Resultaten simulaties

1 STEG-eenheid

Samenstelling produkt

CO ₂	0,9525
N ₂	0,0003
H ₂ O	0,0471
O ₂	0,0001
Ar	6 ppm
MEA	0
CH ₄	3 ppb
CO	10 ppb
NO _x	9 ppb
C ₂ H ₄	2 ppb

Druk [bar]	1,6
Temperatuur [°C]	40

Gasdebiet [Nm ³ /hr]	471 • 10 ³
CO ₂ -verwijdering	80 %
CO ₂ -productie [mol/s]	158

MEA-concentratie [massa%]	30
MEA-debiet [10 ⁻³ m ³ /mol CO ₂]	0,911
MEA-verbruik [kg/mol CO ₂]	0,066

Warmtebehoefte stripper [MW]	36,0
Temperatuur bodem stripper [°C]	118

Koeling MEA [MW]	11,6
Koeling rookgas [MW]	14,3
Condensor desorber [MW]	14,3
Warmtewisselaar [MW]	20,1

Membraanoppervlak [m ²]	48040
Drukval absorber [kPa]	3

Rookgas ventilator [MW]	0,71
MEA circulatiepompen [kW]	21

Koelwater [m ³ /s]	0,42
-------------------------------	------

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

2 Gasmotor

Samenstelling produkt (PRODUKT)

CO ₂	0,9525
N ₂	0,0003
H ₂ O	0,0471
O ₂	0,0001
Ar	6 ppm
MEA	0
CH ₄	71 ppb
CO	31 ppb
NO _x	42 ppb
C ₂ H ₄	100 ppb
C ₂ H ₆	29 ppb
Druk [bar]	1,6
Temperatuur [°C]	40
Gasdebiet [Nm ³ /hr]	1737
CO ₂ -verwijdering	80 %
CO ₂ -produktie [mol/s]	1,07
MEA-concentratie [massa%]	30
MEA-debiet [10 ⁻³ m ³ /mol CO ₂]	0,868
MEA-consumption [g/mol CO ₂]	0,066
Warmtebehoefte stripper [kW]	224
Temperatuur bodem stripper [°C]	118
Koeling MEA [kW]	79
Koeling rookgas [kW]	116
Condensor desorber [kW]	80
Warmtewisselaar [kW]	148
Membraanoppervlak [m ²]	166
Drukval absorber [kPa]	3
Rookgas ventilator [kW]	2,7
MEA circulatiepompen [W]	80
Koelwater [10 ⁻³ m ³ /s]	2,6

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

Bijlage C Ontwerpprocedure voor prototype dwarsaangestroomde membraanmodule

De ontwerpprocedure is verlopen volgens een aantal stappen:

Stap 1: Keuze debiet voedingsgas ($\phi_g = 25 \text{ m}^3/\text{hr}$)

Dit voedingsgasdebiet was gebaseerd op de maximaal continu haalbare capaciteit van de stikstofvoorziening.

Stap 2: Selectie van het holle vezel membraan

Uitgaande van ervaring opgedaan in eerdere membraangasabsorptieprojecten werd gekozen voor een poreuze polypropyleen holle vezel gefabriceerd door Akzo (Accurel vezel) met een inwendige diameter d_i gelijk aan 0,6 mm en een uitwendige diameter d_u gelijk aan 1,0 mm.

Stap 3: Schatting stofoverdrachtscoëfficiënt ($k = 0,01 \text{ m/s}$)

Deze schatting was gebaseerd op de uit voorgaande studies verwachte stofoverdrachtsweerstand van poreuze hydrofobe membranen.

Stap 4: Bepaling van benodigd membraanoppervlak ($A_m = 0,2748 \text{ m}^2$)

Deze berekening was gebaseerd op het feit dat het mogelijk moest zijn om verwijderingsgraden met enige nauwkeurigheid te kunnen meten. De verwijderingsgraad voor een meestroomproces en de opgegeven stofoverdrachtscoëfficiënt kan afgeleid worden uit de volgende formule:

$$\text{Verwijderingsgraad} = 1 - \exp(kA_m/(\phi_g/3600)) = 0,33$$

Dit betreft echter een eerste schatting en dient te worden gevalideerd door de experimenten.

Stap 5: Keuze dimensie doorstroomopening gaszijdig

$$(A_f = 0,05 \text{ m} \times 0,05 \text{ m} = 0,0025 \text{ m}^2)$$

Hierbij is uitgegaan van een ontwerp gassnelheid van 3 m/s.

Stap 6: Bepaling aantal vezels ($n = 2916$)

Uitgaande van het membraanoppervlak ($A_m = 0,2748 \text{ m}^2$), de actieve lengte van de vezel ($l = 0,05 \text{ m}$) en de binnendiameter van de vezel ($d_i = 0,6 \text{ mm}$) kan uit de volgende formule het aantal vezels worden berekend:

$$n = A_m/(\pi \cdot d_i \cdot l)$$

Stap 7: Bepaling detailspecten geometrie van het module-ontwerp

Zoals reeds vermeld verdient de in-line geometrie de voorkeur. Echter de steek van de vezels kan nog vrij gekozen worden. Hier is gekozen voor een situatie waarbij $a(= S_t/d_u) = 1,8$ en $b(= S_t/d_i) = 1,8$.

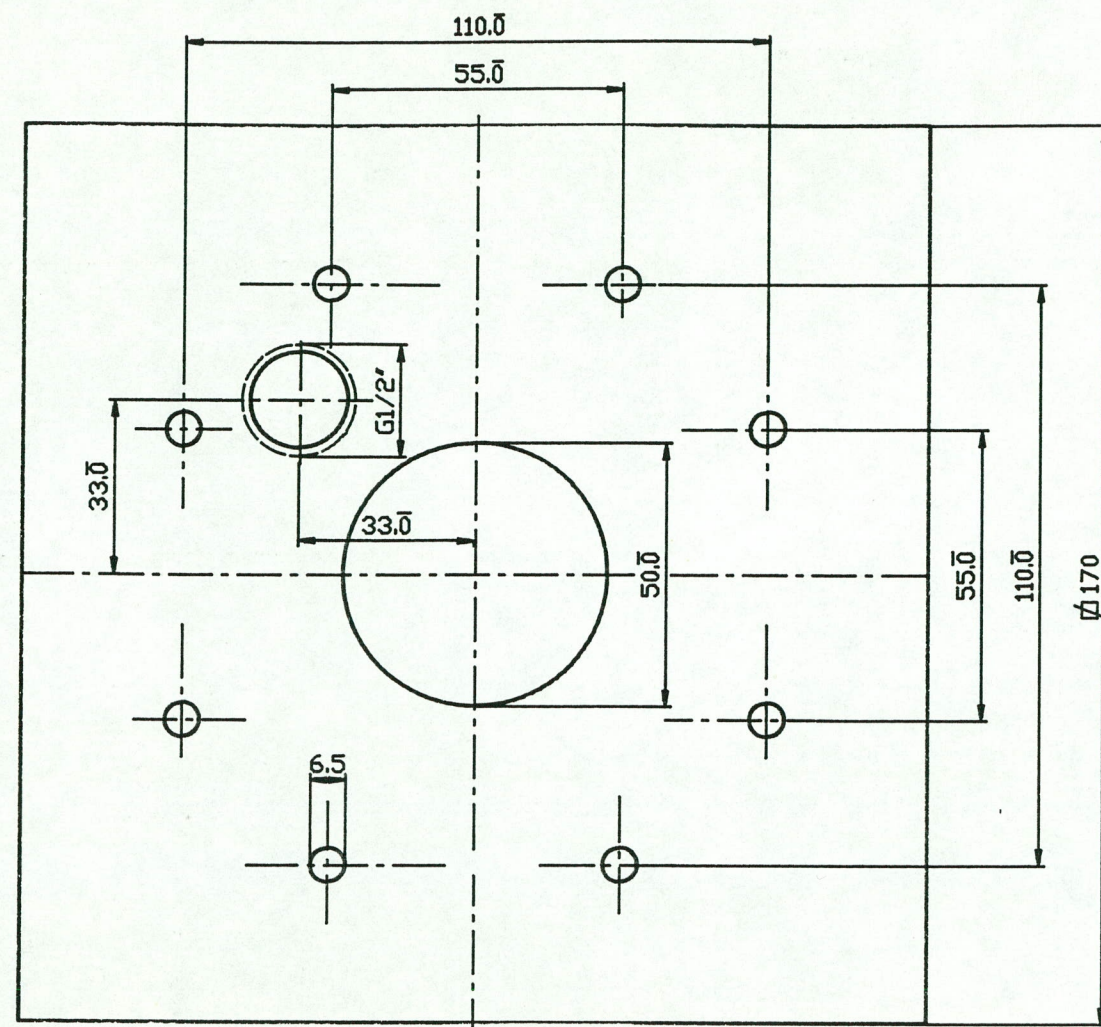
*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

Stap 8: Maken van technische tekening ten behoeve van fabricage

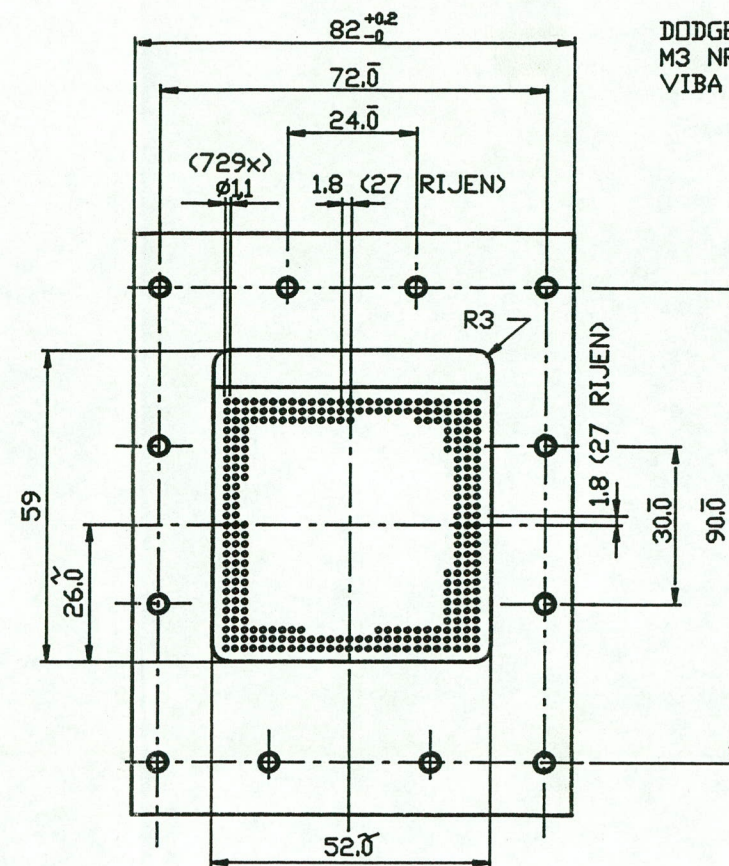
De technische tekening van het membraanmodule ontwerp is bijgevoegd als Bijlage D. Deze tekening werd vervaardigd door het Kunststoffen en Rubber Instituut (TNO-KRI/BC) in Delft.

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

**Bijlage D Technische tekening prototype
dwarsaangestroomde membraanmodule**

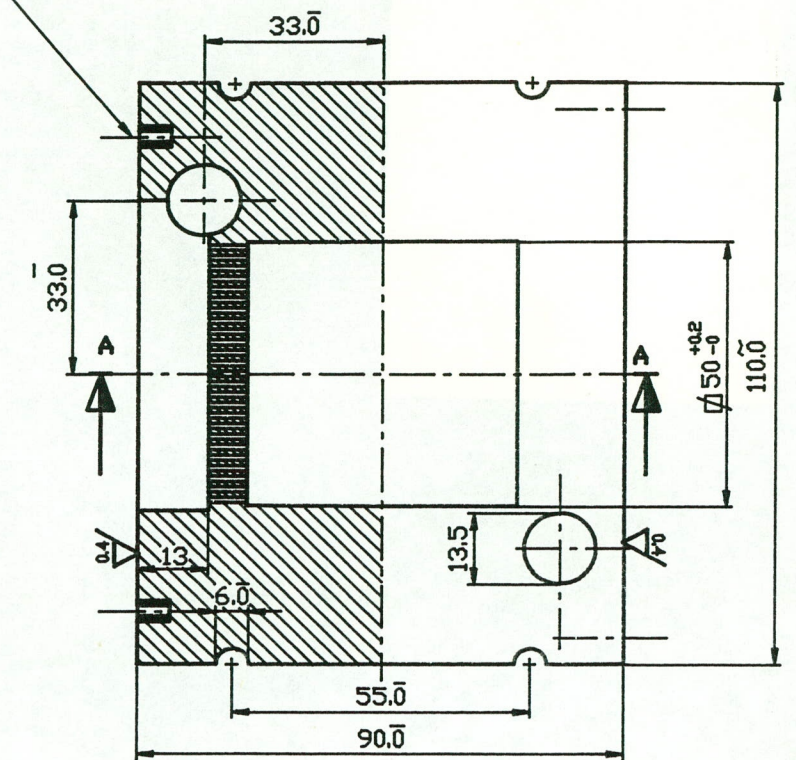


EINDPLAAT 2 STUKS
PVC DIKTE 20mm BEW: 0.8/



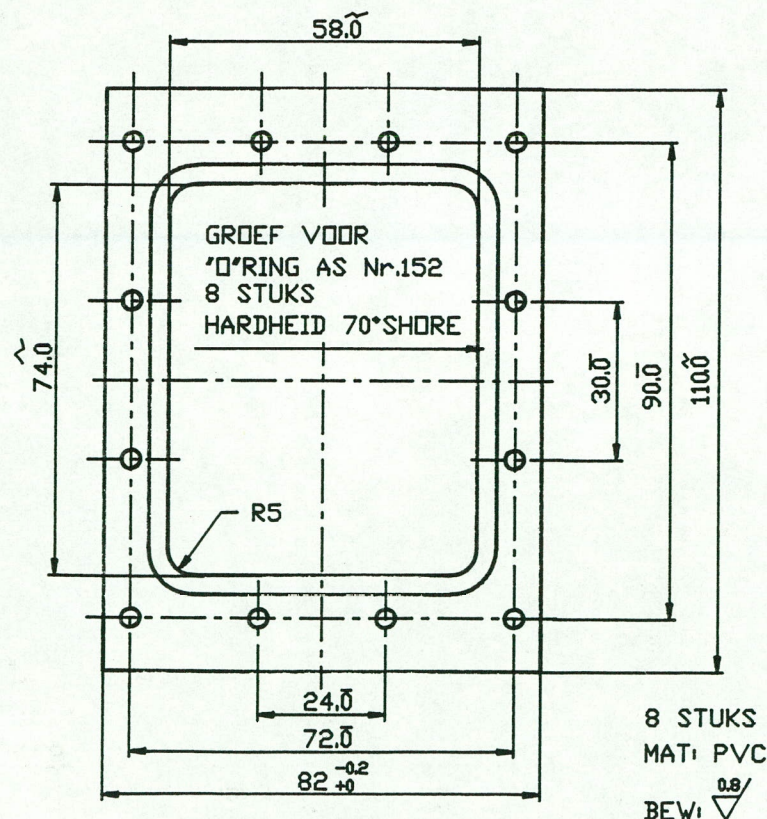
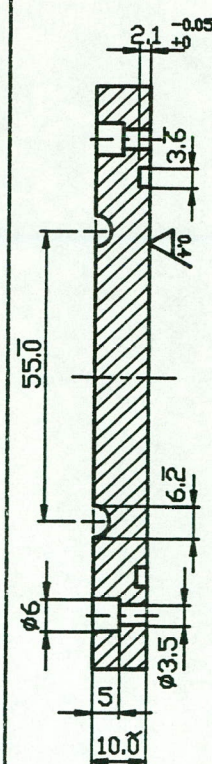
DODGE DRAADBUS
M3 NR40110262
VIBA

4 STUKS
MAT: PVC
BEW: 0.8/

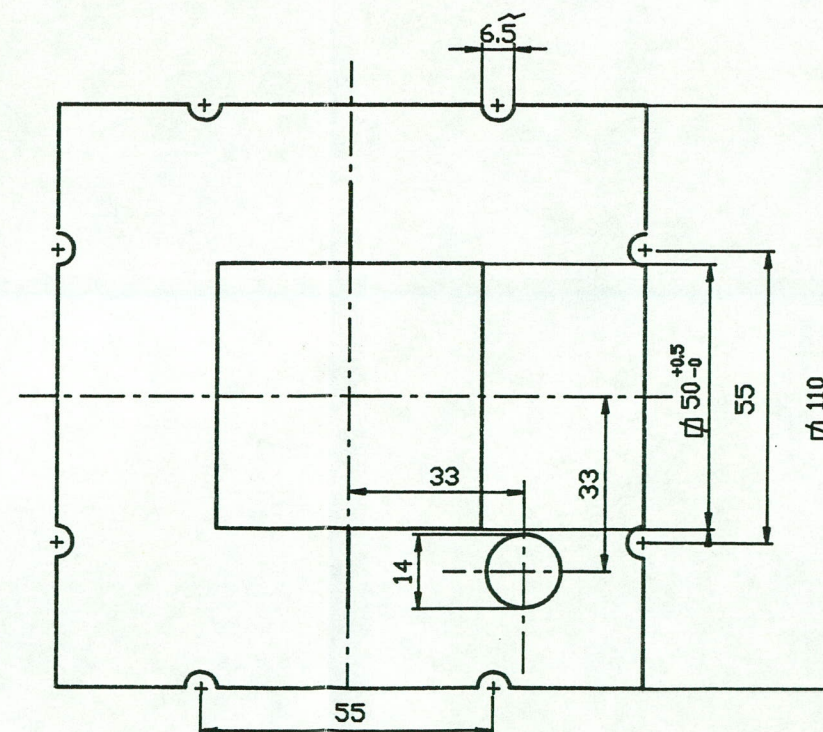


DOORSNEDE B-B

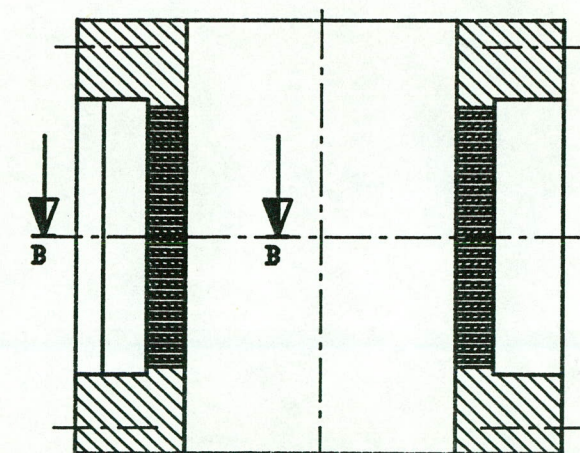
BOVEN-AANZICHT



8 STUKS
MAT: PVC
BEW: 0.8/



RUBBER PLAAT DIKTE 2mm
HARDHEID 70° SHORE
5 STUKS MAT: NBR



DOORSNEDE A-A

pos.nr.	aard van de wijziging	naam	datum
1	benaming:	mat: PVC	bew: 0.4/ 0.8
2	toleranties:	sch11	getikrassenburg
3	25.0 ± 0.5	proj Am	gezi
4	25.0 ± 0.2	formA2	geci
5	25.0 ± 0.1		
6	25.0 ± 0.05		
7	25.0 ± 0.02		
8	25.0 ± 0.01		
9	25.0 ± 0.005		
10	25.0 ± 0.002		
11	25.0 ± 0.001		
12	25.0 ± 0.0005		
13	25.0 ± 0.0002		
14	25.0 ± 0.0001		
15	25.0 ± 0.00005		
16	25.0 ± 0.00002		
17	25.0 ± 0.00001		
18	25.0 ± 0.000005		
19	25.0 ± 0.000002		
20	25.0 ± 0.000001		
21	25.0 ± 0.0000005		
22	25.0 ± 0.0000002		
23	25.0 ± 0.0000001		
24	25.0 ± 0.00000005		
25	25.0 ± 0.00000002		
26	25.0 ± 0.00000001		
27	25.0 ± 0.000000005		
28	25.0 ± 0.000000002		
29	25.0 ± 0.000000001		
30	25.0 ± 0.0000000005		
31	25.0 ± 0.0000000002		
32	25.0 ± 0.0000000001		
33	25.0 ± 0.00000000005		
34	25.0 ± 0.00000000002		
35	25.0 ± 0.00000000001		
36	25.0 ± 0.000000000005		
37	25.0 ± 0.000000000002		
38	25.0 ± 0.000000000001		
39	25.0 ± 0.0000000000005		
40	25.0 ± 0.0000000000002		
41	25.0 ± 0.0000000000001		
42	25.0 ± 0.00000000000005		
43	25.0 ± 0.00000000000002		
44	25.0 ± 0.00000000000001		
45	25.0 ± 0.000000000000005		
46	25.0 ± 0.000000000000002		
47	25.0 ± 0.000000000000001		
48	25.0 ± 0.0000000000000005		
49	25.0 ± 0.0000000000000002		
50	25.0 ± 0.0000000000000001		
51	25.0 ± 0.00000000000000005		
52	25.0 ± 0.00000000000000002		
53	25.0 ± 0.00000000000000001		
54	25.0 ± 0.000000000000000005		
55	25.0 ± 0.000000000000000002		
56	25.0 ± 0.000000000000000001		
57	25.0 ± 0.0000000000000000005		
58	25.0 ± 0.0000000000000000002		
59	25.0 ± 0.0000000000000000001		
60	25.0 ± 0.00000000000000000005		
61	25.0 ± 0.00000000000000000002		
62	25.0 ± 0.00000000000000000001		
63	25.0 ± 0.000000000000000000005		
64	25.0 ± 0.000000000000000000002		
65	25.0 ± 0.000000000000000000001		
66	25.0 ± 0.0000000000000000000005		
67	25.0 ± 0.0000000000000000000002		
68	25.0 ± 0.0000000000000000000001		
69	25.0 ± 0.00000000000000000000005		
70	25.0 ± 0.00000000000000000000002		
71	25.0 ± 0.00000000000000000000001		
72	25.0 ± 0.000000000000000000000005		
73	25.0 ± 0.000000000000000000000002		
74	25.0 ± 0.000000000000000000000001		
75	25.0 ± 0.0000000000000000000000005		
76	25.0 ± 0.0000000000000000000000002		
77	25.0 ± 0.0000000000000000000000001		
78	25.0 ± 0.00000000000000000000000005		
79	25.0 ± 0.00000000000000000000000002		
80	25.0 ± 0.00000000000000000000000001		
81	25.0 ± 0.000000000000000000000000005		
82	25.0 ± 0.000000000000000000000000002		
83	25.0 ± 0.000000000000000000000000001		
84	25.0 ± 0.0000000000000000000000000005		
85	25.0 ± 0.0000000000000000000000000002		
86	25.0 ± 0.0000000000000000000000000001		
87	25.0 ± 0.00000000000000000000000000005		
88	25.0 ± 0.00000000000000000000000000002		
89	25.0 ± 0.00000000000000000000000000001		
90	25.0 ± 0.000000000000000000000000000005		
91	25.0 ± 0.000000000000000000000000000002		
92	25.0 ± 0.000000000000000000000000000001		
93	25.0 ± 0.0000000000000000000000000000005		
94	25.0 ± 0.0000000000000000000000000000002		
95	25.0 ± 0.0000000000000000000000000000001		
96	25.0 ± 0.00000000000000000000000000000005		
97	25.0 ± 0.00000000000000000000000000000002		
98	25.0 ± 0.00000000000000000000000000000001		
99	25.0 ± 0.000000000000000000000000000000005		
100	25.0 ± 0.000000000000000000000000000000002		

Bylage D
(niet verkleinen
s.v.p.)

Vouwblad

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

Bijlage E Gegevens gebruikte meetapparatuur

1. CO₂ monitor Binos 1001 Rosemount
2. Rotameters Brooks
3. Massflowmeter Bronkhorst HI-TEC
4. Tandradpomp SSP
5. Drukverschilmeter Valmet Press-EL

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

Bijlage F Foto van meetopstelling



Bijlage F

FOTO ~~WINTER~~
IN KLEUR
VERKLEIND OP DEZE
PAGINA AFDRUKKEN.

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

Bijlage G Resultaten verschildrukmetingen

Tabel 1 Resultaten gaszijdige verschildrukmetingen

Debiet lucht [Nm ³ /hr]	Drukval ¹⁾ [Pa]	Temperatuur uitstroom ¹⁾ [°C]
9	107	20,9
15	251	20,8
22	528	20,8
29	821	20,7
36	1308	20,8

¹⁾ Opgegeven waarden zijn gemiddelde waarde van een meting bij toenemend debiet en een meting bij toenemend debiet.

Tabel 2 Resultaten vloeistofzijdige verschildrukmetingen

Debiet water [l/hr]	Drukval ¹⁾ [kPa]	Temperatuur uitstroom ¹⁾ [°C]
5,8	0,91	20,1
9,9	1,86	20,1
14,2	2,76	20,1
18,5	3,70	20,1
22,8	4,72	20,1
27,3	5,85	20,0
32,0	6,96	20,0
36,7	8,15	20,0
41,9	9,39	20,0
47,3	10,73	20,0

¹⁾ Opgegeven waarden zijn gemiddelde waarde van een meting bij toenemend debiet en een meting bij toenemend debiet.

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

Bijlage H Berekeningsmethode voor bepaling stofoverdrachtscoëfficiënt uit afname CO₂-concentratie

De gemiddelde stofoverdrachtscoëfficiënt voor een tegenstroom proces wordt bepaald uit een logaritmische gemiddeld concentratieverschil over het membraan, analoog aan de beschrijving van het logaritmisch temperatuurverschil over warmtewisselaars. Vergelijking H.1 geeft de mathematische relatie weer:

$$k = ((Q_g/3600)/A_m) \cdot \ln((c_{g,in} - c_{l,uit}^*)/(c_{g,uit} - c_{l,in}^*)) \quad (H.1)$$

waarbij

k	: Stofoverdrachtscoëfficiënt	[m/s]
Q _g	: Gasdebiet	[m ³ /hr]
A _m	: Membraanoppervlak	[m ²]
c _{g,in}	: CO ₂ -ingangsconcentratie gasfase	[-]
c _{g,uit}	: CO ₂ -uitgangsconcentratie gasfase	[-]
c _{l,in} [*]	: CO ₂ -evenwichtsconcentratie ingang vloeistoffase	[-]
c _{l,uit} [*]	: CO ₂ -evenwichtsconcentratie uitgang vloeistoffase	[-]

De concentraties met een sterretje als superscript (c^{*}) zijn de gaszijdige evenwichtsconcentraties van een met CO₂ beladen MEA-oplossing. Indien deze evenwichtsconcentraties klein zijn als gevolg van een geringe belading van de absorptievloeistof dan kan vergelijking H.1 herschreven worden tot vergelijking H.2.

$$k = ((Q_g/3600)/A_m) \cdot \ln(c_{g,in}/c_{g,uit}) \quad (H.2)$$

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

Bijlage I Resultaten stofoverdrachtsmetingen

Exp nr.	Conc. CO ₂ in [%]	Conc. CO ₂ uit [%]	Temp MEA in [°C]	Temp MEA uit [°C]	Temp CO ₂ in [°C]	Temp CO ₂ uit [°C]	Debiet CO ₂ /N ₂ [m ³ /hr]	Debiet MEA [l/h]	MEA in water [%]	k [10 ⁻³ m/s]
1	4,06	0,03	20,4	20,9	20,1	21,9	1	37	30	4,96
2	4,08	0,02	19,6	19,9	19,8	22,3	1	111	30	5,38
3	4,04	0,01	19,9	20,1	19,8	22,4	1	186	30	6,07
4	4,08	1,19	23,1	25,7	20,9	23,5	5	37	30	6,23
5	4,11	0,97	23,6	24,6	21,2	23,9	5	111	30	7,30
6	4,09	0,89	23,8	24,6	21,3	24,0	5	186	30	7,71
7	4,02	2,93	22,2	22,2	21,4	22,8	15	37	30	4,80
8	4,02	2,75	22,3	22,4	21,4	22,6	15	111	30	5,76
9	3,99	2,68	22,5	22,4	21,5	22,5	15	186	30	6,03
10	3,99	3,30	20,3	22,3	21,5	22,5	25	37	30	4,80
11	4,02	3,21	22,3	22,5	21,7	22,4	25	111	30	5,69
12	3,99	3,21	22,4	22,4	21,9	22,4	25	186	30	5,50
13	3,96	1,76	21,5	22,8	21,4	21,5	5	37	15	4,10
14	3,99	1,51	21,8	22,3	21,4	21,8	5	111	15	4,91
15	3,98	1,49	21,8	22,3	21,4	21,8	5	186	15	4,97
16	4,03	3,14	19,9	20,9	20,5	21,3	15	37	15	3,78
17	4,00	3,03	20,7	20,9	20,4	21,1	15	111	15	4,21
18	3,96	3,02	21,1	21,2	20,8	21,2	15	186	15	4,11
19	4,01	3,53	18,7	20,5	21,1	21,3	25	37	15	3,22
20	4,01	3,43	20,5	21,2	21,0	21,3	25	111	15	3,95
21	3,99	3,37	20,5	21,3	21,2	21,4	25	186	15	4,27
22	4,01	1,18	23,0	25,7	20,4	24,0	5	37	30	6,18
	4,03	1,15	22,6	25,4	21,1	23,4			30	6,34
	4,07	1,37	22,7	25,0	21,6	23,3			30	5,50
	4,05	1,73	18,8	21,1	19,0	19,2			30	4,30
	3,99	1,76	15,6	18,1	-	16,1			30	4,14
23	7,17	6,51	21,2	20,4	20,0	22,0	25	37	30	2,14
24	7,16	6,26	24,6	24,3	20,2	25,0		111	30	3,43
25	7,18	6,10	24,9	24,8	20,3	25,2		186	30	4,11

Bijlage J Uitgangspunten voor dimensionering apparaten

J.1 Apparaatkosten

Membraanabsorber

Het benodigd membraanoppervlak werd berekend met Formule H.1 (Bijlage H). De stofoverdrachtscoëfficiënt wordt berekend op basis van een theoretisch model op het punt in de absorber waarop de drijvende kracht gelijk is aan de gemiddelde drijvende kracht. In [1, p. 67] wordt gesteld dat dit een adequate basis is voor procesdimensionering. De diameter van de holle vezel membranen wordt op 0,25 mm gesteld met een wanddikte van 0,05 mm. Membranen met deze dimensies zijn momenteel commercieel verkrijgbaar op een rol voor 30 f/m². In modulevorm wordt voor de gasmotor een prijs aangenomen van 100 f/m² en voor de STEG-eenheid een prijs van 50 f/m².

Rookgaskoeler

De rookgaskoeler is een zogenaamde direct contactkoeler. Investeringskosten hiervan zijn afgeleid uit gegevens in [2].

Reboiler, absorptievloeistofkoeler, MEA-warmtewisselaar

De apparaatkosten van deze shell/tube warmtewisselaars worden gebaseerd op een warmteoverdrachtscoëfficiënt van 1 kW/(m²K) (vloeistof-vloeistof overdracht) en de kosten opgegeven in [3]. Voor de reboiler in de STEG-eenheid wordt uitgegaan van een warmteoverdrachtscoëfficiënt gelijk aan 2 kW/(m²K). De absorptievloeistofkoeler is geheel van koolstof staal, terwijl voor de MEA-warmtewisselaar en de reboiler wordt uitgegaan van AISI 304 staal.

Condensor

De apparaatkosten van deze shell/tube warmtewisselaar worden gebaseerd op een warmteoverdrachtscoëfficiënt van 2 kW/(m²K) (stoom-vloeistof overdracht) en de kosten opgegeven in [3]. Er is uitgegaan van AISI 304 staal.

Desorber

Dit is een gepakte destillatie kolom bestaande uit 6 theoretische schotels. Globaal uitgaande van 0,5 m per theoretische schotel levert dit een totale hoogte van 3 m. Een nauwkeuriger analyse is mogelijk op basis van de Aspen resultaten maar zou in dit stadium te ver voeren. Voor de gasmotor zijn er geen prijzen voor stalen kolommen getabelleerd (diameter is te klein) en wordt uitgegaan van een glazen kolom [3]. Voor de STEG-eenheid wordt uitgegaan van een stalen (AISI 304) kolom waarvoor ook prijzen zijn getabelleerd in [3].

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

Rookgasventilator

Voor de gasmotor is dit een centrifugaal ventilator waarvan kosten worden afgeleid uit [3].

Voor de STEG-eenheid zijn de debieten dusdanig hoog dat er geen gegevens in [3] zijn. De investeringskosten zijn vervolgens geschat op basis van gegevens uit voorgaande (niet gepubliceerde) studies.

Vloeistofpomp

Voor de gasmotor is dit een centrifugaal pomp waarvan kosten worden afgeleid uit [3]. Er zijn twee pompen (absorptie/desorptie) nodig. Beide zijn gemaakt van AISI 316 staal.

Voor de STEG-eenheid zijn de debieten dusdanig hoog dat er geen gegevens in [3] zijn. De investeringskosten zijn vervolgens geschat op basis van gegevens uit voorgaande (niet gepubliceerde) studies.

J.2 Bedrijfskosten

- Elektriciteitskosten worden gesteld op f 0,20/kWh; Elektrische energie is nodig voor ventilatoren en pompen.
- Gaszijdige drukvallen worden berekend op basis van de correlaties gegeven in [4], aangezien de testresultaten aangeven dat deze correlaties uitstekend bruikbaar zijn.
- Vloeistofzijdige drukvallen zijn gebaseerd op een drukval die tweemaal zo groot is als de drukval door holle vezels. Ook hier blijkt uit testresultaten dat deze drukval een goede schatting geeft voor de drukval.
- Koelwater: f 0,10 per m^3 (oppervlaktewater); Koelwater is nodig voor rookgas-koeling, MEA-koeling en condensorkoeling.
- Onderhoudskosten worden gesteld op 3% van de investering.
- MEA kost f 1,50 per kg.
- Warmte voor regeneratie is gratis.

J.3 CO₂-kostprijs berekening

De kostprijs van het geproduceerde CO₂ wordt berekend uit de volgende formule:

$$K = (AF + OF) \cdot I / (C \cdot H) + B/C$$

waarin:

K	: CO ₂ -kostprijs	[ct/kg]
AF	: Annuïteitsfactor	
OF	: Onderhoudsfactor	
I	: Investeringskosten	[ct]
C	: CO ₂ -ontwerp productie	[kg/hr]

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

H : Aantal bedrijfsuren [hr]
B : Bedrijfskosten [ct/hr]

J.4 Referenties

- [1] Kohl, A.L., Riesenfeld, F.C.:
'Gas purification', Gulf Publishing Co., Houston, 1979.
- [2] Vatavuk, W.M., Neveril, R.B.:
'Estimation of air-pollution control systems,
Part V: Estimating the size and cost of gas conditioners',
Chemical Engineering, pp. 127-132, January 26, 1981.
- [3] WEBCI/WUBO prijzenboekje, 13^e editie, mei 1988.
- [4] VDI-Wärmeatlas, 5. Auflage, VDI-Verlag GmbH, Düsseldorf, 1988.

*Kooldioxidewinning uit rookgassen met membraangasabsorptie:
Toepassing als bemestingsgas in de tuinbouw*

Bijlage K Apparaatdimensies en investeringskosten

Gasmotor

Apparaat	Oppervlak [m ²]	Hoogte [m]	Diameter [m]	Vermogen [kW]	Debiet [m ³ /u]	Investering [kf]
Rookgaskoeler		1,5	0,5	116		17,0
MEA koeler	3,5			79		18,0
Reboiler	15			224		49,0
MEA warmtewisselaar	11			148		38,0
Condensor	0,82			80		24,0
Desorber		3	0,25			14,0
Pompen ab/desorber				0,04 (x2)	3,4	9,4
Ventilator absorber				2,7	2500	8,0
Membraan absorber	166	0,85	0,4 x 0,4 m			16,6
Totaal						194,0

STEG-eenheid

Apparaat	Oppervlak [m ²]	Hoogte [m]	Diameter [m]	Vermogen [MW]	Debiet [m ³ /u]	Investering [kf]
Rookgaskoeler		24,3	8,1	14,3		160
MEA koeler	321			11,6		146
Reboiler	1200					781
MEA warmtewisselaar	1183			20,1		774
Condensor	144			14,3		180
Desorber		10	3,5			325
Pompen ab/desorber				0,003/0,02		250
Ventilator absorber				0,71	555000	800
Membraan absorber	48040	0,85	6,8x6,8 m			2402
Totaal						5818

Bijlage L Beschrijving ASPEN-Plus

ASPEN-Plus is een wereldwijd gebruikt en toonaangevend programma op het gebied van doorrekenen en optimaliseren van processen. Het is een flowsheet simulator met een zeer sterke thermodynamische basis, ondersteund door databanken met gegevens van meer dan 1600 stoffen, inclusief water (stoomtabellen enz.). Gegevens van organische verbindingen, welke niet in de databanken voorkomen, kunnen worden geschat aan de hand van de moleculaire structuur. Zowel vaste stof en elektrolytssystemen als ideale en niet-ideale multicomponentsystemen kunnen worden gemodelleerd. Twintig verschillende thermodynamische modellen (elk met verschillende opties) in combinatie met databanken voor interactie parameters en regressie-analyse geven veel mogelijkheden voor berekening van thermodynamische evenwichtsligging en waarden.

Modellen van vrijwel alle in de procesindustrie bekende unit operations zijn aanwezig (van hydrocycloon tot reactieve destillatie). Een uitgebreid blok mathematische methoden staat ter beschikking waarmee berekeningen aan zeer ingewikkelde (meervoudig geneste loops) recyclesystemen snel tot convergentie kunnen worden gebracht. Ook financiële en economische aspecten met betrekking tot de werking van een installatie kunnen worden berekend. Het programma wordt ondersteund door een modelmanager (een input/output processor, werkend als een expert guidance system) en een grafische interface voor het samenstellen van een flowsheet en voor verwerking van resultaten.