AGROTECHNOLOGY &
FOOD INNOVATIONS
WAGENINGEN UR

Biologisch filter voor verwijdering van methaan uit lucht van stallen en mestopslagen

Methane degradation in a pilot-scale biofilter for treatment of air from animal houses and manure storages

R.W. Melse

Rapport 2003-16



Biologisch filter voor verwijdering van methaan uit lucht van stallen en mestopslagen

Methane degradation in a pilot-scale biofilter for treatment of air from animal houses and manure storages

R.W. Melse

Rapport 2003-16

Colophon

Eindrapportage van onderzoek uitgevoerd in opdracht van Novem (subsidieprogramma ROB-AGRO; projectnummer: 375102/0010) en van het Ministerie van Landbouw, Natuurbeheer en Voedselkwaliteit

Titel	Biologisch filter voor verwijdering van methaan uit lucht van stallen en mestopslagen
Auteur	R.W. Melse
A&F nummer	2003-16
ISBN-nummer	90-5406-240-1
Publicatiedatum	Oktober 2003
Vertrouwelijkheid	n.v.t.
Projectcode.	630.53345.01
Prijs	€ 23

Agrotechnology and Food Innovations B.V.
P.O. Box 17
NL-6700 AA Wageningen
Tel: +31 317 475 024
E-mail: info.agrotechnologyandfood@wur.nl
Internet: www.agrotechnologyandfood.wur.nl

© 2003 Agrotechnology & Food Innovations B.V
Alle rechten voorbehouden. Niets uit deze uitgave mag worden verveelvoudigd, opgeslagen in een geautomatiseerd gegevensbestand of openbaar gemaakt in enige vorm of op enige wijze, hetzij elektronisch, hetzij mechanisch, door fotokopieën, opnamen of enige andere manier, zonder voorafgaande schriftelijke toestemming van de uitgever.
De uitgever aanvaardt geen aansprakelijkheid voor eventuele fouten of onvolkomenheden.

All right reserved. No part of this publication may be reproduced, stored in a retrieval system of any nature, or transmitted, in any form or by any means, electronic, mechanical, photocopying, recording or otherwise, without the prior permission of the publisher.
The publisher does not accept any liability for the inaccuracies in this report.

1 Abstract

A pilot-scale biofilter (160 liter) was developed for removal of methane from air withdrawn from the headspace of liquid manure storages in order to decrease the emission of greenhouse gases from livestock farming. A methane removal up to 85% was achieved. The removal efficiency mainly depends on the methane inlet concentration due to the low water solubility of methane. As the exhaust air of animal houses has a low methane concentration and a high flow, biofiltration of this air was considered not economically feasible. At a desired emission reduction of 50%, the required size of a biofilter treating air from a 1,000 m^3 manure storage is 20 - 80 m^3. The emission reduction costs per ton CO_2-eq. (without subsidies), are € 100 - € 500 for a biofilter against € 34 for flaring off biogas, and € 56 for an anaerobic digester with power generation, so that flaring off biogas is the most cost efficient technique for emission reduction of greenhouse gases. At present subsidy conditions in the Netherlands however, the anaerobic digester only costs € 11 per ton CO_2-eq.

Keywords: biofiltration, greenhouse gas, methane oxidation, manure, rumen, methanotrophs, low water solubility, anaerobic digestion, flare off.

Inhoud

1 Abstract 3

2 Voorwoord 5

3 Inleiding 6

3.1 Probleemstelling 6

3.2 Doelstelling 6

3.3 Financiering en projectstructuur 6

4 Resultaten en discussie 8

4.1 Samenvatting uitgevoerd onderzoek 8

4.2 Haalbaarheid van biofiltratie voor stallucht en/of mestopslagen 10

4.3 Kosten van emissiereductie door biofilter 11

4.4 Marktwaarde van emissiereductie 14

4.5 Biofilter versus vergistingsinstallatie en fakkel 15

5 Mogelijkheden voor kostenverlaging 19

5.1 Probleemstelling 19

5.2 Doelstelling 19

5.3 Methoden voor verhoging stofoverdracht 19

5.3.1 Inleiding 19

5.3.2 Verlaging ventilatiedebiet 20

5.3.3 Gasscheiding 23

5.3.4 Luchtbehandelingstechnieken voor verwijdering slecht oplosbare stoffen 24

5.4 Evaluatie technieken 26

6 Conclusies 29

Literatuur 31

Samenvatting 34

Summary 36

Bijlagen 38

2 Voorwoord

De Nederlandse veestapel is verantwoordelijk voor de emissie van een aanzienlijke hoeveelheid broeikasgassen. De emissie bestaat voornamelijk uit methaan en bedraagt circa 45% van de totale methaanemissie van Nederland. In onderliggend rapport wordt onderzocht of het mogelijk is een biologisch luchtfilter te ontwikkelen voor de verwijdering van methaan uit ventilatielucht van stallen en mestopslagen, teneinde de broeikasgasemissie uit de veehouderij te kunnen verlagen. Helaas blijkt uit het onderzoek dat biofiltratie, vanwege de daarmee gepaard gaande kosten, op dit moment weinig perspectief biedt.

De uitvoering van dit project is mogelijk gemaakt door financiering van Novem in het kader van het Besluit milieusubsidies Subsidieregeling Reductie Overige Broeikasgassen (ROB-AGRO projectnummer: 375102/0010) en van het Ministerie van Landbouw, Natuurbeheer en Visserij (Vrije ruimte programma 309, 'Gasvormige emissies in de veehouderij').

Het project is uitgevoerd in samenwerking tussen IMAG (Roland Melse en Max Hilhorst), Stork Product Engineering (Jos Brunink en Fir Eckhard) en Bioclear (Arjan van der Werf, Marc van Bemmel en Jaap van der Waarde). Ik wil hierbij alle partijen van harte bedanken voor de geleverde bijdragen.

Tenslotte spreek ik de hoop uit dat voortgaand onderzoek naar technieken voor emissiereductie zal bijdragen aan het totstandkomen van een Nederlandse veehouderij die op een verantwoorde wijze omgaat met het milieu.

Dr.Ir. C.E. van 't Klooster
Directeur Business Unit IMAG B.V.

3 Inleiding

3.1 Probleemstelling

De totale emissie van methaan (CH_4) en lachgas (N_2O), beide belangrijke broeikasgassen, bedraagt ongeveer 36 Mton CO_2-eq. per jaar in Nederland. De landbouw is verantwoordelijk voor ongeveer 45% van deze emissie. De veehouderij is binnen de landbouw de belangrijkste bron van methaanemissie (circa 10 Mton CO_2-eq.). Tachtig procent van deze emissie (circa 8 Mton CO_2-eq.) is afkomstig van pensvergisting in herkauwers (voornamelijk runderen) en twintig procent (circa 2 Mton CO_2-eq.) is afkomstig van vergistingsprocessen die plaatsvinden gedurende mestopslag, zowel onder de stal als in opslagen buiten de stal (RIVM & CBS, 2001).

Reiniging van ventilatielucht van stallen (d.w.z. emissies uit de mestopslag onder de stal en rechtstreekse emissies uit het dier) en van ventilatielucht van externe mestopslagen heeft daarom een hoog potentieel voor reductie van emissie van overige broeikasgassen ([1]). Op dit moment bestaat er echter geen commercieel beschikbaar 'methaanfilter'.

Aangezien methaan een veel sterker broeikasgas is dan CO_2 ([2]) is er netto toch sprake van een emissiereductie van broeikasgassen wanneer tijdens het luchtreiningsproces (een deel van) het methaan wordt geoxideerd tot CO_2. De CO_2 die in het biofilter uit methaan wordt gevormd is afkomstig van organisch materiaal (mest) dat zelf weer gevormd is uit fotosynthese. Aangezien er dus sprake is van de korte koolstofkringloop, draagt de in het biofilter gevormde CO_2 niet bij aan het versterkte broeikasgaseffect.

3.2 Doelstelling

Het doel van het project was het ontwikkelen van een biologisch luchtfilter dat gebruikt kan worden voor verwijdering van methaan uit lucht afkomstig van stallen en/of mestopslagen. Het biofilter dient een emissiereductie van overige broeikasgassen van ten minste 50% te realiseren. De investerings- en exploitatiekosten van het biofilter dienen dusdanig te zijn het luchtfilter een economisch rendabele emissiereductietechniek is. Ten tijde van de projectaanvraag werd uitgegaan van een maximale investering voor het biologisch filter van *fl.* 10.000,- per 100 vleesvarkens, oftewel € 45 per dierplaats, en werd een membraanbioreactor (zie bijvoorbeeld Kennes, 2000) genoemd als mogelijk geschikt geachte technologie voor de methaanverwijdering uit de lucht.

3.3 Financiering en projectstructuur

De uitvoering van dit project is mogelijk gemaakt door financiering van Novem in het kader van het Besluit milieusubsidies Subsidieregeling Reductie Overige Broeikasgassen (ROB-AGRO - projectnummer: 375102/0010) en van het Ministerie van Landbouw, Natuurbeheer en Voedselkwaliteit (Vrije ruimte programma 309, "Gasvormige emissies in de veehouderij"). Het project is de periode van 1 april 2001 tot 1 januari 2003 uitgevoerd door een consortium van IMAG (subsidieaanvrager en penvoerder), Stork Product Engineering (projectpartner) en Bioclear (derde).

([1]) *Met 'overige broeikasgassen wordt bedoeld: alle broeikasgassen behalve CO_2.*
([2]) *Op gewichtsbasis heeft methaan een 21 maal zo sterke broeikasgaswerking als CO_2.*

Fase 1 en 2 van het project (zie onder) zijn uitgevoerd door Bioclear in opdracht van IMAG, fase 3 (zie onder) is uitgevoerd door IMAG en fase 4 van het project (zie onder) is uitgevoerd door Stork Product Engineering (SPE).

Het project bestond uit vier verschillende fasen:

* Fase 1: Literatuurstudie
In deze fase is de informatie die uit de literatuur bekend is met betrekking tot de biologische afbraak van methaan en de daarvoor geschikte behandelingstechnieken in kaart gebracht. De behandelingstechnieken zijn geëvalueerd om te bepalen welke techniek het meest geschikt is voor de behandeling van methaan uit lucht van stallen en/of mestopslagen. De rapportage van fase 1 is opgenomen in Bijlage 1 van dit rapport (Bemmel & Werf, 2002).

* Fase 2: Microbiologische laboratoriumonderzoek
In fase 2 zijn verschillende methaanafbrekende bacteriestammen onderzocht (groeisnelheid, afbraaksnelheid methaan, gevoeligheid voor omgevingsomstandigheden etc.) met als doel een geschikte stam te selecteren voor toepassing in een biologisch filter. De rapportage van fase 2 is opgenomen in Bijlage 2 van dit rapport (Werf, 2002).

* Fase 3: Bouw van en onderzoek aan pilot-scale filterinstallatie
In fase 3 is op grond van de resultaten uit fase 1 en fase 2 een pilot-scale biofilterinstallatie ontworpen en gebouwd. In het onderzoek werd het biofilter getest en onderzocht werd wat de maximale belasting van het biofilter is. De rapportage van fase 3 is opgenomen in Bijlage 3 van dit rapport (Melse, 2003).

* Fase 4: Deskstudie naar technische en economische haalbaarheid
Op grond van de voorafgaande projectfasen is tenslotte in een bureaustudie de technische en economische haalbaarheid van een full-scale luchtfilterinstallatie beschreven. De rapportage van deze studie is opgenomen in Bijlage 4 van dit rapport (Brunink, 2002).

In onderliggende eindrapportage worden de resultaten van de verschillende projectfasen door IMAG geanalyseerd en wordt een aantal conclusies getrokken met betrekking tot de toepasbaarheid van het biofilter. Bovendien worden de mogelijkheden in kaart gebracht voor verbetering van de werking van het biofilter waardoor de economische haalbaarheid van het biofilter mogelijk vergroot zou kunnen worden. Tenslotte word de kostenefficiëntie voor emissiereductie van broeikasgassen van het biofilter, vergeleken met alternatieve reductiemaatregelen, te weten het vergisten van mest en het affakkelen van biogas.

4 Resultaten en discussie

4.1 Samenvatting uitgevoerd onderzoek

Hieronder worden de resultaten en conclusies van de vier onderzoeksfasen samengevat.

Resultaten fase 1: Literatuurstudie (Bijlage 1)
Uit de literatuur zijn geen onderzoeken bekend waarbij het doel is methaan te verwijderen uit ventilatielucht van stallen of mestopslagen. Bij een aantal biofilters dat ontworpen is voor de verwijdering van ammoniak of geur uit stallucht, is wel gemeten aan methaanverwijdering. De methaanverwijdering blijkt in die gevallen zeer laag te zijn als gevolg van de lage wateroplosbaarheid van methaan.

Er is wel een aantal toepassingen bekend waarbij methaanhoudend afgas van een vuilstortplaats wordt behandeld in een biofilter. In vergelijking met ventilatielucht van stallen (10 - 160 ppm) is de methaanconcentratie in stortgas echter 1.000 tot 3.000 maal zo hoog.

Als gevolg van de lage wateroplosbaarheid van methaan en de relatief lage concentratie van methaan in stallucht wordt geconcludeerd dat praktische toepassing van een reguliere biologische filterinstallatie niet mogelijk is voor deze luchtstroom, gezien de hoge ventilatiedebieten waarvan sprake is bij stallen. De omvang van een dergelijke filterinstallatie zou namelijk enige tienduizenden kubieke meters bedragen. Behandeling van ventilatielucht uit mestopslagen biedt wel praktische perspectieven aangezien dat, ondanks de lage wateroplosbaarheid van methaan, de omvang van een dergelijk filter vele malen lager zal zijn als gevolg van de hogere methaanconcentratie en het lagere ventilatiedebiet.

Verschillende biologische luchtbehandelingstechnieken (biofilter, biotricklingfilter, bioscrubber en membraanbioreactor) en dragermaterialen worden geëvalueerd. Geconcludeerd wordt dat een biofilter (dragermateriaal: mengsel compost/perliet) of een biotricklingfilter (dragermateriaal: plastic pakkingsringen of polyurethaan) het meest geschikt is voor de behandeling van lucht uit een mestopslag. Vanwege het relatief lage specifieke oppervlak van het dragermateriaal in een biotrickling filter, wordt besloten het pilot-onderzoek alleen te richten op het biofilter en niet op het biotricklingfilter. Er worden geen problemen verwacht met betrekking tot verzuring van een biofilter of biotricklingfilter (oxidatie van NH_3 en H_2S) vanwege de lage belasting van deze componenten.

Resultaten fase 2: Microbiologisch laboratoriumonderzoek (Bijlage 2)
In het microbiologisch onderzoek worden vier bacterieculturen beschouwd: twee reinculturen en twee mengculturen. De mengculturen zijn afkomstig van een rioolwaterzuiveringsinstallatie (actief slib monster) en een compostfilter dat stortgas behandelt. In een biofilter met een inert dragermateriaal is beënting met een bacteriestam noodzakelijk. In een biofilter met compost als dragermateriaal wordt beënting niet noodzakelijk geacht. Alhoewel enting van een compostfilter de opstartperiode kan verkorten, is het effect van enting op lange termijn in het algemeen niet meetbaar.

Uit het onderzoek blijkt dat er geen duidelijk verschil is tussen de groeisnelheid van de geteste reinculturen en mengculturen. De vastgestelde groeisnelheden komen overeen met de bekende literatuurwaarden voor meerdere stammen. Het is conform verwachting dat de gemeten groeisnelheden van vergelijkbare grootte orde zijn, maar het is opvallend dat de onderlinge verschillen zo klein zijn. Ook met betrekking tot de invloed van temperatuur, pH en ammoniumconcentratie op de groeisnelheid worden geen grote verschillen tussen de bacteriestammen gevonden. Dit is tegen de verwachting in dat er voor pH en ammoniumconcentratie een duidelijk verschil zou gevonden worden tussen de gevoeligheid van de reinculturen en de uit de praktijk afkomstige mengculturen.

Aangezien er geen duidelijke voordelen zijn aangetoond van het gebruik van (dure) reinculturen wordt aanbevolen gebruik te maken van actief slib als bacterieel entmateriaal wanneer enting wenselijk wordt geacht.

Resultaten fase 3: Bouw van en onderzoek aan pilot-scale filterinstallatie (Bijlage 3)
Gedurende twee maanden is in een pilot-scale biofilter de verwijdering van methaan uit ventilatielucht van een drijfmestopslag getest. Er wordt een methaanverwijdering gerealiseerd tot 85% zodat het doel van 50% methaanverwijdering wordt behaald. Het biofilter is eenvoudig van uitvoering en behoeft weinig processturing. De methaanverwijdering van het biofilter (g/m^3 filtermateriaal/uur) blijkt recht evenredig te zijn met de methaanconcentratie (g/m^3) van de ingaande lucht. De reden hiervoor is de lage beschikbaarheid van methaan voor de bacteriën als gevolg van de lage wateroplosbaarheid van methaan. Berekend kan worden dat voor een mestopslag van 1000 m^3 en een methaanverwijdering van 50%, een biofilter nodig is met een volume van 80 m^3 bij de gemeten maximale methaanconcentratie van 5.500 mg/m^3; dit volume kan waarschijnlijk verlaagd worden tot 20 m^3 wanneer de methaanconcentratie in de mestopslag verhoogd wordt tot 22.000 mg/m^3 (= 75% van Lower Explosion Limit, zie paragraaf 4.3). De methaanconcentratie van onverdund biogas bedraagt ongeveer 65 vol% (425 g/m^3) en door uitwisseling tussen de 'headspace' van de mestopslag en de buitenlucht wordt de methaanconcentratie verlaagd. Afhankelijk van de hoeveelheid lucht die uit de 'headspace' afgezogen wordt en de grootte van de ventilatieopeningen in de afdekking van de mestsilo, kan een bepaalde methaanconcentratie in de te behandelen lucht ingesteld worden.

Uitgaand van een maximale filterhoogte van 3 meter (3 lagen van elk 1 meter hoogte), bedraagt het benodigde grondoppervlak 1/3 m^2 per m^3 biofiltervolume. De verwijdering van ammoniak (NH_3) en waterstofsulfide (H_2S) uit de lucht bedraagt 90 - 100% respectievelijk 100%. Het geurkarakter van de ventilatielucht verandert van 'mestlucht' naar 'bosgeur'. De behandeling van stallucht in een biofilter wordt niet haalbaar geacht vanwege de lage wateroplosbaarheid van methaan in combinatie met de lage methaanconcentratie en het hoge debiet van de stallucht. Wanneer een biofilter zou ontwikkeld worden waarin de beschikbaarheid van methaan voor de bacteriën hoger is, is het mogelijk stallucht te behandelen in een biofilter van beperktere omvang.

Resultaten fase 4: Deskstudie naar technische en economische haalbaarheid (Bijlage 4)
Geconcludeerd wordt dat de technische haalbaarheid van een full-scale biofilter voor methaanverwijdering uit ventilatielucht van mestopslagen hoog is. Er kan aangesloten worden bij commercieel beschikbare biofiltersystemen.

De kostenanalyse richt zich op de behandeling van ventilatielucht van een mestopslag van 1000 m^3 en een methaanverwijdering van 50% met behulp van een commercieel beschikbaar biofilter met een volume in de range van 20 - 80 m^3. Uit de analyse blijkt dat de investeringskosten van de reactor van 20 m^3 circa € 1500/m^3 bedragen en de investeringskosten van de reactor van 80 m^3 circa € 2100 - € 2700/m^3 bedragen. Deze kosten komen overeen met de grove kostenschatting die gemaakt is in fase 1 (zie Bijlage 1). De exploitatiekosten (vaste kosten + variabele kosten) komen uit op € 300 - € 500/m^3 reactorvolume.

4.2 Haalbaarheid van biofiltratie voor stallucht en/of mestopslagen

Bij de behandeling van afgassen in een bioreactor is de eerste stap de overdracht van de verontreiniging naar de waterfase, waarna de verontreiniging biologisch wordt afgebroken. Voor slecht wateroplosbare componenten (zoals methaan) is de drijvende kracht voor overdracht van de gasfase naar de waterfase relatief klein. Hierdoor is de afbraak per m^3 reactorvolume beperkt.

In het algemeen kan daarom gesteld worden dat voor de behandeling van een kleine afgasstroom met een hoge concentratie, een relatief klein systeem voor afgasreiniging nodig is terwijl voor de behandeling van een grote gasstroom met een lage concentratie is, een relatief groot systeem voor afgasreiniging nodig is. Bij slecht oplosbare stoffen, zoals methaan, is dit effect zeer sterk aanwezig.

Stallucht
In fase 1 van het onderzoek is op grond van de literatuur reeds geconcludeerd dat praktische toepassing van een biologische filterinstallatie voor de reiniging van stallucht niet mogelijk is vanwege de lage methaanconcentratie in deze lucht in combinatie met een hoog debiet en een lage oplosbaarheid van methaan (zie Bijlage 1). De omvang van een dergelijke filterinstallatie zou namelijk enige tienduizenden kubieke meters bedragen.

In het pilot-onderzoek is de relatie tussen methaanconcentratie en benodigde grootte van een biofilter op grond van experimenten gekwantificeerd (zie [Formule 7] in Bijlage 3). Uitgaand van een stal met 2.000 vleesvarkens, een gemiddeld luchtdebiet van 35 m^3/dierplaats/uur en een methaanconcentratie in de stallucht van 10 - 160 ppm (of 6,5 - 105 mg/m^3) volgt dat bij een gewenste reiniging van 50% een biofilter noodzakelijk is met een volume van circa 19.000 m^3 oftewel 9,5 m^3/vleesvarkensplaats, hetgeen in overeenstemming is met de conclusie uit het literatuuronderzoek. Ter vergelijking: een bio-tricklingfilter dat toegepast wordt voor de verwijdering van ammoniak uit stallucht, zou voor de behandeling van deze luchthoeveelheid een 500 maal zo klein volume hebben (circa 40 m^3). De investeringskosten van een standaard biofilter voor methaanverwijdering uit stallucht zijn vanwege deze benodigde grootte van het filter extreem hoog.

De behandeling van stallucht van een melkveestal (runderen zijn de belangrijkste methaanemissiebron in de veehouderij) wordt bovendien nog bemoeilijkt door de afwezigheid van een mechanisch ventilatiesysteem. Melkveestallen zijn meestal 'open' stallen die beschikken over een natuurlijk ventilatiesysteem: de buitenlucht kan er vrij doorheen stromen. Om behandeling van deze lucht mogelijk te maken zal het waarschijnlijk noodzakelijk zijn om de stal (deels) mechanisch te ventileren; hierdoor zouden de kosten nog verder toenemen. Varkensstallen daarentegen zijn gesloten ruimten die wel beschikken over een mechanisch ventilatiesysteem. Als gevolg daarvan kan de afgezogen stallucht uit een varkensstal technisch gezien wél relatief eenvoudig door een installatie voor luchtbehandeling worden geleid. Zoals reeds besproken is de methaanconcentratie van deze lucht echter relatief laag en het luchtdebiet hoog.

Uitgaand van een regulier stalsysteem met bijbehorend ventilatiedebiet en lage methaanconcentratie in de lucht, werd het toepassen van een regulier biofilter voor de behandeling van stallucht niet haalbaar geacht. Daarom werd geen pilotonderzoek uitgevoerd naar de behandeling van deze lucht in een biofilter.

In hoofdstuk 5 wordt nader besproken of er mogelijkheden zijn om de condities van de luchtstroom uit de stal dusdanig aan te passen dat de behandeling van stallucht met behulp van een biofilter wel mogelijk zou zijn.

Mestopslagen

Vanwege de hoge methaanconcentratie in de 'headspace' van een overdekte mestopslag, in combinatie met een laag ventilatiedebiet, is een biofilter dat deze lucht behandeld vele malen kleiner dan een biofilter dat stallucht behandelt. Aangezien toepassing van een biofilter voor de behandeling van ventilatielucht van mestopslagen mogelijk wel haalbaar is vanwege de beperkte grootte van het biofilter, werd het pilotonderzoek (zie Bijlage 3) op de behandeling van deze lucht gericht. Zoals besproken wordt in Bijlage 3, zal een biofilter dat ventilatielucht van een mestopslag van 1000 m^3 behandelt bij een methaanverwijdering van 50% een volume hebben in de range van 20 - 80 m^3, afhankelijk van de methaanconcentratie in de te behandelen lucht. De ventilatielucht van een mestopslag kan relatief eenvoudig door een biofilter worden geleid aangezien de lucht eenvoudigweg kan worden afgezogen van onder de afdekking van de mestopslag.

4.3 Kosten van emissiereductie door biofilter

Aangezien de behandeling van stallucht niet haalbaar werd geacht, richt de analyse in deze paragraaf zich alleen op de behandeling van ventilatielucht van een mestopslag.

Door de informatie uit fase 3 en 4 van het onderzoek (zie Bijlage 3 en 4) samen te voegen kan bepaald worden wat de kosten zijn van emissiereductie van broeikasgassen, met behulp van een biofilter dat de ventilatielucht van een drijfmestopslag behandelt. Uitgaande van een mestopslag van 1000 m^3 en een gewenste emissiereductie van de methaanuitstoot kan volgens [Formule 7] in Bijlage 3 berekend worden hoe groot een benodigd biofilter is. Er wordt vanuit gegaan dat de mestopslag 6 maanden per jaar gevuld is en de overige 6 maanden leeg is zodat het biofilter slechts de helft van de tijd benut wordt.

In Tabel 1 wordt op deze manier voor een emissiereductie van respectievelijk 25%, 50% en 75% een 'worst case' en een 'best case' scenario doorgerekend. Het 'worst case' scenario gaat ervan uit dat de methaanconcentratie van de ventilatielucht maximaal 5.500 mg/m^3 bedraagt. Dit is de maximale concentratie die gemeten is in het onderzoek aan het pilot-scale biofilter (zie Bijlage 3). Het 'best case' scenario gaat ervan uit dat de methaanconcentratie van de ventilatielucht ingesteld wordt op 22.000 mg/m^3 (= 75% van de LEL ([1]) waarde). De hoogte van de methaanconcentratie in de te behandelen lucht kan namelijk ingesteld worden, door het afregelen van het ventilatiedebiet en het openen of sluiten van aanwezige ventilatieopeningen in de afdekking van de mestopslag. De methaanconcentratie van onverdund biogas bedraagt ongeveer 65 vol% (425 g/m^3). Door uitwisseling is tussen de 'headspace' van de mestopslag en de buitenlucht wordt de methaanconcentratie verlaagd. Afhankelijk van de hoeveelheid lucht die uit de 'headspace' afgezogen wordt en de grootte van de ventilatieopeningen in de afdekking van de mestsilo, wordt een bepaalde methaanconcentratie in de te behandelen lucht ingesteld. Door deze concentratieverhoging neemt de methaanverwijdering per m^3 filtermateriaal toe en is een kleiner biofilter nodig per kg verwijderd methaan (extrapolatie van de uitgevoerde metingen, zie Bijlage 3).

In verband met explosiegevaar wordt de behandeling van methaanconcentraties hoger dan 75% van de LEL niet veilig geacht ([2]). Behandeling van methaanconcentraties tussen de LEL en HEL ([3]) waarde wordt niet veilig geacht aangezien dan sprake is van een explosief mengsel. Behandeling van ingaande methaanconcentraties hoger dan de HEL waarde wordt evenmin veilig geacht aangezien er in dat geval een explosief mengsel in het biofilter zelf kan ontstaan. Wanneer namelijk in aanwezigheid van zuurstof een deel van het methaan in het aërobe biofilter wordt afgebroken, zal de methaanconcentratie afnemen en na enige tijd weer het explosiegevaarlijke gebied bereiken. Hierbij moet bedacht worden dat het niet mogelijk is om puur biogas naar het biofilter te leiden, aangezien de bacteriën in het biofilter die verantwoordelijk zijn voor de methaanafbraak, zuurstof nodig hebben om het methaan te oxideren.

Voor elk emissiereductie percentage (25%, 50% en 75%) wordt een biofiltervolume berekend en vervolgens wordt met behulp van de berekening van investerings- en exploitatiekosten (zie Bijlage 4) voor de verschillende filtervolumes berekend wat de emissiereductiekosten zijn, zoals in Tabel 1 is weergegeven. Er wordt bij deze berekening vanuit gegaan dat de (indirecte) broeikasgasemissie tijdens de productie- en de afvalfase van het biofilter verwaarloosbaar is ten opzicht van de emissiereductie van methaan. Er kan geen uitspraak gedaan worden over het biofiltervolume dat noodzakelijk is om een methaanverwijdering lager dan 25% of hoger dan 75% te bereiken aangezien hiervan geen betrouwbare experimentele resultaten bekend zijn (zie het pilot-onderzoek uit Bijlage 3).

([1]) *LEL = Lower Explosion Limit, oftewel de laagste concentratie waarbij een explosief mengsel wordt gevormd (LEL-methaan = 4,4 vol%).*
([2]) *Om onveilige situaties te voorkomen, zal de methaanconcentratie gemeten moeten worden met een explosieveiligheidsmeter. Wanneer deze alarm geeft zal, automatisch het luchtdebiet moeten verhoogd worden waardoor de concentratie weer daalt. De extra kosten van deze regeling zijn slechts beperkt in vergelijking met de investeringskosten van het biofilter.*
([3]) *HEL = Higher Explosion Limit, oftewel de hoogste concentratie waarbij nog juist een explosief mengsel wordt gevormd (HEL-methaan = 16 vol%).*

Tabel 1 Kosten van emissiereductie van broeikasgassen bij behandeling van ventilatielucht uit een mestopslag met behulp van een biofilter.[1]

	Gewenste emissiereductie (%)		
	25	50	75
Methaanverwijdering (ton CO_2-eq./jaar) [2]	38	77	115
Worst case [3]*:*			
Filtervolume (m^3) [4]	40	80	120
Investeringskosten (€/m^3)	1880 - 2400 [5]	1513 - 1711	1362 - 1539 [6]
Exploitatiekosten (€/m^3) [7]	380 - 460	307 - 311	265 - 280
Emissiereductiekosten (€/ton CO_2-eq.)	410 - 497	331 - 335	246 - 260
Best case [8]*:*			
Filtervolume (m^3) [4]	10	20	30
Investeringskosten (€/m^3)	2065 - 2750 [9]	2065 - 2750	1710 - 1973 [5]
Exploitatiekosten (€/m^3)	418 - 528	418 - 528	398 - 493
Emissiereductiekosten (€/ton CO_2-eq.)	110 - 142	110 - 142	110 - 133

[1] De kosten in Tabel 1 zijn gebaseerd op offertes van twee verschillende leveranciers voor zowel een biofilter van 20 m^3 als van 80 m^3 (zie Bijlage 4).
[2] Zie Bijlage 3. Er wordt vanuit gegaan dat de mestopslag slechts 6 maanden per jaar gevuld is.
[3] Gebaseerd op een ingaande methaanconcentratie van 5.500 mg/m^3 (gemeten).
[4] Het benodigde grondoppervlak bedraagt ongeveer 1/3 m^2 per m^3 biofiltervolume, wanneer uitgegaan wordt van een biofilter van 3 meter hoogte (3 lagen van elk 1 meter hoogte).
[5] Aangenomen wordt dat de investeringskosten per m^3 filter lineair afnemen van 20 naar 80 m^3.
[6] Aangenomen wordt dat de investeringskosten per m^3 filter 10% lager zijn dan voor het filter van 80 m^3.
[7] Exploitatiekosten = vaste kosten + variabele kosten.
[8] Gebaseerd op een ingaande methaanconcentratie van 22.000 mg/m^3 (extrapolatie).
[9] Aangenomen wordt dat de investeringskosten per m^3 filter gelijk zijn aan het filter van 20 m^3.

Uit Tabel 1 blijkt dat de kosten van emissiereductie met behulp van een biofilter variëren in het 'worst case' scenario van € 246 - € 497 per ton CO_2-eq. en in het 'best case' scenario van € 110 - € 142 per ton CO_2-eq. Deze kosten worden voor 80% bepaald door de vaste kosten van de investering (afschrijving, rente en onderhoud).

Ervan uitgaand dat de opslag ruimte biedt voor de mestproductie van 1700 vleesvarkensplaatsen gedurende 6 maanden, bedragen de investeringskosten van het biofilter bij 50% methaanverwijdering in het 'worst case' scenario € 73 - € 82 per vleesvarkensplaats en in het 'best case' scenario van € 25 - € 33 per vleesvarkensplaats. Deze investeringskosten zijn van dezelfde ordegrootte als de in de doelstelling van het project genoemde investeringskosten voor een filter dat de ventilatielucht van stallen en/of mestopslagen behandeld van € 45 per vleesvarkensplaats (zie paragraaf 3.2). Echter, de investeringskosten van een biofilter dat eveneens geschikt is voor de behandeling van stallucht zijn vele malen hoger dan de kosten die in Tabel 1 worden berekend.

De doelstelling om een biofilter met investeringskosten van € 45 per vleesvarkensplaats te ontwikkelen, dat in staat is om zowel stallucht als de ventilatielucht van mestopslagen te behandelen, wordt dus niet gehaald.

In hoofdstuk 5 wordt een aantal mogelijkheden geanalyseerd om het biofiltersysteem dusdanig aan te passen dat de emissiereductiekosten verlaagd zouden kunnen worden.

Op de vraag of een biofilter met deze emissiereductiekosten kosten in de praktijk toegepast zou kunnen worden, wordt in de volgende paragraaf ingegaan.

4.4 Marktwaarde van emissiereductie

Op dit moment staat de handel in CO_2-equivalenten nog in de kinderschoenen maar de verwachting is dat deze handel in de toekomst in omvang zal toenemen. Het is echter moeilijk om te voorspellen hoe hoog de prijs per ton CO_2-eq. zal worden. Voor de komende paar jaar worden prijzen van € 5 - € 40 per ton CO_2-eq. genoemd (Cozijnsen, 2001; Moor & Bollen, 2001).

In december 2002 is een Europees akkoord afgesloten met betrekking tot de handel in broeikasgassen. Volgens dit akkoord krijgen bedrijven uit bepaalde sectoren (petrochemische industrie, energiecentrales, staal- en cementindustrie) het recht om een bepaalde hoeveelheid CO_2-equivalenten uit te stoten. Bedrijven die een lagere emissie hebben dan toegestaan kunnen hun overschot verkopen aan bedrijven die te veel emitteren. Bij het overschrijden van de emissienorm wordt een boete opgelegd van € 40 per ton CO_2-eq. (tot 2008) respectievelijk € 100 per ton CO_2-eq (vanaf 2008). Na 2008 kan de lijst van sectoren die onder dit akkoord vallen worden uitgebreid; op dit moment valt de landbouwsector niet onder dit akkoord.

Met betrekking tot de vraag of het biofilter in de praktijk mogelijk toegepast zou kunnen worden, betekent dit dat een veehouder onder de huidige wet- en regelgeving niet verplicht is om de emissie van broeikasgassen te reduceren; evenmin levert een emissiereductie van broeikasgassen hem op dit moment financieel voordeel op. Wanneer in de toekomst emissiehandel tussen de landbouwsector en een sector die (reeds) wel onder het Europees akkoord valt, zou worden toegestaan, zou een emissiereductie met bijvoorbeeld een biofilter wel geld kunnen opleveren voor een veehouder. De hoeveelheid CO_2-eq. die per tijdseenheid door het biofilter wordt verwijderd, kan direct gemeten worden en deze hoeveelheid CO_2-eq. zou dan beschikbaar kunnen komen voor emissiehandel. Het is echter de vraag of dergelijke emissiehandel in de toekomst zal worden toegestaan. Wanneer dergelijke emissiehandel zou toegestaan worden, zal het waarschijnlijk noodzakelijk zijn de werking van het biofilter te certificeren door voor te schrijven hoe en met welke frequentie metingen, controle en onderhoud aan het biofilter uitgevoerd dienen te worden.

Gezien de hierboven genoemde indicatieve marktprijzen van € 5 - € 40 per ton CO_2-eq., kan geconcludeerd worden dat emissiereductie met behulp van het ontwikkelde biofilter op dit moment niet economisch haalbaar is (Tabel 1: kosten bedragen ruim € 100 /ton CO_2-eq. in het 'best case' scenario). Wanneer de emissiereductiekosten van het biofilter met een factor 5 à 10 verlaagd zouden kunnen worden, zou het biofilter in de toekomst mogelijk gezien kunnen worden als een kostenefficiënte methode voor het bereiken van emissiereductie van broeikasgassen. In hoofdstuk 5 worden de perspectieven voor kostenverlaging van het biofilter in kaart gebracht. Wanneer de bouw en introductie van het biofilter middels stimuleringsregelingen of subsidies vanuit de overheid zou worden bevorderd (bijvoorbeeld EIA, VAMIL, MIA, Groenfinanciering en Milieufinanciering), zou het economische omslagpunt natuurlijk eerder worden bereikt.

4.5 Biofilter versus vergistingsinstallatie en fakkel

Vergistingsinstallatie

Een alternatief voor de reiniging van ventilatielucht van een drijfmestopslag in een biofilter, is de ombouw van de drijfmestopslag tot een vergistingsinstallatie. In een vergistingsinstallatie wordt de productie van methaan uit mest in het algemeen gestimuleerd door de mest te verwarmen (tot circa 35°C (mesofiel) of tot circa 55°C (thermofiel)) en goed te mengen. Het geproduceerde biogas wordt verbrand en met behulp van de verbrandingsgassen wordt elektriciteit en warmte opgewekt in een warmtekrachtkoppelinginstallatie (WKK). Door het opwekken van elektriciteit wordt het gebruik van fossiele brandstof verlaagd waardoor een indirecte emissiereductie van CO_2 wordt gerealiseerd (0,67 kg CO_2/kWh (NOVEM, 1999)). In dit rapport wordt er vanuit gegaan dat de vergister onder mesofiele omstandigheden wordt bedreven. Op dit moment wordt vergisting door de overheid financieel gestimuleerd door middel van diverse investeringsmaatregelen (EIA, VAMIL, MIA en Groenfinanciering) en door subsidie op de verkoop van zogenaamde 'groene energie'.

Fakkel

Een tweede alternatief voor de reiniging van ventilatielucht van een drijfmestopslag in een biofilter, is het affakkelen van het in de mestopslag geproduceerde biogas. Hiervoor wordt de mestopslag afgedekt en er wordt een gaszak geïnstalleerd. Enige malen per dag wordt biogas afgezogen uit de gaszak en opgemengd met buitenlucht zodat een brandbaar mengsel ontstaat (methaanconcentratie: 4,4 - 16 vol%) waarna het mengsel ontstoken wordt.

Kostenefficiëntie

In Tabel 2 wordt het biofilter met de vergistings- en de fakkelinstallatie vergeleken, uitgaande van vleesvarkensmest en een opslag van 1000 m^3. Om een eerlijke kostenvergelijking mogelijk te maken tussen deze twee systemen wordt geen rekening gehouden met eventuele financiële stimuleringsmaatregelen van de overheid waardoor investeringskosten lager zouden uitvallen (denk aan EIA, VAMIL, MIA, Groenfinanciering en Milieufinanciering). Eventuele subsidie op de verkoop van geproduceerde elektriciteit ('groene stroom') wordt evenmin in de kostenberekening opgenomen. Voor het biofilter wordt uitgegaan van een emissiereductie van 50% (filtervolume: 20 m^3) volgens het 'best case' scenario uit Tabel 1. De mestopslag (1000 m^3) is 6 maanden per jaar gevuld; dit is voldoende opslagcapaciteit voor de mestproductie van circa 1700 vleesvarkensplaatsen (mestproductie vleesvarken: circa 1,2 ton/dierplaats/jaar). Voor de kosten van de vergister wordt uitgegaan van het ombouwen van een reeds bestaande mestopslagsilo. De (indirecte) emissie van broeikasgassen tijdens de productie- en afvalfase van de verschillende installaties wordt niet in Tabel 2 opgenomen, aangezien aangenomen wordt dat deze verwaarloosbaar is ten opzichte van de emissiereductie van methaan die gerealiseerd wordt. De indirecte emissie en emissiereductie van broeikasgassen tijdens de gebruiksfase (biofilter en fakkel: elektriciteitsgebruik; vergistingsinstallatie: elektriciteitsproductie) wordt wel meegenomen. Een emissiereductie van CO_2-equivalenten als gevolg van eventueel nuttig gebruik van de warmte die geproduceerd wordt in de fakkel en in de WKK van de vergistinginstallatie wordt niet aan de systemen toegerekend, omdat deze warmte in de praktijk slechts beperkt kan worden gebruikt. De invloed van de drie technieken op de emissie van ammoniak (verzuring), geur (overlast) en NOx (verzuring), is in Tabel 2 kwalitatief opgenomen (-/0/+). Hierbij gaat het zowel om de emissie die optreedt uit de mestsilo als om de

emissie die optreedt tijdens het op het land aanwenden van de mest. Het min-teken duidt op een ongewenst effect, dat wil zeggen een toename van ongewenste emissies; het plus-teken duidt op een gewenst effect, dat wil zeggen een afname van ongewenste emissies; "0" duidt er op dat nauwelijks tot geen effect wordt verwacht op de emissie.

Op vergelijkbare wijze als Tabel 2 kan eveneens een tabel met betrekking tot de opslag van runderdrijfmest worden opgesteld.

Tabel 2 Vergelijking van biofilter, vergistingsinstallatie en affakkelinstallatie voor een mestopslag gevuld met vleesvarkensdrijfmest.

	Biofilter	Vergistings-installatie [1]	Affakkelen
Investeringskosten (€ /dpl) [2]	24,8 [3]	48,0 [4]	17,6 [5]
Exploitatiekosten (€ /dpl/jaar)	5,0 [3]	6,5 [4] [6]	2,8 [5]
Broeikasgassen:			
Emissie huidige situatie (kg CO_2-eq./dpl/jaar)	92,0 [7]	92,0 [7]	92,0 [7]
Emissiereductie CH_4 (kg CO_2-eq./dpl/jaar)	46,0 [8]	83,5 [4]	83,5 [5]
Vervanging fossiele brandstof (kg CO_2-eq./dpl/jaar)	- 0,09 [10]	32,3 [4]	-0,09 [5]
Netto emissiereductie (kg CO_2-eq./dpl/jaar)	45,9	116	83,4
Emissiereductiekosten (€ /ton CO_2-eq.)	110	56 [6]	34
Overige emissies: [5]			
Ammoniak	+	+/-	+
Geur	+	++	+
NOx	0	-	-

[1] Onder mesofiele omstandigheden.
[2] dpl = dierplaats (vleesvarkensplaats).
[3] Berekend uit Tabel 1 ('best case' scenario).
[4] Zie Bijlage 7.
[5] Zie Bijlage 8.
[6] Wanneer uitgegaan wordt van financiële stimuleringsmaatregelen (EIA, VAMIL, MIA en Groenfinanciering) en van de verkoop van de geproduceerde energie als 'groene energie', komen de exploitatiekosten 80% lager uit op € 1,32/dpl/jaar. De op deze manier berekende emissiereductiekosten (zie Bijlage 7) bedragen € 11 € /ton CO_2-eq., hetgeen betekent dat er in feite een subsidie wordt gegeven van 56 - 11 = € 45 /ton CO_2-eq.
[7] Zie Bijlage 5.
[8] Bij 50% emissiereductie.
[9] Gewenst effect wordt aangeduid met positieve score, ongewenst effect met negatieve score.
[10] Zie Bijlage 6.

Uit Tabel 2 blijkt dat de investeringskosten van de fakkelinstallatie het laagst zijn (€ 17,6 per dierplaats) terwijl de investeringskosten van de vergistingsinstallatie het hoogst zijn (€ 48,0 per dierplaats). Verder blijkt dat de emissiereductiekosten van CO_2-eq. (excl. subsidie) het laagst zijn voor de fakkelinstallatie (€ 34 per ton CO_2-eq.); dit is ongeveer twee maal zo laag als de emissiereductiekosten van de vergistinginstallatie en ruim drie maal zo laag als de emissiereductiekosten van het biofilter. Gezien de genoemde indicatieve marktprijzen van € 5 - € 40 per ton CO_2-eq. Genoemd (zie paragraaf 4.4), kan geconcludeerd worden dat de affakkelinstallatie als enige van de drie onderzochte technieken positief scoort met betrekking tot economische haalbaarheid. Zowel

de vergistingsinstallatie als het biofilter zijn op dit moment te dure technieken voor emissiereductie van broeikasgassen.

Met betrekking tot mestvergisting dient tenslotte opgemerkt te worden dat de kosten die de ondernemer maakt, als gevolg van diverse investeringssubsidies en vergoedingen voor 'groene stroom' verlaagd worden van € 56 naar slechts € 11 per ton CO_2-eq. (zie Tabel 2, voetnoot 6).

Overige effecten

Het biofilter en de fakkel scoren positief op ammoniakverwijdering: 100% van de ammoniak in de ventilatielucht wordt verwijderd terwijl de hoeveelheid ammoniakale stikstof (NH_3 en NH_4^+) in de mest die zich in de opslag bevindt, ongeveer gelijk blijft. De ammoniakemissie van de vergistingsinstallatie is eveneens 0, maar daar tegenover staat dat de hoeveelheid ammoniakale stikstof (NH_3 en NH_4^+) in de mest in de opslag met ongeveer 15% toeneemt als gevolg van de afbraak van organische stof; bovendien neemt de pH van de mest met circa 0,5 toe. Als gevolg van de verhoging van de pH en van het gehalte aan ammoniakale stikstof in de mest, zou de ammoniakemissie bij aanwending van de mest hoger kunnen zijn dan bij de aanwending van niet vergiste mest. Een mogelijk tegengesteld effect is echter dat de mest als gevolg van het vergistingsproces minder viskeus is geworden waardoor deze beter in de bodem wordt opgenomen en minder ammoniak ontwijkt. Het netto resultaat van deze effecten is onduidelijk.

Alle drie de systemen scoren positief met betrekking tot geurverwijdering: de geurcomponenten in de ventilatielucht worden grotendeels verwijderd. Bovendien wordt voor de vergistingsinstallatie verwacht dat de geuremissie bij het aanwenden van vergiste mest lager zal zijn dan bij het aanwenden van de mest uit het systeem met het biofilter of de fakkelinstallatie.

Als gevolg van verbranding van biogas in de WKK van de vergistingsinstallatie en in de fakkel, wordt bij deze twee systemen een toename van de NOx emissie verwacht.

Geconcludeerd wordt dat de fakkelinstallatie van de drie geanalyseerde technieken de hoogste kostenefficiëntie heeft met betrekking tot het terugdringen van de emissie van methaan uit een mestopslag, aangezien de fakkelinstallatie de laagste emissiereductiekosten per ton CO_2-eq. heeft. Zowel de vergistingsinstallatie als het biofilter zijn op dit moment te dure technieken voor emissiereductie van broeikasgassen. Toch worden in de praktijk vergistinginstallaties voor mest gebouwd op boerenbedrijven, terwijl de vergistingsinstallatie een lage kostenefficiëntie heeft met betrekking tot de reductie van broeikasgassen. De belangrijkste reden hiervoor is dat zowel de investering voor de installatie als de verkoop van de opgewekte stroom worden gesubsidieerd, waardoor de exploitatiekosten voor de ondernemer sterk afnemen (zie Tabel 2, voetnoot 6). Vanuit de overheid beschouwd heeft subsidiëring natuurlijk geen invloed op de kostenefficiëntie van een emissiereductiemaatregel en dus blijft de conclusie onverlet dat het affakkelen van biogas van de drie geanalyseerde maatregelen de hoogste kostenefficiëntie heeft met betrekking tot de beperking van de emissie van broeikasgassen.

Overigens heeft de vergistingsinstallatie als voordeel ten opzichte van de fakkelinstallatie dat de wereldvoorraad van fossiele brandstof minder afneemt als gevolg van productie van energie uit

methaan, maar als techniek voor reductie van de emissie van broeikasgassen heeft de vergistingsinstallatie een veel lagere kostenefficiëntie dan de fakkelinstallatie.

In vergelijking met de affakkelinstallatie en in minder mate met de vergistingsinstallatie, is de kostenefficiëntie van het onderzochte biofilter laag. Het biofilter zal alleen kunnen concurreren met de vergistingsinstallatie en de fakkelinstallatie, wanneer de kosten van het biofilter sterk teruggebracht worden. In hoofdstuk 5 worden de mogelijkheden voor kostenverlaging van het biofilter geanalyseerd.

5 Mogelijkheden voor kostenverlaging

5.1 Probleemstelling

In fase 3 van het onderzoek (zie Bijlage 3) is aangetoond dat biofiltratie in principe een succesvolle methode is voor de verwijdering van methaan (CH_4) uit een luchtstroom. De uitstoot van overige broeikasgassen kan hierdoor sterk worden verminderd. De beperkende factor in het verwijderingsproces is de beperkte beschikbaarheid van methaan voor de bacteriën, oftewel een lage stofoverdracht, als gevolg van de lage wateroplosbaarheid van methaan in combinatie met een lage concentratie van methaan in de gasfase. Dit geldt zowel voor de behandeling van ventilatielucht van een mestopslag als, in nog veel sterkere mate, voor de ventilatielucht van een stal.

Uit een financiële evaluatie volgt dat de emissiereductiekosten van het biofilter minimaal €110 - € 142 per ton CO_2-eq. bedragen in het geval ventilatielucht van een mestopslag wordt behandeld; de kosten van behandeling van stallucht zullen nog vele malen hoger liggen. In vergelijking met alternatieve technologieën voor de emissiereductie van methaan uit een mestopslag, zijn deze kosten zeer hoog: de emissiereductiekosten van een fakkel bedragen € 34 per ton CO_2-eq. en de kosten van een vergistingsinstallatie (excl. subsidies) bedragen € 56 per ton CO_2-eq. (zie Tabel 2).

De kostenefficiëntie van het onderzochte biofilter als techniek voor emissiereductie van overige broeikasgassen is dan ook laag te noemen waardoor de toepassingsmogelijkheden op dit moment beperkt zijn.

5.2 Doelstelling

De doelstelling is om de stofoverdracht van methaan van de gasfase naar de waterfase te verhogen om zo een kostenverlaging van het biologische luchtbehandelingsproces te realiseren. De stofoverdracht is laag vanwege de lage wateroplosbaarheid van methaan (m_{lw} = 26,7 ([1])). Wanneer de beschikbaarheid van methaan voor de micro-organismen wordt verhoogd als gevolg van een snellere stofoverdracht, kan volstaan worden met een kleiner luchtfilter, terwijl een gelijke methaanverwijdering wordt bereikt. Hierdoor zullen de emissiereductiekosten (€ /ton CO_2-eq.) verlaagd kunnen worden, aangezien de emissiereductiekosten van het biofilter voor het grootste deel worden bepaald door de vaste kosten (afschrijving, rente en onderhoud) van de investering.

5.3 Methoden voor verhoging stofoverdracht

5.3.1 Inleiding

Bij de biologische behandeling van lucht wordt de te verwijderen verbinding allereerst van de gasfase naar de waterfase getransporteerd. Vervolgens zijn bacteriën, die in een waterig milieu leven, verantwoordelijk voor de omzetting van de verbinding. Wanneer de af te breken verbinding slecht wateroplosbaar is, wordt de verwijderingscapaciteit van het luchtfilter meestal gelimiteerd door het stoftransport van gas- naar waterfase. Van de conventionele luchtbehandelingstechnieken (biotrickling filter, bioscrubber, actief slib systeem en biofilter) wordt het biofilter in

([1]) *m_{lw} = verdelingscoëfficiënt lucht-water; eenheid: (kg/m³ lucht)/(kg/m³ water); wordt ook wel Henry coëfficiënt genoemd..*

het algemeen gezien als de meest geschikte techniek om slecht oplosbare stoffen uit een luchtstroom te verwijderen als gevolg van het grote uitwisselingsoppervlak tussen gas- en waterfase.

Het verhogen van de methaanafbraak in een biofilter dat gebruikt wordt voor de behandeling van stallucht of van de ventilatielucht van een mestopslag, kan op verschillende manieren plaatsvinden:

1) Stallucht: verhogen van de methaanconcentratie in de te behandelen lucht.
Door voorafgaand aan de biologische luchtverwijdering, de concentratie van methaan in de luchtstroom te verhogen, zal de stofoverdracht van de gas- naar de waterfase sneller verlopen. Door de methaanconcentratie te verhogen zou de ventilatielucht van stallen misschien toch in een biofilter behandeld kunnen worden. Er zijn verschillende methoden om de methaanconcentratie van de lucht te verhogen:
- verlaging van het ventilatiedebiet (zie paragraaf 5.3.2)
- scheiding van de lucht in een 'schone' luchtstroom en een luchtstroom met een verhoogde concentratie van de te verwijderen component, i.c. methaan (zie paragraaf 5.3.3).

Wanneer zich onder de stal een mestkelder bevindt, zou de methaanconcentratie van de stallucht mogelijk nog verhoogd kunnen worden door de mest zo lang mogelijk in de kelder op te slaan. Tijdens de opslag in de kelder treedt namelijk methaanproductie op als gevolg van vergisting.

2) Ventilatielucht mestopslag:
Wanneer gebruik gemaakt wordt van (experimentele) luchtbehandelingstechnieken die specifiek gericht zijn op het verbeteren van het massa-overdrachtsproces van de gas- naar de waterfase, zou het biofilter meer geschikt gemaakt kunnen worden voor de verwijdering van slecht oplosbare verbindingen. Dergelijke technieken zouden mogelijk perspectief bieden voor de behandeling van ventilatielucht van een mestopslag en worden in paragraaf 5.3.4 besproken.

5.3.2 Verlaging ventilatiedebiet

In paragraaf 4.3 is reeds besproken dat de methaanconcentratie in ventilatielucht van een mestopslag verhoogd kan worden door de grootte van de ventilatieopeningen in de afdekking van de mestsilo en de hoeveelheid afgezogen lucht op elkaar af te stemmen. Hierdoor neemt de omvang van het biofilter dat nodig is voor de behandeling van deze lucht, sterk af. Voor de ventilatielucht van een stal geldt eveneens dat de methaanconcentratie in de lucht zal toenemen wanneer het debiet afneemt, aangezien de methaanproductie in principe gelijk blijft. Het verhogen van de methaanconcentratie in stallucht is echter minder eenvoudig dan het verhogen van de concentratie van ventilatielucht van een mestopslag. In deze paragraaf wordt ingegaan op de mogelijkheden voor verlaging van het ventilatiedebiet van stallen.

<u>Varkens</u>
Varkenstallen zijn in het algemeen gesloten ruimten met een mechanisch ventilatiesysteem waarmee de lucht in de stal wordt ververst met buitenlucht. Doordat in het algemeen een aantal kleine ventilatieopeningen aanwezig is, kan de lucht technisch gezien relatief eenvoudig door een installatie voor luchtbehandeling worden geleid. Het ventilatiedebiet van de stal wordt geregeld op

grond van een ingestelde maximumtemperatuur in de stal en varieert tussen een maximum en een minimum ventilatiedebiet. Het maximum ventilatiedebiet wordt bepaald door de capaciteit van het ventilatiesysteem en het minimum ventilatiedebiet wordt bepaald door de hoeveelheid lucht die minimaal ververst moet worden om de luchtcondities in de stal met betrekking tot stof en ammoniak op een voor de dieren acceptabel niveau te houden (als indicator hiervoor wordt gesteld dat het CO_2 gehalte van de lucht maximaal 0,3 vol% mag bedragen). Het actuele ventilatiedebiet wordt bepaald door de warmteproductie van de dieren in de stal en door de warmte die van buiten de stal wordt aangevoerd met de ventilatielucht. Naast de voelbare warmte is er sprake van latente warmte welke aangeeft in welke mate de lucht met water verzadigd is (relatieve vochtigheid). Wanneer de buitentemperatuur toeneemt, zal het ventilatiedebiet van de stal toenemen om de temperatuur in de stal gelijk te houden; wanneer de buitentemperatuur afneemt, zal het ventilatiedebiet van de stal afnemen tot het ingestelde minimum ventilatiedebiet. In de praktijk varieert het ventilatiedebiet 10 - 90 m^3/vleesvarken/uur (gemiddeld 35 m^3/vleesvarken/uur) (Mol, 2003) en bedraagt de totale warmteproductie gemiddeld 175 W/vleesvarken (114 W voelbare, 61 W latente warmte). De huidige norm voor het minimale ventilatiedebiet bedraagt gemiddeld 12 m^3/vleesvarken/uur (Klimaatplatform, 2002).

Wanneer door koeling van de ingaande lucht en/of door koeling van de vloer voldoende warmte kan worden afgevoerd, kan het gemiddelde ventilatiedebiet dus maximaal teruggebracht worden met een factor drie van gemiddeld 35 tot 12 m^3/vleesvarken/uur. Naar verwachting zal de methaanconcentratie in de stallucht hierdoor met een factor drie toenemen waardoor de methaanconcentratie in de stallucht uitkomt op 30 - 480 ppm (zie Bijlage 3, Tabel 1). Aangezien de methaanconcentratie recht evenredig is met de grootte van het biofilter, zal een drie maal zo klein biofilter nodig zijn voor methaanafbraak.

De jaarkosten van een vloerkoelingssysteem bedragen circa € 2/dpl/ jaar (Wagenberg, 2002) waarbij de warmteonttrekking circa 40 W per vleesvarkensplaats bedraagt. Hierdoor zou de benodigde ventilatiecapaciteit met ongeveer 40/175 = 23% kunnen afnemen. De omvang van een biofilter voor de behandeling van stallucht zou hierdoor met 23% kunnen afnemen hetgeen betekent dat de berekende biofiltergrootte van 19.000 m^3 (zie paragraaf 4.2) kan afnemen tot circa 15.000 m^3, hetgeen nog steeds ongeveer 375 maal zo groot is als een regulier bio-trickling filter voor de verwijdering van ammoniak uit stallucht.

Vanwege de extreme grootte van het biofilter zijn de kosten van emissiereductie nog steeds zeer hoog en wordt behandeling van stallucht op deze wijze niet geschikt geacht voor praktijktoepassing. Mogelijk is met andere koelingssystemen een nog hogere afname van de ventilatiedebiet te bereiken, maar op grond van bovenstaande wordt niet verwacht dat hierdoor een economische rendabel biofilter zal kunnen worden gerealiseerd.

In principe zou het ventilatiedebiet nog verder teruggebracht kunnen worden dan het minimum ventilatiedebiet, door niet alleen de lucht te koelen, maar de lucht eveneens in een gesloten systeem te recirculeren en de voor de dieren schadelijke stoffen (stof, NH_3, geur, CO_2) uit de lucht te verwijderen in een luchtconditioneringsunit. Dergelijke stalontwerpen voor vleesvarkens bestaan op dit moment alleen in de experimentele fase. In het experimentele "BB Air systeem" (Tolsma,

2000; Bodde, 2000) zou het maximale ventilatiedebiet tot 8 $m^{3/}$dpl /uur kunnen dalen, dus een verlaging van het ventilatiedebiet met ongeveer 80%. De omvang van een biofilter voor methaanafbraak zou hierdoor met 80% kunnen afnemen van 19.000 m^3 (zie paragraaf 4.2) tot 4.000 m^3, hetgeen nog steeds circa 100 maal zo groot is als een regulier bio-trickling filter voor de verwijdering van ammoniak uit stallucht. Bovendien zou nog eens een extra investerings voor het "BB Air systeem" moeten gedaan worden van ongeveer € 320/dpl.

Ondanks de afname die bereikt kan worden van de omvang van het biofilter, is de omvang nog steeds dusdanig groot dat niet verwacht wordt dat op deze wijze een economische rendabel emissiereductiesysteem kan worden gerealiseerd voor de behandeling van stallucht van varkens.

Melkvee

Runderen zijn de belangrijkste methaanemissiebron in de veehouderij en daarom zou het logisch zijn de reductie van de methaanemissie in de eerste plaats te richten op runderen (melkvee). Daarnaast is het methaangehalte van de ventilatielucht voor melkveestallen ongeveer twee maal zo hoog als voor varkenstallen, waardoor behandeling van deze lucht in principe eenvoudiger zou zijn.

Zoals echter reeds is opgemerkt in paragraaf 4.2, is de behandeling van ventilatielucht van een melkveestal nog moeilijker dan de behandeling van ventilatielucht van een varkensstal, vanwege het ontbreken van een mechanisch ventilatiesysteem. Melkveestallen zijn meestal 'open' stallen die beschikken over een natuurlijk ventilatiesysteem: de buitenlucht kan van de zijkant naar de nok vrij door de stal stromen. Bovendien verkeren de koeien vaak (een deel van de dag) buiten waardoor de methaanemissie rechtstreeks in de atmosfeer plaatsvindt. Om behandeling van de lucht uit een natuurlijk geventileerde stal mogelijk te maken, is het noodzakelijk om de stal op enigerlei wijze (deels) mechanisch te ventileren. Bij een gangbaar elektriciteitsgebruik voor mechanische ventilatie van 50 - 60 W per 1000 m^3/uur en een gemiddeld ventilatiedebiet van 750 m^3/uur per dier, zou het energiegebruik voor mechanische ventilatie op jaarbasis ongeveer 350 kWh per dier bedragen hetgeen equivalent is met een extra uitstoot van 230 kg CO_2-eq. per dier. De extra investering voor een ventilatiesysteem zou ongeveer € 100,- per dier bedragen. Installatie en gebruik van een mechanisch ventilatiesysteem brengen dus hoge kosten met zich mee en veroorzaken vanwege het elektriciteitsverbruik nog eens een verhoging van de indirecte CO_2 emissie. Eventuele toepassing van koeling of luchtconditionering om het ventilatiedebiet te verlagen en zo de methaanconcentratie in de lucht te verhogen, zal de kosten nog verder laten toenemen. Zelfs wanneer aangenomen wordt dat het ventilatiedebiet op deze manier met een factor 10 gereduceerd kan worden, zodat de methaanconcentratie 10 maal zo hoog wordt (100 - 1.600 ppm; zie Bijlage 3, Tabel 1), is er nog steeds sprake van een extreem groot biofilter (circa 50 maal zo groot is als een regulier bio-trickling filter voor de verwijdering van ammoniak uit stallucht).

Evenals voor de behandeling van stallucht van varkens, kan voor de behandeling van stallucht van melkveestallen geconcludeerd worden dat, ondanks de bovengenoemde mogelijkheden om de CH_4 concentratie te verhogen, de toepassing van een biofilter economisch niet haalbaar geacht wordt vanwege de nog steeds zeer grote omvang van het biofilter.

5.3.3 Gasscheiding

Naast het verhogen van de methaanconcentratie in stallucht door verlaging van het ventilatiedebiet, is het ook mogelijk om de luchtstroom te scheiden in een 'schone' luchtstroom met een sterk verlaagde methaanconcentratie en in een te verder te behandelen luchtstroom met een verhoogde methaanconcentratie. Voorbeelden van fysisch/chemische gasscheidingstechnieken zijn:

1) Adsorptie op een vaste stof
De luchtstroom wordt over een geschikt adsorbens, bijvoorbeeld een alumina of zeoliet molzeef, geleid en de te verwijderen component wordt op het adsorbens vastgelegd zodat een luchtstroom resteert zonder de betreffende component. Tijdens regeneratie van het adsorbens wordt een relatief kleine gasstroom geproduceerd met een hoge concentratie van de te verwijderen component. Voorbeelden van regeneratiemethoden zijn "Pressure Swing Adsorption" (PSA) en "Temperature Swing Adsorbtion" (TSA).

Warmuzinski & Sodzawiczny (2000) laten zien dat PSA in staat is om het methaangehalte van lucht te verdubbelen van 1,5 vol% (15.000 ppm) naar 3 vol%. De adsorptiecapaciteit is echter evenredig met de concentratie van de te verwijderen component, hetgeen betekent dat de efficientie van het adsorptieproces laag is bij lage ingaande methaanconcentraties. Aangezien de methaanconcentratie van stallucht (10 - 160 ppm) 100 à 1000 maal zo laag is, is het de vraag of nog noemenswaardige adsorptie zal optreden. Daarnaast bevat stallucht naast methaan nog vele componenten die een storende of vervuilende werking op het adsorbens en het adsoptieproces kunnen hebben zodat voorbehandeling van de luchtstroom waarschijnlijk noodzakelijk is. Bovendien is PSA een zeer kostbare techniek voor de behandeling van grote luchtstromen.

Gezien de verwachte lage efficiëntie van het adsorptieproces, de kosten van voorbehandeling van de luchtstroom en de hoge kosten die gepaard gaan met de behandeling van grote luchtdebieten middels PSA, wordt niet verwacht dat adsorptie een kostenefficiënte methode is de methaanconcentratie in stallucht te verhogen en zo de kosten van biofiltratie te verlagen.

2) Membraanscheiding
Met behulp van een membraan dat selectief bepaalde verbindingen doorlaat of tegenhoudt, kan een luchtstroom eveneens worden gescheiden in een luchtstroom met een lage concentratie en in een luchtstroom met een hoge concentratie van de betreffende verbinding. Hiertoe wordt de oorspronkelijke luchtstroom langs een membraan geleid en wordt de druk aan de andere zijde sterk verlaagd. Hierdoor passeren de componenten waarvoor het membraan permeabel is het membraan en wordt gasstroom gevormd met een hoge concentratie van de betreffende component. Dergelijke systemen worden in de praktijk bijvoorbeeld toegepast om lucht te scheiden in een zuurstof en een stikstof stroom of om biogas te scheiden in methaan en carbondioxide. In principe is het zo ook mogelijk om methaan af te scheiden uit stallucht.
Gezien de hoge kosten van membraanprocessen en de zeer grote hoeveelheden stallucht die behandeld zouden moeten worden, is het onwaarschijnlijk dat gasscheiding met membranen een kostenefficiënte methode is de methaanconcentratie in stallucht te verhogen en zo de kosten van biofiltratie te verlagen.

5.3.4 Luchtbehandelingstechnieken voor verwijdering slecht oplosbare stoffen

Er zijn verschillende technieken ontwikkeld voor de behandeling van lucht met daarin een slecht in water oplosbare component; deze technieken bieden mogelijk perspectieven voor de behandeling van de ventilatielucht van een mestopslag. Vanwege het grote debiet van stallucht, worden toepassing van deze technieken niet haalbaar geacht voor de behandeling van stallucht aangezien hiervoor zeer grote installaties nodig zouden zijn. Vanwege de hoge kosten van een dergelijke installatie zouden de emissiereductiekosten per kg CO_2-eq.vele malen hoger zijn de kosten die in Tabel 1 zijn berekend voor biofiltratie van lucht uit een mestopslag. Voorbeelden van dergelijke technieken zijn:

1) Schimmelcultuur
De micro-organismen in een biofilter zijn in het algemeen bacteriën. Het is ook mogelijk het biofilter te enten met een schimmelcultuur waarna de schimmel zich door het biofilter zal verspreiden. In vergelijking met bacteriën kunnen schimmels functioneren bij een veel lagere wateractiviteit. Doordat de waterlaag die zich om de biofilm bevindt hierdoor dunner kan zijn, zal het stoftransport van gas- naar waterfase van slecht oplosbare stoffen hoger zijn. Bevochtiging van de bioreactor is daarom van grote invloed op de verwijdering van slecht oplosbare stoffen (zie ook onder 2)).

Bovendien is er een groot contactoppervlak tussen de schimmeldraden en de te verwijderen component zonder dat er zich een waterfase tussen bevindt. Dit zal bevorderlijk zijn voor de afbraak van slecht oplosbare componenten (Groenestijn & Liu, 2002). Voor styreen (matig wateroplosbaar; m_{lw} = 0,13) is aangetoond dat de afbraak in een biofilter met schimmels (dragermateriaal: perliet en polyurethaan schuim) circa 5 maal zo hoog is dan in een conventioneel compost biofilter met een zelfde volume (Cox *et al.*, 1993, 1994).

Uit de literatuur is bekend dat er ook schimmels bestaan die methaan kunnen afbreken (Wolf & Hanson, 1979; Zajic *et al.*, 1969) hoewel er slechts beperkte kennis is over deze organismen. In Nederland is op het gebied van luchtreiniging met behulp van schimmelculturen onder andere onderzoek gedaan door Wageningen Universiteit, TNO-MEP en Bioway.

2) Dry-bed bioreactor
Een biofilter of biotrickling-filter wordt in het algemeen actief bevochtigd. Zoals gezegd, speelt de waterlaag die zich om de biofilm bevindt een belangrijke rol bij het stoftransport. In het algemeen kan gezegd worden: hoe dikker de waterlaag is, hoe lager het stoftransport van gas- naar waterfase van slecht oplosbare stoffen zal zijn. Wanneer de bevochtiging beperkt wordt door minder water over het filterbed te sproeien en/of het filterbed discontinu te bevochtigen, wordt de waterlaag dunner zodat de microbiologische afbraak van de te verwijderen component kan toenemen (Heyder *et al.*, 1994).

Weliswaar werd het biofilter tijdens de experimenten in fase 3 van het onderzoek niet actief bevochtigd, uit de praktijk is bekend dat actieve bevochtiging meestal wel nodig is wanneer een

biofilter gedurende alle seizoenen goed moet blijven functioneren. Mogelijk kan de methaanverwijdering in het biofilter verhoogd worden door de actieve bevochtiging van het biofilter minimaal in te stellen of door het vochtgehalte van de ingaande lucht te verlagen. Het dry-bed principe kan toegepast worden bijvoorbeeld in combinatie met het gebruik van schimmelculturen aangezien schimmels in vergelijking met bacteriën actief blijven bij een relatief lage wateractiviteit (zie onder 1).

3) Actief kool

Actief kool is een adsorptiemiddel dat vanwege de poreuze structuur in staat is om veel stoffen te binden. Actief kool kan daarom gebruikt kan worden om stoffen af te scheiden uit een gas- of waterfase. Actief kool wordt soms toegevoegd aan een biofilter om de te verwijderen stof te binden zodat de micro-organismen deze vervolgens kunnen omzetten; op deze wijze kunnen fluctuaties in verontreinigingsvracht eventueel opgevangen worden. Aangezien methaan slecht geadsorbeerd wordt door actief kool wordt het gebruik van actief kool niet zinvol geacht voor de behandeling van lucht uit een mestopslag.

4) Mist-foam reactor

In een mist-foam bioreactor (Thalasso *et al.*, 1991) wordt de verontreinigde luchtstroom vermengd met een nevel die gecreëerd wordt met zogenaamde atomiserende sproeiers. Vervolgens wordt de mist door een filterbed geleid van polyurethaan schuim (foam). De waterdruppeltjes die gevormd worden zijn zeer klein; als gevolg daarvan is het uitwisselend oppervlak tussen gas- en waterfase extreem groot (6×10^4 - 2×10^5 m^2/m^3). Vanwege dit grote uitwisselingsoppervlak wordt verwacht dat dit reactorconcept met name geschikt is voor de verwijdering van slecht oplosbare stoffen. De ontwikkeling van dit type bioreactoren bevindt zich in een experimenteel stadium en er is op dit moment geen ervaring met slecht oplosbare stoffen.

5) Apolaire vloeistoffase

Het overdrachtproces van gas- naar waterfase, waarin zich de micro-organismen bevinden, kan opgesplitst worden door een tweede vloeistoffase (oplosmiddel) te gebruiken (Schippert, 1989; Cesário, 1997). De te verwijderen component is goed oplosbaar in deze apolaire vloeistof en het oplosmiddel zelf is niet met water mengbaar. Allereerst wordt de lucht gewassen met het oplosmiddel, zodat de te verwijderen component in het oplosmiddel terechtkomt. Vervolgens wordt het oplosmiddel in intensief contact gebracht met de waterfase waarin zich bacteriën bevinden. De biologische afbraak door de bacteriën zorgt ervoor dat de concentratie van de component in de waterfase steeds zeer laag blijft. Als gevolg daarvan vindt doorlopend stoftransport plaats van het oplosmiddel naar de waterfase zodat de te verwijderen component uiteindelijk geheel afgebroken is. Uit onderzoek van Cesário (1997) blijkt dat de overdracht van etheen (m_{lw} = 7,6) bij gebruik van het oplosmiddel Fluorinert FC-40 (een perfluor-koolwaterstof) op de hierboven beschreven manier tot 2 maal zo hoog wordt. Schippert (1989) rapporteert dat de tolueenverwijdering (m_{lw} = 0,21) in een bioscrubber zelfs 24 maal zo hoog wordt na toediening van 10% oplosmiddel. Een geschikt oplosmiddel (of adsorbent) voor deze toepassing voldoet volgens Cesário (1997) aan de volgende eigenschappen:

- lage dampdruk;
- niet mengbaar met water (apolair);

- hoge affiniteit voor de te verwijderen component;
- bij voorkeur niet biologisch afbreekbaar;
- niet toxisch voor de micro-organismen;
- geurloos;
- goedkoop.

6) Membraanbioreactor

In een membraanbioreactor worden de waterfase en de gasfase van elkaar gescheiden door middel van een membraan. De biomassa bevindt zich op het membraan aan de kant van de waterfase zodat er in principe geen waterlaag meer is tussen de biomassa en de te verwijderen componenten in de gasstroom. Wanneer bijvoorbeeld gebruik wordt gemaakt van hydrofobe membranen (Reij *et al.*, 1997; Min *et al.*, 2002) kunnen de slecht wateroplosbare componenten relatief gemakkelijk het membraan passeren. Het gebruik van membraanbioreactoren voor reiniging van lucht met slecht oplosbare componenten bevindt zich in een experimenteel stadium.

In Nederland is op het gebied van luchtreiniging met behulp van membraanbioreactoren onder andere onderzoek gedaan door Wageningen Universiteit, Bioclear, IMAG en Stork Product Engineering. In fase 1 van het onderzoek (zie Bijlage 1) is geconcludeerd dat toepassing van een membraanbioreactor in vergelijking met een standaard biofilter veel duurder is en daarom in principe niet haalbaar wordt geacht voor de behandeling van stallucht en lucht uit mestopslagen. Desondanks wordt de mebraanbioreactor voor de volledigheid wel meegenomen in de evaluatie in paragraaf 5.4.

5.4 Evaluatie technieken

De technieken die in paragraaf 5.3 zijn besproken met als doel een kostenverlaging van de biologische behandeling van methaanhoudende lucht te realiseren, worden vervolgens geëvalueerd met betrekking tot de inpasbaarheid, de kosten en het ontwikkelingsstadium.

In Tabel 3 wordt een evaluatie gegeven van de technieken die als doel hebben de kosten van de behandeling van stallucht te verlagen door de methaanconcentratie in de lucht te verhogen. In Tabel 4 wordt een evaluatie gegeven van de technieken die als doel hebben de kosten van behandeling van de ventilatielucht van een mestopslag te verlagen.

Een korte toelichting op de begrippen die in Tabel 3 en 4 worden gebruikt volgt hieronder:

- Inpasbaarheid:
  Tabel 3: Kan de techniek toegepast worden binnen het huidige dierhouderijsysteem (+), of is een geheel nieuwe bedrijfssysteem noodzakelijk (-)?
  Tabel 4: Kan de techniek toegepast worden als aanvulling of aanpassing van het in dit project reeds ontwikkelde biofilter (+), of is er sprake van een weer geheel nieuwe techniek (-)?
- Kosten:
  Zal toepassing van de techniek een kostenverhoging (-) of kostenverlaging bewerkstelligen (+) van het totale luchtbehandelingssysteem?

- Ontwikkelingsstadium:

  Bevindt de techniek zich in een experimenteel/onderzoeksstadium (-) of is er sprake van een bewezen techniek (+)?

- Evaluatie:

  Evaluatie van de voorgaande aspecten, ervan uitgaand dat het doel is een kostenverlaging van het biofilratieproces te bereiken.

Tabel 3 Evaluatie van technieken ([1]) voor verhoging van de methaanconcentratie in stallucht als voorbehandelingsstap van biofiltratie.

Techniek	Inpasbaarheid	Kosten	Ontwikkelings-stadium	Evaluatie
Verlaging ventilatiedebiet	-	+/- [2]	-	-
Gasscheiding	-	-	+/-	-

[1] Zie paragraaf 5.3.2 en 5.3.3.
[2] Mogelijk wordt een theoretische kostenverlaging bereikt, maar het biofilter is dan nog steeds zo groot dat de emissiereductiekosten zeer hoog blijven.

Uit de evaluatie die in Tabel 3 is samengevat, volgt dat de besproken technieken geen of onvoldoende perspectief bieden voor het verlagen van de kosten van de behandeling van stallucht. Als gevolg hiervan blijft de in hoofdstuk 4 getrokken conclusie overeind dat biofiltratie geen economische haalbare techniek is voor de behandeling van ventilatielucht van stallen. Voor de inhoudelijke argumentatie van de scores die in Tabel 3 worden gegeven, wordt verwezen naar de bespreking hiervan in paragraaf 5.3.2 en 5.3.3.

Tabel 4 Evaluatie van technieken[1] voor verhoging van de stofoverdracht van methaan met als doel een verhoging van de methaanverwijderingatie uit ventilatielucht van een mestopslag in een biofilter

Techniek	Inpasbaarheid	Kosten	Ontwikkelings-stadium	Evaluatie
Schimmelcultuur	+	+	-	+
Dry-bed bioreactor	+	+	-	+
Actief kool	- [2]	-	+	-
Mist-foam reactor	-	+/-	-	-
Apolaire vloeistoffase	+/-	+	-	+
Membraanbioreactor	-	-	-	- [3]

[1] Zie paragraaf 5.3.4.
[2] Deze techniek is niet toepasbaar voor de verwijdering van methaan.
[3] In fase 1 van dit project (zie Bijlage 1) is de membraanbioreactor als alternatief voor een biofilter afgewezen vanwege de voorziene hoge kosten.

Uit de evaluatie die in Tabel 4 is samengevat, blijkt dat drie van de zes technieken (Schimmelcultuur, Dry-bed bioreactor en Apolaire vloeistoffase) perspectief bieden voor het verlagen van de kosten van de ventilatielucht van een mestopslag. Dit wil zeggen dat met deze technieken mogelijk een luchtreinigingssysteem kan worden ontwikkeld met lagere emissiereductiekosten per ton CO_2-eq. dan het reeds ontwikkelde biofilter. Indien de methaanverwijdering in het biofilter met een factor 10 kan worden verhoogd door toepassing en optimalisatie van de genoemde technieken, zouden de emissiereductiekosten van methaan kunnen dalen tot ongeveer € 11 - € 14 per ton CO_2-eq. in een 'best case' en € 33 - € 50 per ton CO_2-eq. in een 'worst case' scenario. Gezien de in paragraaf 4.4 genoemde indicatieve marktprijzen voor emissiehandel van € 5 - € 40 per ton

CO_2-eq., zou een kostenverlaging van een factor 10 voor het biofilter dus tot gevolg hebben dat toepassing van het biofilter concurrerend is met andere technieken en mogelijkheden om emissiebeperking te bereiken. Er is echter weinig ervaring met de technieken die in Tabel 4 worden besproken. Dit betekent dat alleen door nader onderzoek vastgesteld kan worden of de technieken geschikt zijn voor de behandeling van de betreffende luchtstroom en welke kostenreductie van het biofilter op deze manier bereikt kan worden. De verwachting bestaat echter niet dat nader onderzoek een biofilter zal opleveren dat op korte termijn wél economisch haalbaar is.

6 Conclusies

1. Uit een literatuurstudie naar verschillende biologische luchtbehandelingstechnieken (biofilter, biotricklingfilter, bioscrubber en membraanbioreactor), blijkt dat een biofilter de beste perspectieven biedt voor de verwijdering van methaan uit lucht van stallen en mestopslagen.

2. Uit experimenten op pilot-schaal blijkt dat de behandeling van ventilatielucht uit mestopslagen (relatief hoge methaanconcentratie en laag debiet) mogelijk is met een biofilter van beperkte omvang. Aangetoond wordt dat de in het project beoogde reductie van 50% eenvoudig gehaald kan worden (er worden reducties tot 85% gemeten). Voor een mestopslag van 1000 m^3 zal een biofilter een omvang hebben van 20 tot 80 m^3 bij een emissiereductie van methaan van 50%.

3. Geconcludeerd wordt dat praktische toepassing van een biologische filterinstallatie voor de behandeling van ventilatielucht van stallen (relatief lage methaanconcentratie en hoog debiet) niet economisch haalbaar is. De reden hiervoor is dat de omvang van een dergelijk biofilter enige tienduizenden kubieke meters zou bedragen. De doelstelling om een biofilter met investeringskosten van € 45 per vleesvarkensplaats te ontwikkelen, dat in staat is om zowel stallucht als de ventilatielucht van mestopslagen te behandelen, wordt dus niet gehaald.

4. Uit een financiële evaluatie van het ontwikkelde biofilter voor de behandeling van ventilatielucht van een mestopslag, volgt dat de emissiereductiekosten voor broeikasgassen in het 'best case' scenario € 110 - 142 per ton CO_2-eq. bedragen en in het 'worst case' scenario € 246 - 497 per ton CO_2-eq. In de toekomst zouden deze kosten mogelijk kunnen worden verlaagd door gebruik te maken van additionele technieken (zie conclusie punt 7).

5. Vanwege de hoge kosten voor emissiereductie van broeikasgassen met behulp van het ontwikkelde biofilter wordt het op dit moment niet zinvol geacht om het huidige biofilterontwerp (pilot-scale: 160 liter) op te schalen naar een full-scale luchtreinigingsinstallatie (20 - 80 m^3).

6. De emissiereductiekosten van het biofilter (€ 110/ton CO_2-eq. in 'best case' scenario') zijn hoger dan de emissiereductiekosten van alternatieve technieken zoals een vergistingsinstallatie (€ 56/ton CO_2-eq., excl. subsidie) of het affakkelen van biogas (€ 34/ton CO_2-eq.). Gezien de indicatieve marktprijzen die genoemd worden voor emissiehandel (€ 5 - 40 per ton CO_2-eq.), wordt daarom geconcludeerd dat zowel het biofilter als de vergistingsinstallatie vanuit de overheid beschouw geen financieel haalbare maatregelen zijn voor emissiereductie van broeikasgassen. De kosten van affakkeling van biogas benaderen als enige de genoemde indicatieve marktprijzen voor CO_2-handel. Vanuit de individuele ondernemer beschouwd, geldt dat mestvergisting per ton CO_2-eq. wél een goedkopere emissiereductietechniek is dan het affakkelen van biogas. omdat de kosten die de ondernemer betaalt voor mestvergisting door overheidsubsidies worden verlaagd van € 56 tot € 11/ton CO_2-eq.

7. Uit een evaluatie van verschillende experimentele technieken voor de verwijdering van slecht in water oplosbare componenten uit lucht, wordt geconcludeerd dat de methaanverwijdering in het biofilter mogelijk verhoogd kan worden. Hierdoor zou volstaan kunnen worden met een kleiner biofilter. Als kansrijke technieken worden onderscheiden: i) gebruik van een schimmelcultuur,

ii) toepassing van een ander bevochtigingsregime (dat wil zeggen: minder bevochtigen en/of periodiek in plaats van continu bevochtigen) en iii) gebruik van een apolaire vloeistoffase.

Gebruik van deze technieken als toevoeging aan een standaard biofilter wordt perspectiefvol geacht voor de behandeling van ventilatielucht van mestopslagen, vanwege het relatief lage debiet en de relatief hoge methaanconcentratie van deze lucht. Nader onderzoek zal moeten aantonen of de technieken geschikt zijn voor de behandeling van de betreffende luchtstroom en welke kostenreductie van het biofilter op deze manier bereikt kan worden. De verwachting bestaat echter niet dat nader onderzoek een biofilter zal opleveren dat op korte termijn wél economisch haalbaar is.

Gebruik van deze technieken voor de behandeling van stallucht wordt niet perspectiefvol geacht vanwege het relatief hoge debiet en de relatief lage methaanconcentratie van deze lucht. Hierdoor zou de luchtbehandelingsinstallatie extreem groot moeten zijn en zou toepassing van de genoemde technieken niet kostenefficiënt zijn.

Literatuur

Amstel van AR; RJ Swart; MS Krol; JP Beck; AF Bouwman; KW van der Hoek (1993) Methane. The other greenhouse gas. Research and policy in the Netherlands. Report no: 481507001, RIVM, De Bilt.

Bemmel van JBM; AW van der Werf (2002) Haalbaarheidsstudie naar de toepassing van biologische technieken voor de behandeling van methaan houdende lucht uit stallen en mestopslagen. Projectcode 2000-1366. Bioclear, Groningen.

Bodde R (2000) Prefab stal vrijwel zonder uitstoot van ammoniak. Boerderij/Varkenshouderij 85, no. 12, pp. 20-21.

Brunink JAJ (2002) Methaanemissie-reductie in de veeteelt. Toepasbaarheid van biologische luchtfiltratie. Document no. SPE-MTV-RP001. Stork Product Engineering, Amsterdam.

Casada ME; LMJ Safley (1990) Global methane emission from livestock and poultry manure. Report Climate Change Division, USEPA.

Cesário MT (1997) Water-immiscible solvents for the biological treatment of waste gases. PhD thesis. Landbouwuniversiteit Wageningen, Wageningen, the Netherlands.

Cox HHJ; HJ Doddema; W Harder (1994) Biological removal of styrene from waste gases using fungi on inert support materials. In VDI Berichte 1104, Biologische Abgasreinigung, VDI Verlag, Düsseldorf, pp. 289-299.

Cox HHJ; JHM Houtman; HJ Doddema; W Harder (1993) Enrichment of fungi and degradation of styrene in biofilters. Biotechnol. Lett. 15: 737-742.

Cozijnsen J (2001) Emission trading. CO_2 is not the only gas. Environmental Finance, December 2001/January 2002. Removal of alpha-pinene from gases using biofilters containing fungi.

Ecogas (2000) Offerte voor de bouw van een biogasinstallatie op Varkensproefbedrijf Sterksel.

Groenestijn van JW; JX Liu (2002) Removal of alpha-pinene from gases using biofilters containing fungi. Atmospheric Environment 2002; 36 (35): 5501-5508.

Heyder de B; A Overmeire; H van Langenhove; W Verstraete (1994) Ethene removal from a synthetic waste gas using a dry biobed. Biotechnology and Bioengineering. 1994; 44 (5) 642-648.

Hilhorst MA; GJ Monteny; P de Gijsel; HJC van Dooren; AJH van Lent (2001) Duurzame energie en vermindering methaanemissies: emissiearme mestopslag. Rapport 2001-06. IMAG, Wageningen.

Hoeksma P; G Zeeman (1986) Biogas production from cow and pig slurry under mesophilic and psychrophilic conditions. Nota 1513/11-12-86. IMAG, Wageningen.

IKC (1996) In: W van Dijk (1999) Adviesbasis voor de bemesting van akkerbouw- en volgrondsgroentegewassen. PAV, publicatie nr. 95, maart 1999.

Min KN; SJ Ergas; JM Harrison (2002) Hollow-fiber membrane bioreactor for nitric oxide removal. Environmental-Engineering-Science. 2002; 19 (6): 575-583.

IPCC (1996) Revised 1996 IPCC guidelines for national greenhouse gas inventories. Greenhouse gas inventory manual. J.T. Houghton, L.G. Meira Filho, B. Lim, K. Treanton, I. Mamaty, Y. Bonduki, D.J. Griggs and B.A. Callendar (ed.).

Klimaatplatform (2002) Klimaatinstellingen varkensstallen. Varkens 77, 3 september 2002.

Lent van AJH; HJC van Dooren (2001) Perspectieven mestvergisting op Nederlandse melkvee- en varkensbedrijven. Rapport 194. Praktijkonderzoek Veehouderij, Lelystad. ISSN 1382-0346.

Melse RW (2003) Verwijdering van methaan uit ventilatielucht van een drijfmestopslag met een pilot-scale biofilter. Nota P 2003-20. IMAG, Wageningen.

Mol G (2003) Persoonlijke mededeling. Cijfers zijn gebaseerd op database van door IMAG gemeten ventilatiedebieten (gepubliceerd in diverse rapporten). IMAG, Wageningen.

Moor APG.; JC Bollen (2001) Kosten en gevolgen bij de toepassing van de Kyoto Mechanismen. RIVM rapport 728001014. Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu, Bilthoven.

NOVEM (1999) Protocol Monitoring Duurzame Energie. NOVEM, Utrecht.

RIVM & CBS (2001) Milieucompendium 2000: het milieu in cijfers. Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu, Bilthoven.

Reij MW; EK Hamann; S Hartmans (1997) Biofiltration of air containing low concentrations of propene using a membrane bioreactor. Biotechnology Progress 1997; 13 (4) 380-386.

Schippert E (1989) Das Biosolv-Verfahren von Keramchemie zur Absorption von schwerwasserlöslichen Lösemitteln. In: VDI Berichte 753, Biologische Abgasreinigung, Praktische Erfahrungen und Neue Entwicklungen, VDI Verlag, Düsseldorf, pp. 161-177.

Thalasso, F; P L'Hermite; R Hammami; HP Naveau; EJ Nyns (1991) Reactor design for biological treatment using the "mist-foam" concept. In: Proceedings of the international symposium of environmental biotechnology, vol. 1, April 1991, Ostende, Belgium, pp. 377-379.

Tijmensen MJA; RCA van den Broek; R Wasser; A Kool; RM de Mol; MA Hilhorst (2002) Mestvergisting op boerderijschaal in bestaande opslagsystemen. NOVEM ROB programma project 373002-0230. Ecofys BV, Utrecht.

Tolsma A (2000) BB Air system. Biological and bacterial air recycling system. Symposium "De varkensstal van de toekomst", georganiseerd door IMAG, PV en WU. 8 juni 2000, WICC, Wageningen.

Wagenberg AV van (2002) Notitie over mestverdamping en luchtwassing t.b.v. Hercules project. Interne notitie. Praktijkonderzoek Veehouderij, Lelystad.

Warmuzinski K; W Sodzawiczny (2000) Effect of Adsorption Pressure on Methane Purity During PSA Separations of CH4/N2 Mixtures. Proceedings of the Fifth International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies (GHGT-5), Cairns, Australia, 13 - 16 August 2000, p. 721. Eds: D Williams, B Durie, P McMullan, C Paulson and A Smith.

Werf van der AW (2002) Resultaten van het laboratoriumonderzoek naar de toepassing van biologische technieken voor de behandeling van methaan houdende lucht uit stallen en mestopslagen. Projectcode 2000-1366. Bioclear, Groningen.

Wolf HJ; RS Hanson (1979) Isolation and characterization of methane-utilizing yeasts. Journal of General Microbiology, 114:1, pp. 197-194.

Wijngaart van den R; JR Ybema (2002) Referentieraming broeikasgassen. Emissieraming voor de periode 2001-2010. RIVM Rapport 773001020/2002. RIVM, Bilthoven.

Willers HC; HM Londo; RW Melse (2002) Van mest en organische reststoffen tot hoogwaardige meststoffen en energie. Een project van het programma Meervoudig Duurzaam Landgebruik Winterswijk. December 2002, KDO Advies, Leiden.

Zajic JE; B Valesky; A Wellman (1969) Growth of Graphium sp. on natural gas. Can J Microbiology 15: 1231-1236.

Samenvatting

De Nederlandse veestapel is verantwoordelijk voor een methaanemissie van ongeveer 10 Mton CO_2-eq. per jaar. Het doel van dit onderzoek is het ontwikkelen van een biologisch luchtfilter dat in staat is methaan te verwijderen uit lucht afkomstig van stallen en/of mestopslagen op een economisch haalbare wijze. De beoogde emissiereductie bedraagt minimaal 50%.

Op grond van literatuuronderzoek wordt geconcludeerd dat een biofilter, in vergelijking met een biotricklingfilter, bioscrubber of membraanbioreactor, de meeste perspectieven biedt voor een succesvolle en rendabele verwijdering van methaan uit lucht; daarom wordt het biofilter nader onderzocht.

Uit biofiltratie experimenten op pilot-schaal (160 liter reactor) blijkt dat de methaanverwijdering (g/m^3 biofilter/uur) recht evenredig is met de methaanconcentratie van de te behandelen lucht (g/m^3 lucht). Vanwege de lage methaanconcentratie (10 - 160 ppm) en het hoge debiet van stallucht, in combinatie met de zeer lage wateroplosbaarheid van methaan (Henry coëfficiënt = 0,0015 M/atm (water/lucht)), wordt geconcludeerd dat biofiltratie van stallucht niet praktisch toepasbaar is. Een biofilter voor de behandeling van stallucht zou namelijk extreem groot moeten zijn, te weten 9,5 m^3 per vleesvarkensplaats (= 500 maal zo groot als biofilters die gangbaar zijn voor de verwijdering van ammoniak uit stallucht). Mogelijk toepasbare technieken om de methaanconcentratie in stallucht te verhogen (verlagen van ventilatiedebiet of gasscheiding), waardoor de grootte van het biofilter zou afnemen, worden niet kostenefficiënt geacht. Daarom wordt de behandeling van stallucht niet nader onderzocht.

Uit de pilot-experimenten met het biofilter blijkt verder dat de behandeling van ventilatielucht uit de 'headspace' van een mestopslag, ondanks de lage wateroplosbaarheid van methaan, wel mogelijk is in een biofilter van beperkte omvang. De reden hiervoor is dat deze lucht in vergelijking met stallucht een hoge concentratie methaan bevat (200 - 33.000 ppm) en een laag debiet heeft. Aangetoond wordt dat de beoogde reductie van 50% eenvoudig gehaald kan worden (er worden reducties tot 85% gemeten). Bovendien verwijdert het biofilter ammoniak (90 - 100%) en waterstofsulfide (100%) uit de lucht en verandert het geurkarakter van de ventilatielucht van 'mestlucht' in 'bosgeur'. Uitgaande van een mestopslag van 1000 m^3 die gemiddeld voor 50% gevuld is, is een biofilter nodig van 20 - 80 m^3 om een methaanemissiereductie te bereiken van 50%. De uiteindelijke grootte van het biofilter hangt af van de methaanconcentratie in de te behandelen lucht.

Uit een evaluatie van experimentele technieken die speciaal gericht zijn op de reiniging van lucht met slecht oplosbare componenten, zoals methaan, wordt geconcludeerd dat de methaanverwijdering in het biofilter mogelijk verhoogd kan worden zodat volstaan kan worden met een kleiner biofilter. Er worden drie kansrijke technieken onderscheiden: i) gebruik van een schimmelcultuur, ii) toepassing van een ander bevochtigingsregime (dat wil zeggen: minder bevochtigen en/of periodiek in plaats van continu bevochtigen) en iii) gebruik van een apolaire vloeistoffase. Gebruik van deze technieken als toevoeging aan een standaard biofilter wordt alleen perspectiefvol geacht voor de behandeling van ventilatielucht van mestopslagen en niet voor de behandeling van stallucht. Vanwege het hoge debiet van stallucht zou een zeer grote luchtbehandelingsinstallatie

nodig zijn waardoor toepassing van de genoemde technieken niet kostenefficiënt zou zijn. Nader onderzoek zal moeten aantonen welke kostenreductie van het biofilter bereikt kan worden door toepassing van de genoemde technieken voor de behandeling van de ventilatielucht van een mestopslag.

Uit een financiële evaluatie blijkt dat de emissiereductiekosten (€/ton CO_2-eq.) van het ontwikkelde biofilter voor 80% bepaald worden door de vaste kosten van de investering (d.w.z. afschrijving, rente en onderhoud). De emissiereductiekosten van het biofilter bedragen € 110 - 142 per ton CO_2-eq. in een 'best case' scenario, tegenover € 246 - 497 per ton CO_2-eq. in een 'worst case' scenario. Eveneens worden twee alternatieven voor het biofilter doorgerekend: i) affakkelen van het biogas dat in de mestopslag wordt geproduceerd en ii) het ombouwen van de mestopslag tot een vergister waarbij het biogas wordt verbrand en omgezet in elektriciteit en warmte. Uit de berekeningen blijkt dat de emissiereductiekosten (excl. eventuele subsidies) voor de fakkelinstallatie € 34 per ton CO_2-eq. en voor de vergistinginstallatie € 56 per ton CO_2-eq. bedragen. Vanuit de overheid gezien heeft het affakkelen van biogas heeft van de drie geanalyseerde emissiebeperkende maatregelen dus de hoogste kostenefficiëntie. Gezien de indicatieve marktprijzen die voor emissiehandel worden genoemd van € 5 - 40 per ton CO_2-eq., wordt geconcludeerd dat zowel het biofilter als de vergistingsinstallatie geen financieel haalbare technieken zijn voor emissiereductie van broeikasgasssen; affakkeling van biogas benadert als enige van de drie geanalyseerde technieken de indicatieve marktprijzen voor CO_2-handel. Op dit moment wordt mestvergisting echter door de overheid gestimuleerd (diverse investeringssubsidies, vergoeding voor 'groene stroom') zodat de kosten die de ondernemer moet dragen verlaagd worden van € 56 naar slechts € 11 per ton CO_2-eq. Vanuit de overheid beschouwd heeft subsidiering natuurlijk geen invloed op de kostenefficiëntie van de onderzochte technieken voor emissiereductie van broeikasgassen.

Het onderzoek is uitgevoerd in opdracht van Novem (Besluit milieusubsidies Subsidieregeling Reductie Overige Broeikasgassen, projectnummer 375102/0010) en van het Ministerie van Landbouw, Natuurbeheer en Voedselkwaliteit (LNV).

Summary

The methane emission from livestock farming in the Netherlands adds up to about 10 Mtonne CO_2-eq. per year. The aim of this research is to develop a biological air treatment system that is capable of removing methane from air that is withdrawn from liquid manure storages and from exhaust air of animal houses in an economically feasible manner. The desired methane emission reduction is at least 50%.

Based on literature it is concluded that in comparison with a biotrickling filter, bioscrubber, or membrane bioreactor, a biofilter offers the best prospects for the development of a successful and feasible system for removal of methane from air. This is why the research focuses on biofiltration only.

Pilot-scale biofiltration experiments (160 liter reactor) show that methane removal (g/m^3 biofilter/ hour) is proportional to the methane inlet concentration (g/m^3 air). Because of the high flow and low methane concentration (10 - 160 ppm) of exhaust air from animal houses, in combination with the very low water solubility of methane (Henry coefficient = 0.0015 M/atm), it is concluded that biofiltration of exhaust air from animal houses is not practically feasible. A biofilter for this application would be extremely large, viz 9.5 m^3 per fattening pig (= 500 times the size of a biofilter that has been designed for ammonia removal from exhaust air). Techniques to raise the methane concentration in the exhaust air, such as lowering ventilation capacity or gas separation, are not considered economically feasible. Therefore, biofiltration of this air is not further considered.

The pilot-experiments with the biofilter show that treatment of air that is withdrawn from the headspace of covered liquid manure storage is possible in a biofilter of limited size, despite the low water solubility of methane. The reason is that the air that is withdrawn from a manure storage tank has, in comparison with exhaust air from animal houses, a high methane concentration (200 - 33,000 ppm) and a low airflow. The pilot-experiments demonstrate that the desired methane emission reduction of 50% can be easily achieved (reductions up to 85% were measured). Also ammonia (90 - 100%) and hydrogen sulphide (100%) are removed and odour characteristics of the air change from the smell of 'manure' to the smell of 'forest soil'. For a 1,000 m^3 manure storage (filled for 50% of the time) the required size of a biofilter is 20 - 80 m^3 in order to achieve 50% methane emission reduction. The actual size of the biofilter depends on the methane concentration of the air that is treated.

From an evaluation of experimental techniques that especially focus on the removal of poorly soluble components, such as methane, it is concluded that some of the techniques may increase the methane removal of the biofiltration, resulting in a smaller biofilter size. Promising techniques for removal of methane are: i) the use of fungi, ii) the use of another humidification strategy (i.e. decrease of humidity level and discontinuous humidification), and iii) the use of a water-immiscible solvent. The use of these techniques as addition to a standard biofilter may be feasible for the treatment of air that is withdrawn from a manure storage tank, but is not for the treatment of exhaust air from an animal house. Because of the large airflow of exhaust air from an animal house, an installation for treatment of this air would be very large so that the application

of the mentioned techniques would not be feasible. However, further research is necessary to determine what cutback of the costs for biofiltration can be achieved with these techniques if the air from a manure storage is treated.

A financial evaluation shows that 80% of the emission reduction costs (€/ton CO_2-eq.) of the biofilter that was developed comprise of fixed costs of the investment (i.e., depreciation, interest, and maintenance). The emission reduction costs come to € 110 - 142 per ton CO_2-eq. in a 'best case' scenario against € 246 - 497 per ton CO_2-eq. in a 'worst case' scenario.

Also two alternatives to biofiltration are evaluated: i) use of a flare to burn off of the biogas that is produced in the manure storage and ii) controlled anaerobic digestion followed by production of electricity and heat. The calculations demonstrate that the emission reduction costs of the flare installation are € 34 per ton CO_2-eq. whereas the emission reduction costs of the anaerobic digester add up to € 56 per ton CO_2-eq. (without subsidies). From a governmental point of view, this means that flaring off of biogas is the most cost efficient technique of the three techniques that are discusses here for the reduction of the emission of greenhouse gases. Based on an rough estimate of € 5 - 40 per ton CO_2-eq. as a price for emission trading, it is concluded that neither anaerobic digestion nor biofiltration are cost efficient measures; only the costs of a flare installation approach the estimated market price the reduction of the emission of greenhouse gases. Because of subsidies on investments and on the generation of 'green energy' however, the operational costs of a manure digester decrease from € 56 to € 11 per kg CO_2-eq. Nevertheless, from the point of view of the government subsidies do of course not influence the cost efficiency of a technique for emission reduction.

This research was made possible by funding of Novem (Program for reduction of non-CO_2 greenhouse gases (ROB); project number 375102/0010) and of the Dutch Ministry of Agriculture, Nature Management and Food Quality (LNV).

Bijlagen

Bijlage 1 Rapportage fase 1: Haalbaarheidsstudie naar de toepassing van biologische technieken voor de behandeling van methaan houdende lucht uit stallen en mestopslagen (Bemmel & Werf, 2002)

Bijlage 2 Rapportage fase 2: Resultaten van het laboratoriumonderzoek naar de toepassing van biologische technieken voor de behandeling van methaan houdende lucht uit stallen en mestopslagen (Werf, 2002).

Bijlage 3 Rapportage fase 3: Verwijdering van methaan uit ventilatielucht van een drijfmestopslag met een pilot-scale biofilter (Melse, 2003).

Bijlage 4 Rapportage fase 4: Methaanemissie-reductie in de veeteelt, Toepasbaarheid van biologische luchtfiltratie (Brunink, 2002).

Bijlage 5 Berekening van emissie uit opslag voor vleesvarkensmest

Bijlage 6 Berekening van elektriciteitsverbruik biofilter voor reiniging van lucht uit een opslag voor vleesvarkensdrijfmest

Bijlage 7 Berekening van emissie en kosten van vergistingsinstallatie voor vleesvarkensmest

Bijlage 8 Berekening van kosten van affakkelinstallatie voor opslag van vleesvarkensmest

Bijlage 1 - Rapportage fase 1

Haalbaarheidsstudie naar de toepassing van biologische technieken voor de behandeling van methaan houdende lucht uit stallen en mestopslagen (Bemmel & Werf, 2002).

HAALBAARHEIDSSTUDIE NAAR DE TOEPASSING VAN BIOLOGISCHE TECHNIEKEN VOOR DE BEHANDELING VAN METHAAN HOUDENDE LUCHT UIT STALLEN EN MESTOPSLAGEN

Eindrapportage

Opdrachtgever: IMAG
Projectcode: 2000.1366
Datum: 8 juli 2002

Opdrachtgever: IMAG
Projecttitel: Haalbaarheidsstudie naar de toepassing van biologische technieken voor de behandeling van methaanhoudende lucht uit stallen en mestopslagen
Projectcode: 2000.1366
Documenttype: eindrapport
Publicatiedatum: 8 juli 2002
Projectleider: ir. A.W. van der Werf
Auteur(s): ir. J.B.M van Bemmel, ir. A.W. van der Werf
Trefwoorden: Lucht, haalbaarheidsstudie, specifiek, aëroob

Bioclear b.v.
Postadres:
Postbus 2262, 9704 CG Groningen
Bezoekadres:
Rozenburglaan 13C, Groningen
Telefoon: 050 571 8455
Fax: 050 571 7920
E-mail: info@bioclear.nl
Website: www.bioclear.nl

Alle rechten voorbehouden. Niets uit deze uitgave mag worden vermenigvuldigd en/of openbaar gemaakt door middel van druk, fotokopie, microfilm of op welke andere wijze dan ook, zonder voorafgaande toestemming van Bioclear.

© Bioclear b.v.

Bioclear adviseert bedrijven, overheden en dienstverlenende organisaties op het terrein van de milieutechnologie.

Op opdrachten aan Bioclear zijn van toepassing de Algemene Voorwaarden voor onderzoeksopdrachten aan Bioclear, zoals gedeponeerd bij de Kamer van Koophandel te Groningen.

INHOUD

1. INLEIDING **1**

1.1. Inleiding 1

1.2. Achtergrond 1

1.3. Het project 2

1.4. Overzicht rapportage 3

2. BIOLOGISCHE AFBRAAK VAN METHAAN **4**

2.1. Inleiding 4

2.2. Methanotrofen 4

2.3. Methaanafbraak in biofilters 8

2.4. Afbraak van H_2S in een biologisch systeem 11

2.5. Afbraak van ammoniak in een biologisch systeem 11

3. TE BEHANDELEN LUCHT **13**

3.1. Fysische gegevens methaan 13

3.2. Samenstelling van de te behandelen lucht 13

3.3. Randvoorwaarden te behandelen luchtstroom 15

4. BESCHIKBARE BEHANDELINGSTECHNIEKEN **17**

4.1. Inleiding biofiltratie 17

4.2. Biofiltratie 18

4.3. Biotricklingfilters 20

4.4. Bioscrubbers 21

4.5. BAF 23

4.6. Actief slib systeem 24

5. AFWEGING DIVERSE TECHNIEKEN **26**

5.1. Inleiding 26

5.2. Belangrijke parameters voor de biologische behandeling van methaanhoudende lucht 26

5.3. Afweging van de mogelijkheden van biologische behandeling van methaanhoudende lucht uit stallen en mestopslagen 28

5.4. Afweging van technieken 29

5.5. Samenvatting 32

6. DRAGERMATERIALEN **34**

6.1. Inleiding 34

6.2. Dragermaterialen voor een biofilter 34

6.3. Dragermaterialen voor een biotricklingfilter 36

LITERATUUR

1. INLEIDING

1.1. Inleiding

In samenwerking tussen IMAG, Stork Product Engineering en Bioclear wordt in het kader van de ROB-regeling (Reductie Overige Broeikasgassen) gesubsidieerd door Novem, een project uitgevoerd met als doel de ontwikkeling van een methaanverwijderend biologisch luchtfilter, waarmee de uitstoot van het broeikasgas methaan bij kleinschalige mestopslag en stallen sterk kan worden gereduceerd.

1.2. Achtergrond

In de Kyoto-afspraken heeft Nederland zich verplicht tot een reductie van de emissie van broeikasgassen met 6% in 2010 ten opzichte van het niveau van 1990. Naast kooldioxide, dat onder meer vrijkomt bij de verbranding van fossiele brandstoffen, is methaan een belangrijk broeikasgas. Naast de plannen die zijn opgesteld om de emissie van kooldioxide te verminderen heeft de Nederlandse overheid een emissiereductieplan opgesteld voor de overige broeikasgassen – Reductie Overige Broeikasgassen (ROB) – dat wordt uitgevoerd door Novem. Daarmee wordt onder meer een reductie van methaanemissie beoogd van 8 Mton CO_2-equivalenten.Dit komt overeen met een reductie van 0,4 Mton CH_4 per jaar. De veeteelt is verantwoordelijk voor een jaarlijkse emissie van 10 Mton CO_2-eq., waarvan 8 Mton CO_2-eq. door herkauwers en 2 Mton CO_2-eq. door mestopslagen.

In een bureaustudie van IMAG (IMAG, 2001) wordt geconcludeerd dat het behandelen van stallucht en lucht uit mestopslagen de grootste reductiepotentie heeft. Een reductie van 1 Mton CO_2-eq. wordt realistische geacht.

In deze door Bioclear uitgevoerde haalbaarheidsstudie is de technische haalbaarheid onderzocht van een aërobe bioreactor voor de behandeling van methaanhoudende lucht. In een aërobe bioreactor wordt methaan omgezet in CO_2 (en water en biomassa). Ondanks de omzetting van het ene broeikasgas (methaan) in het andere (CO_2) is het netto broeikaseffect drastisch gedaald, aangezien methaan 21 CO_2-equivalenten vertegenwoordigt.

1.3. Het project

In opdracht van Imag wordt door Bioclear onderzoek uitgevoerd naar de behandeling van methaanhoudende stallucht in een biologisch luchtfilter. De werkzaamheden van Bioclear bestaan uit de volgende onderdelen:

a. Bepaling van de procescondities in het biologisch luchtfilter;
   Op basis van door Imag aangeleverde beschikbare informatie zijn de inputparameters en randvoorwaarden voor het biologisch systeem gedefinieerd. Het betreft onder andere de te verwachten samenstelling van de te behandelen afgasstroom (methaanconcentratie, concentraties aan nevenverontreinigingen, zuurstofgehalte en temperatuur) de debieten en fluctuaties in debieten;
b. Laboratoriumonderzoek;
   In een laboratoriumonderzoek worden verschillende stammen methaan afbrekende bacteriën (methanotrofen) onderzocht. Onderzocht wordt:
   - de groeisnelheid;
   - de afbraaksnelheid van methaan bij verschillende concentraties;
   - de invloed van andere componenten die voorkomen in het afgas op de afbraak van methaan;

   Op basis van de resultaten van het labonderzoek wordt aangegeven wat de meest geschikte methanotroof is voor toepassing in een biologisch luchtfilter.
c. Vergelijking en afweging diverse biologische technieken;
   In een deskstudie zijn verschillende biologische technieken voor de behandeling van de stallucht vergeleken op technische aspecten. Bovendien is bekeken wat de meest geschikte dragermaterialen zijn voor toepassing in een (fixed film) biologisch systeem voor behandeling van stallucht.

In deze rapportage zijn de resultaten van onderdeel a. – de bepaling van de procescondities - en onderdeel c. – de vergelijking en afweging van diverse biologische technieken – weergegeven.

1.4. Overzicht rapportage

In hoofdstuk 2 zijn de resultaten weergegeven van een studie die is uitgevoerd naar methanotrofen (methaan afbrekende bacteriën) en de behandeling van methaan-, ammoniak-en H_2S-houdende afgassen in biofilters.

In hoofdstuk 3 zijn de samenstelling en de randvoorwaarden voor de te behandelen afgassen behandeld. Hoofdstuk 4 betreft de verschillende biologische technieken voor de behandeling van afgassen. In hoofdstuk 5 is de toepasbaarheid van de verschillende technieken voor behandeling van de methaanhoudende lucht uit stallen en mestopslagen beschreven. Tenslotte worden in hoofdstuk 6 verschillende dragermaterialen voor toepassing in biofilters en biotricklingfilters behandeld.

2. BIOLOGISCHE AFBRAAK VAN METHAAN

2.1. Inleiding

Een literatuurstudie is uitgevoerd naar biologische afbraak van methaan door verschillende types methaan afbrekende bacteriën (methanotrofen) De resultaten hiervan zijn weergegeven in paragraaf 2.2. In paragraaf 2.3. is een beknopt overzicht weergegeven van de in de literatuur beschikbare referenties betreffende de behandeling van methaanhoudende lucht in bioreactoren.

2.2. Methanotrofen

Inleiding
Methanotrofen zijn bacteriën die methaan als koolstofbron en energiebron kunnen gebruiken voor de groei. In deze literatuurstudie is een inventarisatie gegeven van verschillende methanotrofe stammen die kunnen worden gebruikt in een biologisch luchtfilter voor de behandeling van methaanhoudende afgassen.

Methanotrofen
De afbraakroute voor de oxidatie van methaan door methanotrofen verloopt in verschillende stappen van methanol en formaldehyde tot CO_2. Formaldehyde wordt geoxideerd tot biomassa en CO_2. Twee afbraakroutes worden onderscheiden; de ribulose monofosfaat (RuMP) route en de serine route.

Op basis van deze verschillende afbraakroutes kunnen methanotrofen worden onderverdeeld in twee hoofdgroepen: type I methanotrofen, die de RuMP afbraakroute volgen en type II methanotrofen, die de serine afbraakroute volgen (zie tabel 1). Daarnaast kan een type X methanotroof worden onderscheiden. Type X methanotrofen gebruiken de RuMProute, maar ze kunnen tevens de enzymen van de serine afbraakroute ontwikkelen.

Methanotrofen kunnen enzymen ontwikkelen, die de oxidatie van methaan tot methanol katalyseren. Deze enzymen worden methaan-mono-oxygenases (MMO) genoemd. Twee types MMO bestaan: sMMO (soluble MMO), dat in opgeloste vorm in het cytoplasma in de cel voorkomt en pMMO (particulate MMO) dat gebonden aan het celmembraan voorkomt. Type I en type II methanotrofen kunnen beide pMMO ontwikkelen, sMMO kan alleen worden geproduceerd door type II methanotrofen [Graham et al, 1992].

Tabel 1. Overzicht bekende methanotrofen

Type	Afbraakroute	Stam
I	RuMP route	Methylococcus Methylomicrobium Methylobacter Methylomonas
II	Serine route	Methylocystis Methylosinus
X	RuMP + enzyme van serine route	Mcy. capsulatus bath

De productie van pMMO hangt af van de aanwezigheid van koper voor zowel type I als type II methanotrofen. Wanneer de koperconcentratie limiterend is, kunnen beide types methanotrofen geen pMMO produceren. Type I methanotrofen groeien dan niet. Onder deze omstandigheden kunnen type II methanotrofen sMMO vormen. Bij een koper concentratie groter dan 1 μmol/gram cellen en een concentratie in vloeistof fase tussen 4,3 mM [Hanson et al, 1996] en 0,25 μM [Phelps et al, 1992] kunnen methanotrofen pMMO ontwikkelen. Voor de praktijktoepassing van methanotrofen in biologische luchtfilters is dit effect van de koperconcentratie minder relevant, aangezien het sturen op koperconcentratie in een biologisch systeem normaliter niet mogelijk is.

Cellen van pMMO bevattende methanotrofen groeien sneller op methaan met een hogere yield dan sMMO bevattende cellen [Park et al, 1992].

In tegenstelling tot de meeste andere bacteriën kunnen type II methanotrofen moleculair stikstof gebruiken als stikstofbron (nutriënt), onder condities waarbij geen andere stikstofbronnen beschikbaar zijn [Hanson et al, 1992].

Type X methanotrofen, die een combinatie van de eigenschappen van type I en II methanotrofen in zich verenigen, groeien slechts bij temperaturen boven 37 °C [Graham et al, 1992]. Type X methaotrogen zijn daarom voor toepassing in een biologisch luchtfilter voor afgassen van stallen en mestopslagen niet relevant. Type I en II methanotrofen zijn mesofiele bacteriën die groeien bij temperaturen van ongeveer 10 tot 40°C met een optimum bij 30°C.

Reactie kinetiek

De volgende afbraakroute wordt gevolgd door methanotrofen:

1. $CH_4 \rightarrow CH_3OH$
2. $CH_3OH \rightarrow HCHO$
3. $HCHO \rightarrow CO_2 + H_2O +$ biomassa

Formaldehyde (HCHO) kan via twee routes worden afgebroken: via de serine route en via de RuMP route. Bij de serine route is CO_2 nodig. In het algemeen bevat lucht voldoende CO_2 voor het laten verlopen van de serine route, methaanafbraak door methanotrofen wordt dus niet gelimiteerd door de hoeveelheid CO_2 in lucht.

De groeikinetiek kan worden beschreven met de Monod-vergelijking:

$$\mu = \mu_{max} * S / (S + K_s)$$

waarbij

μ_{max} : maximale specifieke groei snelheid biomassa

S : substraat concentratie

K_s : Monodconstante

De waarde van de maximale specifieke groeisnelheid μ_{max} en de Monodconstante K_s hangen af van het type bacterie en substraat. Bacteriën met een hoge μ_{max} en een lage K_s groeien snel, zelfs bij lage substraat concentraties.

In de literatuur is weinig specifieke informatie gevonden over de kinetiek van methaanafbraak door methanotrofen. De meeste artikelen betreffen de afbraak van gechloreerde koolwaterstoffen (trichlooretheen) door methanotrofen.

In tabel 2 wordt een overzicht gegeven van de kinetische parameters door verschillende types methanotrofen.

Tabel 2. Monodconstante (K_s), groeiopbrengst (yield) en maximale specifieke groei snelheid op methaan voor verschillende methanotrofen.

Type	K_s (μM)	Groei opbrengst (g ds/g methaan)	μ_{max} (h^{-1})
Methylococcus ssp.	32, 40	n.b.	n.b.
Methylococcus capsulatus	n.b.	0,31-1,01	n.b.
Methylobacter albus BG8	n.b.	n.b.	0,182
Methylosinus trichosporium	2, 46, 66, 92 (1)	0,38-0,63	0,126 (2)
Pseudomonas ssp.	15, 26	n.b.	n.b.
Methylocystis LR1(4)	0,3 – 12,6	n.b.	n.b.
Strain OU-4-1	0,8	0,65	n.b.
bodemmonster(5)	2,1 – 7,3	n.b.	n.b.
bodemmonster(6)	0,013 – 0,47	n.b	n.b

n.b.: niet bekend
1. verschillende bronnen
2. OB3b, met koper, zonder koper is 0.097 (h^{-1})
3. Schnell et al, 1995
4. Dunfield et al, 2000
5. De Visscher et al, 1999
6. Bender et al, 1992

Hanson et al [1996] stellen dat de Monodconstante van methanotrofen voor de afbraak van methaan ongeveer 1-2 μM is. Volgens Joergensen et al [1983] bedraagt de Monodconstante ongeveer 1 μM en geven andere onderzoekers waarschijnlijk een te hoge schatting van de Monodconstante als gevolg van een stofoverdrachtslimitering in de testopzet.

De invloed van verschillende factoren op de groeisnelheid van methanotrofen

- Nitraat, nitriet

In standaard media voor methanotrofen bedraagt de nitraat concentratie (als nutriënt voor de biologische groei) ongeveer 10 mM (620 mg/l). Inhibitie treedt op wanneer de nitraat concentratie te hoog is, een waarde wordt echter niet genoemd. Tot een nitraatconcentratie van 620 mg/l werkt nitraat in ieder geval niet remmend. Wanneer de nitraat concentratie te laag is, daalt de groeisnelheid van type I methanotrofen sterk. Type II methanotrofen kunnen in dit geval moleculair stikstof gebruiken en de groeisnelheid daalt minder snel [Park et al, 1992].

Nitriet is een toxische component die kan worden gevormd bij de nitrificatie (omzetting ammonium naar nitraat). Nitriet werkt remmend op de nitrietvorming waardoor in de praktijk nooit hoge concentraties nitriet worden aangetroffen in biologische systemen (in het algemeen maximaal ca. 5 mg/l). Het is niet bekend of nitriet bij deze concentratie de methanotrofen remt.

- CO_2

De afbraak van methaan door methanotrofen kan worden gestimuleerd door CO_2 (10 vol%). CO_2 is nodig voor de serine reactie. Daarnaast heeft CO_2 een hogere pMMO-activiteit tot gevolg [Park et al, 1992]. Methaanafbraak treedt ook op bij de CO_2-gehaltes in de lucht. Lucht uit stallen en mestopslagen bevat in het algemeen verhoogde concentraties CO_2 hetgeen dus gunstig is voor de methaanafbraak.

- pH

De activiteit van methanotrofen neemt af boven pH 7. De optimale pH ligt tussen 6 en 7 [Park et al, 1992]. Methanotrofen zijn daarmee iets gevoeliger voor pH-variaties dan andere aërobe organismen die het optimum bij pH 6-8 hebben.

- Temperatuur

Type I en II methanotrofen zijn mesofiele bacteriën die groeien bij temperaturen van ongeveer 10 tot 40°C met een optimum bij 30°C. In het algemeen kan worden gesteld dat de biologische activiteit afneemt bij een temperatuursdaling (beneden 30°C), waarbij als vuistregel geldt: halvering van de activiteit bij 10°C temperatuurdaling.

In een biologisch luchtfilter voor de behandeling van afgassen van stallen en mestopslagen zal naar verwachting een temperatuur heersen die varieert van 10 tot 25°C. In dit temperatuursbereik is biologische afbraak van methaan mogelijk. Met name onderin het temperatuursbereik (10 tot 15°C) zal de afbraak relatief langzaam verlopen, hetgeen van belang is voor de dimensionering van het systeem.

- Koper

De vorming van pMMO treedt niet op [Park et al 1992] wanneer de koper concentratie te laag is ($<1\mu$M). Graham et al [1992] stellen dat de ontwikkeling van pMMO niet plaats vindt wanneer de koper concentratie lager is dan 0,05 μM. Volgens Hanson et al [1996] treeedt inhibitie van de groei op wanneer de koper concentratie hoger is dan 4,3 mM. Dit effect is waarschijnlijk minder relevant voor installaties voor biologische luchtzuivering.

- Overige componenten

Lucht uit stallen en mestopslagen bevat naast methaan, H_2S en ammoniak ook andere (geur-) componenten. In een studie uitgevoerd door Schifman (2000) is vastgesteld dat het afgas zeer veel verschillende geurcomponenten bevat, waaronder organische zuren, alcoholen, amines, aromaten, fenolen en andere koolwaterstoffen. Deze componenten komen in het algemeen in zeer lage concentraties voor (enkele ppb's). De aanwezigheid van deze componenten heeft dus naar verwachting geen invloed op de methaanafbraak in een biologisch systeem. Veel van deze componenten zullen wel worden verwijderd in een biologisch luchtfilter, hetgeen resulteert in een vermindering van de geurvracht.

2.3. Methaanafbraak in biofilters

In een artikel van Damman et al. [1999] is een labonderzoek beschreven naar de behandeling van methaanhoudende lucht in (compost) biofilters. Hierin is het volgende genoemd:

Zuurstof heeft geen invloed heeft op het afbraakrendement boven concentraties van 1 vol% O_2. In biofilters voor de behandeling van lucht uit stallen en mestopslagen is op basis van de in paragraaf 2.3. beschreven samenstelling geen remming van de afbraak door zuurstoflimitatie te verwachten. Het optimale vochtgehalte van het biofilter voor methaanbehandeling is afhankelijk van het type biofiltermateriaal. Wel wordt gesteld dat het optimale vochtgehalte lager is dan in biofilters voor geurbehandeling. Dit wordt waarschijnlijk veroorzaakt door de lage wateroplosbaarheid van methaan.

De optimale zuurgraad van het filtermateriaal is voor behandeling van methaanhoudende lucht neutraal tot licht zuur (pH 6-7).

Een maximale afbraaksnelheid is gemeten van 53 g $CH_4/m^3/h$ bij een ingaande concentratie van 12.000 mg/m^3, een temperatuur van 28-29,7°C en een verblijftijd van 288 sec. Het rendement bedroeg hierbij 10%. Opvallend is de zeer hoge verblijftijd in het filter. Bij biofilters wordt als stelregel een verblijftijd van 10-60 seconden aangehouden. Bij biofilters voor geurverwijdering bedraagt de verblijftijd in het algemeen 15-25 seconden. Als gevolg van de slechte wateroplosbaarheid van methaan is een veel hogere verblijftijd in het filter benodigd om een significante methaanverwijdering te verkrijgen (minimaal factor 10-20 hoger dan voor goed wateroplosbare componenten).

Door Damman is de volgende formule afgeleid waarmee op basis van bepaalde kinetische parameters – onder andere op basis van de Monod-kinetiek – de grootte van een reactor kan worden berekend voor de behandeling van een methaan houdend afgas:

$$V = \{[\ln (C_{in}/C_{uit}) + k_2*(C_{in} - C_{uit})]/k_1 \}*\Phi_v$$

waarbij: V = volume reactor [m^3]
C_{in}, C_{uit} = ingaande en uitgaande concentratie [g/m^3]
Φ_v = debiet [Nm^3/hr]
k_1 = coëfficiënt 1 [h^{-1}]
k_2 = coëfficiënt 2 [m^3/g]

De kinetische parameters k_1 en k_2 zijn hierbij gerelateerd aan de maximale groeisnelheid (μ_{max}) en de Monod constante (als $1/K_s$) vanuit de Monodkinetiek.

In onderstaande tabel zijn de resultaten weergegeven van de bepaalde kinetische parameters voor methaanafbraak in een biofilter. Deze parameters kunnen gebruikt worden voor de dimensionering van een biofilter.

Tabel 3. bepaalde kinetische parameters voor methaanafbraak in een labschaal biofilter [Damman, 1999]

temperatuur range	k_1 [h^{-1}]	k_2 [m^3/g]
23,7 – 25,5	8.7	0.53
26,0 – 28,0	10	0.44
28,0 – 29,7	16	0.54

Twee maanden na opstart van de opstart zijn bacterietellingen uitgevoerd op biofiltermonsters. Het resultaat van de bacterietellingen bedroeg $2*10^{10}$ – $2*10^{11}$ /g ds.
Hierbij is niet aangegeven of het een telling van methaan afbrekende bacteriën bedraagt of een totaaltelling.

De temperatuur bleek in het filter een groot effect te hebben. Een temperatuurdaling van 5°C (van ca. 29 naar 24°C) had een daling van de capaciteit met een factor 2 tot gevolg. Het

temperatuurseffect is sterker dan als vuistregel wordt aangenomen (halvering van de activiteit bij 10°C temperatuursdaling). De temperatuur kan derhalve een belangrijke factor zijn. De onderzochte temperaturen in dit onderzoek zijn relatief hoog voor praktijktoepassing.

Tenslotte is het effect van beënting van het biofilter met een methanotroof (*Methylosinus trichosporium H6*) onderzocht. Beënting bleek geen significante toename van de gemeten rendementen te hebben.

In een artikel van Kusmaull [1998] wordt de behandeling van het afgas van een vuilstort (stortgas) in een pilot compostfilter (open) beschreven. Het biofilter (hoogte 0,75 m) is beënt met de methanotrofen *Methylosinus* en *Methylocystis* (beide $6,7*10^{11}$ cellen). Bij een zeer lage belasting van 2 l gas/m^2/min – hetgeen overeenkomt met een gassnelheid van 0,12 m/h – wordt bij een filtertemperatuur > 10°C een methaanverwijdering groter dan 70% gemeten (bij ingaande methaanconcentraties van 270.000 tot 400.000 ppm). Vergelijkbaar met het hierboven beschreven onderzoek van Damman wordt ook hier gebruik gemaakt van een extreem lage filtersnelheid om methaan te verwijderen. In het algemeen wordt bij biofiltratie een filtersnelheid van 5-500 m/h aangehouden (dus een factor 42-4200 hoger). Dit komt overeen met een effectieve verblijftijd van 15-60 seconden. Toename van de filtersnelheid resulteert, conform verwachting, in een afname van het verwijderingsrendement voor methaan. Hoeveel het rendement afneemt is gezien de spreiding in de analyseresultaten niet eenduidig aan te geven.

Bacterietellingen die zijn uitgevoerd tonen aan dat het aantal methanotrofen in het filter varieert van $2*10^8$ tot $5*10^9$ /g ds, hetgeen overeen komt met een zeer actieve methanotrofe populatie.

In een artikel van Martinec [2001] worden de resultaten van een pilotonderzoek naar de behandeling van stallucht in een biofilter beschreven. In dit onderzoek is, voor zover kan worden nagegaan, geen significante methaan verwijdering aangetoond bij een verblijftijd van 6-12 seconden. Er worden in dit artikel geen verontreinigingsconcentraties genoemd, er wordt slechts een figuur getoond waarin een methaanconcentratie van het afgas kan worden afgelezen van 15-25 ppm (slechts gedurende 1 meetdag). De resultaten van dit onderzoek zijn derhalve niet vergelijkbaar met andere onderzoeken. In het onderzoek wordt gesteld dat ammoniak in anaërobe zones in een biofilter kan worden omgezet in lachgas (N_2O), een broeikasgas.

2.4. Afbraak van H_2S in een biologisch systeem

Het afgas van stallen als mestopslagen bevat H_2S. Deze component is zeer goed wateroplosbaar. Bij de omzetting van H_2S in een aëroob biologisch systeem wordt zwavelzuur gevormd dat voor verzuring van het biologisch systeem kan zorgen, met name in een biofilter. In een biofilter is de beheersing van de pH niet eenvoudig.

De biologische omzettingssnelheid van H_2S in een aëroob systeem is hoog. In praktijk compostfilters zijn omzettingssnelheden van 130 $g/m^3/h$ gemeten bij een rendement van 90-95%.

De optimale pH voor de meeste micro-organismen bedraagt pH 6-8. Wanneer de pH door verzuring beneden pH 6 daalt zal remming van de meeste micro-organismen optreden. De verzuring kan worden voorkomen door toevoeging van een bufferende component aan het filtermateriaal of door toevoeging van een base aan het irrigatiewater.

Een alternatief voor pH correctie van het systeem is het toestaan van de verzuring in (een deel van) het systeem. De bacteriestam *Thiobaccillus* is in staat om H_2S te oxideren in een zuur milieu. Sulfide oxidatie door de bacterie *Thiobaccillus thiooxidans* wordt niet geremd totdat verzuring optreedt beneden pH 1. In verschillende studies is aangetoond dat sulfide oxidatie mogelijk is in een verzuurd biofilter. De methaanafbraak wordt wel sterk geremd bij lager pH.

Geconcludeerd wordt dat sulfide oxidatie tevens mogelijk is in een zuur biofilter. De nitrificatie (omzetting van ammonium naar nitraat) en de afbraak van methaan en geurhoudende stoffen zal wel sterk geremd worden wanneer verzuring optreedt beneden pH 6 en zelfs stil komen te liggen wanneer de pH te ver daalt.

2.5. Afbraak van ammoniak in een biologisch systeem

Ammoniak wordt in een biofilter via nitriet afgebroken tot nitraat. Voor de omzetting zijn twee bacteriestammen verantwoordelijk: *Nitrosomonas* zet ammonium om in nitriet, terwijl *Nitrobacter* de omzetting van nitriet naar nitraat verzorgd. Vergelijkbaar met H_2S afbraak is dit tevens een verzurende reactie, maar in tegenstelling tot de H_2S afbrekende bacteriën, is nitrificatie niet mogelijk beneden pH 6,5. Voor de nitrificatie is een goede pH controle derhalve essentieel. Overbelasting van het biologisch systeem met ammoniak is een probleem dat met name bij biofilters een rol kan spelen.

In verschillende onderzoeken is aangetoond dat in een biofilter bij ammoniakconcentraties beneden 35 mg/m^3 (50 ppm) hoge verwijderingsrendementen haalbaar zijn bij een belasting van 400 m^3/m^3/uur [Devinny, 1999; Kennes, 2001; VDI, 1991]. De behandeling van hogere concentraties ammoniak is tevens mogelijk, wanneer de belasting van het filter niet te hoog wordt. Een referentie is gevonden van een biofilter van een mestverwerkingsfabriek dat een ammoniakconcentratie van 310 mg/m^3 behandelt met een rendement van 75%. De belasting van het filter bedraagt 100 m^3/m^3/hr (VDI Richtlinien, 1991). Door de accumulatie van nitraat in het compost zal uiteindelijk de activiteit van het filter dalen. Het periodiek spoelen van het filter is noodzakelijk om de activiteit te handhaven.

3. TE BEHANDELEN LUCHT

3.1. Fysische gegevens methaan

In onderstaande tabel zijn enkele relevante gegevens van methaan weergegeven.

Tabel 4 Fysische gegevens methaan

Parameter	Waarde	Eenheid
Brutoformule	CH_4	-
Molekuulmassa	16	g/mol
Oplosbaarheid in water*	25	mg/l
Verdelingscoëfficiënt* (c_g/c_l)	26,7	-
Explosiegrenzen	4,4-16	vol% in lucht

* bij 20°C

3.2. Samenstelling van de te behandelen lucht

Stallucht van varkens / koeien

In onderstaande tabel zijn de resultaten weergegeven van analyses die in diverse studies zijn uitgevoerd naar de samenstelling van de stallucht voor varkens en koeien. De resultaten zijn afkomstig van een inventarisatiestudie die door IMAG is uitgevoerd.

Tabel 5. Overzicht analyses en berekende emissie stallucht

Component	Eenheid	Waarde[1,2,3,4,5]	Emissie	Emissie
			Varkens	Melkkoeien
			g/dag/vlv[a]	g/dag/dpl[5]
CH4	ppm	10-160	5,5-88	30-300
NH3	ppm	5-100; NI 2-20	3-58; NI 1-12	15-46
H2S	ppm	0-100	0-117	
CO2	ppm	400-4.000	600-6.000	
N2O	ppm	0,3-3	0.5-5	
N2	vol%	78		
O2	vol%	20		
Geur	GE	1.600-4.400		
Temperatuur	°C	15-25		
RV	%	50-80		
Debiet	m^3/h/vlv	20-80 (vleesvarken) gem. 35		
	m^3/h/dpl	10-30 (kraamzeug)		
	m^3/h/dpl	750 (melkkoeien)		

[a] berekend op basis van een debiet van 35 m^3/vleesvarken/uur
[1] uit Anderson, 1987; [2] uit Schulte, 1997; [3] uit Guingand, 1997; uit Meyer, 1986; [5] uit Groot Koerkamp, 1997
vlv: vleesvarken
dpl: dierplaats

Varkensstallen zijn gesloten ruimten die beschikken over een mechanisch ventilatiesysteem. Dit heeft als gevolg dat de afgezogen lucht eenvoudig door een installatie voor luchtbehandeling kan worden geleid. Rundveestallen zijn daarentegen open stallen die beschikken over een natuurlijk ventilatiesysteem: de buitenlucht kan er vrij doorheen stromen. Behandeling van de lucht van rundveestallen is dus alleen mogelijk wanneer het gehele ventilatiesysteem van de stal wordt aangepast (mechanische afzuiging vergelijkbaar met varkenstallen). In deze studie wordt daarom verder alleen de behandeling van de lucht uit varkenstallen behandeld, waarbij uitgegaan wordt van een gemiddelde varkenstal met 2.000 plaatsen.

Overdekte mestopslag

De mest uit stallen van een boerderij wordt verzameld in een mestopslag, waar de mest maximaal 100 dagen wordt opgeslagen. De grootte van een mestopslag varieert van 500 tot 1.500 m^3. Als uitgangspunt wordt een gemiddelde mestopslag van 1.000 m^3 gekozen.

Tabel 6. Overzicht analyses van de headspace van mestopslagen

Component	Eenheid	Waarde[1, 2]
CH4	ppm	200-33.000
NH3	ppm	1-71
H2S	ppm	0-4.100
CO2	ppm	100-150.000
N2	vol%	60-81
O2	vol%	15-22
Temperatuur	°C	10-16°C
RV	%	100

[1] uit Uenk; [2] uit Williams, 1997

In verschillende bronnen in de literatuur is de methaanuitstoot van mest bepaald (zie onderstaande tabel).

Tabel 7. Overzicht bekende waarden voor de methaanemissie van mestopslagen

Emissie varkensmest	Emissie rundveemest	Opmerking	Referentie
g CH_4/m^3/dag	g CH_4/m^3/dag		
6	18	4°C	Williams, 1997
4	36	11°C	Williams, 1997
46	61	18°C	Williams, 1997
6	2,4	4°C	Hansen
16	6	10°C	Hansen
40	12	15°C	Hansen
0,4 – 35,8	0,0 – 34,5		Husted, 1994

Uitgegaan wordt van een mestopslag van 1.000 m^3, een temperatuur van 15°C en een methaanproductie van 40 g CH_4/m^3/dag. Dit betekent een methaanuitstoot van 40 kg CH_4/dag hetgeen overeenkomt met een methaanvolume van 60 Nm^3/dag. Om ongecontroleerde verspreiding van het afgas naar de buitenlucht te voorkomen dient de headspace boven de mest waarschijnlijk meerdere malen per uur te worden ververst (afgezogen). Daarnaast dient de methaanconcentratie in het te behandelen afgas beneden de explosiegrens zijn (4,4 vol%). De maximaal gemeten methaanconcentratie in de mestopslag bedraagt 3,3 vol% en is reeds beneden de explosiegrens (tabel 6).

Een relatief kleine afgasstroom met een hoge concentratie is gunstig voor de benodigde grootte van het systeem voor afgasbehandeling Voorlopig wordt uitgegaan van een te behandelen afgas met een methaanconcentratie van 3,3 vol% (33.000 ppm). De uitstoot aan methaan van de 1.000 m^3 mestopslag bedraagt 60 Nm^3/dag (100% methaan). Voor een methaanconcentratie van 3,3 vol% dient deze stroom dus 30 maal te worden verdund. Het te behandelen debiet bedraagt dus 1.800 Nm^3/dag. Op basis van de in tabel 6 beschreven samenstelling van het afgas wordt uitgegaan van een ammoniakconcentratie van 71 ppm en een H_sS-concentratie van 4.000 ppm.

Er is een grote spreiding in de analyseresultaten van de afgassen en in de vastgestelde emissie van de mest. Deze spreiding heeft een grote invloed op de dimensionering van een biologische luchtzuiveringsinstallatie.

3.3. Randvoorwaarden te behandelen luchtstroom

Voor de behandeling van de methaanhoudende afgassen zijn de volgende aspecten van belang:

Concentratie methaan
Een hogere concentratie methaan zal in het algemeen tot een hogere afbraaksnelheid (in g CH_4/m^3 reactorvolume/h) leiden. Voor de afweging van verschillende biologische systemen wordt in eerste instantie uitgegaan van een methaanconcentratie van 33.000 ppm (3,3 vol.%) hetgeen een representatieve concentratie is voor het afgas van een mestopslag. Deze concentratie bevindt zich bovendien ruim onder de explosiegrenzen van methaan (4,4 vol%).

Concentratie H_2S
Het afgas bevat waterstofdisulfide (H_2S) dat verzurend werkt in een biologisch filter. H_2S wordt omgezet in zwavelzuur, hetgeen kan resulteren in een pH-daling in het systeem.

Indien de pH daalt beneden pH 6, zal de biologische activiteit in het algemeen worden geremd. De invloed van de pH op de activiteit van methanotrofen wordt vastgesteld in het labonderzoek.

Voor de afweging van de biologische technieken wordt in eerste instantie uitgegaan van een H_2S-concentratie van 4.000 ppm, de maximaal gemeten concentratie in het afgas van mestopslagen. Dit is een worst case benadering.

Concentratie ammoniak (NH_3)

Ammoniak wordt in een aëroob biologisch genitrificeerd tot nitraat. Indien een biologisch systeem wordt overbelast met ammoniak kan remming door de biologische activeit optreden door ophoping van het toxische intermediair nitriet (NO_2^-). Tevens kan remming optreden door hoge concentraties ammonium (NH_4^+) of vrij ammoniak. Afhankelijk van de pH zal het ammoniak in de waterfase aanwezig zijn als ammonium of vrij ammoniak. Daarnaast zal nitrificatie kunnen leiden tot verzuring van het systeem.

Samenstelling van het afgas

Op basis van de hierboven beschreven afwegingen wordt voor de afweging van de verschillende technieken voor afgasbehandeling uitgegaan van de in onderstaande tabellen beschreven afgassen voor stallen en mestopslagen.

Tabel 8. Uitgangspunt samenstelling afgas van een varkensstal (2.000 dierplaatsen)

Component	concentratie [ppm]	concentratie [mg/m3]	vracht [kg/uur]
Debiet	70.000 Nm3/uur		
CH4	160	107	7,49
NH3	20	31	2,17
H2S	100	71	4,97

Tabel 9. Uitgangspunt samenstelling afgas van een mestopslag (volume 1.000 m^3)

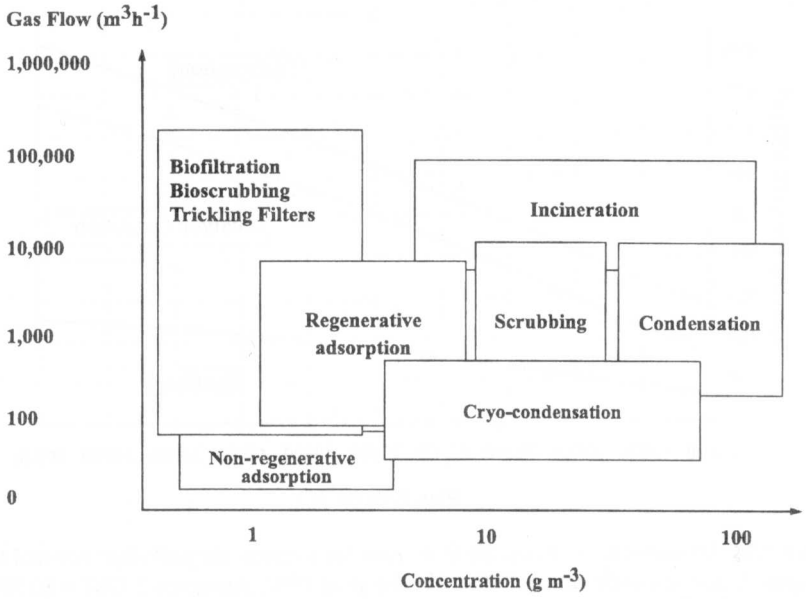
Component	concentratie [ppm]	concentratie [mg/m3]	vracht [kg/uur]
CH4	33.000	22.100	1,65
NH3	70	110	0,0075
H2S	4.000	2.800	0,21
Debiet	1.800 m3/dag		
	75 m3/uur		

4. BESCHIKBARE BEHANDELINGSTECHNIEKEN

4.1. Inleiding biofiltratie

Biologische behandelingstechnieken voor de behandeling van verontreinigde luchtstromen maken alle gebruik van aërobe biologische afbraak van verontreinigingen. Biologische behandeling van afgassen is in het algemeen technisch en economisch haalbaar voor de behandeling van relatief lage verontreinigingsconcentraties in relatief grote gasdebieten. De verontreiniging wordt vanuit de gasfase overgedragen naar de vloeistoffase, waar de biologische afbraak optreedt. Door biologische oxidatie wordt de verontreiniging omgezet in CO_2, water anorganische zouten en biomassa. De afbraakcapaciteit van de biologische reactor wordt hierbij onder andere bepaald door de mate van wateroplosbaarheid en de biologische afbreekbaarheid van de verontreiniging.

In onderstaande figuur is een overzicht weergegeven van de toepasbaarheid van verschillende biologische en niet biologische technieken.



Figuur 1. Toepassingsgebied van verschillende technieken voor luchtbehandeling op basis van de te behandelen debieten en concentraties [Devinny, 1999]

Biofiltratie maakt in het algemeen gebruik van micro-organismen die geïmmobiliseerd zijn op een poreus dragermateriaal. In onderstaande tabel zijn de onderscheidende factoren van de meest gebruikt biologische technieken voor luchtbehandeling weergegeven: het biofilter (in het algemeen een compostfilter), het biotrickling filter en de bioscrubber.

Tabel 10. Classificatie van de meest gebruikte bioreactoren voor afgasbehandeling

reactor type	micro-organismen	water fase
biofilter	biofilm	stationair
biotrickling filter	biofilm	mobiel
bioscrubber	gesuspendeerd	mobiel

Naast de hierboven beschreven technieken zijn de volgende biologische technieken beschikbaar voor afgasbehandeling:

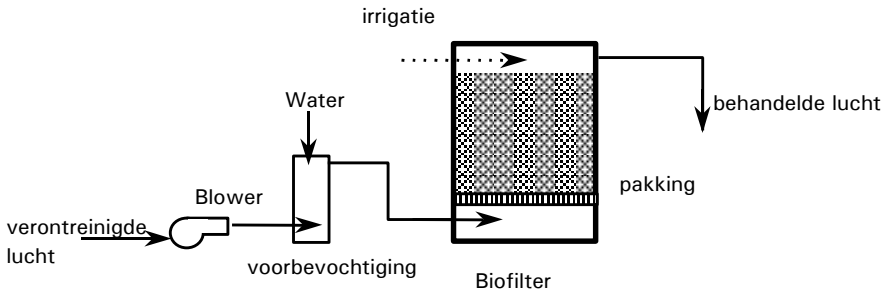
- membraanbioreactoren (MBR): deze worden tot op heden met name toegepast voor afvalwaterbehandeling, maar kunnen ook worden toegepast voor afgasbehandeling;
- gesuspendeerd actief slib systemen.

In dit hoofdstuk worden de verschillende genoemde biologische technieken behandeld.

4.2. Biofiltratie

Principe

In onderstaande figuur is het principe van een biofilter schematisch weergegeven.



Figuur 2. Schematische weergave van een gesloten biofilter

Een biofilter bestaat uit een pakking die fungeert als dragermateriaal voor de micro-organismen. In de praktijk wordt meestal een organische drager (compost) gebruikt. Door dit materiaal wordt de verontreinigde lucht geleid. De verontreiniging wordt in het biofilter overgedragen van de gasfase naar de waterfase (biofilm), waar deze wordt afgebroken. Een zeer belangrijk aspect van biofiltratie is het vochtgehalte van het filterbed.

De eerste biofilters zijn toegepast voor geurbestrijding op waterzuiveringen en bij compostering, waarbij grond werd gebruikt als dragermateriaal (open biofilters). Later zijn biofilters ontwikkeld voor afgasbehandeling bij industriële processen (gesloten biofilters), waarbij betere dragermaterialen worden toegepast. Voor een beschrijving van verschillende dragermaterialen wordt verwezen naar hoofdstuk 6.

Voordelen

- goedkope en weinig complexe technologie
- lage investerings- en bedrijfskosten
- effectief bij lage concentraties verontreiniging
- relatief lage drukval (tot ca. 1.500 Pa)
- geen generatie van afvalstromen (excl. periodieke vervanging compost)

Nadelen

- relatief groot ruimtebeslag / volume
- vervanging compost elke 2-5 jaar
- minder geschikt voor hoge concentraties
- minder geschikt voor verzurende componenten
- pH lastig controleerbaar/regelbaar
- vochtgehalte incidenteel lastig regelbaar
- vaste delen in het afgas kunnen bedverstopping veroorzaken
- door inklinking van het bed neemt de drukval over het bed in de tijd toe

Kosten

Voor de behandeling van een afgas met een redelijk goed afbreekbare verontreiniging gelden als vuistregel de volgende kosten:

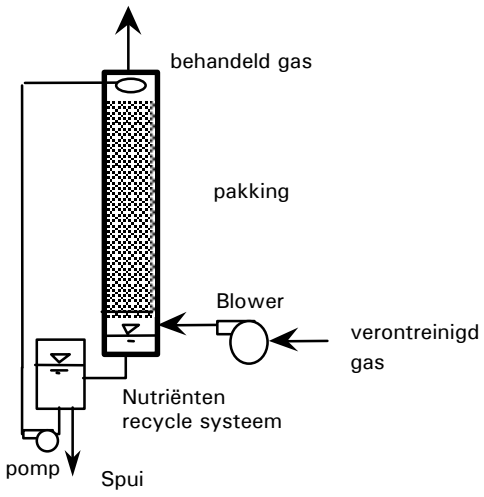
- investeringskosten: 10 – 25 € per m^3/h (afgasdebiet)
- operationele kosten: 0,3 – 2,5 € per 1.000 m^3

Voor de relatief kleine systemen (100 m^3) variëren de investeringskosten van 1.100 tot 3.900 € per m^3 reactorvolume.

4.3. Biotricklingfilters

Principe

In onderstaande figuur is het principe van een biotricklingfilter schematisch weergegeven.



Figuur 3. Schematische weergave van een biotricklingfilter

Biotricklingfilters verschillen van (conventionele) biofilters in het aspect dat bij een biotricklingsfilter een continue waterstroom over het pakkingsmateriaal wordt gegenereerd. Aan de waterstroom worden anorganische nutriënten toegevoegd voor de biologische afbraak. Bovendien kan de waterfase worden geconditioneerd waardoor geen verzuring ven het biologisch systeem optreedt en kan de ophoping van toxische stoffen worden voorkomen door het spuien van water. Biotricklingfilters zijn hierdoor beter controleerbaar en regelbaar dan biofilters.

Voordelen

- eenvoudige en goedkope technologie
- medium investerings- en lage bedrijfskosten
- effectief bij lage en hoge concentraties
- geschikt voor verzurende componenten

Nadelen

- constructie en bedrijfsvoering technisch complexer dan compostfilter
- verstopping door biomassagroei bij hoge belasting en hoge concentraties nutriënten

Kosten

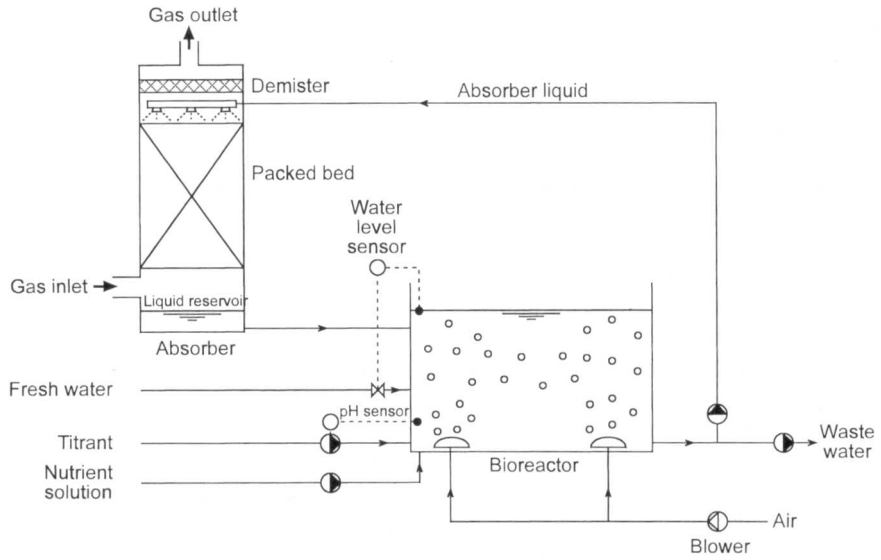
Voor de behandeling van een afgas met een redelijk goed afbreekbare verontreiniging gelden de volgende kosten:

- investeringskosten: 15 – 40 € per m^3/h (afgasdebiet)
- operationele kosten: 0,3 – 3 € per 1.000 m^3

In het algemeen wordt gesteld dat de investeringkosten van een biotricklingfilter 30-40% hoger zijn dan voor een compost biofilter.

4.4. Bioscrubbers

Principe



Figuur 4. Principe van bioscrubber [Kennes, 2001]

Bioscrubbers voor afgasbehandeling worden gekenmerkt door een fysieke scheiding van de absorptiestap van de verontreiniging van de gasfase naar de waterfase (in de gaswasser), en de biologische behandeling van de verontreiniging (in de bioreactor).

Voordelen

- kleiner volume/ruimtebeslag dan biofilter
- betere pH-controle dan biofilter
- betrouwbaarder en beter bestuurbaar dan biofilter
- geen problemen met verstopping van de pakking (ten opzichte van biofilter en biotricklingfilter)
- Lagere concentraties toxische componenten in de waterfase dan in biofilter/biotricklingfilter

Nadelen

- Slechts kosteneffectief voor goed wateroplosbare verontreinigingen (Henry-coëfficiënt kleiner dan 0,1);
- verwijderingsrendement > 98% moeilijk haalbaar;
- doordat de micro-organismen niet in een biofilm groeien, kunnen langzaam groeiende stammen (bijvoorbeeld nitrificeerders) worden uitgespoeld;
- systeem is gevoelig voor discontinu bedrijf;
- slibproductie;
- complexere opstartprocedure dan biofilter en biotricklingfilter;
- Hogere bedrijfsvoeringskosten.

Toepasbaarheid

Bioscrubbers worden toegepast met name in de industrie voor de verwijdering van verzuringsgevoelige componenten, bijvoorbeeld H_2S en SO_2 en voor de verwijdering van zeer goed wateroplosbare componenten als alcoholen, aldehydes en vetzuren.

Kosten

Voor de behandeling van een afgas met een goed wateroplosbare en redelijk goed afbreekbare verontreiniging gelden als vuistregel de volgende kosten:

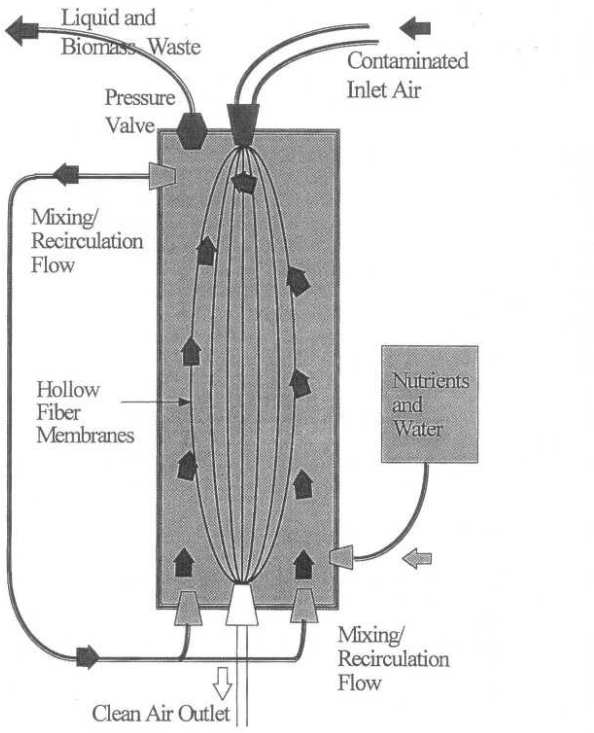
- investeringskosten: 10 – 50 € per m^3/h (afgasdebiet)
- operationele kosten: 1 – 3 € per 1.000 m^3

In het algemeen wordt gesteld dat de investeringskosten van een bioscrubber 40% hoger zijn dan een compost biofilter. Naarmate de organische belasting ven het systeem en de wateroplosbaarheid van de verontreiniging hoger worden wordt de bioscrubber economisch voordeliger ten opzicht van het compostfilter.

4.5. BAF

Principe

In onderstaande figuur is een schematische weergave van een membraanbioreactor voor afgasbehandeling: de BAF (Biological Air Filter).



Figuur 5. Schematische weergave van een membraanbioreactor voor afgasbehandeling (BAF) [Kennes, 2001]

De membranen in de BAF dienen als drager voor de biomassa. Door een membraan te kiezen met een hoog specifiek oppervlak, bijvoorbeeld een hollow fiber membraan, wordt een groot contact oppervlak verkregen tussen gasfase en biomassa. De verontreiniging wordt van de gasfase door het membraan overgedragen naar de biofilm, waar biologische afbraak van de verontreiniging optreedt.

Voordelen

- behandeling van verzurende componenten is goed mogelijk doordat de vloeistoffase geconditioneerd kan worden (vergelijkbaar met het biotricklingfilter)
- compacte installatie

- door het toepassen van twee gescheiden stromen (lucht- en waterstroom) kunnen optimale condities worden ingesteld in beide fases, zo kunnen eventueel zuurstofarme stromen worden behandeld;
- de gasstroom kan niet verontreinigd raken met bacteriën, hetgeen met name gunstig is voor toepassing in gebouwen;
- lage drukval

Nadelen

- hoge investeringskosten door hoge membraanprijs;
- nieuwe technologie die nog niet op full scale wordt toegepast;
- verstopping door biomassagroei bij hoge belasting en hoge concentraties nutriënten;

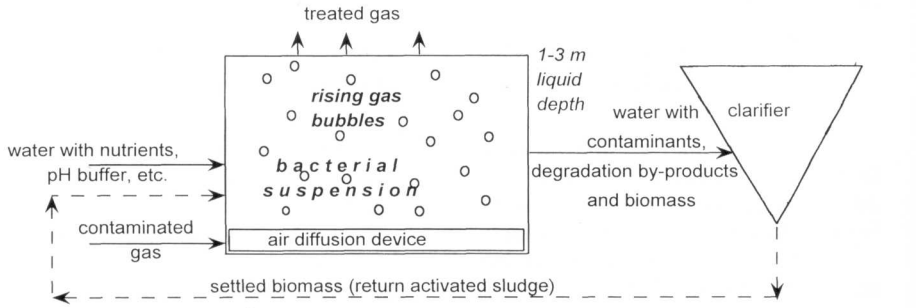
Kosten

De BAF is een nieuwe technologie die nog niet op full scale is toegepast. Er zijn dus nog geen referenties omtrent de investeringskosten en operationele kosten van het gebruik van de BAF. Ingeschat wordt dat de operationele kosten van de BAF vergelijkbaar zijn met de operationele kosten van de overige biologische systemen. De investeringskosten worden tot op heden met name bepaald door de kosten van de membranen. Voor Accurel membranen wordt als kostprijs 25-45 € per m^2 aangehouden. Voor een afgasstroom (100 Nm^3/h) verontreinigd met een redelijk goed afbreekbare en redelijk goed wateroplosbare component is een membraanoppervlak benodigd van circa 1.000 m^2. Dit resulteert in investeringskosten (alleen voor de membranen) van 250-450 € per m^3/h, hetgeen ongeveer 10 maal zo duur is als de overige biologische technieken. Door het gebruik van een goedkoper membraan kunnen de investeringskosten dalen, maar de BAF blijft in de aanschaf duurder dan de overige technieken.

4.6. Actief slib systeem

Principe

In figuur 6 is een schematische weergave van het systeem voor afgasbehandeling in een actief slib systeem.



Figuur 6. Schematische weergave actief slib systeem voor afgasbehandeling [Kennes, 2001]

Het systeem voor afgasbehandeling in een actief slib systeem wordt met name toegepast voor geurbestrijding (van bijv. H_2S verontreinigde lucht) bij rioolwaterzuiveringsinstallaties. Op deze locaties is reeds een actief slib systeem aanwezig voor afvalwaterbehandeling. Door het inbrengen van het afgas in dit systeem wordt het tevens toegepast voor afgasbehandeling.

Voordelen

- goedkoop systeem wanneer reeds actief slib systeem voor afvalwaterbehandeling op de locatie aanwezig is;
- gecombineerde behandeling van afvalwater en afgas in 1 systeem;
- geschikt voor de behandeling van verzurende componenten;

Nadelen

- de verblijftijd van het afgas in het biologisch systeem is slecht beheersbaar, maar wordt bepaald door de hoogte van het actief slib bassin en de stijgsnelheid van de gasbellen;
- alleen toepasbaar voor goed wateroplosbare componenten;
- doordat de micro-organismen niet in een biofilm groeien, kunnen langzaam groeiende stammen (bijvoorbeeld nitrificeerders) worden uitgespoeld.

Kosten

Er zijn weinig referenties bekend van het gebruik van een actief slib installatie voor afgasbehandeling. Het systeem wordt met name toegepast wanneer op een locatie reeds een afvalwaterzuivering aanwezig is, waar tevens afgassen in behandeld kunnen worden. In dit geval zijn de investeringskosten relatief laag. In de bekende referenties [Kennes, 2001] bedragen de investeringskosten 68 € per m^3/h voor een debiet van 3.750 m^3/h. de operationele kosten bedragen 4 € per m^2.

5. AFWEGING DIVERSE TECHNIEKEN

5.1. Inleiding

In dit hoofdstuk is de technische geschiktheid van verschillende biologische technieken behandeld voor de behandeling van het afgas van stallen en mestopslagen. Het betreft de volgende technieken:

1. biofiltratie;
2. biotricklingfilter;
3. bioscrubber;
4. BAF
5. actief slib systeem.

Een nadere beschrijving van de verschillende technieken is weergegeven in vorig hoofdstuk. De systemen die in de praktijk met name worden toegepast zijn biofilter, biotricklingfilter en bioscrubber. Het actiefslib systeem wordt incidenteel toegepast, terwijl de membraanbioreactor zich nog in de ontwikkelingsfase bevindt.

5.2. Belangrijke parameters voor de biologische behandeling van methaanhoudende lucht

Voor de behandeling van methaanhoudende lucht uit stallen en mestopslagen in een biologisch systeem zijn de volgende factoren van belang.

- De wateroplosbaarheid van methaan

Het grootste knelpunt voor de biologische behandeling van methaanhoudende lucht is de slechte wateroplosbaarheid (25 mg/l, zie tabel 4). Bij de behandeling van afgassen in een bioreactor is de eerste stap de overdracht van de verontreiniging naar de waterfase, waarna de verontreiniging biologisch wordt afgebroken. Voor slecht wateroplosbare componenten als methaan is de drijvende kracht voor overdracht van de gasfase naar de waterfase relatief klein. Om de overdracht te doen plaatsvinden dient derhalve gebruik te worden gemaakt van een groot contactoppervlak tussen gas- en vloeistoffase. Dit kan worden gerealiseerd door gebruik te maken van een pakkingsmateriaal met een groot specifiek oppervlak en/of een relatief grote bioreactor.

- De aanwezigheid van H_2S

Het afgas van zowel stallen als mestopslagen bevat H_2S. Deze component is zeer goed wateroplosbaar en de omzettingssnelheid in een aëroob systeem is tevens hoog.

In praktijk compostfilters zijn omzettingssnelheden van 130 g/m^3/h gemeten bij een rendement van 90-95% [Kennes, 2001]. Bij de omzetting van H_2S in een aëroob biologisch systeem wordt zwavelzuur gevormd dat voor verzuring van het biologisch systeem kan zorgen, met name in een biofilter.

Een alternatief voor pH correctie van het systeem is het toestaan van de verzuring. Sulfide oxidatie is ook mogelijk in een verzuurd biofilter. De nitrificatie (omzetting van ammonium naar nitraat) en de afbraak van methaan en geurhoudende stoffen zal wel sterk geremd worden wanneer verzuring optreedt beneden pH 6 en zelfs stil komen te liggen wanneer de pH te ver daalt.

- De aanwezigheid van ammoniak

Overbelasting van een bioreactor voor de behandeling van afgassen met ammoniak kan leiden tot remming van de biologische activiteit van het biologisch systeem door ophoping van ammoniak en nitriet. Tevens kan verzuring van het systeem optreden. Dit is met name van belang voor biofilters.

- Temperatuur

De temperatuur van het afgas is een belangrijke procesparameter voor biologische luchtfiltratie, aangezien de temperatuur van invloed is op de afbraaksnelheid (vuistregel halvering activiteit bij 10°C temperatuurdaling).

De meeste mestopslagen bevinden zich gedeeltelijk ondergronds, zodat de temperatuur in de mestopslag waarschijnlijk veel minder sterk zal variëren dan de temperatuur van de buitenlucht (demping). De temperatuur van de mest is gedurende het jaar redelijk constant (circa 10-16°C). Het afgas boven de mest zal naar verwachting sterker in temperatuur fluctueren. Met name op een warme zomerdag zomer wanneer de zon op de mestopslag schijnt, kan de temperatuur van het afgas naar verwachting sterk stijgen. Ingeschat wordt dat de temperatuur van het afgas van een mestopslag fluctueert van 10 tot 35°C.

De temperatuur van het afgas van een varkensstal varieert veel minder sterk. In de varkensstal heersen goed geconditioneerde omstandigheden waarbij de temperatuur redelijk constant is (ca. 20 tot 25°C).

- Debieten

De hoeveelheid biogas die geproduceerd wordt in een mestopslag is niet constant gedurende het jaar. In de winterperiode mag de mest niet worden uitgereden, waardoor de mestopslagen tegen het eind van de winterperiode maximaal gevuld zijn.

Hier staat tegenover dat de temperatuur van de mest in de winter lager zal zijn, hetgeen resulteert in een lagere biologische activiteit en derhalve een lager methaanemissie. Het is mogelijk dat als gevolg van het hierboven beschreven proces, periodiek geen biogasproductie in de mestopslag plaatsvindt. De afgasbehandeling van de mestopslag dient derhalve geschikt te zijn voor een tijdelijk sterk verminderde aanvoer van verontreiniging (hoge variatie in belasting).

Het afgasdebiet van een varkensstal (2.000 dieren) is vele malen hoger dan het afgas van een mestopslag. Dit heeft ten gevolg dat een biologisch systeem voor de afgasbehandeling vele malen groter is. Het debiet van het afgas van stallen zal als gevolg van het dag/nacht ritme in de stallen een geringe variatie vertonen. Daarnaast wordt het debiet beïnvloed door het seizoensritme ('s zomers wordt meer geventileerd dan 's winters). Het afgasdebiet van een varkensstal zal naar verwachting minder fluctueren dan het afgasdebiet van een mestopslag.

5.3. Afweging van de mogelijkheden van biologische behandeling van methaanhoudende lucht uit stallen en mestopslagen

Zoals beschreven in paragraag 3.3 zijn er twee grote verschillen tussen het afgas van een varkensstal (2.000 dieren) en het afgas van een mestopslag (1.000 m^3):

- het afgasdebiet van de varkensstal is vele malen hoger (geschatte debieten 75 Nm^3/h voor een mestopslag en 70.000 Nm^3/h voor een varkensstal);
- de methaanconcentraties in het afgas van de mestopslag is vele malen hoger (geschatte concentraties 21.100 mg/m^3 voor een mestopslag en 107 mg/m^3 voor een varkensstal)

Met name het verschil in debiet heeft een grote invloed op de dimensionering van het biologisch systeem voor luchtzuivering. Als voorbeeld is de dimenionering uitgewerkt voor een biofilter (compost).

Op basis van de in de literatuur gevonden referenties wordt geconcludeerd dat de belasting van een biofilter voor methaanbehandeling veel lager is dan voor een biofilter voor bijvoorbeeld geurbehandeling. Voor een verwijderingsrendement van meer dan 50% bij een mestopslag van 1.000 m^3 met een afgasdebiet van 75 Nm^3/h en een ingangsconcentratie van 22.100 mg/m^3 (mestopslag) wordt op basis van de literatuur ingeschat dat een reactorvolume van 100-150 m^3 noodzakelijk is (formule Damman et al (1999), $k_1 = 5\ h^{-1}$, $k_2 = 0{,}5\ m^3/g$, zie paragraaf 2.3). De constante k_1 en k_2 zijn ingeschat door extrapolatie van de empirische waarden van Damman naar een temperatuur van 15°C.

Dit resultaat komt goed overeen met andere referenties (zie paragraaf 2.3). Voor de behandeling van een klein afgas debiet is dus, zoals verwacht, een relatief zeer grote installatie benodigd. Dit wordt met name veroorzaakt door de slechte wateroplosbaarheid van methaan in combinatie met de grote verontreinigingsvracht.

Voor de behandeling van het afgas van een varkensstal voor 2.000 varkens (debiet 70.000 Nm^3/h, 107 mg/m^3 methaan) kan met dezelfde formule worden berekend dat voor een verwijderingsrendement van 50% een biofilter nodig is met een extreem groot volume van circa 45.000 m^3. Dit extreme benodigde volume wordt veroorzaakt door de slechte wateroplosbaarheid van methaan in combinatie met het grote debiet.

Hoewel door de gemaakte aannames een relatief grote afwijking mogelijk is in het werkelijk benodigde volume, geeft de berekening wel een eerste indicatie van het benodigde biofiltervolume. Geconcludeerd wordt dat voor de behandeling van het afgas van een varkensstal een absurd groot biofilter benodigd is. Ook voor andere biologische systemen geldt dezelfde beperking. Geconcludeerd wordt dat de biologische behandeling van het afgas van een varkensstal voor de verwijdering van methaan niet haalbaar is. Bij de afweging van technieken wordt het afgas van een varkensstal daarom niet beschouwd.

5.4. Afweging van technieken

Criteria

De technische geschiktheid van de verschillende bioreactoren voor de behandeling van het afgas van een mestopslag wordt beoordeeld aan de hand van de volgende criteria:

1. geschiktheid van de bioreactor voor de behandeling methaan (een slecht wateroplosbare component);
2. verzuringsgevoeligheid van de bioreactor;
3. de controleerbaarheid van het proces;
4. de geschiktheid voor een discontinu bedrijf / variërende belasting;
5. de kosten.

Biofilter

Het grote voordeel van het gebruik van een biofilter voor de behandeling van de methaanhoudende lucht uit mestopslagen is de eenvoud van de technologie en de lage investerings- en bedrijfskosten. Ten opzichte van de overige biologische technieken heeft het compostfilter de laagste investerings- en bedrijfskosten.

Mogelijke knelpunten voor het gebruik van een biofilter worden veroorzaakt door de aanwezigheid van verzurende componenten als H_2S en NH_3 in het afgas. De beheersbaarheid van de procescondities in een biofilter is minder goed ten opzichte van de overige technieken.

Verzuring is het belangrijkste mogelijke knelpunt bij de behandeling van het beschreven afgas. Om nader te onderbouwen of er risico op verzuring is bij de behandeling van het H_2S en NH_3 houdende afgas wordt uitgegaan van een (worst case) volume van 100 m^3. In onderstaande tabellen is de ammoniak- en H_2S-belasting van een biofilter vergeleken met de uit de literatuur bekende maximaal haalbare waardes.

Tabel 11. Overzicht belasting biofilter (100 m^3) voor de behandeling van het afgas van een mestopslag

Component	concentratie [ppm]	concentratie [mg/m3]	vracht [kg/uur]	belasting [g/m^3/uur]	kritische grens [g/m^3/uur]
Debiet	1.800 m3/dag 75 m3/uur				
CH4	33.000	22.100	1,65	16,5	
NH3	70	110	0,0075	0,075	10-25
H2S	4.000	2.800	0,21	2,1	100

Op basis van bovenstaande berekeningen wordt geconcludeerd dat het risico op overbelasting van het biofilter met ammoniak en H_2S verwaarloosbaar is. Als gevolg van de lange verblijftijd van het afgas in het filter (10-20 minuten) is de ammoniak en H_2S-belasting van het filter per volume-eenheid gering. Waarschijnlijk zal in het biofilter in de onderste laag met name verwijdering optreden van het zeer goed wateroplosbare H_2S, waardoor hier lokaal verzuring kan optreden. H_2S is echter goed afbreekbaar bij een lagere pH. De verzuring heeft wel tot gevolg dat de levensduur van het compostmateriaal verkort wordt. Een alternatief is een tweetraps installatie waarbij in de eerste trap H_2S-verwijdering plaatsvindt. In de eerste trap kan gebruik gemaakt worden van inert pakkingsmateriaal (zonder compost).

De nitrificatie is zeer gevoelig voor verzuring (pH 6,5 als kritische grens) zodat in deze eerste laag van het filter (verzuurd door H_2S-verwijdering) geen nitrificatie zal optreden (en ook geen methaanafbraak). In de rest van het filter worden achtereenvolgens ammoniak en methaan afgebroken.

Van de beschreven biologische systemen is het biofilter het meest geschikt voor een discontinue bedrijfsvoering. Voor alle biologische systemen zijn sterke concentratie-schommelingen of zelfs een tijdelijke stop van de aanvoer van verontreiniging ongunstig. Indien de aanvoer van biogas uit de mestopslag tijdelijk stagneert, wordt het biofilter niet gevoed.

Gedurende deze periode kan worden volstaan met een periodieke voeding van het filter met (schone) lucht om anaërobe condities in het filter te voorkomen. Daarnaast dient het vochtgehalte in het filter op peil te worden gehouden, maar omdat het filter niet met afgas wordt doorstroomd, zal het nauwelijks uitdrogen.

Geconcludeerd wordt dat een compost biofilter (technisch) geschikt is voor de behandeling van afgassen van mestopslagen. Wel is hiervoor een relatief groot filter benodigd.

Biotricklingfilter

Voordeel van het biotricklingfilter ten opzichte van het biofilter is de betere beheersbaarheid van de procescondities in het systeem, waardoor het biotricklingfilter beter geschikt is voor de behandeling van verzurende componenten. Nadeel van het biotricklingfilter ten opzichte van het biofilter zijn de hogere kosten. Daarnaast heeft het biotricklingfilter een lager specifiek oppervlak en een dikkere waterfilm. Methaan is een slecht wateroplosbare component waardoor de stofoverdracht van de luchtfase naar de waterfase de kritische stap is. Derhalve dient te worden gestreefd naar een groot contact oppervlak en een lage overdrachtsweerstand. In het algemeen worden in een biotricklingfilter plastic pakkingsringen gebruikt (bijv. Pall ringen) die als nadeel een relatief laag specifiek oppervlak hebben. Daarnaast zorgt de dikkere waterfilm op de biofilm in het biotricklingfilter ervoor dat de overdrachtsweerstand hoger is dan in een biofilter, zodat een hoger contactoppervlak nodig is. In hoofdstuk 6 worden verschillende dragermaterialen beschreven voor gebruik in biotricklingfilters.

Het biotricklingfilter is minder geschikt voor de behandeling van een discontinu aanvoer van verontreiniging. Indien de aanvoer stagneert dient de installatie in bedrijf te blijven (rondpompen van de waterfase over de pakking), omdat anders de biofilm op de pakking uitdroogt. Indien de aanvoer van verontreiniging te lang stagneert, kan een heropstart van de installatie noodzakelijk zijn.

Bioscrubber

De bioscrubber is met name goed toepasbaar voor goed wateroplosbare componenten. Toepassing van een bioscrubber voor de behandeling van slecht wateroplosbare componenten als methaan is technisch wel uitvoerbaar, maar resulteert in een zeer grote gaswasser voor de stofoverdracht van de gasfase naar de vloeistoffase. De bioscrubber heeft als voordeel ten opzichte van het biofilter de betere beheersbaarheid van de procescondities, waadoor de bioscrubber geschikt is voor de behandeling van verzurende componenten.

Membraanbioreactor (BAF)

De BAF is een nieuwe technologie voor afgasbehandeling, die zich op heden in de ontwikkelingsfase bevindt. De BAF is dus nog niet toegepast op full scale. Het grote voordeel van deze techniek is de fysieke scheiding tussen afgas en biomassa – het membraan – waardoor het gereinigde afgas niet verontreinigd is met biomassa. Dit is met name een voordeel bij toepassing is gesloten ruimtes en niet bij de behandeling van afgassen van stallen en mestopslagen. Het voordeel van de techniek is, vergelijkbaar met het biotricklingfilter en de bioscrubber, de controleerbaarheid van het proces, waardoor de membraanbioreactor goed toepasbaar is voor de behandeling van verzurende componenten. Daarnaast is uit onderzoek van Bioclear is gebleken dat de BAF goed bestand is tegen periodes van stilstand. Door membraanmodules toe te passen met een hoog specifiek oppervlakte (bijv. hollow fiber), kunnen tevens slecht wateroplosbare componenten worden behandeld.
Geconcludeerd wordt dat toepassing van de BAF voor de behandeling van methaanhoudende lucht uit mestopslagen technisch haalbaar is. Grote knelpunt zijn de hoge investeringskosten. Als gevolg van de hoge membraanprijzen zijn investeringskosten van de BAF zeer hoog, waardoor toepassing van de BAF voor afgassen van stallen en mestopslagen op economische gronden niet haalbaar wordt geacht.

Actief slib systeem

Het actief slibproces voor afgasbehandeling is tot op heden met name toegepast voor de behandeling van geurhoudende lucht van een rioolwaterzuiveringsinstallatie. Hierbij wordt het afgas behandeld in het actief slib bassin dat reeds aanwezig is voor de afvalwater-behandeling. Gezien de slechte wateroplosbaarheid van methaan verloopt de overdracht van methaan naar de waterfase langzaam. De verblijftijd van het afgas kan in dit systeem niet worden ingesteld, deze is afhankelijk van de diepte van het bassin en de stijgsnelheid van de gasbellen. Dit is een groot knelpunt voor de behandeling van slecht wateroplosbare componenten als methaan. Actief slibsystemen zijn in het algemeen niet geschikt voor een discontinue aanvoer van verontreiniging. Op basis van deze overwegingen wordt aanbevolen voor de behandeling van methaanhoudende lucht uit een mestopslag geen gebruik te maken van een actief slib systeem.

5.5. Samenvatting

Methaanverwijdering uit het afgas van varkensstallen middels een biologisch luchtzuiveringssysteem wordt gezien het extreem grote benodigde volume van het systeem niet haalbaar geacht. Berekend is dat voor de behandeling van het afgas van een varkensstal met 2.000 varkens een biofiltervolume benodigd is van meer dan 40.000 m^3 om 50% verwijderingsrendement te halen.

Voor de behandeling van het afgas van een mestopslag is tevens een relatief groot systeem nodig, maar aangezien het een relatief kleine stroom is dit technisch wel haalbaar. Berekend is dat voor een mestopslag van 1.000 m^3 een biofilter nodig is van 100-150 m^3 voor 50% methaanverwijdering.

In onderstaande tabel zijn de resultaten van de evaluatie van de verschillende biologische systemen voorde behandeling van het methaanhoudende afgas van mestopslagen samengevat.

Tabel 12. Samenvatting resultaten evaluatie technieken

Techniek	1. methaan	2. Verzuring	3. Controle/ beheersbaarheid	4. Discontinu bedrijf	5. Kosten	**Evaluatie**
Biofilter	+/-	+/-	+/-	+	+	+
Biotrickling	+/-	+	+	-	+/-	+/-
Bioscrubber	-	+	+	-	+/-	-
BAF	+/-	+/-	+	+/-	-	-
Actief slib	-	+	+	-	-	-

Aanbevolen wordt om in het pilotonderzoek de toepassing van een compostfilter en een biotricklingfilter te testen.

6. DRAGERMATERIALEN

6.1. Inleiding

In dit hoofdstuk zijn verschillende dragermaterialen voor gebruik in een biofilter (paragraaf 6.2.) en in een biotrickllingfilter (paragraaf 6.3.) beschreven. Aanbevolen is wat de beste dragermaterialen zijn voor de behandeling van de methaanhoudende afgassen van mestopslagen.

6.2. Dragermaterialen voor een biofilter

Compost
Compost bevat een zeer rijke en diverse bacteriepopulatie, heeft waterbindend vermogen en bevat daarnaast micro- en macronutriënten. Hierdoor is compost, vanuit biologisch oogpunt, zeer geschikt voor toepassing in een biofilter. In de praktijk is gebleken dat biofilters met compost vaak een betere verwijdering hebben dan filters gevuld met inerte materialen.

Compost heeft ook een aantal minder goede eigenschappen. Zo is de drukval bij beluchting van een compostbed te hoog en neemt deze, door inklinking van het filterbed (compactie) steeds verder toe. Door deze compactie is ook de bevochtiging (sturing van het vochtgehalte) moeilijker. In alle gevallen zal compost na verloop van tijd moeten worden vervangen door verse compost.

Dragermaterialen
In veel gevallen wordt de toepasbaarheid van compost verbeterd door het toevoegen van een dragermateriaal, waarbij een deel compost wordt gemengd met een deel dragermateriaal (meestal 1:1 op volumebasis). Als dragermateriaal worden in de literatuur een aantal dragers genoemd die regelmatig worden toegepast:

- Houtsnippers/kokos
- perliet
- actief koolkorrels
- polyurethaan (als flakes of bolletjes)
- polystyreen bolletjes

Het ideale dragermateriaal moet de volgende eigenschappen bezitten:

- laag soortelijk gewicht en voldoende mechanische sterkte
- hoge porositeit, relatief grote poriën
- hoog specifiek oppervlak
- (hoog) waterbindend vermogen
- voldoende bindingscapaciteit voor verontreinigingen

Bovenstaande karakteristieken zijn niet voor alle biofilters even belangrijk. Een laag soortelijk gewicht is belangrijk voor de constructie van het filter en het voorkomen van compactie; een hoge porositeit is belangrijk voor een voldoende lage drukval (goede doorlatendheid) van het filter. Een groot specifiek oppervlakte is van belang als relatief slecht wateroplosbare componenten, zoals methaan moeten worden verwijderd. Een hoog waterbindend vermogen maakt een filter minder gevoelig voor uitdroging. Een goede bindingscapaciteit is voor een biofilter dat methaan moet verwijderen niet van belang, aangezien methaan niet wordt vastgehouden. Naast bovengenoemde eigenschappen kan het van belang zijn of het dragermateriaal kan worden hergebruikt.

De belangrijkste eigenschappen van verschillende dragermaterialen zijn weergegeven in tabel 13. Ter vergelijking zijn ook de eigenschappen van compost weergegeven. Omdat de kwaliteiten van zowel compost als de dragermaterialen kunnen verschillen, is een realistische range van waardes weergegeven.

Tabel 13. Eigenschappen van compost en verschillende biofilter dragermaterialen

	Bulkdichtheid droog (kg/L)	Porositeit	Specifiek oppervlak (m^2/m^3)	Waterbinding (% van het gewicht)	Kosten (€/m^3)
Compost	0,2 – 0,5	65 – 90 %	ca.1.500	Ca. 300	40-50
Perliet	0,08 – 0,12	70 – 80 %	ca. 500	200 – 400	100
Polystyreen	0,01	40 – 50 %	Klein	Laag	200[1]
Polyurethaan	0,02 – 0,15	Onbekend	400-600	500-750	500
Houtschors	0,2 – 0,4	40 – 50 %	500	75	60-75
Actief koolkorrels	0,4 – 0,5	Onbekend	500 - 1500	10 - 20	6-9/kg

1. kosten van het gepatenteerde compost/polystyreen mengsel (BIOTON)

Conclusie

Perliet en polyurethaan lijken de meest interessante dragermaterialen voor de bedoelde toepassing (in combinatie met compost). Perliet heeft ten opzicht van polyurethaan het voordeel dat het een natuurlijk materiaal is. Wanneer na 4-6 jaar het filtermateriaal dermate ingeklonken is dat het biofilter opnieuw gevuld moet worden, kan het compost-perliet mengsel worden uitgereden over het land.

De combinatie compost – polystyreen is gepatenteerd en daarom relatief duur en minder universeel toepasbaar. Houtschors lijkt minder geschikt vanwege de relatief hoge bulkdichtheid, waardoor de constructie van het filter sterker moet zijn.

Actief kool is een dure drager die wordt toegepast wanneer een hoge bindingscapaciteit benodigd is. Omdat methaan niet gebonden wordt door actief kool biedt actief kool geen voordelen boven de andere materialen.

6.3. Dragermaterialen voor een biotricklingfilter

Eigenschappen van dragermaterialen
Veel verschillende materialen zijn getest als dragermateriaal in een biotricklingfilter. Het ideale dragermateriaal moet de volgende eigenschappen bezitten:

1. groot specifiek oppervlak;
2. hoge porositeit;
3. hoge chemisch stabiliteit (inert materiaal);
4. hoge mechanische sterkte;
5. laag gewicht;
6. geschikt hechtingsoppervlak voor de groei van biomassa;
7. lage kosten.

Dragermaterialen
Dragermaterialen die veel worden toegepast zijn:

1. lavasteen;
2. los (random) gestorte plastic pakkingsringen (bijv. Pall ringen);
3. “structuur pakkingen”
4. pakkingen op basis van actief kool;
5. puly-urethaan schuim dragers (als flakes of bolletjes)

Lavasteen heeft als voordeel het grote specifiek oppervlak, een poreuze structuur waar biomassa eenvoudig op groeit en een lage kostprijs. Nadelen van lava zijn de lage porositeit (circa 50%) en het hoge gewicht dat hoge eisen aan de mechanische sterkte van de reactor stelt. Daarnaast kan lavasteen onder zure omstandigheden oplossen.

Los gestorte plastic ringen zijn veel gebruikt in labonderzoeken en full scale toepassingen. Deze drager is gemakkelijk te hanteren, heeft een goede mechanische sterkte, een hoge porositeit en is goedkoop.

Deze plastic ringen hebben in het algemeen als nadeel dat het oppervlak minder geschikt is als hechtingsondergrond voor biofilms, waardoor de opstart van de bioreactor langer kan duurt. Bovendien heeft deze pakking een relatief laag specifiek oppervlak, hetgeen ongunstig is voor het verkrijgen van een hoge verwijderingscapaciteit (per reactorvolume eenheid).
Structuur pakkingen van roestvast staal of plastic combineren een hoog specifiek oppervlak met een hoge porositeit. In verschillende lab- en pilotstudies schijnen met deze pakkingen goede resultaten geboekt te zijn, onder andere in de behandeling van dichloormethaan houdend afgas. Nadeel is de hoge kosten.

Pakkingen op basis van actief kool hebben een sterk adsorptievermogen, hetgeen onderscheidend is ten opzicht van de overige materialen. Actief kool dragers schijnen met name een voordeel te hebben bij sterke fluctuaties in de verontreinigingsconcentraties. In het algemeen zijn biologische systemen minder geschikt voor de behandeling van afgassen met sterke fluctuerende concentraties. Een (sterke) overdimensionering van het systeem is noodzakelijk om de pieken in concentratie efficiënt te verwijderen. Bij gebruik van actief kool worden de fluctuaties in de concentraties uitgedempt door adsorptie aan het kool. In een biotricklingfilter zullen de actief kool korrels bedekt raken met een biofilm, waardoor de adsorptie capaciteit van het kool sterk zal dalen. Bovendien hecht methaan niet aan actief kool.

Een relatief nieuwe drager voor biotricklingfilters is poly-urethaan. Dit materiaal heeft een hoge porostiteit en een hoog specifiek oppervlak in combinatie met lage kosten.

Door Imag is geopperd om steenwol te gebruiken in een bioreactor (biofilter of biotricklingfilter). Dit materiaal wordt veel toegepast in de tuinbouw. Voordelen van steenwol zijn de hoge porositeit en de lage kosten. Daarnaast is het materiaal chemisch inert. Het grote nadeel van steenwol is waarschijnlijk de mechanische sterkte. Wanneer een biofilm groeit op de steenwol neemt het gewicht toe, waardoor de steenwol zal inklinken. Inklinking zal met name optreden wanneer de hoogte van het bed toeneemt.

Conclusie
De meest geschikte dragers voor toepassing in een biotricklingfilter voor de behandeling van afgassen van stallen en mestopslagen zijn de plastic pakkingsringen (bijv. Pallringen) en mogelijk polyurethaan. Pakkingsringen worden in de industrie op grote schaal toegepast in gaswasser, striptorens en biotricklingfilters. Het enige nadeel van deze ringen is het relatief lage specifieke oppervlak, met name gezien de slechte wateroplosbaarheid van methaan waardoor een groot specifiek oppervlak benodigd is. Mogelijk is een polyurethaan drager hiervoor de oplossing.

Structuurpakkingen en actief kool zijn vanuit kostenoverwegingen niet aan te bevelen. Lavasteen heeft als nadeel het grote gewicht en steenwol heeft waarschijnlijk een te geringe mechanische sterkte.

LITERATUUR

Amaral, J.A. and R. Knowles. 1995. Growth of methanotrophs in methane and oxygen counter gradients. FEMS Microbiology Letters. 126:215-220.

Anderson, G.A., R.J. Smith and E.G. Hammond. 1987. Model to proedict gaseous contaminants in swine confinement buildings. J. Agric. Eng. Res. 37: 235-253.

Anthony, C. 1982. The biochemistry of methylotrophs. Academic Press Inc. London.

Bender, M. and R. Conrad. 1992. Kinetics of CH_4 oxidation in oxic soils exposed to ambient air or high CH_4 mixing ratios. FEMS Microiology Ecology. 101:261-270.

Damman, B. J. Streese and R. Stegmann. 1999. Microbial oxidation of methane from landfills in biofilters. Proceedings Sardinia 1999, Seventh international Waste Management and Landfill Symposium. 517-524.

Devinny, J.S., M.A. Deshusses and T.S. Webster. 1999. Biofiltration for air pollution control. Lewis Publishers.

Dunfield, P.F. and R. Conrad. 2000. Starvation alters the apparent half-saturation constant for methane in the type II methanotroph *Methylocystis* strain LR1. Applied and environmental microbiology. 66(9): 4136-4138.

Graham, D.W., J.A. Chaudhary, R.S. Hanson and R.G. Arnold. 1992. Factors affecting competition between type I en type II methanotrophs in two-organism, continuous-flow reactor. Microb. Ecol. 25:1-17.

Groot Koerkamp, P.W.G. 1997. Climatic conditions and aerial pollutants in and emissions from commercial animal production systems. In: Proc. of the international symposium on ammonium and odour control from animal production facilities. October 6-10, 1997, Vinkenoord, The Netherlands. 139-144.

Guingand, N., R. Granier and P. Massabie. 1997. Characterization of air extracted from pig housing: effects of the presence of slurry and the ventilation rate. In: Proc. of the international symposium on ammonium and odour control from animal production facilities. October 6-10, 1997, Vinkenoord, The Netherlands. 49-55.

Hanssen, M.N. Danish Institute of Agricultural Sciences, Dept. of Agricultural Engineering, Denmark.

Hanson, R.S. and T.E. Hanson. 1996. Methanotrophic bacteria. Microbiological Reviews. 60(2):439-471.

Husted, S. 1994. Seasonal variation in methane emissions from stored slurry and solid manures. J-envir-qual. Madison : American Society of Agronomy. 23(3): 585-592.

IMAG. 2001. Projectvoorstel: Biologisch luchtfilter voor methaan uit stallen en mestopslagen. Wageningen, januari 2001.

Joergensen, L. and H. Degn. 1983. Mass spectrometric measurements of methane and oxygen utilization by methanotrophic bacteria. FEMS Microbiology Letters. 20:331-335.

Kennes, C., and M.C. Veiga. 2001. Bioreactors for waste gas treatment. Kluwer Academic Publishers.

King, G.M. and S. Schnell. 1994. Ammonium and nitrite inhibition of methane oxidation by *Metylobacter albus BG8* and *Methylosinus trichosporium OB3b* at low methane concentrations. Applied and Environmental Microbiology. 60(10):3508-3513.

King, G.M. and P.S. Adamsen. 1992. Effects of temperature on methane consumption in a forest soil and in pure cultures of the methanotroph *Methylomonas rubra*. Applied and Environmental Microbiology. 58(9):2758-2763.

Kussmaul, M. and J. Gebert. 1998. Ein neues Verfahren zum biologischen Methan- und Geruchsabbau von Gasen aus Abfalldeponien mit passiver Entgasung. Mull and Abfall. 8: 512-518.

Martinec, M,, E. Hartung, T. Jungbluth, F. Schneider and P.H. Wieser. 2001. Reduction of gas, odor and dust emissions from swine operations with biofilters. ASAE 2001.

Matheson, L.J., L.J. Jahnke and R.S. Oremland. 1997. Inhibition of methane oxidation by *Methylococcus capsulatus* with hydrochlorofluorocarbons and fluorinated methanes. Applied and Environmental Microbiology. 63(7):2952-2956.

Meyer, D.J. and H.B. Manbeck. 1986. Dust levels in mechanically ventilated swine barns. ASAE paper no. 86-4042. American Society of Agricultural Engineers. St. Jospeh, MI and Manbeck.

Oldenhuis, R. 1992. Microbial degradation of chlorinated compounds: application of specialized bacteria in the treatment of contaminated soil and waste water. Stichting Drukkerij C. Regenboog, Groningen.

Park, S., N.N. Shah, R.T. Taylor and M.W. Droege. 1992. Batch cultivation of *Methylosinus trichosporium* OB3b: II. Production of particulate methane mono-oxygenase. Biotechnology and Bioengineering. 40(1):151-157.

Phelps, P.A., S.K. Agarwal, G.E. Speitel, JR., and G. Georgiou. 1992. *Methylosinus trichosporium* OB3b mutants having constitutive expression of soluble methane mono-oxygenase in the presence of high levels of copper. Applied and Environmental Microbiology. 58(11):3701-3708.
Schnell, S. and G.M. King. 1995. Stability of methane oxidation capacity to variations in methane and nutrient concentrations. FEMS Microbiology Ecology. 17:285-294.

Schiffman, S.S., J.H. Raymer and J.L. Bennett. 2001. Quantification of odors and odorants from swine operations in North Carolina. Agricultural and Forest Meteorology. 108:213-240.

Schulte, D.D.. 1997. Critical parameters for emmisions. In: Proc. of the int. symp. on ammonia and odour control from animal production facilities. October 6-10, 1997. Vinkeloord, The Netherlands. 23-24.

Uenk, G.H., T.G.M. Demmers and M.G. Hissink. Luchtsamenstelling onder de overkapping van mestsilo's voor en na het mixen van mest.

Verein Deutscher Ingenieure. 1991. Biologische Abgas-/Abluftreinigung. VDI-Handbuch Reinhaltung der Luft, Band 6.

Visscher, A. de. 1999. Methane oxidation in simulated landfill cover soil environments. Environ. Sci. Technol. 33: 1854-1859.

Williams, A.G., and E. Nigro. 1997. Covering slurry stores and effects on emissions of ammonia and methane. In: Proc. of the international symposium on ammonium and odour control from animal production facilities. October 6-10, 1997, Vinkenoord, The Netherlands. 412-428.

Bijlage 2 - Rapportage fase 2:

Resultaten van het laboratoriumonderzoek naar de toepassing van biologische technieken voor de behandeling van methaan houdende lucht uit stallen en mestopslagen (Werf, 2002).

RESULTATEN VAN HET LABORATORIUMONDERZOEK NAAR DE TOEPASSING VAN BIOLOGISCHE TECHNIEKEN VOOR DE BEHANDELING VAN METHAAN HOUDENDE LUCHT UIT STALLEN EN MESTOPSLAGEN

Eindrapportage

Opdrachtgever: IMAG
Projectcode: 2000.1366
Datum: 21 november 2002

Opdrachtgever: IMAG
Projecttitel: Resultaten van het laboratoriumonderzoek naar de toepasbaarheid van biologische technieken voor de behandeling van methaan houdende lucht van stallen en mestopslagen

Projectcode: 2000.1366
Documenttype: eindrapportage
Publicatiedatum: 21 november 2002
Projectleider: ir. A.W. van der Werf
Auteur(s): ir. A.W. van der Werf
Trefwoorden: Lucht, afbreekbaarheidsonderzoek, specifiek, methaan, aëroob

Bioclear b.v.
Postadres:
Postbus 2262, 9704 CG Groningen
Bezoekadres:
Rozenburglaan 13C, Groningen
Telefoon: 050 571 8455
Fax: 050 571 7920
E-mail: info@bioclear.nl
Website: www.bioclear.nl

Alle rechten voorbehouden. Niets uit deze uitgave mag worden vermenigvuldigd en/of openbaar gemaakt door middel van druk, fotokopie, microfilm of op welke andere wijze dan ook, zonder voorafgaande toestemming van Bioclear.

© Bioclear b.v.

Bioclear adviseert bedrijven, overheden en dienstverlenende organisaties op het terrein van de milieutechnologie.

Op opdrachten aan Bioclear zijn van toepassing de Algemene Voorwaarden voor onderzoeksopdrachten aan Bioclear, zoals gedeponeerd bij de Kamer van Koophandel te Groningen.

INHOUD

1. INLEIDING **1**

1.1. Inleiding 1

1.2. Achtergrond 1

1.3. Het project 1

2. UITVOERING **3**

2.1. Selectie van methanotrofen 3

2.2. Nutriëntenmedium 3

2.3. Bepaling groeisnelheden van de geselecteerde methanotrofen 3

2.3. Vervolgonderzoek: bepaling invloed temperatuur, pH en NH_3 4

3. RESULTATEN **6**

3.1. Bepaling van de groeisnelheden 6

3.2. Bepaling van de afbraaksnelheid 7

3.3. Bepaling van de invloed van de temperatuur 9

3.4. Bepaling van de invloed van de pH 10

3.5. Bepaling van de invloed van ammonium 11

4. CONCLUSIES **14**

BIJLAGEN

Bijlage 1. Resultaten groei experimenten

1. INLEIDING

1.1. Inleiding

In samenwerking tussen IMAG, Stork Product Engineering en Bioclear wordt in het kader van de ROB-regeling (Reductie Overige Broeikasgassen) gesubsidieerd door Novem, een project uitgevoerd met als doel de ontwikkeling van een methaanverwijderend biologisch luchtfilter, waarmee de uitstoot van het broeikasgas methaan bij kleinschalige mestopslag en stallen sterk kan worden gereduceerd.

1.2. Achtergrond

In de Kyoto-afspraken heeft Nederland zich verplicht tot een reductie van de emissie van broeikasgassen met 6% in 2010 ten opzichte van het niveau van 1990. Naast kooldioxide, dat onder meer vrijkomt bij de verbranding van fossiele brandstoffen, is methaan een belangrijk broeikasgas. Naast de plannen die zijn opgesteld om de emissie van kooldioxide te verminderen heeft de Nederlandse overheid een emissiereductieplan opgesteld voor de overige broeikasgassen – Reductie Overige Broeikasgassen (ROB) – dat wordt uitgevoerd door Novem. Daarmee wordt onder meer een reductie van methaanemissie beoogd van 8 Mton CO_2-equivalenten.Dit komt overeen met een reductie van 0,4 Mton CH_4 per jaar. De veeteelt is verantwoordelijk voor een jaarlijkse emissie van 10 Mton CO_2-eq., waarvan 8 Mton CO_2-eq. door herkauwers en 2 Mton CO_2-eq. door mestopslagen.

In een bureaustudie van IMAG ["Photocatalytic oxidation of methane from exhaust air of animal housing and liquid manure storage", IMAG, 2002] wordt geconcludeerd dat het behandelen van stallucht en lucht uit mestopslagen de grootste reductiepotentie heeft. Een reductie van 1 Mton CO_2-eq. wordt realistisch geacht.

1.3. Het project

In opdracht van IMAG is door Bioclear onderzoek uitgevoerd naar de behandeling van methaanhoudende stallucht in een biologisch luchtfilter.

De werkzaamheden van Bioclear bestaan uit de volgende onderdelen:

a. Bepaling van de procescondities in het biologisch luchtfilter;
   Op basis van door IMAG aangeleverde beschikbare informatie zijn de inputparameters en randvoorwaarden voor het biologisch systeem gedefinieerd. Het betreft onder andere de te verwachten samenstelling van de te behandelen afgasstroom (methaanconcentratie, concentraties aan nevenverontreinigingen, zuurstofgehalte en temperatuur) de debieten en fluctuaties in debieten;
b. Laboratoriumonderzoek;
   In een laboratoriumonderzoek zijn verschillende stammen methaan afbrekende bacteriën (methanotrofen) onderzocht. Onderzocht is:
   - de groeisnelheid;
   - de afbraaksnelheid van methaan bij verschillende concentraties;
   - de invloed van andere componenten die voorkomen in het afgas op de afbraak van methaan.

   Op basis van de resultaten van het labonderzoek is aangegeven wat de meest geschikte methanotroof voor toepassing in een biologisch luchtfilter is.
c. Vergelijking en afweging diverse biologische technieken;
   In een deskstudie zijn verschillende biologische technieken voor de behandeling van lucht uit stallen en mestopslagen vergeleken op technische aspecten. Bovendien is bekeken wat de meest geschikte dragermaterialen zijn voor toepassing in een (fixed film) biologisch systeem voor behandeling van stallucht.

In deze rapportage zijn de resultaten van onderdeel b. – het laboratoriumonderzoek - weergegeven.

2. UITVOERING

2.1. Selectie van methanotrofen

Methanotrofen kunnen worden onderverdeeld in drie types: type I, type II en type X. Type I en II verschillen onderling in de gevolgde afbraakroute voor methaan: type I methanotrofen volgen de RuMP-afbraakroute, type II methanotrofen de serine-afbraakroute. Type X methanotrofen kunnen beide routes volgen, maar groeien slechts bij temperaturen boven 37°C.

De in het onderzoek gebruikte stammen zijn weergegeven in tabel 1. De selectie van stammen omvat twee reinculturen (een type I methanotroof en een type II methanotroof) en twee mengcultures: een mengculture uit een biofilter dat methaanhoudende lucht behandeld en een actief slib monster uit de rioolwater zuiveringsinstallatie (RWZI) te Garmerwolde. Vanwege de specifieke groeicondities van type X methanotrofen (boven 37°C) wordt dit type niet betrokken in het onderzoek.

Tabel 1. Overzicht gebruikte methanotrofen in labonderzoek

Naam	Herkomst	Type
Methylocystis strain[1]	Max Planck Institut, Marburg (Duitsland)	Type II
Methylomonas methanica	ATCC 51626	Type I
Actief slib	RWZI Garmerwolde	Mengculture
Compost	Compostfilter Afvalzorg Deponie Haarlem	Mengculture

[1] stam beschreven in: Dunfield, P.F. and R. Conrad. 2000. Applied and environmental microbiology 66(9):4136-4138.

2.2. Nutriëntenmedium

Alle experimenten zijn uitgevoerd in een nutriëntenmedium voor de groei van methanotrofen (ATCC 1306 medium). De samenstelling van het medium is als volgt: 1,0 g/l $MgSO_4*7H_2O$, 0,2 g/l $CaCl_2*6H_2O$, 4 mg/l ijzer-EDTA, 1,0 g/l KNO_3, 0,272 g/l KH_2PO_4, 0,717 g/l $Na_2HPO_4*12H_2O$.

2.3. Bepaling groeisnelheden van de geselecteerde methanotrofen

Groei-experimenten zijn uitgevoerd in duplo met de geselecteerde stammen in gesuspendeerde vorm. De experimenten zijn uitgevoerd in flessen met een totaal volume van 317 ml met hierin 100 ml nutriëntenmedium. De kinetische parameter μ_{max} (maximale groeisnelheid) is hierbij bepaald bij kamertemperatuur.

De maximale groeisnelheid wordt bepaald als richtingscoëfficiënt van de maximale helling in de grafiek ln(OD_{450}) tegen de tijd. Deze grafieken zijn weergegeven in de bijlage.
Monitoring vindt plaats middels optische dichtheidsmetingen (OD_{450}). De optische dichtheid is een maat voor de biomassaconcentratie.

Naast de groeisnelheid van de biomassa is tevens de afbraaksnelheid van methaan vastgesteld (afbraakcurve bij verschillende CH_4-concentraties). De methaanverwijdering is gemeten door (GC-FID) analyses op de headspace in de flessen. Biomassagroei is vastgesteld middels optische dichtheidsmetingen in de vloeistoffase.

Op basis van de resultaten van deze experimenten zijn twee stammen geselecteerd voor het vervolgonderzoek waarin de gevoeligheid voor temperatuur, pH en ammonium wordt vastgesteld.

2.3. Vervolgonderzoek: bepaling invloed temperatuur, pH en NH_3

Een groei-experiment is uitgevoerd bij lagere temperatuur (10°C) om de invloed van de temperatuur op de methanotrofen proefondervindelijk vast te stellen. Dit experiment is uitgevoerd voor alle vier stammen. Biomassagroei is gemonitoord middels uitvoering van optische dichtheidsmetingen.

Groei-experimenten zijn uitgevoerd bij pH 5 om de invloed van een pH-verlaging vast te stellen. De experimenten bij verhoogde pH (pH 9) zijn niet uitgevoerd, doordat bij de pH-correctie van het gebruikte nutriëntenmedium tot pH 9 een sterke neerslagvorming optrad. Hierdoor was een goede bepaling van biomassagroei met optische dichtheidsmetingen niet mogelijk. De mogelijkheid van het gebruik van een alternatief nutriëntenmedium (met pH 9) is overwogen, maar vanwege de onderlinge vergelijkbaarheid van de experimenten is ervoor gekozen geen gebruik te maken van een andere medium en de experimenten bij pH 9 niet uit te voeren.

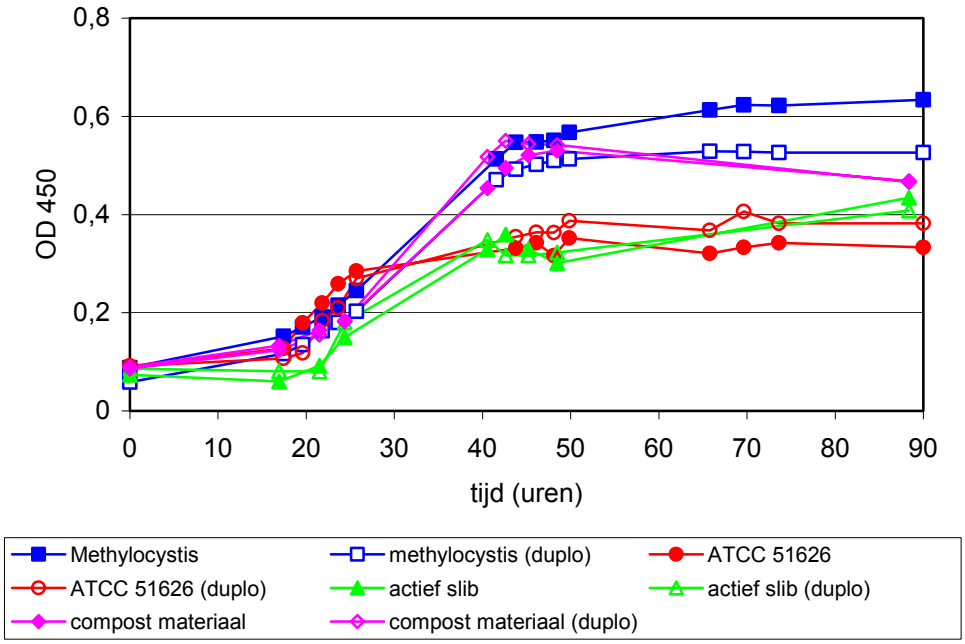
Van methanotrofen is vanuit de literatuur bekend dat de groeisnelheid kan worden geremd door de aanwezigheid van ammonium of nitriet (= intermediair dat gevormd wordt bij nitrificatie). Het afgas van een mestopslag of stal zal in het algemeen ammoniak bevatten dat tevens zal worden verwijderd in het biologisch luchtfilter. In het biologisch luchtfilter zal ammonium genitrificeerd worden tot nitraat. Op basis van de maximaal gemeten concentratie (100 ppm NH_3) in het afgas van een mestopslag kan worden berekend wat de maximaal te verwachten ammoniakconcentratie in de waterfase in het biofilter is.

Bij de berekening wordt uitgegaan van een normaal belast compostfilter (100 m^3/m^3/uur) met een drogestofgehalte van 40% en een porositeit van 50%. Na een dag bedraagt de ammoniakconcentratie in dit systeem 600 mg/l in de waterfase (bij 100% verwijdering en zonder omzetting). Als gevolg van nitrificatie zal de actuele concentratie lager zijn en bovendien zal een biofilter voor de behandeling van methaanhoudende lucht waarschijnlijk lager worden belast door de slechte wateroplosbaarheid van methaan (hetgeen tevens resulteert in een lagere ammoniumconcentratie).

Een groei-experiment is uitgevoerd bij 3 verschillende ammoniumconcentraties. De volgende analyses zijn uitgevoerd: optische dichtheid, ammonium, nitriet, nitraat en pH. De volgende ammoniumconcentraties zijn getest: 10, 100 en 1000 mg/l.

3. RESULTATEN

3.1. Bepaling van de groeisnelheden



Figuur 1. Resultaat groei-experimenten met geselecteerde methanotrofen

In grafiek 1 zijn de groeicurves (bij 30°C) weergegeven van de geteste methanotrofen. In onderstaande tabel is de uit de groeicurve bepaalde maximale groeisnelheid (μmax) en de verdubbelingstijd (Td) weergegeven.

Tabel 2. Overzicht maximale groeisnelheden en verdubbelingstijd van geteste methanotrofen (bij 30°C)

Stam	**maximale groeisnelheid μmax [uur^{-1}]**	**verdubbelingstijd Td [uur]**
Methylocystis	0,063	11,1
Methylomonas (ATCC 51626)	0,116	6,0
Compost	0,056	12,4
Actief slib	0,067	10,3

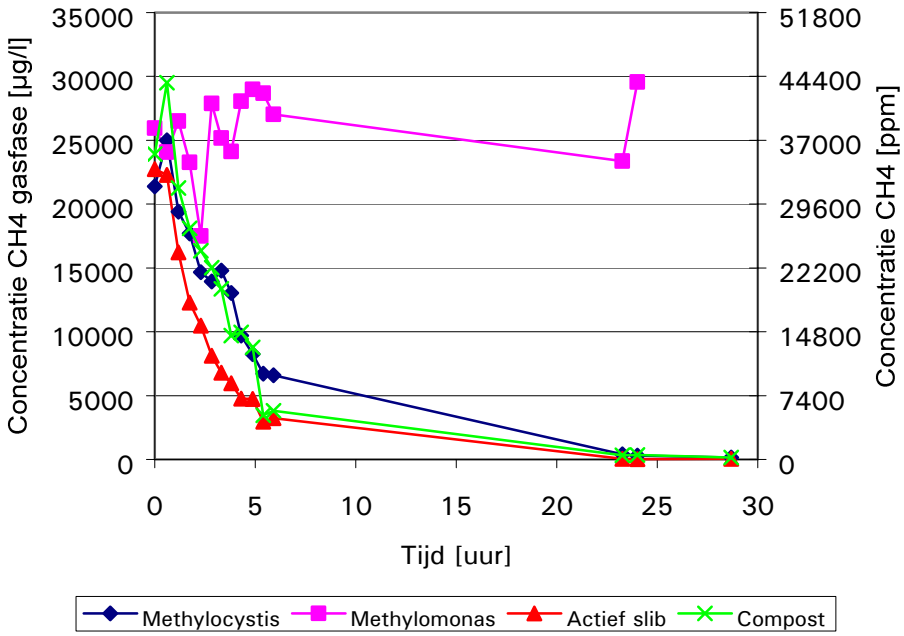
Uit de experimenten blijkt dat de groeisnelheden van de verschillende geteste methanotrofen van vergelijkbare grootte zijn, de maximale groeisnelheden verschillen onderling weinig. De reincultuur *Methylomonas methanica* heeft de hoogste groeisnelheid (μ_{max} = 0,116 hr^{-1}).

De groeisnelheid van de overige geteste methanotrofen is enigszins lager, de μ_{max} bedraagt circa 0,06-0,07 hr^{-1}.

De vastgestelde maximale groeisnelheden van de methanotrofen komen goed overeen met de vanuit de literatuur bekende waarden (μ_{max} = 0,1-0,2 hr^{-1}) [zie "Haalbaarheidsstudie naar de toepasbaarheid van biologische technieken voor de behandeling van methaanhoudende lucht uit stallen en mestopslagen, Bioclear, 2002"].

3.2. Bepaling van de afbraaksnelheid

In onderstaande figuur is het resultaat weergegeven van het afbraakexperiment dat is uitgevoerd.



Figuur 2. Resultaat afbraakexperiment

Voor het bepalen van de afbraaksnelheid (per gram biomassa) is het van belang dat gedurende het experiment geen significante groei van biomassa optreedt, aangezien dit leidt tot een toename van de afbraaksnelheid gedurende het experiment. Daarom is het afbraakexperiment uitgevoerd bij een relatief hoge biomassaconcentratie (OD 0,5 hetgeen overeenkomt met circa 90 mg/l drogestof) en is voorafgaand aan en na afloop van het experiment de OD_{450} bepaald, zie onderstaande tabel.

Tabel 3. Overzicht optische dichtheidsmetingen

Stam	Start OD_{450}	Eind OD_{450}
Methylocystis	0,486	0,514
Methylomonas (ATCC 51626)	0,324	0,323
Compost	0,426	0,434
Actief slib	0,494	0,507

Uit bovenstaande tabel blijkt dat gedurende het afbraakexperiment geen significante groei van biomassa is opgetreden, de maximale toename bedraagt 6% voor *Methylocystis*.

Om onbekende redenen is gedurende het experiment geen afbraak van methaan opgetreden door de stam *Methylomonas*.

De overige curves volgen alle eerste orde kinetiek, hetgeen betekent dat de verwijderingssnelheid recht evenredig afneemt met de dalende methaanconcentratie (de grafiek ln(concentratie) tegen de temperatuur verloopt volgens een rechte lijn, zie grafiek H in de bijlage). Voor de verwijdering van methaan spelen twee processen een rol: stofoverdracht van methaan van de gasfase naar de vloeistoffase en biologische afbraak in de vloeistoffase. De stofoverdracht verloopt in het algemeen via een eerste orde snelheid (snelheid recht evenredig met concentratie). De afbraak verloopt volgens Monodkinetiek (concentratie onafhankelijke –nulde orde– afbraak wanneer de substraat concentratie $>>$ de Monodconstante Ks en eerste orde afbraak wanneer de concentratie $<<$ Ks). De afbraaksnelheid in de batches lijkt te worden gelimiteerd door de stofoverdracht van methaan van de gasfase naar de vloeistoffase (de snelheid van stofoverdracht verloopt recht evenredig met de concentratie). Omdat de stofoverdracht de afbraak limiteert kan op basis van de afbraakcurves geen Monodconstante worden bepaald (de Monodconstante is de substraatconcentratie waarbij de afbraaksnelheid 50% van de maximale snelheid bedraagt).

In onderstaande tabel is de gemiddelde verwijderingssnelheid in de batches weergegeven.

Tabel 4. Overzicht gemiddelde verwijderingssnelheden in testen {weergegeven als mg CH_4/g ds.hr)

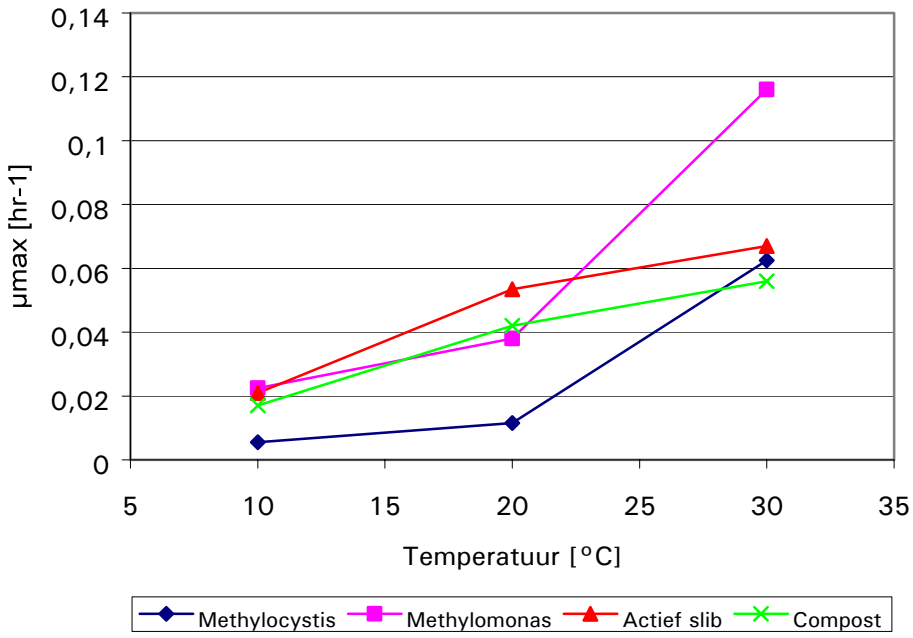
Stam	periode 0-6 hr (ca. 25.000-5.000 µg/l)	periode 6-24 hr (ca. 5.000-500 µg/l)	periode 24-29 hr (ca. <500 µg/l)	eindconcentratie [µg/l]
Methylocystis	6,0	0,86	0,099	160
Methylomonas	-	-	-	-
Compost	8,2	0,48	0,076	150
Actief slib	8,0	0,44	0,003	40

De gemiddelde verwijderingssnelheden in de testen zijn vergelijkbaar. De maximaal gemeten snelheid bedraagt 8,2 mg CH_4/g ds.hr. In de looptijd van het experiment (29 uur) vindt een concentratiedaling plaats van ca. 25.000 μg/l tot 160 μg/l (*Methylocystis*), 150 μg/l (compost) en 40 μg/l (actief slib) (alle concentraties in de gasfase).

Op basis de resultaten van het groei-experiment en het afbraakexperiment is besloten de experimenten ter bepaling van de invloed van temperatuur, pH en ammonium uit te voeren met de reincultuur *Methylocystis* en de mengcultuur afkomstig van compost.

3.3. Bepaling van de invloed van de temperatuur

In onderstaande figuur zijn de resultaten weergegeven van de groei-experimenten die bij resp. 10°C, 20°C en 30°C zijn uitgevoerd. Deze experimenten zijn uitgevoerd voor alle vier geselecteerde stammen (en niet alleen voor *Methylocystis* en compost).



Figuur 3. Resultaat experiment ter vaststelling van de invloed van de temperatuur op de maximale groeisnelheid μ_{max}

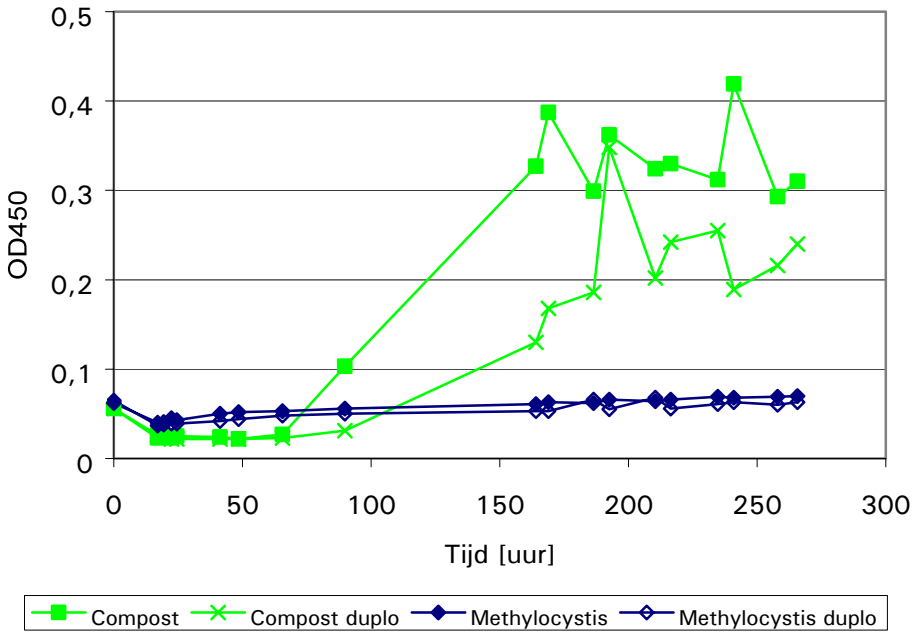
Alle geteste stammen vertonen conform verwachting een toename van de maximale groeisnelheid bij een toename van de temperatuur. Het effect van de temperatuur is het sterkst op *Methylocystis*, μ_{max} neemt bij een temperatuurverhoging van 10°C tot 30°C toe met een factor 10 (van 0,006 tot 0,063 hr^{-1}]. Met name de sterke stijging van de groeisnelheid van 20 tot 30°C is opvallend (0,012 naar 0,063 hr^{-1}, factor 5).

Als vuistregel geldt een verdubbeling van de snelheid bij 10°C temperatuursverhoging. De overige geteste stammen volgen deze vuistregel (met name tussen 10 en 20°C).

Voor behandeling van afgassen van stallen en mestopslagen in een biologisch systeem is met name het temperatuurtraject van 10 tot 20°C van belang. Groei van de methanotrofen treedt op tot de laagst onderzochte temperatuur van 10°C. De maximale groeisnelheid van de onderzochte methanotrofen afkomstig van actief slib en compost en de *Methylomonas* verschilt onderling weinig bij temperaturen van 10-20° en bedraagt 0,02-0,04 [hr^{-1}].

3.4. Bepaling van de invloed van de pH

In onderstaande figuur zijn de resultaten weergegeven van de groei-experimenten die zijn uitgevoerd om het effect van een pH-verlaging (tot pH 5) op de groeisnelheid vast te stellen. Naast het experiment bij verlaagde pH (pH 5) was het de bedoeling om een experiment uit te voeren bij een verhoogde pH (pH 9). Bij het verhogen van de pH van het nutriëntenmedium middels dosering van natronloog vond een zeer sterke neerslagvorming plaats (waarschijnlijk met name fosfaatneerslagen). Middels het aanpassen van de concentraties van de (fosfaat)buffer bleek het niet mogelijk te zijn de gewenste pH van het nutriëntenmedium te bereiken. Geconcludeerd is dat het met het gebruikte (ATCC 1306) medium niet mogelijk is experimenten bij verhoogde pH uit te voeren (onder vergelijkbare condities).



Figuur 4. Resultaat groei-experiment ter bepaling van het effect van pH 5 op de groeisnelheid (bij 30°C)

Tabel 5. Overzicht groeisnelheden (μ_{max}) en verdubbelingstijden

Stam	pH 5 maximale groeisnelheid μmax [uur^{-1}]	pH 5 verdubbelingstijd Td [uur]	pH 6,4 maximale groeisnelheid μmax [uur^{-1}]	pH 6,4 verdubbelingstijd Td [uur]
Methylocystis	0,0024	290	0,063	11,1
Compost	0,021	23	0,056	12,4

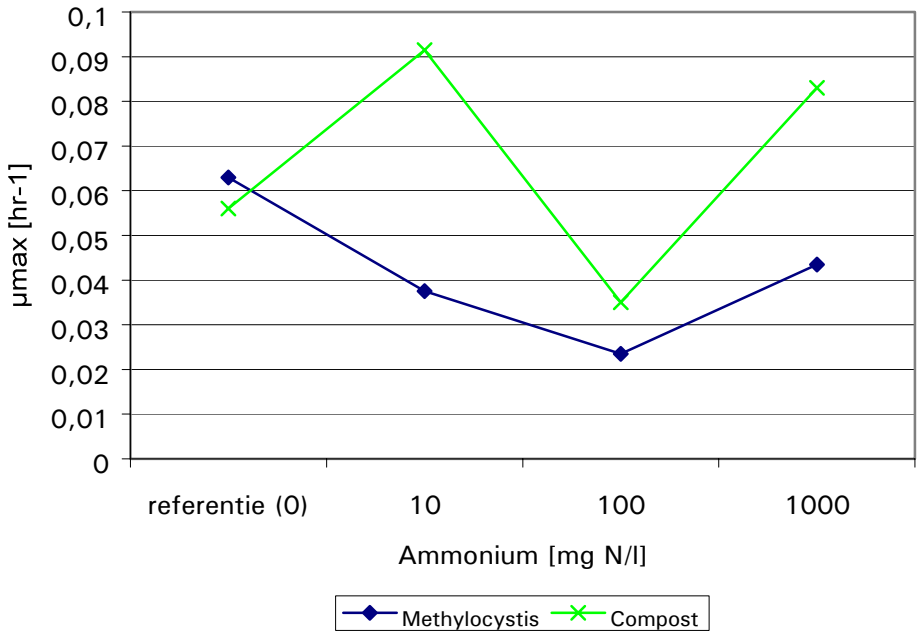
Geconcludeerd wordt dat een pH-verlaging tot pH 5 een sterk remmende werking heeft op de groeisnelheid van de geteste methanotrofen.

De remmende werking is het sterkst op de reinculture *Methylocystis*. Voor deze stam vindt in een periode van 11 dagen slechts een zeer geringe groei plaats. Voor deze stam is de maximale groeisnelheid bepaald hoewel de groeicurve niet volledig is (er treedt nog groei op) en hoewel er geen sprake is van een exponentiële groei. De maximale groeisnelheid van deze stam bedraagt 0,0024 [hr^{-1}] en is een factor 25 lager dan de groei onder pH neutrale condities.

De groei van de mengculture afkomstig van compost wordt tevens geremd bij pH 5. De maximale groeisnelheid bij pH 5 bedraagt 0,021 [hr^{-1}] en is een factor 2,5 lager dan onder pH neutrale condities.

3.5. Bepaling van de invloed van ammonium

In onderstaande figuur zijn de resultaten weergegeven van de groei-experimenten die zijn uitgevoerd om de invloed van de ammoniumconcentratie op de groeisnelheid vast te stellen. Als referentie zijn de resultaten weergegeven van het eerder uitgevoerde groei-experiment (bij 30°C), zie paragraaf 3.2.



Figuur 5. Vaststellen van de invloed van de ammoniumconcentratie op de maximale groeisnelheid μ_{max} van *Methylocystis* en de mengculture afkomstig van compost (uitgevoerd bij 30°C)

Voorafgaand aan en na afloop van de groei-experimenten zijn de concentraties nitraat, ammonium en nitriet bepaald, zie onderstaande tabellen.

Tabel 6. Concentraties nitraat, nitriet en ammonium in groei-experiment *Methylocystis*

(mg N/l)	bij aanvang experiment			na afronden experiment		
Test	NO_3-N	NO_2-N	NH_4-N	NO_3-N	NO_2-N	NH_4-N
Test 10 mg/l NH_4	138	<0,02	11	135	1,4	<2
Test 100 mg/l NH_4	135	<0,02	85	136	0,3	24
Test 1.000 mg/l NH_4	139	<0,02	821	150	1,0	599

Tabel 7. Concentraties nitraat, nitriet en ammonium in groei-experiment compost (in mg N/l)

(mg N/l)	bij aanvang experiment			na afronden experiment		
Test	NO_3-N	NO_2-N	NH_4-N	NO_3-N	NO_2-N	NH_4-N
Test 10 mg/l NH_4	138	<0,02	11	131	4,0	<2
Test 100 mg/l NH_4	135	<0,02	85	134	0,6	27
Test 1.000 mg/l NH_4	143	<0,02	831	143	4,2	779

Verder is voor aanvang en na afronding van het groei-experiment de pH gemeten. In de testen met 10 en 100 mg/l ammonium bedraagt de pH voor aanvang 6,2 (voor beide cultures), in de test met 1.000 mg/l ammonium bedraagt de pH 6,4. Na afronding van de groei-experimenten bedraagt de pH in alle experimenten 6,4.

Op basis van de resultaten van de experimenten wordt geconcludeerd dat groei van de methanotrofen *Methylocystis* en de mengculture afkomstig van compost optreedt tot ammonium concentraties van 1.000 mg/l.

De maximale groeisnelheid van de mengulture afkomstig van compost varieert van 0,035 [hr^{-1}] bij 100 mg/l ammonium tot 0,092 [hr^{-1}] bij 10 mg/l ammonium. Er is voor deze mengculture geen sprake van een structurele daling (of stijging) van de groeisnelheid met toenemende ammoniumconcentratie. Er is geen duidelijke verklaring voor de verschillen in groeisnelheid, maar er is geen sprake van remming van de groei door ammonium.

De bepaalde groeisnelheid van de reinculture *Methylocystis* vertoont een structurele daling met toenemende ammoniumconcentratie. De groei van *Methylocystis* lijkt enigszins te worden geremd bij toenemende ammoniumconcentratie. De remming treedt reeds op vanaf de laagst geteste concentratie van 10 mg N/l ammonium. Deze lage concentratie ammonium heeft in het algemeen geen remmend effect en het is daarom waarschijnlijker dat de remming wordt veroorzaakt door het gevormde nitriet.
In alle uitgevoerde groei-experimenten treedt nitrietvorming op (de eerste stap van de nitrificatie, de omzetting van ammonium naar nitraat), alleen in het experiment bij 1.000 mg/l ammonium met *Methylocystis* treedt nitraatvorming op (volledige nitrificatie).

Samenvattend wordt geconcludeerd dat groei van de methanotrofen *Methylocystis* en de mengculture afkomstig van compost mogelijk is tot de maximaal geteste concentratie van 1.000 mg/l ammonium. Er zijn hierbij geen duidelijke aanwijzingen gevonden dat remming van de groei van de mengculture afkomstig van compost optreedt door ammonium of nitriet (een intermediair dat wordt gevormd bij nitrificatie). De reinculture *Methylocystis* wordt wel enigszins geremd bij hoge ammoniumconcentraties. Deze remming wordt waarschijnlijk met name veroorzaakt door het gevormde nitriet.

4. CONCLUSIES

Op basis van de uitgevoerde experimenten wordt het volgende geconcludeerd:

- De groeisnelheden van de verschillende geteste methanotrofen zijn bij 30°C van vergelijkbare grootte: de reincultuur *Methylomonas methanica* heeft de hoogste groeisnelheid (μ_{max} = 0,116 hr^{-1}) en de groeisnelheid van de overige geteste methanotrofen (*Methylocystis* en twee mengultures afkomstig van actief slib en compost) is enigszins lager, de μ_{max} bedraagt circa 0,06-0,07 hr^{-1};
- De vastgestelde maximale groeisnelheden van de methanotrofen komen goed overeen met de vanuit de literatuur bekende waarden (μ_{max} = 0,1-0,2 hr^{-1});
- De gemiddelde verwijderingssnelheden in de afbraaktesten zijn vergelijkbaar. De maximaal gemeten snelheid bedraagt 8,2-6,0 mg CH_4/g ds.hr. In de looptijd van het experiment (29 uur) vindt een concentratiedaling plaats van ca. 25.000 μg/l (in de gasfase) tot 160 μg/l (*Methylocystis*), 150 μg/l (compost) en 40 μg/l (actief slib);
- Alle vier geteste stammen vertonen conform verwachting een toename van de maximale groeisnelheid bij een toename van de temperatuur. Het effect van de temperatuur is het sterkst op *Methylocystis*, maar voor alle stammen is groei vastgesteld bij de laagst getest temperatuur van 10°C;
- De maximale groeisnelheid van de onderzochte methanotrofen afkomstig van actief slib en compost en de *Methylomonas* verschilt onderling weinig bij de voor biofilters relevante temperaturen van 10-20° en bedraagt 0,02-0,04 [hr^{-1}];
- Een pH-verlaging tot pH 5 heeft een sterk remmende werking heeft op de groeisnelheid van de geteste methanotrofen (*Methylocystis* en compost). De remmende werking is het sterkst op de reinculture *Methylocystis*, de groeisnelheid daalt met een factor 25 ten opzichte van pH neutrale omstandigheden. Voor de mengculture afkomstig van compost wordt de groeisnelheid met een factor 2,5 geremd;
- Groei van de methanotrofen *Methylocystis* en de mengculture afkomstig van compost is vastgesteld tot de maximaal geteste concentratie van 1.000 mg/l ammonium. Er zijn geen duidelijke aanwijzingen gevonden dat remming van de groei van de mengculture optreedt door ammonium of nitriet (een intermediair dat wordt gevormd bij nitrificatie). De groei van *Methylocystis* wordt wel enigszins geremd, waarschijnlijk door nitrietvorming.

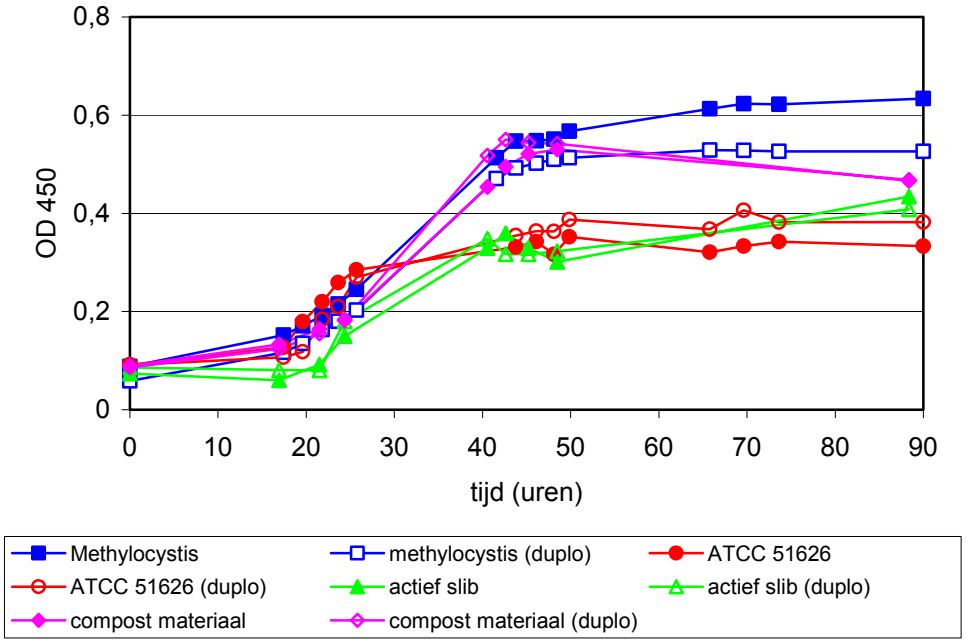
Een van de belangrijkste doelstellingen van het labonderzoek is het aangegeven wat de meest geschikte methanotroof is voor toepassing in een biologisch luchtfilter. Op basis van de resultaten van de experimenten wordt geconcludeerd dat er geen duidelijk verschil is in de groeisnelheid van de geteste reincultures *Methylomonas* en *Metylocystis* en de mengcultures afkomstig van actief slib en compost.

Ook de experimenten die zijn uitgevoerd om de invloed van temperatuur, pH en ammoniumconcentratie op de groeisnelheid vast te stellen tonen aan dat er geen grote onderling verschillen zijn in gevoeligheid. De stam *Methylocystis* is gevoeliger voor een pH-verlaging dan de mengculture afkomstig van compost.

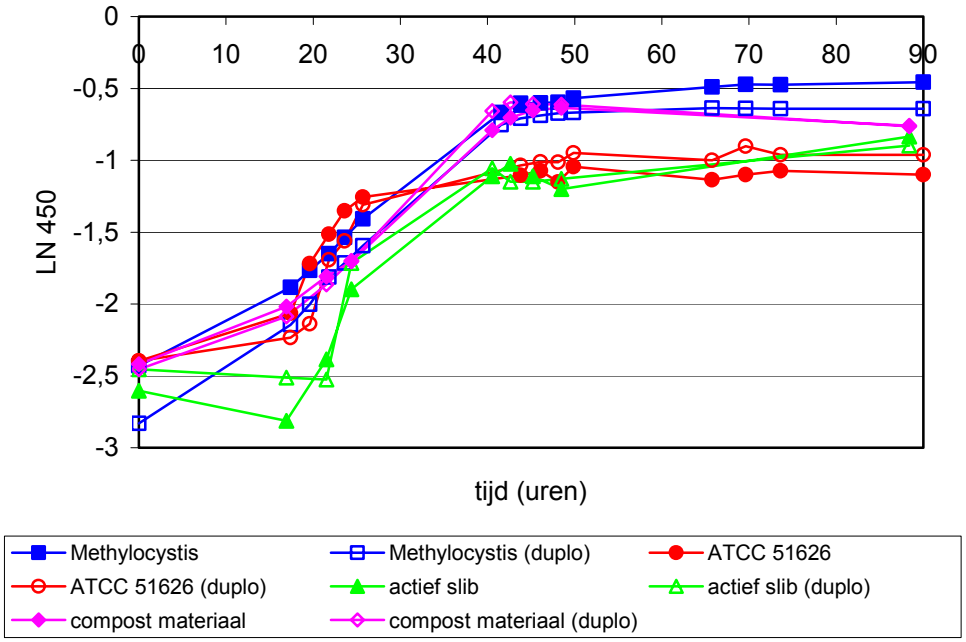
Beënting van compostfilters is met name zinvol om het rendement onmiddellijk na opstart van het filter te verhogen. Op langere termijn (weken tot maanden) is in het algemeen het effect van beënting niet meer meetbaar. In biofilters met een inert dragermateriaal is beënting wel zinvol. Aangezien er geen duidelijke voordelen zijn aan te geven voor het gebruik van (dure) reincultures in een biologisch luchtfilter wordt aanbevolen gebruik te maken van actief slib als entmateriaal (met name voor biofilters met een inerte drager). Indien gebruik wordt gemaakt van een compostfilter wordt beënting niet zinvol geacht.

BIJLAGEN

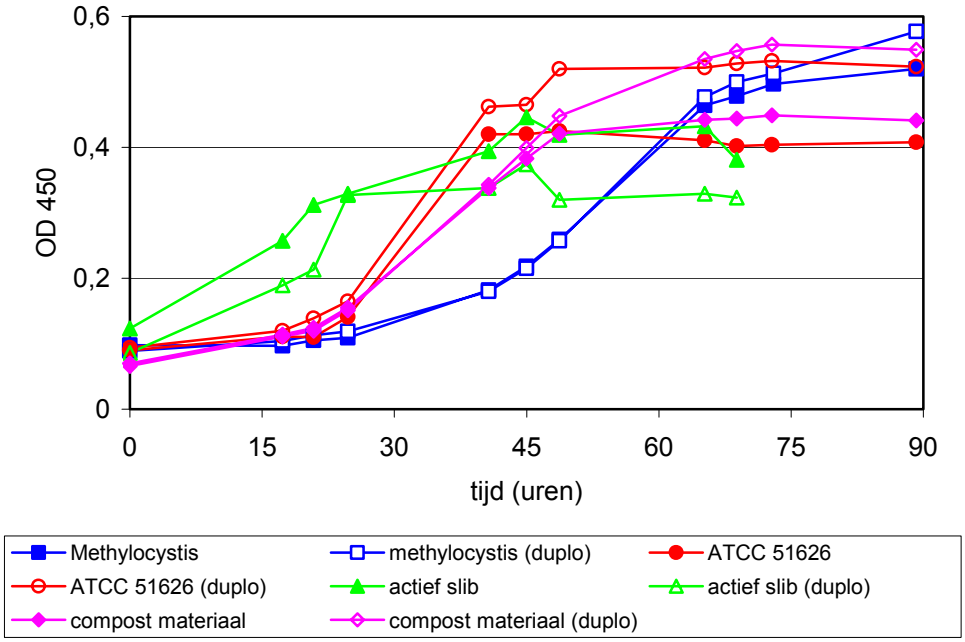
Bijlage 1. Resultaten groei experimenten



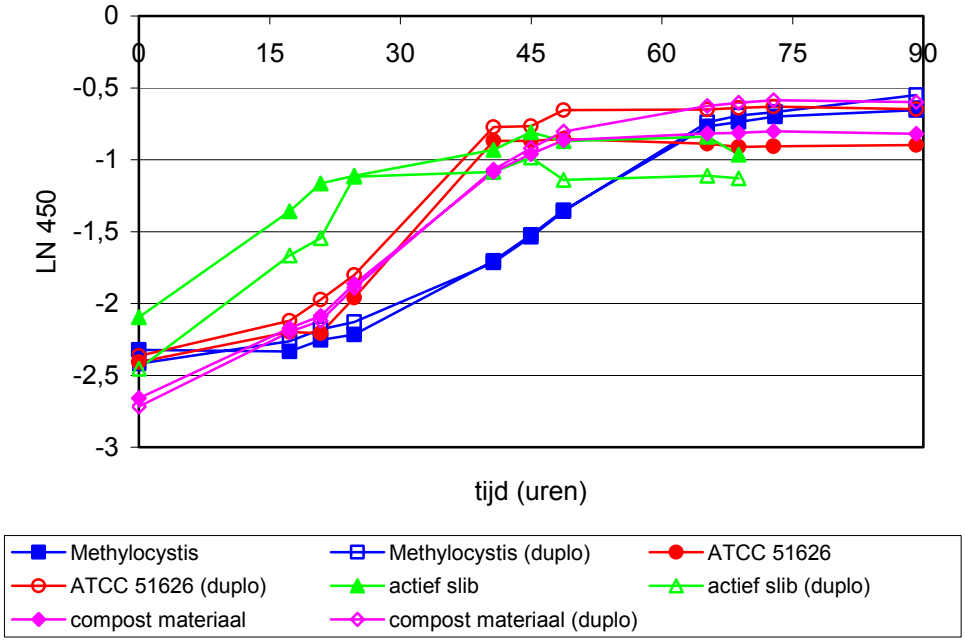
Figuur A1. Verloop groei experiment (OD_{450} tegen tijd) bij 30°C



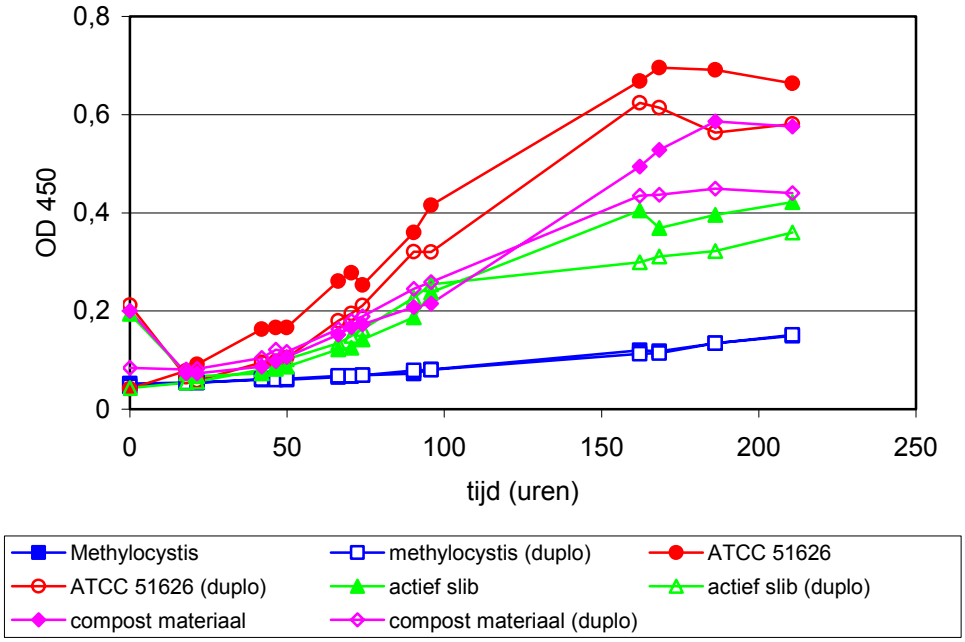
Figuur A2. Verloop groei experiment ($ln(OD_{450})$ tegen tijd) bij 30°C voor bepaling μ_{max}



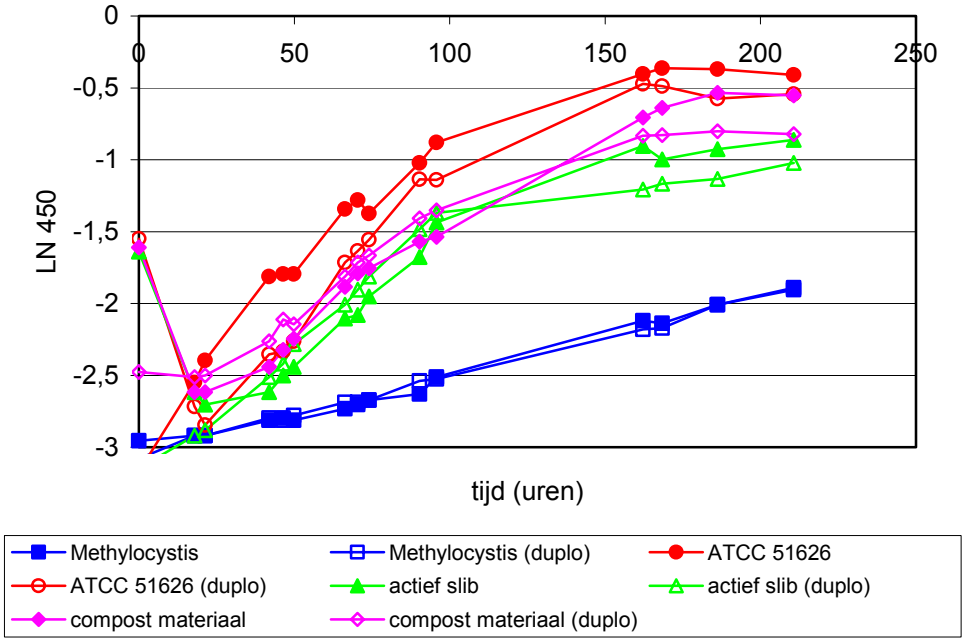
Figuur B1. Verloop groei experiment (OD_{450} tegen tijd) bij 20°C



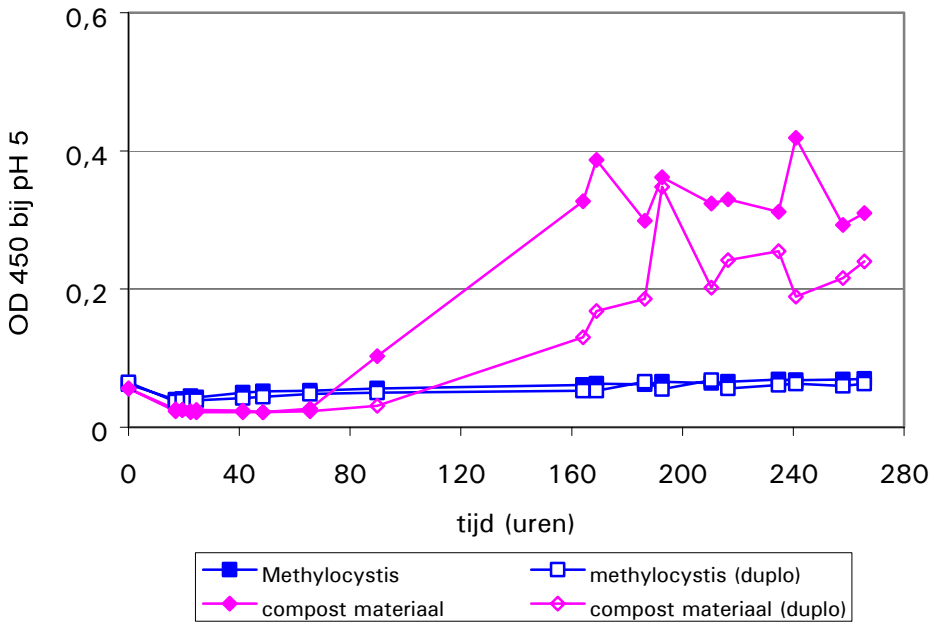
Figuur B2. Verloop groei experiment (ln(OD_{450}) tegen tijd) bij 20°C voor bepaling μ_{max}



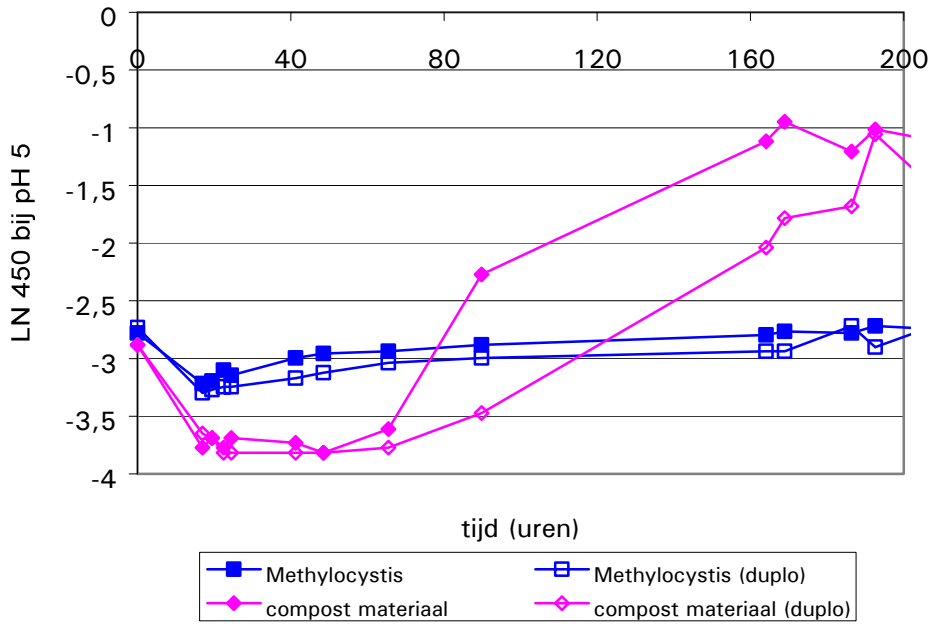
Figuur C1. Verloop groei experiment (OD_{450} tegen tijd) bij 10°C



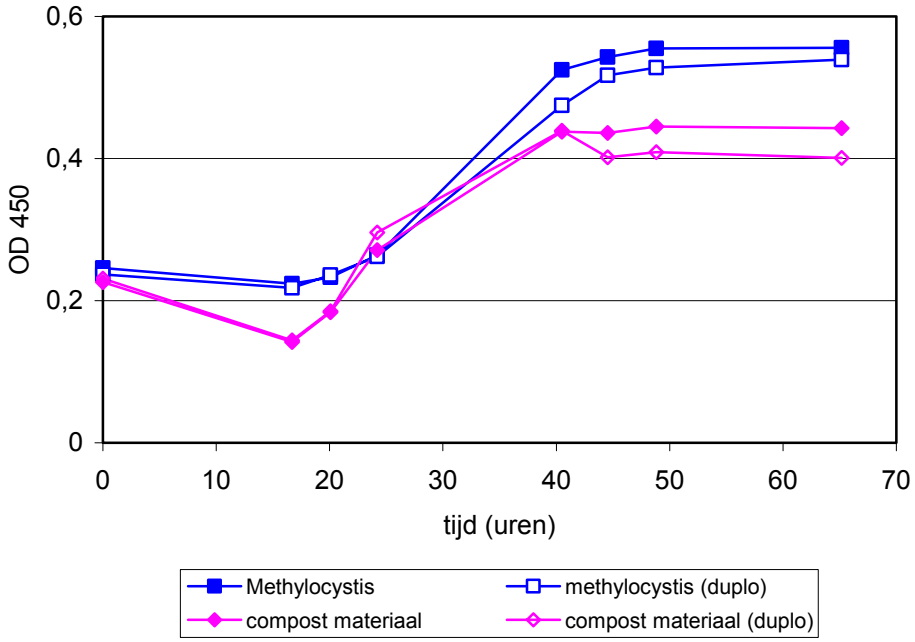
Figuur C2. Verloop groei experiment ($ln(OD_{450})$ tegen tijd) bij 10°C voor bepaling μ_{max}



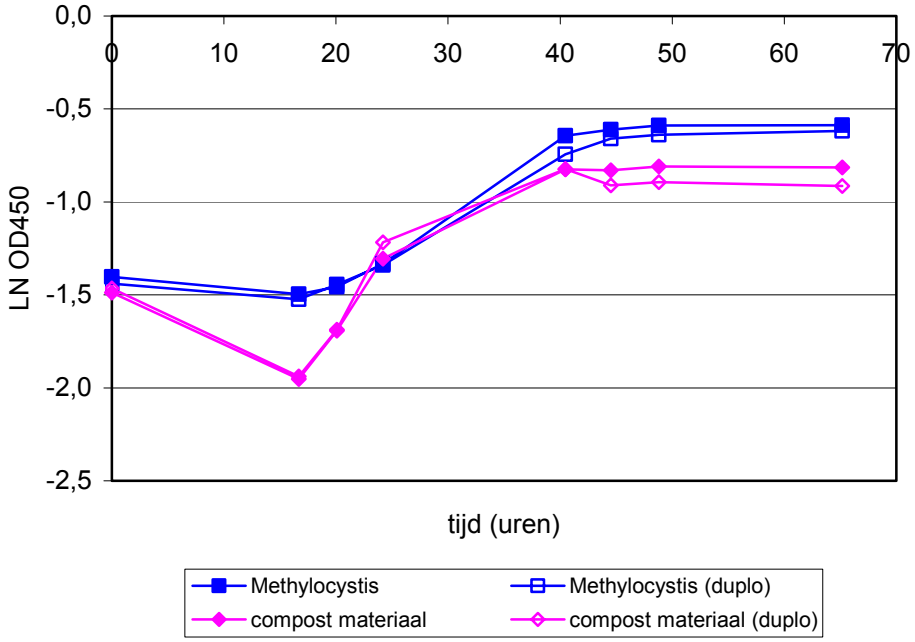
Figuur D1. Verloop groei experiment (OD_{450} tegen tijd) bij pH 5 en 30°C



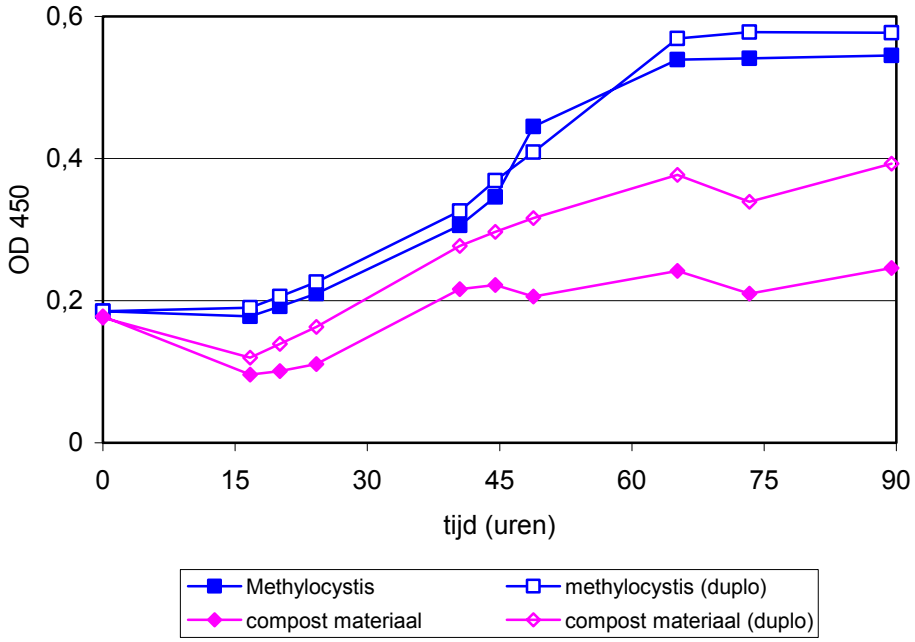
Figuur D2. Verloop groei experiment ($ln(OD_{450})$ tegen tijd) bij pH 5 en 30°C voor bepaling μ_{max}



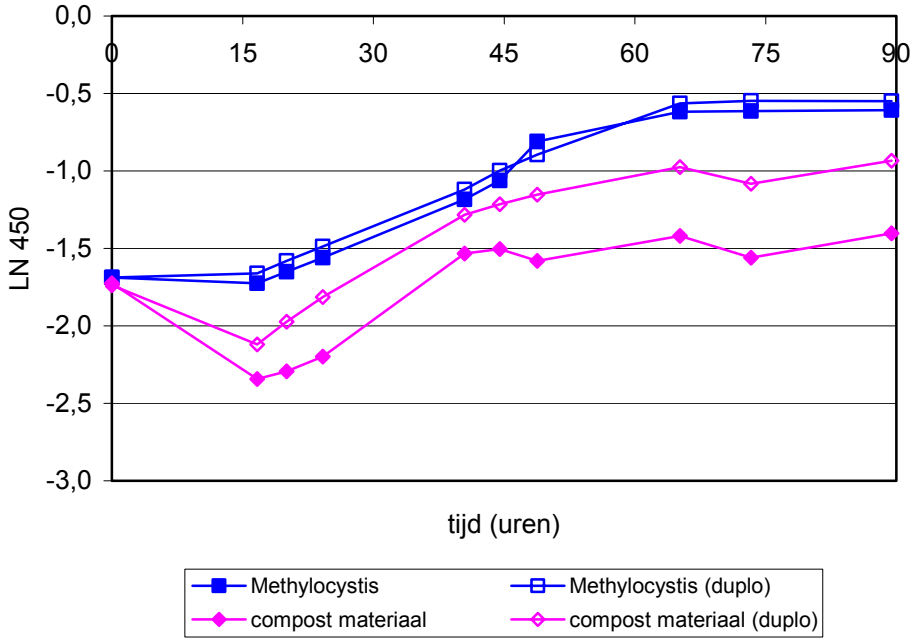
Figuur E1. Verloop groei experiment (OD_{450} tegen tijd) bij 10 mg/l NH_4-N (30°C)



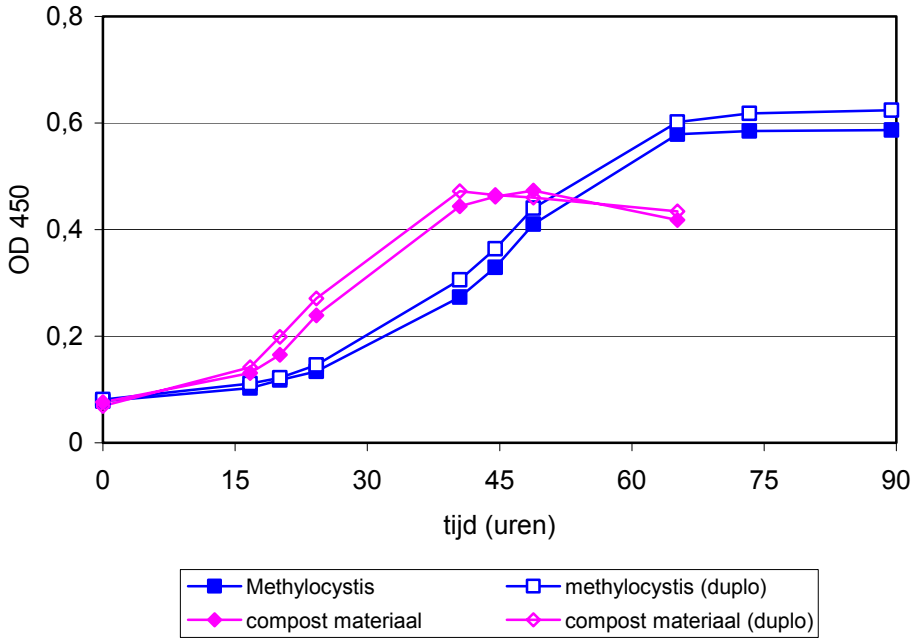
Figuur E2. Verloop groei experiment ($ln(OD_{450})$ tegen tijd) bij 10 mg/l NH_4-N (30°C) voor bepaling μ_{max}



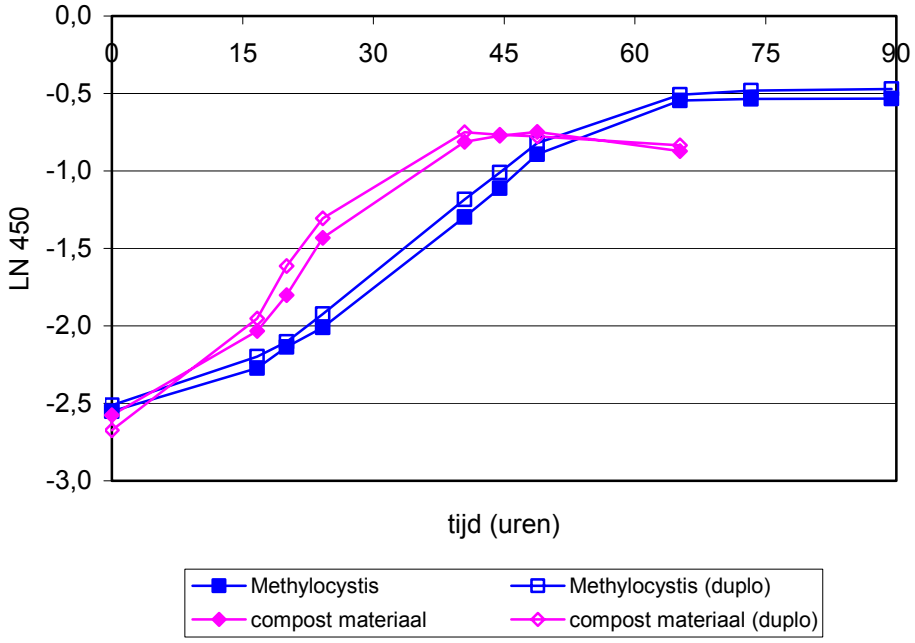
Figuur F1. Verloop groei experiment (OD_{450} tegen tijd) bij 100 mg/l NH_4-N (30°C)



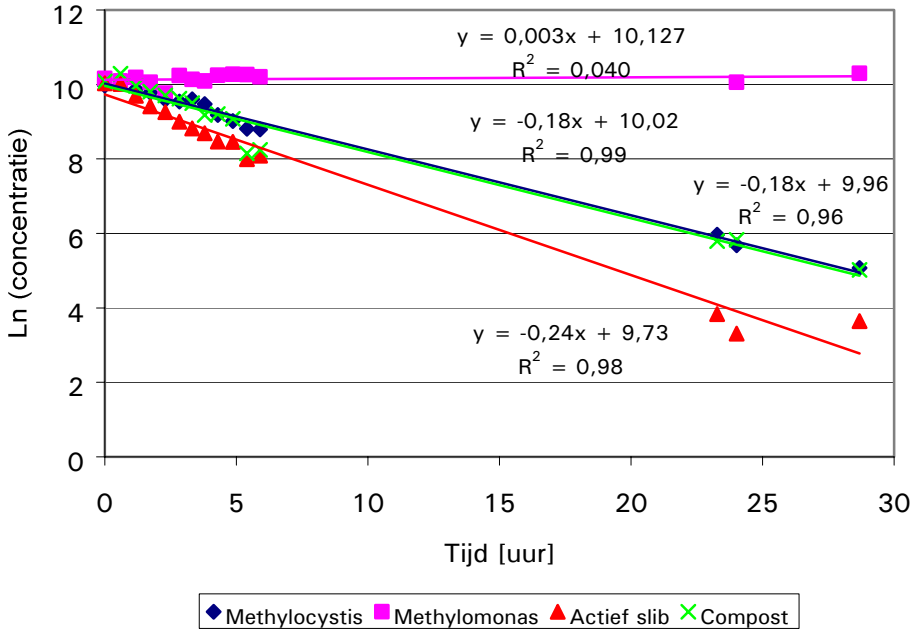
Figuur F2. Verloop groei experiment ($ln(OD_{450})$ tegen tijd) bij 100 mg/l NH_4-N (30°C) voor bepaling μ_{max}



Figuur G1. Verloop groei experiment (OD_{450} tegen tijd) bij 1.000 mg/l NH_4-N (30°C)



Figuur G2. Verloop groei experiment ($ln(OD_{450})$ tegen tijd) bij 1.000 mg/l NH_4-N (30°C) voor bepaling μ_{max}



Figuur H. Verloop afbraakexperiment (ln(concentratie) tegen tijd)

Bijlage 3 - Rapportage fase 3:

Verwijdering van methaan uit ventilatielucht van een drijfmestopslag met een pilot-scale biofilter (Melse, 2003).

Verwijdering van methaan uit ventilatielucht van een drijfmestopslag met een pilot-scale biofilter

Deelrapportage van onderzoek uitgevoerd in opdracht van Novem (subsidieprogramma ROB-AGRO; projectnummer: 375102/0010) en van het Ministerie van Landbouw, Natuurbeheer en Visserij

R.W. Melse

april 2003

Nota P 2003-20

Verwijdering van methaan uit ventilatielucht van een drijfmestopslag met een pilot-scale biofilter

R.W. Melse

april 2003

Nota P 2003-20

© 2003
Instituut voor Milieu- en Agritechniek (IMAG)
Mansholtlaan 10-12, Postbus 43, 6700 AA Wageningen
Telefoon 0317 – 476300
Telefax 0317 – 425670
www.imag.wageningen-ur.nl

Interne mededeling IMAG. Niets uit deze nota mag elders worden vermeld, of vermenigvuldigd op welke wijze dan ook, zonder voorafgaande schriftelijke toestemming van IMAG of de opdrachtgever. Bronvermelding zonder de feitelijke inhoud is evenwel toegestaan, op voorwaarde van de volledige vermelding van: auteursnaam, instituut en notanummer en de toevoeging: 'niet gepubliceerd'.

All rights reserved. No part of this publication may be reproduced, stored in a retrieval system of any nature, in any form or by any means, electronic, mechanical, photocopying or otherwise, without the prior written permission of IMAG.

INHOUD

SAMENVATTING			4
SUMMARY			5
1	INLEIDING		6
	1.1	Probleemstelling	6
	1.2	Doelstelling	6
	1.3	Financiering en projectstructuur	6
2	EIGENSCHAPPEN VENTILATIELUCHT		8
	2.1	Inleiding	8
	2.2	Ventilatielucht van stallen	8
	2.3	Ventilatielucht van buitengelegen mestopslagen	9
3	VOORAFGAAND ONDERZOEK		11
	3.1	Inleiding	11
	3.2	Principe van biologische luchtreiniging	11
	3.3	Fase 1: Literatuurstudie	12
	3.4	Fase 2: Microbiologisch laboratoriumonderzoek	13
	3.5	Ontwerp pilot-scale biofilter	14
4	MATERIAAL EN METHODEN		15
	4.1	Onderzoeksopzet	15
	4.2	Beschrijving biofilter	15
	4.3	Metingen en analyses	17
	4.4	Samenstelling filtermateriaal	18
5	RESULTATEN EN DISCUSSIE		20
	5.1	Methaanverwijdering en luchtbelasting	20
	5.2	Lachgas	22
	5.3	Totale hoeveelheid broeikasgassen	23
	5.4	Ammoniak, waterstofsulfide en geur	26
	5.5	Temperatuur en relatieve vochtigheid	27
	5.6	Drukval	29
	5.7	Samenstelling filtermateriaal	30

5.8 Analyse van resultaten 31
5.9 Rekenvoorbeeld 36

6 CONCLUSIES 39

7 AANBEVELINGEN VOOR NADER ONDERZOEK 40

LITERATUUR 42

SAMENVATTING

Methaan (CH_4) is een zeer sterk broeikasgas (21 maal zo sterk als CO_2). De veehouderij is verantwoordelijk voor een betrekkelijk hoge emissie van methaan. Het doel van het onderzoek is het ontwikkelen van een biologische luchtbehandelingsinstallatie om de emissie van methaan uit mestopslagen en stallen te reduceren. Gedurende 2 maanden wordt in een biofilter de verwijdering van methaan uit ventilatielucht van een drijfmestopslag getest. Het biofilter heeft een volume van 162 liter, is gevuld met een compost/perliet mengsel en wordt met actief slib geënt. Aangetoond wordt dat methaan succesvol verwijderd kan worden met biofiltratie. Na een opstartperiode van ongeveer 2 weken wordt een verwijdering tot 85% gerealiseerd. Het biofilter dat hiervoor nodig is, is eenvoudig van uitvoering en behoeft nauwelijks processturing. Tijdens het onderzoek varieert de methaanconcentratie van de te behandelen lucht tussen 500 en 5.500 mg/m^3 en varieert de luchtbelasting van het filter tussen 0,75 en 8,5 m^3/m^3 filtermateriaal/uur. De methaanverwijdering van het biofilter (g/m^3 filtermateriaal/uur) blijkt recht evenredig te zijn met de methaanconcentratie (g/m^3) van de ingaande lucht. Dit wordt veroorzaakt door de lage wateroplosbaarheid van methaan. In reguliere biofilters, waarbij redelijk tot goed oplosbare stoffen worden afgebroken, wordt dit verband niet gevonden maar hangt de verwijdering (g/m^3 filtermateriaal/uur) meestal af van de belasting (g/m^3 filtermateriaal/uur) van de te verwijderen component oftewel het product van concentratie en luchtdebiet. Uitgaand van een bepaalde gewenste methaanverwijdering (%) betekent het gevonden verband: hoe hoger de methaanconcentratie van de ingaande lucht, hoe kleiner het benodigde biofilter. De methaanconcentratie van de ventilatielucht van de mestopslag kan in principe ingesteld worden door het afregelen van het ventilatiedebiet en het openen of sluiten van aanwezige ventilatieopeningen in de afdekking van de mestopslag.
Een rekenvoorbeeld leert dat voor een mestopslag van 1000 m^3 en een methaanverwijdering van 50%, een biofilter nodig is met een volume van 20 - 80 m^3 (mits de methaanconcentratie voldoende hoog ingesteld wordt). Het benodigde grondoppervlak bedraagt ongeveer 1/3 m^2 per m^3 biofiltervolume.
Behalve methaan worden ook andere verbindingen uit de lucht verwijderd. De verwijdering van ammoniak (NH_3) uit de ventilatielucht bedraagt 90 - 100%. De verwijdering van waterstofsulfide (H_2S) uit de ventilatielucht bedraagt 100%. Het geurkarakter van de ventilatielucht verandert door het biofilter van 'mestlucht' in 'bosgeur'.
De behandeling van stallucht in een biofilter wordt niet haalbaar geacht aangezien de methaanconcentratie van stallucht vele malen lager is dan de lucht uit een mestopslag. Alleen wanneer een biofilter wordt ontwikkeld met een hoge oplosbaarheid van methaan, kan stallucht worden behandeld in een biofilter van beperkte omvang.

SUMMARY

Methane (CH_4) is a very potent greenhouse gas (21 times stronger than CO_2). Livestock farming is responsible for a considerable high emission of methane. The aim of this research is to develop a biological air treatment system that is capable of removing methane from exhaust air from liquid manure storages and from animal houses.

The removal of methane from exhaust air from a liquid manure storage tank is tested during a period of 2 months using a biofilter. The volume of the biofilter is 162 litres and as filter medium a mixture of compost and perlite is used. The filter medium is inoculated with active sludge.

The experiments show that methane can be removed successfully with biofiltration. After a start-up period of about 2 weeks a methane removal up to 85% is achieved. The biofilter that is used has a simple design and hardly needs any process control. During the experiments the methane concentration of the treated air ranges from 500 to 5,500 mg/m^3; the air flow ranges from 0.75 en 8.5 m^3/m^3 medium/hour.

The methane removal (g/m^3 filter medium/hour) appears to be directly proportional to the methane concentration (g/m^3) of the inlet air of the biofilter. This is the result of the poor water solubility of methane. In regular biofilters, that treat moderate to very well soluble components, component removal (g/m^3 filter medium/hour) depends on the load of the component (g/m^3 filter medium/hour), not on the concentration of the component. Assuming a desired methane removal (%), the size of the required biofilter is inversely proportional to the inlet methane concentration.

The methane concentration of the exhaust air from the manure storage tank can be set by adjusting the air flow and by closing or opening exhaust holes in the cover of the manure storage tank.

An example calculation shows that a biofilter of 20 - 80 m^3 is required to achieve a methane removal of 50% from exhaust air of a 1,000 m^3 manure storage tank (assuming methane concentration of exhaust can be adjusted). The required surface area is about 1/3 m^2 per m^3 of biofilter volume.

Besides methane also other compounds are removed from the exhaust air. The removal of ammonia (NH_3) is 90 - 100% and the removal of hydrogensulphide (H_2S) is 100%. The odour characteristics of the air change from the smell of 'manure' to the smell of 'forest soil'.

Treatment of exhaust air from pig or cow barns is considered unfeasible as a results of the very low methane concentration in this air. Only if the solubility of methane can be increased this air can be treated in a biofilter of confined size.

1 INLEIDING

1.1 Probleemstelling

De Nederlandse veestapel is verantwoordelijk voor een betrekkelijk hoge emissie van overige broeikasgassen[1]. De broeikasgasemissie bestaat voornamelijk uit methaan (CH_4) en bedraagt ca. 10 Mton CO_2-eq. per jaar. Tachtig procent van deze emissie (8 Mton CO_2-eq.) is afkomstig van pensvergisting in herkauwers (hoofdzakelijk koeien) en twintig procent (2 Mton CO_2-eq.) is afkomstig van vergistingsprocessen die plaatsvinden gedurende mestopslag, zowel onder de stal als in opslagen buiten de stal (RIVM & CBS, 2001).
Reiniging van ventilatielucht van stallen (d.w.z. emissies uit de mestopslag onder de stal en rechtstreekse emissies uit het dier) en van ventilatielucht van externe mestopslagen heeft daarom een hoog potentieel voor reductie van emissie van overige broeikasgassen. Op dit moment is er echter geen 'methaanfilter' commercieel beschikbaar.

1.2 Doelstelling

Het doel van het project is het ontwikkelen van een biologisch luchtfilter dat gebruikt kan worden voor verwijdering van methaan uit lucht afkomstig van stallen en/of mestopslagen. Er wordt gestreefd naar het bereiken van een reductie van de emissie van broeikasgassen van ten minste 50%.

1.3 Financiering en projectstructuur

De uitvoering van dit project is mogelijk gemaakt door financiering van Novem in het kader van het Besluit milieusubsidies Subsidieregeling Reductie Overige Broeikasgassen (ROB-AGRO projectnummer: 375102/0010) en van het Ministerie van Landbouw, Natuurbeheer en Visserij (Vrije ruimte programma 309, 'Gasvormige emissies in de veehouderij').
Het project is uitgevoerd door een consortium van IMAG (subsidieaanvrager), Stork-SPE (projectpartner) en Bioclear (derde). IMAG is penvoerder van het project en belast met de projectcoördinatie en rapportage. Het project bestaat uit vier verschillende fasen:

** Fase 1: Literatuurstudie*
In deze fase wordt de informatie die uit de literatuur bekend is met betrekking tot de biologische afbraak van methaan en de daarvoor geschikte behandelingstechnieken in kaart gebracht. De behandelingstechnieken worden geëvalueerd om te bepalen welke techniek het meest geschikt is voor de behandeling van methaan uit lucht van stallen en/of mestopslagen. Fase 1 is uitgevoerd door Bioclear in opdracht van IMAG. De resultaten van Fase 1 zijn gepubliceerd in Bemmel & Werf (2002).

[1] Met 'overige broeikasgassen' worden alle broeikasgassen behalve CO_2 bedoeld.

** Fase 2: Microbiologisch laboratoriumonderzoek*

In Fase 2 worden verschillende bacteriestammen onderzocht die methaan afbreken tot CO_2 (groeisnelheid, afbraaksnelheid methaan, gevoeligheid voor omgevingsomstandigheden etc.) zodat een geschikte stam kan geselecteerd worden voor toepassing in een biologisch filter. Fase 2 is uitgevoerd door Bioclear in opdracht van IMAG. De resultaten van Fase 2 zijn gepubliceerd in Werf (2002).

** Fase 3: Bouw van en onderzoek aan pilot-scale filterinstallatie*

In Fase 3 wordt op grond van de resultaten uit Fase 1 en Fase 2 een pilot-scale filterinstallatie ontworpen en gebouwd. Het onderzoek dat aan de filterinstallatie uitgevoerd wordt, is gericht op het op kleine schaal testen van het luchtbehandelingssysteem en vast te stellen wat de maximale belasting van het biofilter is. Fase 3 is uitgevoerd door IMAG; de resultaten van Fase 3 worden in onderliggend rapport beschreven.

** Fase 4: Deskstudie naar technische en economische haalbaarheid*

Op grond van de voorafgaande projectfasen wordt tenslotte in een bureaustudie de technische en economische haalbaarheid van een full-scale luchtfilterinstallatie beschreven. Deze studie is uitgevoerd door Stork-SPE (projectpartner) en is gepubliceerd in Brunink (2002).

2 EIGENSCHAPPEN VENTILATIELUCHT

2.1 Inleiding

In onderliggend onderzoek wordt getracht een biologisch luchtfilter te ontwerpen dat geschikt is voor de behandeling van ventilatielucht afkomstig van stallen en/of mestopslagen. De eigenschappen van deze ventilatielucht worden hieronder beschreven.

2.2 Ventilatielucht van stallen

In het verleden zijn veel metingen uitgevoerd aan de ventilatielucht van stallen en de lucht in stallen. De concentratie van de aanwezige verbindingen hangt af van diersoort, huisvestingssysteem, ventilatiedebiet en andere management aspecten. Voor varkens- en koeienstallen geldt dat er vaak een mestkelder met drijfmest aanwezig is onder de stal die in open verbinding staat met de stal zelf. De lucht in de stal is een mengsel van buitenlucht die door het ventilatiesysteem wordt aangevoerd en gasvormige verbindingen die emitteren uit de mestkelder en de dieren (pensvergisting). In Tabel 1 wordt een overzicht gegeven van de eigenschappen van ventilatielucht uit koeien- en varkensstallen.

Tabel 1 Eigenschappen van ventilatielucht uit stallen (koeien en varkens)[1]

Component, eigenschap	Eenheid	Waarde
CH_4	ppm	10 - 160
NH_3	ppm	5 - 50; Nederland: 2 - 20
H_2S	ppm	0 - 100
CO_2	ppm	400 - 4,000
N_2O	ppm	0.3 - 3
Geur	Odour Unit/m^3 (OU_E/m^3)	1,000 - 5,000
Temperatuur	°C	15 - 25
Relatieve vochtigheid	%	50 - 80

[1] Bron: Anderson *et al.*, 1987; Schulte, 1997; Guingand *et al.*, 1997; Groot Koerkamp, 1997; referenties uit Meyer & Manbeck, 1986; Ogink & Lens, 2000.

Varkenstallen zijn gewoonlijk gesloten ruimten die mechanisch geventileerd worden. het ventilatiedebiet varieert van 20 - 240 m^3/zeug/uur (gemiddeld: 100 m^3/zeug/uur) tot 10 - 90 m^3/vleesvarken/uur (gemiddeld: 35 m^3/vleesvarken/uur) (Mol, 2003).
Melkveestallen zijn meestal gedeeltelijk open gebouwen met een 'natuurlijk' ventilatiesysteem: buitenlucht stroomt onder invloed van windsnelheid en -richting door het gebouw. Het ventilatiedebiet bedraagt, afhankelijk van de wind, 750 - 3.000 m^3/koe/uur. Als minimumventilatie die nodig is om voldoende warmte uit de stal af te voeren wordt een ventilatiedebiet van 750 m^3/koe/uur gehanteerd (Asijee, 1993).

2.3 Ventilatielucht van buitengelegen mestopslagen

Wanneer niet voldoende mestopslagcapaciteit beschikbaar is onder de stal, wordt de drijfmest gewoonlijk opgeslagen in een tank of silo die op het bedrijf is gelegen. In Nederland moeten mestopslagen afgedekt zijn en is op een veehouderijbedrijf gewoonlijk mestopslagcapaciteit aanwezig voor een periode van ongeveer 6 maanden, aangezien er geen mest op het land aangewend mag worden in de periode van augustus tot februari. De omvang van dergelijke mestopslagen varieert gewoonlijk van 500 tot 1.500 m^3. Wanneer de opslag 6 maanden per jaar gebruikt wordt, is een opslag van 1000 m^3 genoeg voor de mestproductie van ongeveer 1700 vleesvarkensplaatsen. Tabel 2 vermeldt een aantal metingen aan de headspace van een aantal afgedekte drijfmestopslagtanks.

Tabel 2 Eigenschappen van lucht in headspace van afgedekte drijfmestopslagtank (koeien- en varkensdrijfmest)[1]

Component, eigenschap	Eenheid	Waarde
CH_4	ppm	200 - 33,000 [2]
NH_3	ppm	1 - 71
H_2S	ppm	0 - 4,100
CO_2	ppm	400 - 4,000
N_2O	ppm	100 - 150,000
N_2	vol%	60 - 81
O_2	vol%	15 - 22
Temperatuur	°C	10 - 16 [3]
Relatieve vochtigheid	%	100

[1] Bron: Uenk *et al.*, 1993; Williams & Nigro, 1997.
[2] Wanneer ventilatie nul is, kan methaangehalte oplopen tot biogas: 65 vol% of 650.000 ppm.
[3] Gelijk aan gemiddelde buitentemperatuur.

In een aantal studies worden behalve de methaanconcentratie ook de emissies van methaan uit drijfmestopslagen gemeten. Een aantal van deze metingen wordt in Tabel 3 gegeven. Behalve door de temperatuur,wordt de emissie van CH_4 uit een mestopslag sterk beïnvloed door het organische stof gehalte en de leeftijd ('versheid') van de mest.

Tabel 3 Methaanemissie uit drijfmestopslagtanks bij verschillende temperatuur (koeien- en varkensmest)

Bron	Temperatuur	CH4 emissie ($g/m^3/dag$)	
		Varkens	Koeien
Williams & Nigro, 1997:	4°C	6	18
	11°C	4	36
	18°C	46	61
Hansen, s.a.:	4°C	6	2.4
	10°C	16	6
	15°C	40	12
Husted, 1994:	buitentemperatuur (jaarrrond)	0.4 - 35.8	0.0 - 34.5

3 VOORAFGAAND ONDERZOEK

3.1 Inleiding

De opzet van het onderzoek aan de pilot-scale filterinstallatie is gebaseerd op de resultaten van Fase 1 en Fase 2 (zie hoofdstuk 1.3 voor de projectstructuur). Hieronder worden de belangrijkste resultaten van Fase 1 en Fase 2 besproken en aangegeven wordt wat dit betekent voor het ontwerp van de pilot-scale luchtfilterinstallatie.

3.2 Principe van biologische luchtreiniging

3.2.1 Bacteriën

In een biologisch luchtfilter wordt lucht, waarin zich ongewenste verbindingen bevinden, door een poreus drager- of filtermateriaal geleid waarop zich bacteriën bevinden.
In de eerste plaats moeten er dus bacteriën aanwezig zijn die in staat zijn om de ongewenste verbinding(en) te kunnen omzetten. Veel verbindingen kunnen microbiologisch omgezet worden en in het algemeen is het geen probleem om de juiste bacteriën te verkrijgen: wanneer het dragermateriaal in het luchtfilter word geënt met een mengsel van verschillende soorten bacteriën (bijv. actief slib uit een aërobe rioolwaterzuiveringsinstallatie) en vervolgens wordt blootgesteld aan de te verwijderen componenten (= substraat) blijven op den duur juist die bacteriën over die de aangeboden component kunnen omzetten. De bacteriën die onder aërobe omstandigheden methaan kunnen oxideren worden methanotrofen genoemd.
De condities in het systeem (voedingsstoffen, spore-elementen, pH, temperatuur etc.) moeten dusdanig zijn dat de bacterie goed kan functioneren.

3.2.2 Massatransport

In de tweede plaats moet de af te breken verbinding van de gasfase naar de waterfase worden getransporteerd. De bacteriën leven in een waterig milieu en kunnen de af te breken verbinding alleen omzetten wanneer deze in de waterfase terechtkomt.
De belangrijkste factoren waardoor de snelheid van dit massatransport wordt bepaald, worden hieronder toegelicht.

a) Contactoppervlak gasfase-waterfase.
De snelheid van het massatransport is recht evenredig met de grootte van het contactoppervlak gasfase-waterfase. De grootte van dit oppervlak wordt bepaald door het volume (m^3) en specifiek oppervlak van het dragermateriaal waarop de bacteriën zich bevinden (m^2 oppervlak/m^3 reactor), in combinatie met de manier waarop gas en water met elkaar in contact worden gebracht

(druppelen, versproeien etc.). Compost heeft een relatief hoog specifiek oppervlak (ca. 1.500 m^2/m^3).

b) Oplosbaarheid van verbinding

De wateroplosbaarheid van een verbinding is van groot belang voor de overdracht van de verbinding van de gasfase naar de waterfase. In een evenwichtssituatie is de concentratie van de component in de waterfase recht evenredig met de concentratie van de component in de gasfase volgens de wet van Henry. Wanneer de concentratie van de verbinding in de lucht hoger wordt, zal de concentratie van de verbinding in de waterfase dus evenredig hoger worden. Hierdoor wordt de hoeveelheid substraat die voor de bacteriën beschikbaar is en afgebroken kan worden eveneens hoger aangezien de bacteriën hun substraat opnemen uit de waterfase. De hoeveelheid van de verbinding die door de bacteriën verwijderd wordt zal dus toenemen.
De Henry constante van methaan (C_{water}/C_{lucht}) is relatief laag en bedraagt circa 1,5 x 10^{-3} (mol/l)/atm (Sander, 1999) oftewel 3,7 x 10^{-2} $(kg/m^3)/(kg/m^3)$; methaan wordt daarom beschouwd als een slecht wateroplosbare stof. Bij een methaanconcentratie in de gasfase van bijvoorbeeld 5.000 mg/m^3 bedraagt de methaanconcentratie die hiermee in evenwicht is in de waterfase dus 0,19 mg/l. In plaats van Henry constante wordt ook wel de verdelingscoefficent m_{lw} gehanteerd die gelijk is de reciproque waarde van de Henry constante.
Wanneer in een biofilter een goed oplosbare stof (hoge Henry constante) wordt verwijderd uit de luchtstroom, hangt de afbraak enerzijds af van de hoeveelheid substraat die wordt aangeboden (vracht) en anderzijds van de afbraakcapaciteit van de aanwezige biomassa. De verwijdering van de component zal dan niet beperkt worden door de oplosbaarheid van component.

c) Contacttijd gasfase-waterfase

Om massatransport te laten plaatsvinden moet er gedurende enige tijd contact zijn tussen de gasfase en de waterfase. In de praktijk wordt deze contacttijd gekwantificeerd als superficiële luchtverblijftijd (volume reactor (m^3) : luchtdebiet (m^3/uur)) of als luchtbelasting (m^3 lucht/m^3 reactor/uur). In de praktijk betekent een lange luchtverblijftijd meestal dat de verhouding gasdebiet / waterdebiet klein is en dat de vracht van de af te breken component laag is. Om een hoog verwijderingsrendement te verkrijgen wordt daarom voor slecht oplosbare verbindingen meestal een lange luchtverblijftijd gehanteerd.

3.3 Fase 1: Literatuurstudie

Uit de literatuur zijn geen onderzoeken bekend waarbij het doel is methaan te verwijderen uit ventilatielucht van stallen of mestopslagen. In een aantal biofilters die ontworpen zijn voor de verwijdering van ammoniak of geur uit stallucht is wel gemeten aan methaanverwijdering. De

methaanverwijdering blijkt in die gevallen zeer laag te zijn als gevolg van de lage oplosbaarheid van methaan.
Er is wel een aantal toepassingen bekend waarbij methaanhoudend afgas van een vuilstortplaats wordt behandeld in een biofilter. In vergelijking met ventilatielucht van stallen is de methaanconcentratie in stortgas echter vele malen hoger.
Als gevolg van de relatief lage concentratie van methaan in stallucht (zie Tabel 1) wordt geconcludeerd dat praktische toepassing van een biologische filterinstallatie voor deze luchtstroom niet mogelijk is. De omvang van een dergelijke filterinstallatie zou namelijk enige tienduizenden m^3 bedragen. Behandeling van ventilatielucht uit mestopslagen biedt wel praktische perspectieven aangezien de omvang van een dergelijk filter vele malen lager zal zijn als gevolg van de veel hogere methaanconcentratie.
Verschillende biologische technieken en dragermaterialen worden geëvalueerd. Geconcludeerd wordt dat een biofilter (dragermateriaal: mengsel compost/perliet) of een biotricklingfilter (dragermateriaal: plastic pakkingsringen of polyurethaan) het meest geschikt is voor de behandeling van lucht uit een mestopslag.
Er worden geen problemen verwacht met betrekking tot verzuring van een biofilter of biotricklingfilter als gevolg van oxidatie van NH_3 en H_2S aangezien de vracht van deze componenten 100 zo laag is als de vracht die nog juist acceptabel wordt geacht voor een biofilter of biotricklingfilter.
In Bemmel & Werf (2002) worden de resultaten van het onderzoek uitgebreid beschreven.

3.4 Fase 2: Microbiologisch laboratoriumonderzoek

In het microbiologisch onderzoek worden vier bacterieculturen beschouwd: twee reinculturen en twee mengculturen. De mengculturen zijn afkomstig van een rioolwaterzuiveringsinstallatie (actief slib monster) en een compostfilter dat stortgas behandelt. In een biofilter met een inert dragermateriaal is beënting met een bacteriestam noodzakelijk. In een biofilter met compost als dragermateriaal is beënting met name zinvol om onmiddelijk na opstart het rendement te verhogen; op lange termijn is het effect van beënting in het algemeen niet meetbaar.
Uit het onderzoek blijkt dat er geen duidelijk verschil is tussen de groeisnelheid van de geteste reinculturen en de mengculuren. Ook met betrekking tot de invloed van temperatuur, pH en ammoniumconcentratie op de groeisnelheid zijn er geen grote verschillen tussen de bacteriestammen.
Aangezien er geen duidelijke voordelen zijn aangetoond van het gebruik van (dure) reinculturen wordt aanbevolen gebruik te maken van actief slib als bacterieel entmateriaal van een biologisch luchtfilter.
In Werf (2002) worden de resultaten van het onderzoek uitgebreid beschreven.

3.5 Ontwerp pilot-scale biofilter

Op grond van de literatuurstudie en het microbiologisch onderzoek worden de volgende uitgangspunten gehanteerd voor het onderzoek aan een pilot-scale luchtfilterinstallatie:

- Luchtstroom

Vanwege de lage methaanconcentraties in stallucht wordt verwacht dat de omvang van een biofilter voor deze toepassing extreem groot zal worden. Daarom wordt besloten het pilot-onderzoek te richten op ventilatielucht van een mestopslag. Er wordt gekozen voor een mestopslag gevuld met varkensdrijfmest.
Wanneer de beschikbaarheid van methaan voor de bacteriën verhoogd zou kunnen worden, zou de behandeling van ventilatielucht, ondanks de lage methaanconcentratie, wel tot de mogelijkheden behoren. Hierdoor zou de potentie voor emissiereductie van overige broeikasgassen door het biofilter aanzienlijk toenemen. Zie in dit verband de eerste aanbeveling voor nader onderzoek ("Verhoging beschikbaarheid methaan") in hoofdstuk 7 van dit rapport.

- Behandelingstechniek

Gezien de zuurstofconcentratie in ventilatielucht van een mestopslag (> 15 vol%) zal de behandeling van de lucht plaatsvinden onder aërobe omstandigheden. Er wordt gekozen voor het bouwen van een biofilter gevuld met een compost/perliet mengsel (60/40 op volumebasis). De mogelijkheid van een biotricklingfilter wordt niet onderzocht vanwege de verwachting dat een biotricklingfilter veel groter zal uitvallen dan een biofilter als gevolg van het lagere specifiek oppervlak per m^3 reactorvolume. Bovendien zijn twee voordelen van een biotricklingfilter boven een biofilter, lage drukval en goed te controleren procesomstandigheden, niet van toepassing in deze situatie. De dukval die bij het biofilter verwacht wordt is namelijk zeer laag vanwege de lage luchtbelasting. Vanwege de lage luchtbelasting is evenmin verzuring of ophoping van afbraakproducten te verwachten zodat een beperktere controle van de procesomstandigheden geen probleem is.

- Ent

Om de opstartperiode (de tijd die nodig is om een stabiel verwijderingsrendementen te verkrijgen) te verlagen wordt ervoor gekozen het pilot-scale biofilter te beënten met actief slib.

- Dimensionering

Op grond van de literatuur wordt ingeschat dat voor de reiniging (50% methaanverwijdering) van ventilatielucht van een mestopslag van 1000 m^3, een biofilter nodig zal zijn van 100 - 150 m^3. De luchtbelasting wordt ingeschat op 0,5 - 1,5 m^3 lucht/m^3 reactorvolume/uur. De pilot-scale experimenten worden daarom gestart met een luchtbelasting van
0,75 m^3 lucht/m^3 reactorvolume/uur.

4 MATERIAAL EN METHODEN

4.1 Onderzoeksopzet

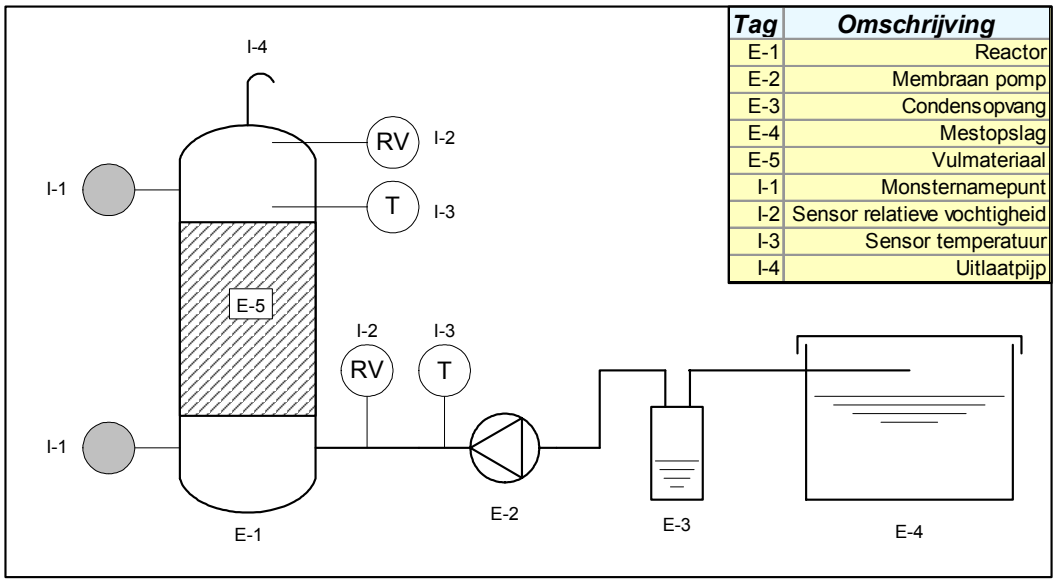
Gedurende een periode van twee maanden (26 september 2002 - 21 november 2002) wordt biofiltratie van ventilatielucht van een mestopslag getest op pilot-scale onder aërobe omstandigheden. Alhoewel biogas geen zuurstof bevat, bevat de ventilatielucht van de mestopslag gedurende het experiment circa 15 vol% als gevolg van luchtuitwisseling tussen de headspace van de mestopslag en de omgeving.
Het doel van de experimenten is vast te stellen onder welke omstandigheden succesvolle verwijdering van methaan mogelijk is en wat de maximale belasting van het biofilter is. Om dit vast te stellen wordt het luchtdebiet gedurende het experiment stapsgewijs verhoogd.

4.2 Beschrijving biofilter

Het biofilter bestaat uit een cilindervormige reactor van 180 liter (hoogte: 95 cm; diameter: 49 cm; materiaal: plexiglas) die geplaatst is op een luchtverdeelkamer (hoogte: 30 cm; materiaal: PVC). De reactor kan doorstroomd worden met de te behandelen lucht en is gevuld met dragermateriaal waarop zich een bacteriepopulatie kan ontwikkelen. Tussen de reactor en de luchtverdeelkamer bevindt zich een geperforeerde plaat die lucht kan doorlaten en het dragermateriaal, dat op de plaat rust, tegenhoudt. Aan de onderzijde van de luchtverdeelkamer kan eventueel percolaat worden afgevoerd. Het filtermateriaal wordt niet bevochtigd. Figuur 1 is een foto van het biofilter. Het biofilter is opgesteld in een afgesloten container. Naast deze container bevindt zich een ronde mestopslagtank van 5,7 m^3 (materiaal: staal; hoogte: 2,0 m; diameter: 1,9 m) die voor circa 80% is gevuld met vleesvarkensmest. De bovenzijde van de tank is afgedekt met een kunststof deksel. Met behulp van twee membraanpompen (KNF Laboport N820 AT.181, 20 l/min; KNF N1200 ANE, 150 l/min) wordt lucht van boven het mestoppervlak van de tank afgezogen en via een condensfles naar het biofilter geleid. Het luchtdebiet wordt ingesteld en 2 à 3 maal per week afgelezen met behulp van twee rotameters (Platon, 0,6 - 5 l/min; Platon, 2 - 25 l/min) met ingebouwd naaldventiel. Het biofilter wordt van onder naar boven doorstroomd. In zowel de ingaande als uitgaande luchtstroom van het biofilter is een gecombineerde temperatuur/relatieve vochtigheidssensor (Rotronic Hygromer Serie 1200) geplaatst waarmee elke 5 minuten de temperatuur en relatieve vochtigheid wordt geregistreerd. De ingaande en uitgaande luchtstroom van het biofilter kan worden bemonsterd. In Figuur 2 wordt een schematische weergave van het biofiltratiesysteem gegeven.



Figuur 1 Pilot-scale biofilter gevuld met compost/perliet mengsel voor methaanverwijdering uit ventilatielucht van drijfmestopslag.



Figuur 2 Schematische weergave van pilot-scale biofilter gevuld met compost/perliet mengsel voor methaanverwijdering uit ventilatielucht van drijfmestopslag.

4.3 Metingen en analyses

Luchtanalyses

De ingaande en uitgaande luchtstroom van het biofilter wordt 2 à 3 maal per week bemonsterd en op de volgende verbindingen geanalyseerd:

- Methaan (CH_4)
- Koolstofdioxide (CO_2)
- Lachgas (N_2O)
- Ammoniak (NH_3)
- Waterstofsulfide (H_2S)

De concentraties van methaan, koolstofdioxide en lachgas worden gemeten met behulp van een gaschromatograaf (Interscience/Carbo Erba Instruments, GC 8000 Top; kolom: Molsieve 5A (CH_4, CO_2), Haysep Q (N_2O, SF_6); detector: CH_4: FID/HWD, N_2O: ECD/HWD, CO_2: HWD; SF_6: ECD). De concentraties van ammoniak en waterstofsulfide worden indicatief bepaald met behulp van gasdetectiebuisjes (Kitagawa, 105SD, 120SB).

Filtermateriaal

Het filtermateriaal wordt bemonsterd en geanalyseerd een week nadat het biofilter is opgestart en nogmaals nadat het experiment is afgelopen. De volgende analyses worden uitgevoerd: gehalte van droge stof, asrest, gehalte van N-totaal, N-NH_4, N-NO_2, N-NO_3, P-totaal en K-totaal,

geleidbaarheid (EC) en pH. De analyses worden uitgevoerd door het Milieulaboratorium van IMAG, Wageningen conform voorgeschreven analysemethoden.
Er wordt een bacterietelling uitgevoerd van methanotrofen middels de MPN-methode (Most Probable Number). Deze meting wordt uitgevoerd door Bioclear, Groningen.

Drukval
De drukval over het biofilter wordt eens per week gemeten met een verschildrukmeter (Special Instruments, Digima Premo B-026).

4.4 Samenstelling filtermateriaal

De reactor wordt voor 90% (162 liter) gevuld met een mengsel van compost (Naturado Veenendaal siertuincompost) en geëxpandeerd perliet (Pull Rhenen Agra-Perlite; deeltjesgrootte: 0,6 - 7,5 mm) in een volumeverhouding van 60 : 40. Perliet is een vulkanisch gesteente dat hoofdzakelijk uit SiO_2 en Al_2O_3 bestaat en door verhitting wordt geëxpandeerd tot ongeveer 20 maal het oorspronkelijke volume. Hierdoor worden ruwe, poreuze korrels gevormd met een zeer lag bulkdichtheid. Perliet wordt o.a. gebruikt als toeslagstof voor pot- of zaaigrond om de porositeit van de grond te verhogen. In Tabel 4 wordt de gemiddelde samenstelling van perliet gegeven.

Tabel 4 Samenstelling perliet (Abalos *et al.*, 2003)

Omschrijving	Waarde
Bulkdichtheid (kg/m^3)	95
SiO_2 (mol%)	75,36
TiO_2 (mol%)	0,20
Al_2O_3 (mol%)	13,85
Fe_2O_3 (mol%)	0,67
FeO (mol%)	0,00
MnO (mol%)	0,08
MgO (mol%)	0,29
CaO (mol%)	1,07
Na_2O (mol%)	3,58
K_2O (mol%)	4,84
P_2O_5 (mol%)	0,04

In Tabel 5 wordt de samenstelling van de gebruikte compost gegeven. De analyses zijn uitgevoerd door het Milieulaboratorium van IMAG conform gecertificeerde analysemethoden.

Tabel 5 Samenstelling Naturado Veenendaal siertuincompost

Omschrijving	Waarde
Bulkdichtheid (kg/m^3)	415
Droge stof (g/kg)	348
As (g/kg)	115
N-totaal (g/kg)	3,14
N-NH_4 (g/kg)	0,01
N-NO_3 (g/kg)	0,41
P-totaal (g/kg)	0,301
K-totaal (g/kg)	1,24
EC (mS/cm)	4,6 (*)
pH	4,8 (*)

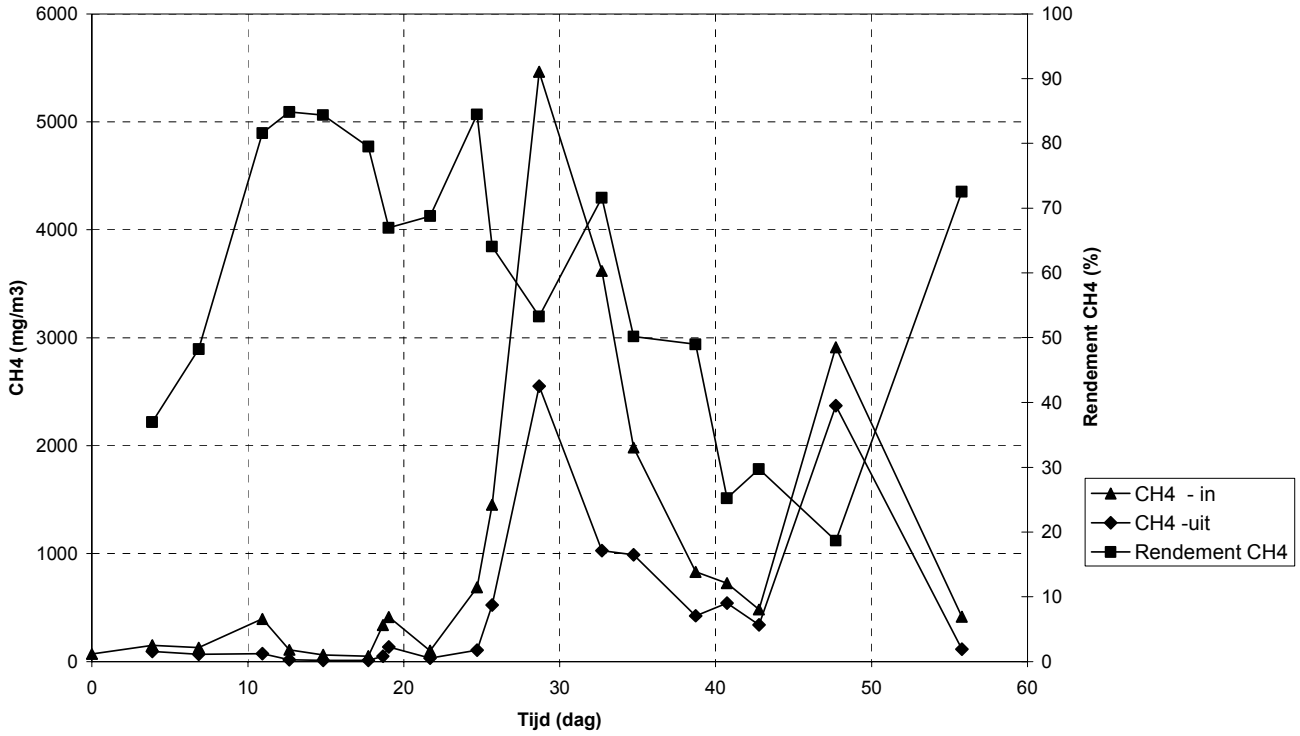
(*) Voor het uitvoeren van de bepaling is het monster met 4 delen water (op gewichtsbasis) verdund.

Voor een goed functionerend biofilter dient de pH zich tussen 6,5 en 7,5 te bevinden. Normaliter bevindt de pH van compost zich binnen dit bereik maar de compost uit Tabel 5 heeft een lagere pH. Om de pH van de compost uit Tabel 4 tot 7 te verhogen, wordt per kg compost 100 g kalkmeststof toegevoegd (ECOstyle Maërl Koraalalgen-kalk, 45 massa% CaO, 5 massa% MgO) waardoor een pH wordt bereikt van ongeveer 7. Het stikstofgehalte uit Tabel 5 is voldoende voor een goed functionerend biofilter, het fosfaatgehalte is aan de lage kant. Om het fosfaatgehalte van de compost te verhogen wordt per kg compost eveneens 1,5 g fosformeststof toegevoegd (ECOstyle beendermeel, 15 massa% P-org en 5 massa% N-org). De dichtheid van het mengsel van compost, perliet, kalk- en fosformeststof bedraagt circa 320 kg/m^3.

5 RESULTATEN EN DISCUSSIE

5.1 Methaanverwijdering en luchtbelasting

Het biofilter wordt opgestart op 26 september 2002 (dag 0) en geënt met circa 50 liter actief slib afkomstig uit de nabezinktank van de RWZI Ede). Als gevolg hiervan wordt gedurende de eerste week circa 15 liter percolaat gevormd dat afgevoerd wordt. De luchtbelasting wordt gedurende de eerste twee weken ingesteld op 0,75 m^3/m^3 filtermateriaal/uur (zie Figuur 4). In Figuur 3 wordt de methaanconcentratie van de ingaande en uitgaande lucht van het biofilter en het hieruit berekende verwijderingsrendement weergegeven gedurende de meetperiode.



Figuur 3 Methaanverwijdering door biofilter voor behandeling van ventilatielucht van drijfmestopslag (CH_4: 1 mg/m^3 = 1,5 ppm).

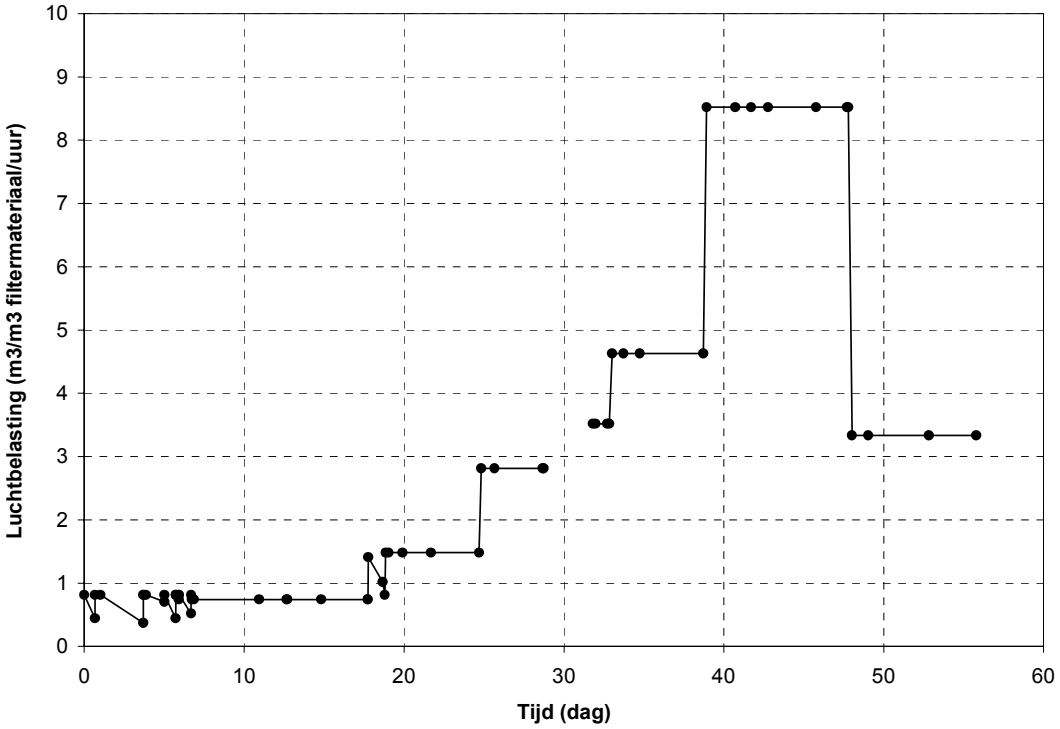
De methaanconcentratie van de ingaande lucht wordt bepaald door de methaanproductie in de mestopslagtank en de mate waarin luchtuitwisseling optreedt tussen de headspace van de tank en de buitenlucht. De methaanproductie wordt bepaald door de temperatuur van de mest, de hoeveelheid biologisch afbreekbaar materiaal en de hoeveelheid methanotrofe bacteriën in de mest. De luchtuitwisseling (oftewel de verdunning met buitenlucht) wordt bepaald door de kwaliteit van de afdekking en door de hoeveelheid lucht die van onder het deksel van de

mestopslag wordt afgezogen en naar het biofilter wordt geleid. Doordat de headspace van de mestopslag drukloos is vanwege lekkages in de afdekking, wordt alle afgezogen lucht vervangen door buitenlucht. De methaanconcentratie van (onverdund) biogas bedraagt ongeveer 65 vol% (425 g/m^3) zodat uit Figuur 3 geconcludeerd kan worden dat er sprake is van een aanzienlijke verdunning met buitenlucht.

In de eerste 2 weken stijgt het methaanverwijderingsrendement sterk. Deze stijging is een normaal verloop bij het opstarten van een biofilter: aanvankelijk is er slechts een beperkte hoeveelheid methanotrofe bacteriën aanwezig in het biofilter die afkomstig is uit de compost en het actief slib. Wanneer er echter methaanhoudende lucht wordt aangeboden aan het filter zullen de bacteriën die methaan als substraat kunnen gebruiken (methanotrofen) sterk in aantal gaan toenemen. Als gevolg van de toename van de hoeveelheid methanotrofe bacteriën neemt het methaanverwijderingsrendement sterk toe. Na twee weken stabiliseert het methaanverwijderingsrendement zich op 80 - 85%. Dit wijst erop dat er een evenwicht is bereikt tussen de hoeveelheid substraat die in de waterfase beschikbaar is voor de methanotrofe bacteriën (opgelost CH_4) en de hoeveelheid methanotrofe bacteriën die aanwezig is.

Op dag 18 wordt gestart met het stapsgewijs verhogen van de luchtbelasting (Figuur 4). Tussen het tijdstip waarop het luchtdebiet wordt aangepast en het tijdstip waarop een meting van de in- en uitgaande methaanconcentratie wordt gedaaan, zit minimaal 24 uur. Als gevolg van de verhoging van de luchtbelasting neemt het verwijderingsrendement sterk af. De biomassa die in en op het filtermateriaal aanwezig is, is niet in staat om zoveel methaan af te breken dat het methaanverwijderingrendement op peil blijft bij een verhoogde belasting. Een lager methaanverwijderingsrendement betekent echter niet dat de hoeveelheid methaan die verwijderd is (uitgedrukt als kg CH_4/m^3 filtermateriaal/uur) afneemt. De relatie tussen methaanconcentratie, luchtbelasting, methaanvracht en verwijderingsrendement wordt nader besproken in 5.8. Wanneer de luchtbelasting weer wordt verlaagd (dag 48) neemt het methaanverwijderingsrendement (Figuur 3) weer sterk toe.

De sterke stijging van de ingaande methaanconcentratie op dag 25 (Figuur 3) wordt veroorzaakt door het aanbrengen van een waterslot tussen de mestopslagtank en het deksel waardoor de verdunning met buitenlucht plotseling afneemt. De hierop volgende afname van de ingaande methaanconcentratie wordt waarschijnlijk veroorzaakt door de verdere verhoging van de luchtbelasting (een verdriedubbeling ten opzicht van dag 25).



Figuur 4 Luchtbelasting van biofilter voor behandeling van ventilatielucht van drijfmestopslag.

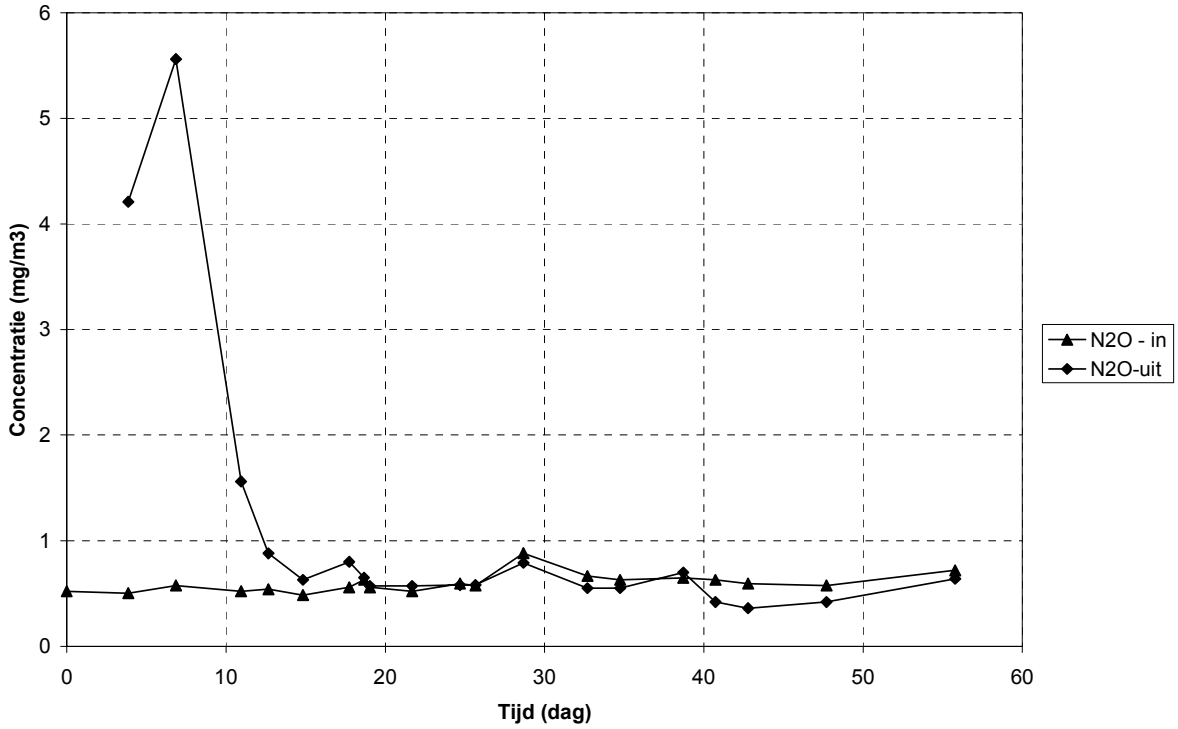
5.2 Lachgas

Het verloop van de lachgasconcentratie is weergegeven in Figuur 7. De ingaande concentratie is gedurende het gehele experiment gelijk aan de atmosferische lachgasconcentratie. Gedurende de opstart van het biofilter (de eerste twee weken) ligt de uitgaande N_2O-concentratie ver boven de ingaande concentratie. Aangezien de luchtbelasting tijdens deze periode zeer laag is, is de N_2O-vracht desondanks laag. De verhoging van de lachgasconcentratie wordt waarschijnlijk veroorzaakt door één of een combinatie van de twee onderstaande processen:

1) Voorafgaand aan het experiment was de compost opgeslagen in een luchtdichte zak. Tijdens de opslag heeft zich mogelijk N_2O gevormd als gevolg van onvolledige nitrificatie en/of denitrificatie in de compost. Wanneer het experiment wordt gestart en er lucht door de compost wordt geblazen wordt het reeds gevormde N_2O uit de compost gestript.

2) Wanneer het experiment wordt gestart en er lucht door het filtermateriaal wordt geblazen, zullen in de compost aanvankelijk deels aërobe en deels anaërobe omstandigheden voorkomen. Als gevolg hiervan zal (onvolledige) nitrificatie optreden van de NH_3 die zich in de ventilatielucht

bevindt en eventueel ook van de NH_3/NH_4^+ uit de compost zelf, al dan niet gevolgd door (onvolledige) denitrificatie. Nadat het filter gedurende twee weken is belucht zijn de condities in het filtermateriaal dusdanig aëroob geworden dat er geen sprake meer is van onvolledige nitrificatie of van denitrificatie. Hierdoor neemt de N_2O productie sterk af. Na 3 weken zijn de ingaande en uitgaande N_2O concentratie ongeveer gelijk (atmosferische concentratie).



Figuur 7 N_2O-concentratie van de ingaande en de uitgaande lucht van biofilter voor behandeling van ventilatielucht van drijfmestopslag.

5.3 Totale hoeveelheid broeikasgassen

De totale hoeveelheid broeikasgassen in de in- en uitgaande lucht van het biofilter kan als volgt worden berekend:

BKG-totaal = $BKG\text{-}CH_4 + BKG\text{-}N_2O$

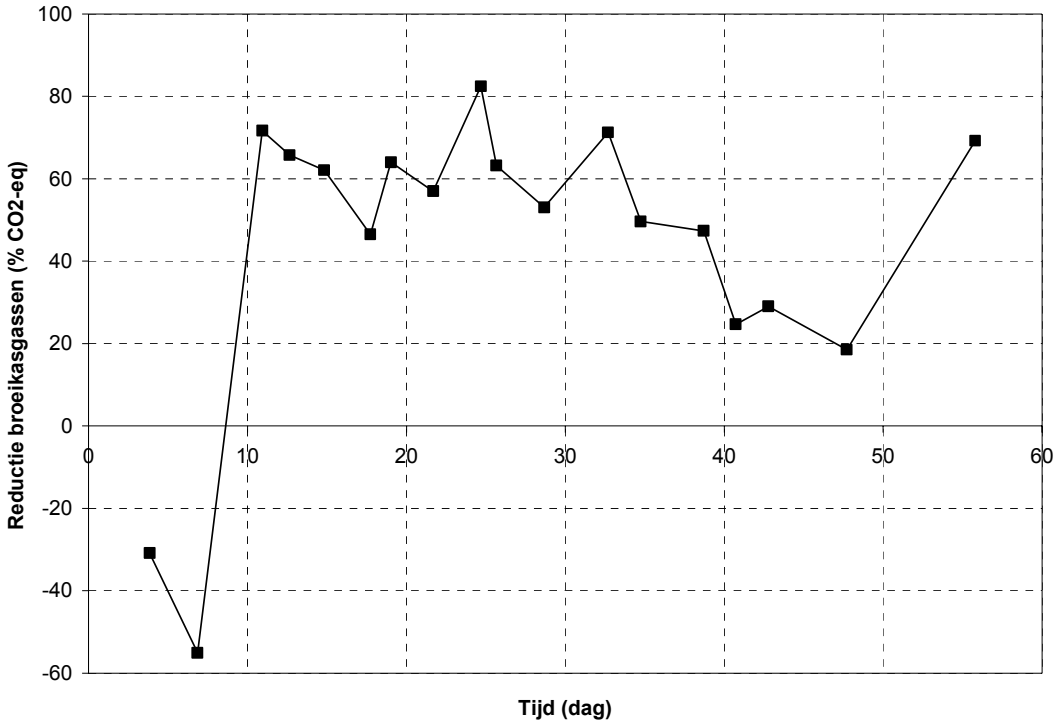
met:

BKG-totaal = Totale hoeveelheid broeikasgassen (kg CO_2-eq/m^3)

$BKG\text{-}CH_4$ = $CH_4 \times GWP\text{-}CH_4$

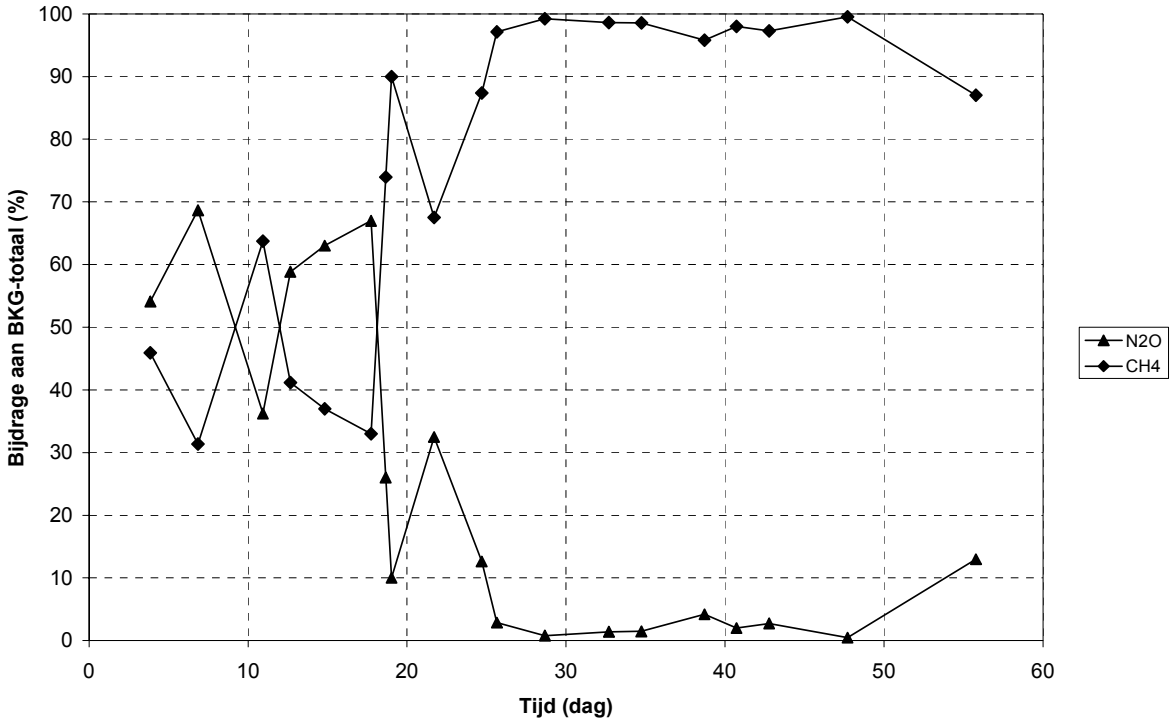
BKG-N_2O	=	N_2O x GWP-N_2O
CH_4	=	Methaanconcentratie (kg/m^3)
GWP-CH_4	=	Global Warming Potential methaan (= 21) (kg CO_2-eq/kg) (IPCC, 1996)
N_2O	=	Lachgasconcentratie (kg/m^3)
GWP-N_2O	=	Global Warming Potential van lachgas (= 310) (kg CO_2-eq/kg) (IPCC, 1996)

De procentuele afname van BKG-totaal die optreedt wanneer de ventilatielucht in het biofilter wordt behandeld is weergegeven in Figuur 8. De concentratie van broeikasgas CO_2 wordt hierbij buiten beschouwing gelaten aangezien deze afkomstig is van biomassa en als zodanig deel uitmaakt van de korte C-kringloop. En wordt niet gecorrigeerd voor het feit dat ook schone buitenlucht een zekere achtergrondconcentratie van overige broeikasgassen (hoofdzakelijk N_2O) bevat.



Figuur 8 Procentuele afname van broeikasgasconcentratie (optelsom van CH_4 en N_2O in CO_2-eq.) als gevolg van behandeling van ventilatielucht van drijfmestopslag in biofilter.

Tijdens de eerste week is de totale broeikasgasverwijdering negatief als gevolg van de lachgasproductie in het biofilter (zie Figuur 7). Wanneer het biofilter na 3 weken stabiel draait, komt Figuur 8 nauwgezet overeen met het verloop van de methaanverwijdering uit Figuur 3. De reden daarvoor is dat de ingaande en uitgaande N_2O-concentratie na 3 weken praktisch aan elkaar gelijk zijn (atmosferische concentratie). In Figuur 9 wordt aangegeven wat de bijdrage van CH_4 resp. N_2O is aan de totale broeikasgashoeveelheid van de uitgaande lucht van het biofilter.

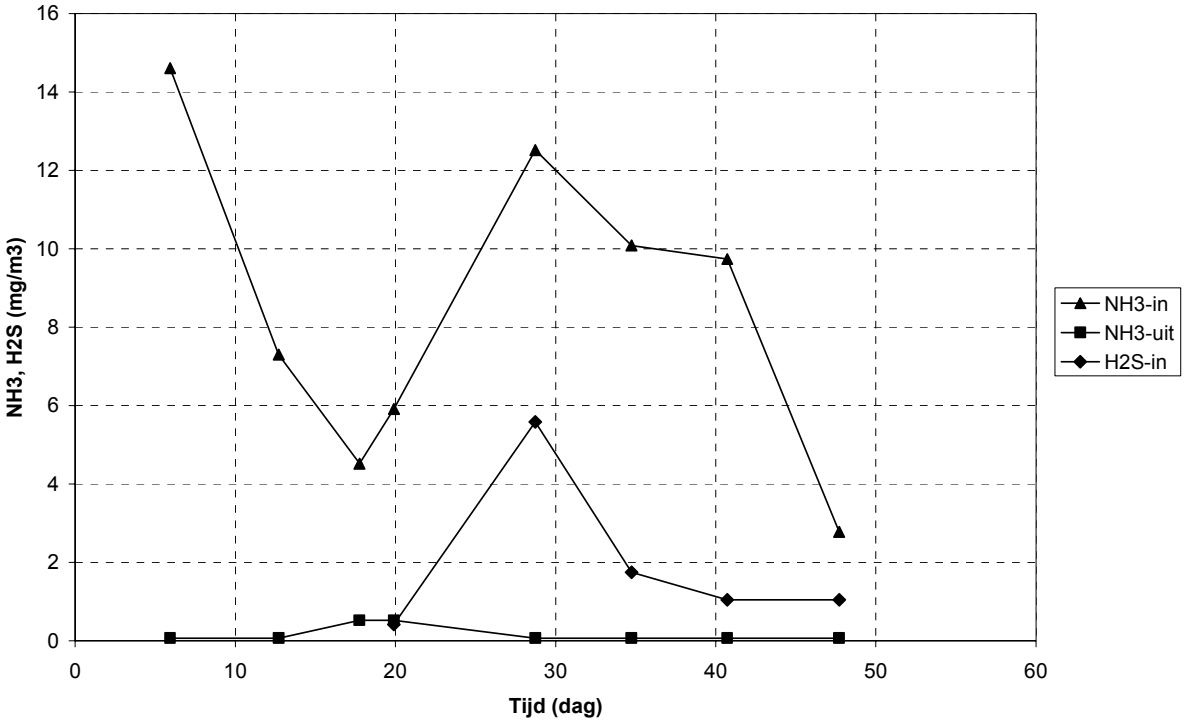


Figuur 9 Procentuele bijdrage van CH_4 resp. N_2O aan de totale broeikasgashoeveelheid (som van CH_4 en N_2O, uitgedrukt in CO_2-eq.,) in de uitgaande lucht van het biofilter.

Na 3 weken stijgt aandeel van CH_4 aan de totale broeikasgashoeveelheid tot ongeveer 95%; de overige 5% wordt betreft de atmosferische achtergrondconcentratie van N_2O. Het laatste meetpunt (dag 56) laat een stijging zien van het aandeel van N_2O (13%). Dit is het gevolg van een relatief lage methaanconcentratie in de uitgaande lucht en niet het gevolg van een hoge lachgasconcentratie. Aan het eind van het experiment wordt de luchtbelasting namelijk sterk verlaagd (zie Figuur 4) waardoor de methaanverwijdering sterk toeneemt.

5.4 Ammoniak, waterstofsulfide en geur

In Figuur 10 wordt het concentratieverloop van de in- en uitgaande lucht voor ammoniak en de ingaande lucht voor waterstofsulfide gegeven. De uitgaande waterstofsulfide is altijd lager dan de detectielimiet (< 0,5 mg/m^3) en daarom niet weergegeven.



Figuur 10 NH_3-en H_2S-concentraties van ingaande en uitgaande lucht van biofilter voor behandeling van ventilatielucht van drijfmestopslag. H_2S-uit is lager dan detectielimiet (< 0,5 mg/m^3) en niet weergegeven.

De ammoniakverwijdering bedraagt 90 - 100%. Dat wijst er op dat er in het biofilter, zoals verwacht, biologische omzetting van ammoniak optreedt oftewel nitrificatie. In het geval van nitrificatie zal op de lange duur ophoping van HNO_3 optreden waardoor op de lange duur het N-totaal gehalte van het filtermateriaal zal stijgen en de pH zal afnemen. Aangezien de luchtbelasting van het filter zeer laag is zal dit pas op zeer lange termijn meetbaar zijn of van invloed zijn op het functioneren van het biofilter. In Bemmel & Werf (2002) is reeds berekend dat de ammoniakvracht ongeveer 100 maal zo laag is als de vracht die nog juist acceptabel wordt geacht met betrekking tot verzuring van een biofilter. In Tabel 6 wordt dan ook geen toename van N-totaal of afname van de pH gevonden wanneer de analyses van 1 week na opstart worden

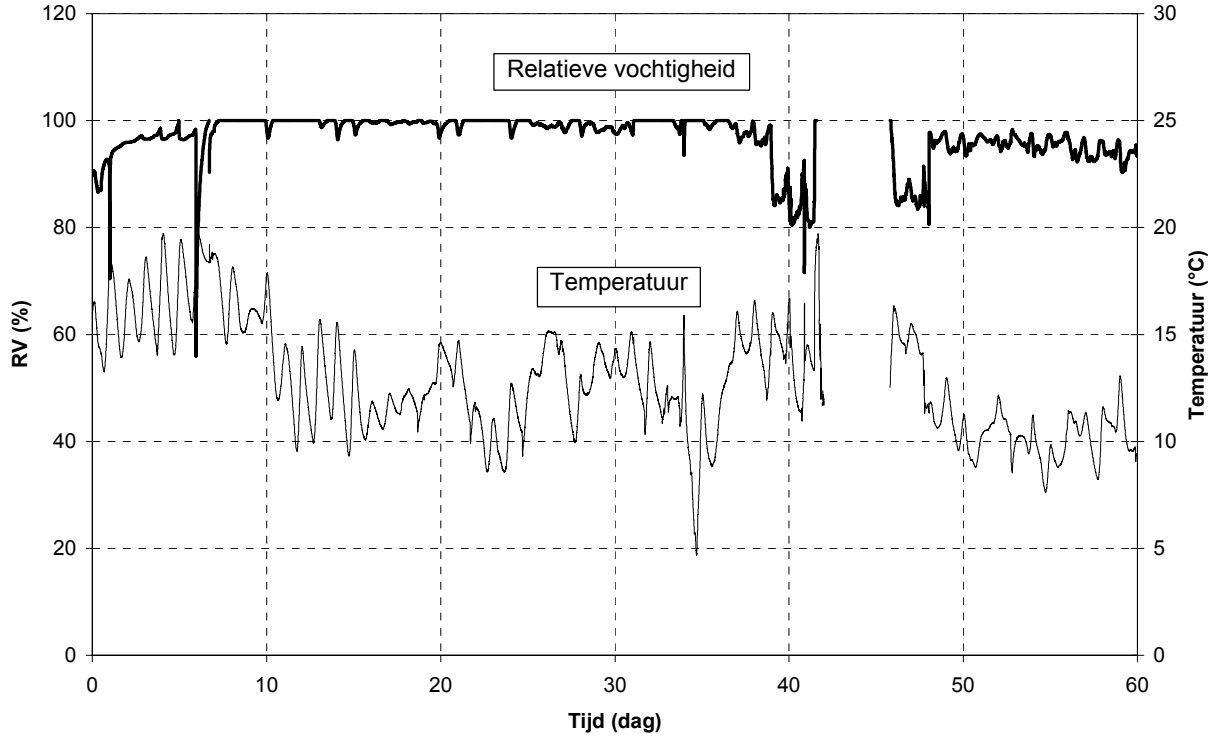
vegeleken met 8 weken na opstart. Het is onduidelijk of er naast nitrificatie eventueel denitrificatie optreedt.
Uit de afname van de H_2S concentratie kan geconcludeerd worden dat er, zoals verwacht, oxidatie tot sulfaat optreedt. De verwijdering van waterstofsulfide bedraagt 100%. Ondanks de zuurvorming die gepaard gaat met oxidatie van waterstofsulfide, is verzuring van het filter niet merkbaar als gevolg van de zeer lage belasting van het filter.

Officiële metingen van de concentratie en hedonische waarde van de geur [1] van de in- en uitgaande luchtstroom van het biofilter zijn niet uitgevoerd. Reukwaarnemingen van de betrokken onderzoekers geven echter wel aan dat het geurkarakter van de lucht verandert. Terwijl de ingaande lucht door de onderzoekers wordt omschreven als 'mestlucht' wordt de geur van de uitgaande lucht omschreven als 'bosgeur'.

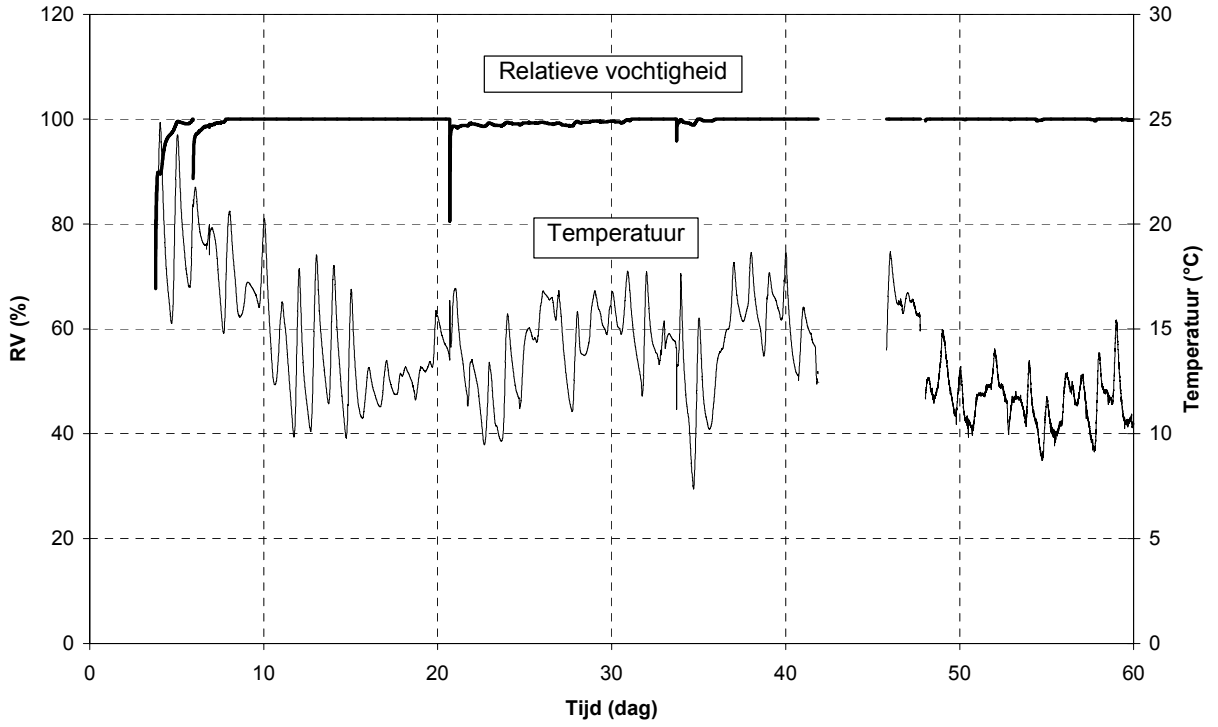
5.5 Temperatuur en relatieve vochtigheid

In Figuur 11 en Figuur 12 worden de temperatuur en de relatieve vochtigheid van de lucht voor en na het biofilter weergegeven.
De temperatuur van de ingaande lucht is een afspiegeling van de buitentemperatuur en is gemiddeld 12,0°C (minimum: -3,4°C; maximum: 21,1°C). De temperatuur van de uitgaande lucht ligt 1,4°C hoger (gemiddeld 13,4°C). De bacteriën die zich in het biofilter bevinden zullen mesofiel van aard zijn, dat wil zeggen dat ze groeien bij temperaturen van ongeveer 10 tot 40°C en een optimum hebben bij ongeveer 30°C. De implicatie hiervan is dat hoe hoger de temperatuur van de ingaande lucht is (tot 30°C), hoe hoger de groeisnelheid van de bacteriën en dus de methaanverwijdering zal zijn. Wanneer de temperatuur van de lucht gedurende langere tijd lager dan 0°C is, kan bevriezing van het biofilter optreden waardoor de activiteit van de methanotrofen, en daardoor de methaanverwijdering, sterk zal afnemen. Nadat het biofilter weer ontdooid is, zal het waarschijnlijk enige tijd duren voordat het aantal actieve bacteriën en de methaanafbraakcapaciteit weer op het oude niveau is. Anderzijds zal een lagere omgevingstemperatuur waarschijnlijk eveneens een lagere methaanproductie in de mestopslag tot gevolg hebben aangezien de methanogene bacteriën op vergelijkbare wijze op temperatuurveranderingen reageren.
Wanneer de mestopslag ook in de zomer gevuld is, zal de hogere buitentemperatuur op den duur de mest enigszins opwarmen waardoor de methaanproductie zal toenemen. De hogere buitentemperatuur zal echter eveneens een hogere activiteit en groeisnelheid van de methanotrofen in het biofilter tot gevolg hebben.

[1] De hedonische waarde is de waardering van een geur, aangegeven op een schaal van uiterst aangenaam tot uiterst onaangenaam.



Figuur 11 Temperatuur (T) en relatieve vochtigheid (RV) van ingaande lucht van biofilter voor behandeling van ventilatielucht van drijfmestopslag.



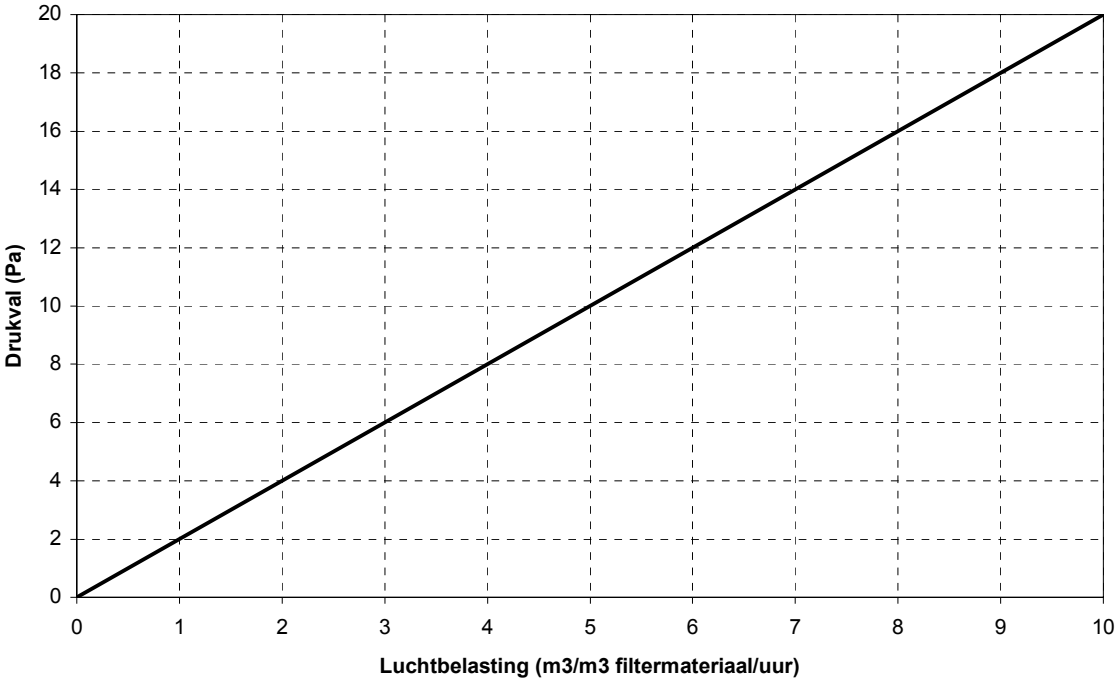
Figuur 12 Temperatuur (T) en relatieve vochtigheid (RV) van uitgaande lucht van biofilter voor behandeling van ventilatielucht van drijfmestopslag.

Wanneer de mestopslag ook in de zomer gevuld is, zal de hogere buitentemperatuur op den duur de mest enigszins opwarmen waardoor de methaanproductie zal toenemen. De hogere buitentemperatuur zal echter eveneens een hogere activiteit en groeisnelheid van de methanotrofen in het biofilter tot gevolg hebben.
Daarom wordt verwacht dat het biofilter in principe gedurende het gehele jaar goed zal kunnen functioneren.

De meetapparatuur van de relatieve vochtigheid heeft een lage betrouwbaarheid bij waarden boven 90%. Aangezien zowel in de aanvoerleiding als de afvoerleiding van het biofilter gedurende de gehele meetperiode condensatie is waargenomen, wordt aangenomen dat beide luchtstromen met vocht verzadigd zijn. Uitgaand van 100% relatieve vochtigheid corresponderen de gemiddelde in- en uitgaande temperatuur van het biofilter met een enthalpietoename van 3,6 kJ/kg lucht. Bij een luchtbelasting van 0,75 (minimum) resp. 9 m^3/m^3 filtermateriaal/uur (maximum) is de toegevoegde energie daarmee gelijk aan 0,1 resp. 1,7 W. Deze energie wordt geleverd door een combinatie van de energie die vrijkomt bij de biologische oxidatie van methaan, de biologische oxidatie van organische stof uit het compost en de warmteproductie van de pomp die in dezelfde ruimte als het biofilter is opgesteld.

5.6 Drukval

Het verband dat gemeten wordt tussen de luchtbelasting en de drukval over het filter is lineair en wordt weergegeven in Figuur 13.
In vergelijking met reguliere biofiltratietoepassingen is de gemeten drukval zeer laag. Bij reguliere biofilters worden luchtbelastingen van enige honderden m^3/m^3 filtermateriaal/uur gehanteerd hetgeen resulteert in een drukval van enige honderden Pa. Bij dergelijke luchtbelastingen geldt dat de drukval over het biofilter evenredig is met het kwadraat van de superficiële luchtsnelheid (superficiële luchtsnelheid [m/s] = debiet [m^3/s] / dwarsoppervlak reactor [m^2]). Bij zeer lage luchtbelastingen, zoals het geval is in Figuur 13, wordt dit kwadratisch verband niet gevonden. Gezien het feit dat de drukval over het filter zeer laag is, zal het elektriciteitsverbruik van de pomp of ventilator die nodig is voor het afzuigen van de lucht veel lager zijn dan voor een regulier biofilter. Hierdoor zullen de exploitatiekosten van het biofilter (uitgedrukt per m^3 reactor volume) relatief laag uitvallen.



Figuur 13 Drukval over biofilter voor de behandeling van ventilatielucht van drijfmestopslag.

5.7 Samenstelling filtermateriaal

Een week nadat het biofilter is opgestart en aan het einde van het experiment is het filtermateriaal uit de reactor bemonsterd op drie verschillende hoogten (onderste 55 cm, middelste 55 cm en bovenste 55 cm) en geanalyseerd. De resultaten daarvan worden in Tabel 6 weergegeven.

In het algemeen wordt aangenomen dat het droge stof gehalte van een biofilter dat gevuld is met alleen compost,onder normale condities 400 - 600 g/kg bedraagt. Aangezien het bemonsterde filtermateriaal een mengsel is van compost en perliet kan uit de droge stof analyses uit Tabel 6 niet afgeleid worden of het droge stof gehalte van het biofilter in orde is. Op basis van visuele inspectie lijkt het vochtgehalte van het mengmonster na 1 week en het bovenste en middelste monster van het filtermateriaal na 8 weken in orde te zijn. Het onderste monster van het filtermateriaal na 8 weken is aan de natte kant. De pH, EC en N, P en K gehalten van het filtermateriaal hebben waarden die gangbaar zijn voor een biofilter.

In het algemeen geldt dat een niet geadapteerd biofilter per gram droge stof 10^2 - 10^4 bacteriën bevat die een specifieke stof afbreken, terwijl een goed werkend biofilter per gram droge stof een aantal van 10^8 - 10^9 van deze bacteriën bevat. Uit de bacterietellingen van het filtermateriaal uit Tabel 6 blijkt dat het filtermateriaal redelijk hoge aantallen methanotrofe bacteriën bevat (10^7 - 10^8 per gram droge stof). Van stratificatie van methanotrofen in het filtermateriaal is geen sprake aangezien de aantallen methanotrofen boven, midden en onder in het filter vergelijkbaar zijn (de meetnauwkeurigheid van de MPN-methode is ongeveer een factor 10).

Tabel 6 Samenstelling filtermateriaal

Omschrijving	Na 1 week [1]	Na 8 weken (einde experiment) [2]			
	mengmonster [3]	onder	midden	boven	mengmonster [3]
Droge stof (g/kg)	355	345	392	391	
As (g/kg)	247	247	253	229	
N-totaal (g/kg)	2,06				1,97
$N\text{-}NH_4$ (g/kg)					0,2
$N\text{-}NO_3$ (g/kg)					0,14
$N\text{-}NO_2$ (g/kg)					< 0,001
P-totaal (g/kg)	0,51				0,43
K-totaal (g/kg)					1,49
EC (mS/cm) [4]	1,6	2,0		1,8	
pH [4]	6,5	6,9	6,8	6,6	
Aantal methanotrofen (per gram droge stof) [5]		4×10^7	2×10^7	1×10^8	

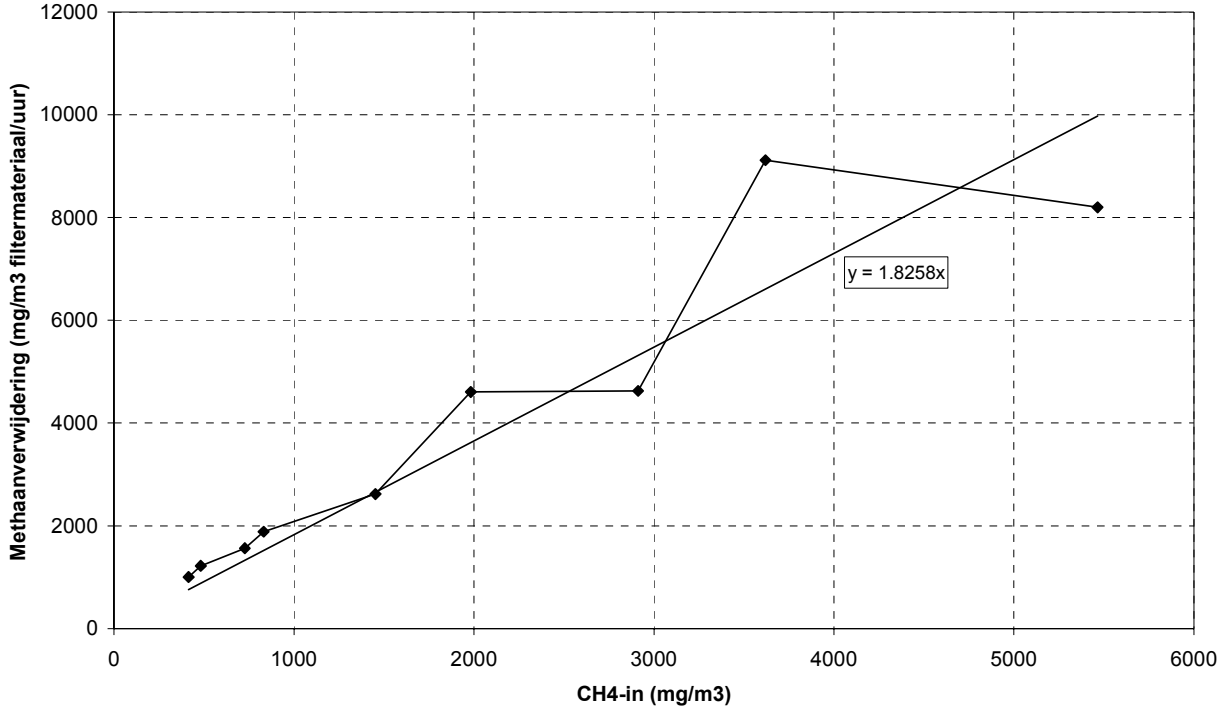
[1] Monsternamedatum: 3 oktober 2002.
[2] Monsternamedatum: 13 november 2002.
[3] Mengmonster van deelmonsters op massabasis.
[4] Voor het uitvoeren van de bepaling is het monster met 4 delen water verdund.
[5] Bepaald middels de MPN-methode, Most Probable Number.

5.8 Analyse van resultaten

De resultaten van het onderzoek zijn gebaseerd op de behandeling van lucht die afkomstig is van vergistende varkensdrijfmest. Alhoewel de methaanproductiesnelheid sterk kan verschillen van mestsoort tot mestsoort zijn er geen aanwijzingen dat de karakteristieken van het geproduceerde biogas dusdanig afwijken dat dit consequenties zou hebben voor het (zeer laag belaste) biofilter. Daarom wordt ervan uitgegaan dat de resultaten van dit onderzoek ook representatief zijn voor de behandeling van ventilatielucht afkomstig van mestopslagen gevuld met andere mestsoorten, zoals koeiendrijfmest.

Om inzicht te krijgen in de maximale methaanafbraakcapaciteit van het biofilter worden de resultaten uit Figuur 3 en Figuur 4 aan een nadere analyse onderworpen. De eerste periode

(dag 0 - 18) wordt sterk beïnvloed door het ingroeien van biomassa (opstartperiode) en daarom buiten beschouwing gelaten. De periode dag 18 - 25 wordt buiten beschouwing gelaten omdat de experimentele condities afwijken van de periode dag 25 - 60 (vanaf dag 25 is het deksel van de mestopslag met een waterslot afgesloten). De analyse wordt daarom beperkt tot de resultaten van dag 25 -60 waarvoor wordt aangenomen dat deze periode een goed beeld geeft van een stabiele werking van het biofilter. Het verwijderingsrendement van methaan bedraagt in deze periode 19 - 73%. In Figuur 14 wordt de methaanverwijdering van het biofilter uitgezet tegen de methaanconcentratie in de ingaande lucht zoals deze gemeten zijn in de periode van dag 25 tot dag 60. Eveneens is een lineaire regressielijn getekend door (0;0).



Figuur 14 Methaanverwijdering versus methaanconcentratie van ingaande lucht van biofilter voor behandeling van ventilatielucht van drijfmestopslag (dag 25 - 60). Lineaire regressielijn door (0;0).

Uit Figuur 14 blijkt dat er in het concentratiegebied van 400 tot 5.500 mg CH_4/m^3 een lineair verband is tussen de methaanconcentratie in de ingaande lucht is en de methaanverwijdering. Dit verband wordt beschreven als:

$MV = 1{,}8258 \times CH_4in$ [Formule 1]

met:

MV : methaanverwijdering (mg/m^3 filtermateriaal/uur)

CH_4in : methaanconcentratie ingaande lucht (mg/m^3)

Het feit dat de methaanverwijdering afhangt van de ingaande concentratie en niet van de methaanvracht (product van methaanconcentratie en luchtdebiet), duidt er op dat de methaanverwijdering wordt beperkt door de lage oplosbaarheid van CH_4 en niet door een eventuele beperkte methaanafbraakcapaciteit van de aanwezige biomassa.
De verklaring hiervoor is dat wanneer de methaanconcentratie in de ingaande lucht hoger wordt, de methaanconcentratie in de waterfase evenredig hoger zal worden volgens de wet van Henry (zie hoofdstuk 3.2). Aangezien de bacteriën hun substraat opnemen uit de waterfase zal de methaanverwijdering (uitgedrukt als mg/m^3 filtermateriaal/uur) dan eveneens hoger zijn, mits de methaanafbraakcapaciteit van de aanwezige bacteriën hoog genoeg is. Uit het gevonden verband in Figuur 14 kan daarom geconcludeerd worden dat de methaanafbraakcapaciteit van de aanwezige biomassa niet beperkend is voor de gemeten methaanverwijdering.
Wanneer in een biofilter een goed oplosbare stof (hoge Henry constante) wordt verwijderd uit de luchtstroom hangt de afbraak enerzijds af van de hoeveelheid substraat die wordt aangeboden (vracht) en anderzijds van de afbraakcapaciteit van de aanwezige biomassa. In dat geval wordt het lineaire verband van Figuur 14 niet gevonden.

Tijdens het onderzoek varieerde zowel de ingaande methaanconcentratie (zie Figuur 3) als het luchtdebiet (zie Figuur 4) sterk. Desondanks wordt in Figuur 14 een rechte lijn gevonden hetgeen erop wijst dat het biofilter snel reageert op veranderende concentraties en debieten. Wanneer er sprake zou zijn van langdurige adaptatie, telkens wanneer de concentratie of het debiet verandert, zou dit de gemeten methaanverwijdering sterk beïnvloeden waardoor er geen lineair verband tussen methaanverwijdering en methaanconcentratie zou zijn gevonden. Met betrekking tot veranderingen van het luchtdebiet betekent dit dat de adaptatietijd van het biofilter in ieder geval kleiner is dan 24 uur, aangezien de meting van de in- en uitgaande methaanconcentratie plaatsvond 24 uur na de verandering van het luchtdebiet. Met betrekking tot veranderingen van de methaanconcentratie kan niet gezegd worden welke orde van grootte de adaptatietijd van het biofilter heeft aangezien de methaanconcentratie niet on-line is gemeten. Hierdoor is onduidelijk hoe het concentratieverloop er in detail uitziet en op welke manier momentane veranderingen van ingaande concentratie doorwerken op de gemeten uitgaande concentratie. Geconcludeerd kan worden dat het biofilter goed in staat is om lucht te behandelen waarvan de concentratie en het debiet in de tijd sterk varieert.

Over het biofilter kan voor methaan de volgende massabalans (mg/m^3 filtermateriaal/uur) worden opgesteld:

$CH_4in \times Q / VF - MV = CH_4uit \times Q / VF$ [Formule 2]

met:

CH_4in : methaanconcentratie ingaande lucht (mg/m^3)
Q : luchtdebiet (m^3/uur)
MV : methaanverwijdering (mg/m^3 filtermateriaal/uur)
VF : volume filtermateriaal (m^3 filtermateriaal)
CH_4uit : methaanconcentratie uitgaande lucht (mg/m^3)

En:

$L = Q / VF$ [Formule 3]

met:

L : luchtbelasting (m^3/m^3 filtermateriaal/uur)
Q : luchtdebiet (m^3/uur)
VF : volume filtermateriaal (m^3 filtermateriaal)

Wanneer in [Formule 2] de term MV wordt vervangen door [Formule 1] en de term Q / VF wordt vervangen door [Formule 3] volgt:

$(CH_4in - CH_4uit) / CH_4in = 1{,}8258 / L$ [Formule 4]

met:

CH_4in : methaanconcentratie ingaande lucht (mg/m^3)
CH_4uit : methaanconcentratie uitgaande lucht (mg/m^3)
L : luchtbelasting (m^3/m^3 filtermateriaal/uur)

In [Formule 4] is (CH_4in - CH_4uit) / CH_4 gelijk aan de definitie van het methaanverwijderingsrendement, uitgedrukt als fractie van de ingaande methaanconcentratie.

Wanneer het methaanverwijderingsrendement uitgedrukt wordt in procenten wordt dit:

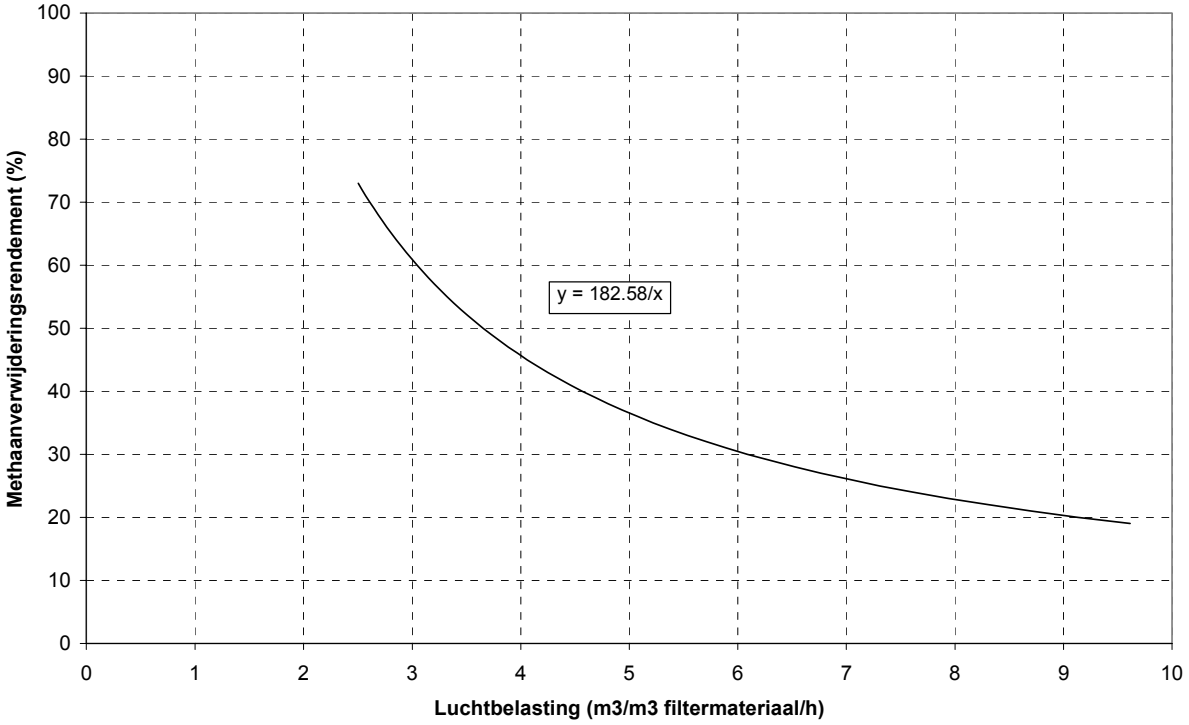
MVR = 182,58 / L [Formule 5]

met:

MVR : methaanverwijderingsrendement (%)

L : luchtbelasting (m^3/m^3 filtermateriaal/uur)

In Figuur 15 is het verband tussen methaanverwijderingsrendement (%) en luchtbelasting (m^3/m^3 filtermateriaal/uur) uit [Formule 5] grafisch weergegeven. De grafiek wordt beperkt tot het gebied van 19 - 73% methaanverwijdering aangezien de metingen in periode dag 25 - 60 binnen deze range vallen.



Figuur 15 Methaanverwijderingsrendement versus luchtbelasting van biofilter voor behandeling van ventilatielucht van drijfmestopslag (CH_4in: 400 - 5500 mg/m^3).

Het verband uit Figuur 15 geeft aan dat het methaanverwijderingsrendement (%) alleen afhangt van de aangelegde luchtbelasting en niet van de methaanconcentratie in de te behandelen lucht; dit is het directe gevolg van de lineaire relatie uit Figuur 14. De doelstelling van het project om

een biofilterinstallatie te ontwikkelen die een methaanverwijdering van 50% realiseert, kan dus ruimschoots gehaald worden mits het filter voldoende groot is.

5.9 Rekenvoorbeeld

Aangenomen wordt dat de methaanproductie uit een drijfmestopslag, voor zowel koeien- als varkensdrijfmest, ongeveer 40 g/m^3 mest/dag bedraagt (zie Tabel 3) en niet afhangt van het ventilatiedebiet. Uitgaand van een mestopslag met een volume van 1000 m^3 bedraagt de methaanproductie dan $1,7 * 10^6$ mg/uur.

Voor het luchtdebiet geldt:

$$Q = MP / CH_4in \qquad \text{[Formule 6]}$$

met:

Q : luchtdebiet (m^3/uur)

MP : methaanproductie (= $1,7 * 10^6$) (mg/uur)

CH_4in : methaanconcentratie ingaande lucht (mg/m^3)

Wanneer L wordt vrijgemaakt uit [Formule 5] en tezamen met [Formule 6] wordt ingevuld in [Formule 3] volgt:

$$VF = MP / (CH_4in \times 182,58) \times MVR = 9,1 \times 10^3 / CH_4in \times MVR \qquad \text{[Formule 7]}$$

met:

VF : volume filtermateriaal (m^3 filtermateriaal)

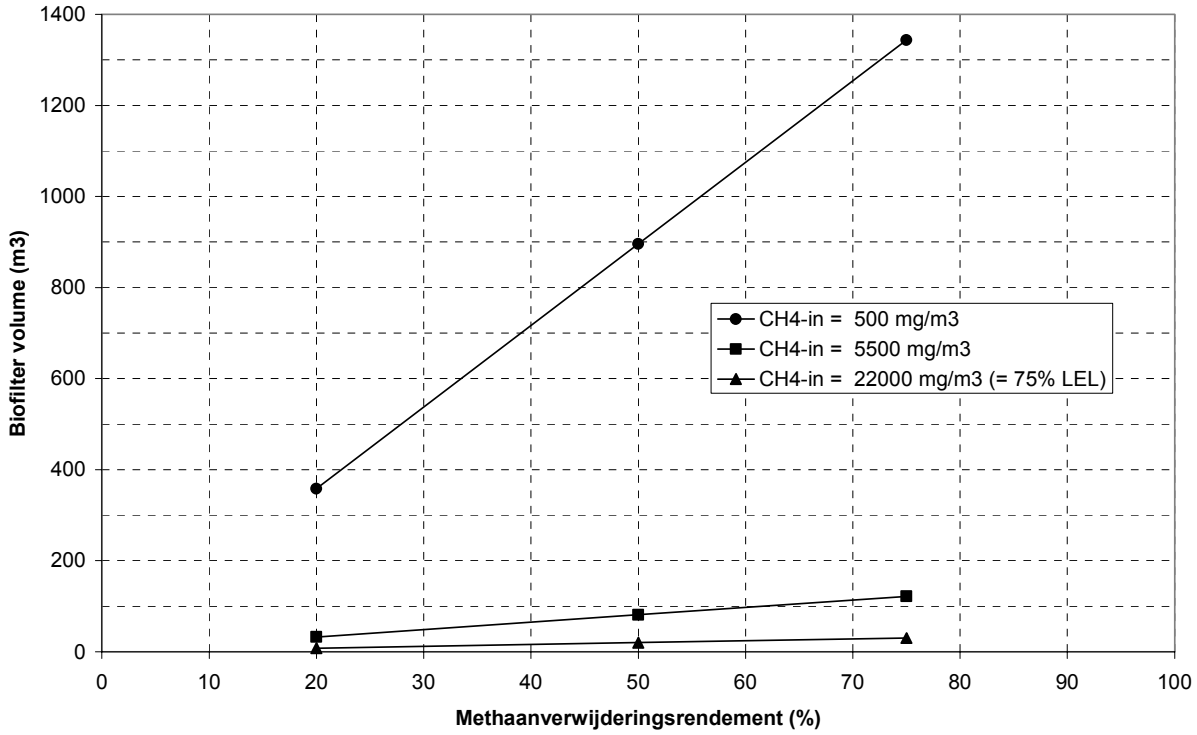
MP : methaanproductie (= $1,7 * 10^6$) (mg/uur)

CH_4in : methaanconcentratie ingaande lucht (mg/m^3)

MVR : methaanverwijderingsrendement (%)

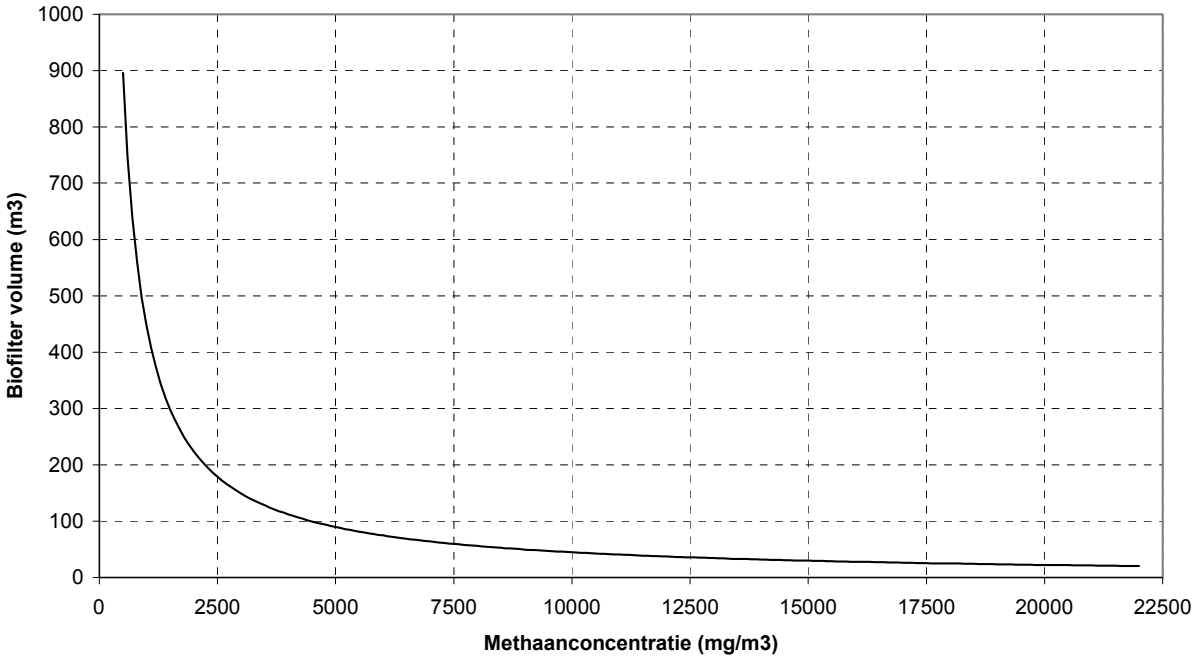
Het verband tussen het methaanverwijderingsrendement en het hiervoor benodigde biofiltervolume ([Formule 7]) wordt in Figuur 16 gegeven voor een aantal methaanconcentraties. Wanneer de methaanconcentratie van de ingaande lucht 500 mg/m^3 (de minimale concentratie uit Figuur 14) bedraagt, kan afgelezen worden dat een biofilter van 900 m^3 noodzakelijk is om een methaanverwijdering van 50% te bereiken. Wanneer de methaanconcentratie van de ingaande lucht 5500 mg/m^3 (de maximale concentratie uit Figuur 14) bedraagt, kan afgelezen worden dat een biofilter van 80 m^3 reeds voldoende is om een methaanverwijdering van 50% te

bereiken. Evenzo kan de benodigde biofiltergrootte worden afgelezen voor andere verwijderingspercentages. In Figuur 17 wordt het verband gegeven tussen biofiltervolume en methaanconcentratie voor een methaanverwijderingsrendement van 50%.



Figuur 16 Biofiltervolume versus methaanverwijderingsrendement voor verschillende methaanconcentraties van ingaande lucht van biofilter dat ventilatielucht van drijfmestopslag (1000 m^3) behandelt.

Uit Figuur 16 en 17 blijkt dat hoe hoger de ingaande methaanconcentratie is, hoe kleiner het benodigde biofilter zal zijn om een bepaald methaanverwijderingspercentage te bereiken. Bij de behandeling van ventilatielucht van een mestopslag in een biofilter dient dus gestreefd te worden naar een zo hoog mogelijke methaanconcentratie. Dit kan bereikt worden door de mestopslag beter van de buitenlucht af te sluiten en de hoeveelheid af te zuigen lucht zo af te stellen, dat door de optredende verdunning met buitenlucht juist de gewenste concentratie wordt bereikt. De methaanconcentratie van de ventilatielucht kan redelijkerwijs verhoogd worden tot 75% van de Lower Explosion Limit (LEL) (= 22.000 mg/m^3 of 3,3 vol%) zonder dat een explosiegevaarlijke toestand wordt bereikt. Zoals in Tabel 2 reeds vermeld is, zijn in de praktijk methaanconcentraties gemeten van 130 - 22.000 mg/m^3 (200 - 33.000 ppm) in de 'headspace' van mestopslagen.



Figuur 17 Biofiltervolume versus methaanconcentraties van ingaande lucht bij een methaanverwijderingsrendement van 50% van biofilter dat ventilatielucht van drijfmestopslag (1000 m^3) behandelt.

In 3.2.2 is reeds toegelicht dat volgens de wet van Henry de hoeveelheid opgelost methaan recht evenredig is met de methaanconcentratie van de lucht (in evenwicht). Dit betekent dat de hoeveelheid opgelost methaan 0,81 mg/l bedraagt bij een methaanconcentratie in de ingaande lucht van 22.000 mg/m^3. Wanneer bovendien aangenomen wordt dat de hoeveelheid methanotrofen in het biofilter groot genoeg is om de grotere hoeveelheid methaan af te breken, kan Figuur 14 geëxtrapoleerd worden. Uit Figuur 16 en 17 kan dan afgelezen worden dat bij een methaanconcentratie van 22.000 mg/m^3 een biofilter van 20 m^3 reeds voldoende is om een methaanverwijdering van 50% te bereiken. Om er zeker van te zijn dat het lineaire verband uit Figuur 14 inderdaad blijft gelden bij dergelijke hoge concentraties dient aanvullend onderzoek te worden uitgevoerd.
In de praktijk worden biofilters gebouwd tot een maximale hoogte van circa 3 meter. Een dergelijk biofilter bestaat uit 3 boven elkaar geplaatste lagen filtermateriaal van elk 1 meter hoogte. Het benodigde grondoppervlak van het biofilter bedraagt dan 1/3 m^2 per m^3 biofiltervolume.

6 CONCLUSIES

1. In pilot-onderzoek is aangetoond dat biofiltratie een succesvolle methode is voor de verwijdering van methaan (CH_4) uit ventilatielucht van een drijfmestopslag (verwijdering tot 85%). Het biofilter dat hiervoor gebruikt wordt is zeer eenvoudig van uitvoering en behoeft nauwelijks processturing.
2. Bij een mestopslag van 1000 m^3 en een gewenste methaanverwijdering van 50%, bedraagt de benodigde grootte van een biofilter 20 - 80 m^3 bij een voldoende hoge methaanconcentratie in de te behandelen lucht. De hoogte van de methaanconcentratie kan in principe ingesteld worden door het afregelen van het ventilatiedebiet en het openen of sluiten van aanwezige ventilatieopeningen in de afdekking van de mestopslag. Het benodigde grondoppervlak van het biofilter bedraagt ongeveer 1/3 m^3 per m^3 biofiltervolume.
3. De bijdrage van methaanverwijdering aan de totale broeikasgasreductie (methaan én lachgas) door het biofilter bedraagt ruim 90%.
4. De verwijdering van ammoniak (NH_3) in het biofilter bedraagt 90 - 100%.
5. De verwijdering van waterstofsulfide (H_2S) in het biofilter bedraagt 100%.
6. Het geurkarakter van de ventilatielucht verandert door het biofilter van 'mestlucht' in 'bosgeur'.

7 AANBEVELINGEN VOOR NADER ONDERZOEK

Nader onderzoek is gewenst om de volgende vragen te beantwoorden:

1. *Verhoging beschikbaarheid methaan*
   Een beperkende factor bij het behandelen van methaanhoudende lucht is de beperkte wateroplosbaarheid van methaan, waardoor er slechts weinig methaan beschikbaar is voor de bacteriën. Op welke manier kan de beschikbaarheid van methaan voor de bacterien verhoogd worden? Is het mogelijk een apolair oplosmiddel op te mengen met het filtermateriaal waardoor de oplosbaarheid van het methaan als het ware wordt verhoogd? Wanneer de oplosbaarheid van methaan verhoogd wordt, kan volstaan worden met een kleiner biofilter. Mogelijk wordt behandeling van ventilatielucht van stallen dan eveneens mogelijk. De toepassingsmogelijkheden van het bioiflter voor emissiereductie van overige broeikasgassen zou hierdoor sterk toenemen.
2. *Gedrag bij hoge methaanconcentraties*
   Geldt er bij methaanconcentraties tussen 5500 en 22000 mg/m^3 inderdaad een lineair verband tussen methaanverwijdering (mg/m^3 filtermateriaal/uur) en methaanconcentratie (mg/m^3) zoals aangenomen wordt in het rapport? De beantwoording van deze vraag is bepalend voor de benodigde grootte van het biofilter en daarmee bepalend voor de kosten van het proces.
3. *Optimalisatie filtermateriaal*
   Kan een vulmateriaal worden ontwikkeld met een hogere activiteit van methanotrofen? Wat is de standtijd (levensduur) van het filtermateriaal? Kan deze verlengd worden? Het antwoord op deze vraag is medebepalend voor de exploitatiekosten van het biofilter.
4 *Optimalisatie procesvoering*
   Kan door middel van processturing en -beïnvloeding een betere werking of hogere belasting van het filter bereikt worden (bijv. door toevoeging van nutriënten tijdens de procesvoering)? Optimalisatie van de procesvoering kan zo resulteren in een kleiner en/of beter beheersbaar biofilter.
5. *Geurreductie*
   Welke geurreductie wordt door het biofilter gerealiseerd (zowel met betrekking tot geurconcentratie als geurbeleving)? Wanneer de geurreductie is gekwantificeerd bestaat er, naast de emissiereductie van methaan, ammoniak en waterstofsulfide, een extra argument voor de toepassing van het biofilter.

5. *Temperatuur*

Wat is de werking van het biofilter 'jaarrond'? In hoeverre wordt de methaanproductie uit de mestopslag en de methaanverwijdering in het biofilter beïnvloed door de buitentemperatuur? Deze kennis is nodig om de werking van het filter gedurende het gehele jaar te garanderen.

LITERATUUR

Abalos R; E Erdmann; HA Destefanis (2003) Surface modifications of volcanic glasses (perlites) by water vapor. Latin American Applied Research 33, pp. 59-62.

Anderson GA; RJ Smith; DS Bundy; EG Hammond (1987) Model to predict gaseous contaminants in swine confinement buildings. J. Agric. Engng Res. 37, pp. 235-253 (reference 10-16).

Asijee K (1993) Handboek voor de rundveehouderij. 6de herziene druk.Informatie en Kennis Centrum Veehouderij, Lelystad, 629 p. ISBN: 90-800999-2-9.

Bemmel van JBM; AW van der Werf (2002) Haalbaarheidsstudie naar de toepassing van biologische technieken voor de behandeling van methaan houdende lucht uit stallen en mestopslagen. Projectcode 2000-1366. Bioclear, Groningen.

Brunink JAJ (2002) Methaanemissie-reductie in de veeteelt. Toepasbaarheid van biologische luchtfiltratie. Document no. SPE-MTV-RP001. Stork Product Engineering, Amsterdam.

Guingand N; R Granier; P Massabie (1997) Characterization of air extracted from pig housing: effects of the presence of slurry and the ventilation rate. In: Proceedings of the international symposium on ammonia and odour control from animal production facilities, pp. 49-55. October 6-10, 1997, Vinkeloord, The Netherlands.

Groot Koerkamp PWG (1997) Climatic conditions and aerial pollutants in and emissions from commercial animal production systems in The Netherlands. In: Proceedings of the international symposium on ammonia and odour control from animal production facilities, pp. 139-144. October 6-10, 1997, Vinkeloord, The Netherlands.

Hansen MN (s.a.) Danish Institute of Agricultural Sciences, Department of Agricultural Engineering, Denmark.

Husted S (1994) Seasonal variation in methane emission from stored slurry and solid manures. *Journal of Environmental Quality*, 23: 3, pp. 585-592.

IPCC (1996) Climate Change 1995. Thet Science of Climate Change. Intergovernmental Panel on Climate Change; J.T. Houghton, L.G. Meira Filho, B.A. Callander, N. Harris, A. Kattenberg and K. Maskell, eds. Cambridge University Press. Cambridge, U.K.

Meyer DJ; HB Manbeck (1986) Dust levels in mechanically ventilated swine barns. ASAE paper no. 86-4042. American Society of Agricultural Enginerrs, St. Joseph, MI, USA.

Mol G (2003) Persoonlijke mededeling. Cijfers zijn gebaseerd op database van door IMAG gemeten ventilatiedebieten (gepubliceerd in diverse rapporten). IMAG, Wageningen.

Ogink NWM; PN Lens (2000) Geuremissies uit de veehouderij. IMAG-nota V 2000-11, 36 pp.

RIVM & CBS (2001) Milieucompendium 2000: het milieu in cijfers. Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu, Bilthoven.

Sander R (1999) Compilation of Henry's Law Constants for Inorganic and Organic Species of Potential Importance in Environmental Chemistry (Version 3) http://www.mpch-mainz.mpg.de/~sander/res/henry.html

Schulte DD (1997) Critical Parameters for Emissions. In: Proceedings of the international symposium on ammonia and odour control from animal production facilities, p. 23-34. October 6-10, 1997, Vinkeloord, The Netherlands.

Uenk GH; TGM Demmers; MG Hissink (1993) Luchtsamenstelling onder de overkapping van mestsilo's vóór en na het mixen van de mest (in Dutch). Report 93-10. IMAG-DLO, Wageningen, The Netherlands.

Werf van der AW (2002) Resultaten van het laboratoriumonderzoek naar de toepassing van biologische technieken voor de behandeling van methaan houdende lucht uit stallen en mestopslagen. Projectcode 2000-1366. Bioclear, Groningen.

Williams AG; E Nigro (1997) Covering slurry stores and effects on emissions of ammonia and methane. In: Proceedings of the international symposium on ammonia and odour control from animal production facilities; pp. 421-428. October 6-10, 1997, Vinkeloord, The Netherlands.

Bijlage 4 - Rapportage fase 4:

Methaanemissie-reductie in de veeteelt, Toepasbaarheid van biologische luchtfiltratie (Brunink, 2002).

Methaanemissie-Reductie in de Veeteelt
Toepasbaarheid van Biologische Luchtfiltratie

Stork Product Engineering B.V.
Amsterdam
December 2002

Document type: Report

Document number: SPE-MTV-RP001
Issue: 1.1

The contents of this document is confidential. No part of this document may be reproduced in any form by print, photograph, microfilm or any other means without written permission of the publisher.

Document title **Methaanemissie-Reductie in de Veeteelt**

Toepasbaarheid van Biologische Luchtfiltratie

	NAME	SIGNATURE
Author	J.A.J. Brunink	
Checked	C. van Driel	
Verified	F. Eckhard	
Authorised	D. Slager	Date: 27 December 2002

DISTRIBUTION

Before authorisation:	After authorisation:
Internal: CvD, FE, JB, DS External:	Internal: CvD, FE, JB, DS External: see next page

CHANGE RECORD

Issue	Date	Changed Pages	Summary of changes
0.1	7 October 2002	All	First issue
0.2	15 November 2002	All	Additions and Corrections
1.0	20 December 2002	All	Completely revised new issue
1.1	27 December 2002	All	Introduction Final Refinements

The contents of this document is confidential. No part of this document may be reproduced in any form by print, photograph, microfilm or any other means without written permission of the publisher.

External Distribution list

M. Hilhorst	IMAG
R. Melse	IMAG
J. van der Waarde	Bioclear
A. van der Werf	Bioclear

STORK PRODUCT ENGINEERING B.V.
Czaar Peterstraat 229 1018 PL Amsterdam
P.O. Box 379 1000 AJ Amsterdam
The Netherlands
Telephone: +31 20 5563 444
Telefax: +31 20 5563 556

Inhoud

1 INLEIDING 5
1.1 Achtergrond 5
1.2 Opzet van het Rapport 5
1.3 Methaan 5
1.4 Mestopslag 6
1.5 Pensvergisting 7
2 TECHNIEKEN VOOR METHAANEMISSIE-REDUCTIE 8
2.1 Fysisch/chemische Technieken 8
2.1.1 Incineratie 8
2.1.2 Katalytische Oxidatie 9
2.1.3 Fotokatalytische Oxidatie 9
2.2 Biotechnologische Technieken 9
2.3 Samenvatting 11
3 METHAANVERWIJDERING MET BIOLOGISCHE SYSTEMEN 13
3.1 Algemeen 13
3.2 Resultaten Pilotstudie 14
3.3 Kostenanalyse 14
3.3.1 Uitgangspunten 14
3.3.2 Ontwerpparameters 14
3.3.3 Kostenopbouw 15
3.3.4 Aanschaf en Bouwkundige Investeringen Compostfilter 15
3.3.5 Operationele Kosten, Onderhoud en Bediening 17
3.3.6 Kostenschatting 18
4 BIOLOGISCHE LUCHTFILTRATIE MET MEMBRAANFILTERS 21
4.1 Introductie 21
4.2 Membraan Filter Configuratie 22
5 SAMENVATTING EN CONCLUSIES 24
6 BEGRIPPEN EN AFKORTINGEN 25
6.1 Afkortingen 25
6.2 Begrippen 25
7 REFERENTIES 26
8 APPENDICES 27
8.1 Appendix 1: Emissie-factoren ten gevolge van Pensvergisting 27

1 INLEIDING

1.1 Achtergrond

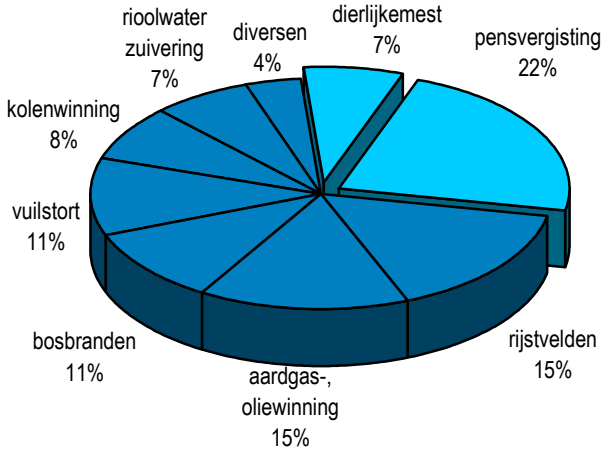
Binnen het kader van het ROB (Reductie Overige Broeikasgassen) programma is door IMAG, Bioclear en Stork Product Engineering (SPE) een door de NOVEM gesubsidieerd project uitgevoerd naar methaanverwijdering bij mestopslag door middel van biotechnologische technieken.
Het doel van het project is de ontwikkeling van een biologisch luchtfilter voor de reductie van methaanemissies uit stallen en mestopslag met tenminste 50%, hetgeen een reductiepotentie inhoudt van circa 1 Megaton CO_2 equivalenten per jaar.
Het project is opgebouwd uit een literatuurstudie naar de meest geschikte technologie, een microbiologische studie naar de meest geschikte micro-organismen, een pilotstudie, en een haalbaarheidsstudie welke in dit rapport is samengevat.

1.2 Opzet van het Rapport

Na een korte inleiding over methaan en de productie daarvan in de veehouderij wordt in hoofdstuk 2 een overzicht gegeven van technieken die kunnen leiden tot de reductie van de uitstoot van methaan. In hoofdstuk 3 worden de drie technieken: biotrickling filter (BTF), compostfilter en het Biologisch Luchtfilter (BAF), besproken welke als uitgangspunt dienden bij de aanvang van het project. Uit de door Bioclear uitgevoerde literatuurstudie komt naar voren dat op basis van (geschatte) kosten een compostfilter het beste alternatief is. In hoofdstuk 4 wordt op basis van de uitkomsten van de door IMAG uitgevoerde pilotstudie een kostentechnisch overzicht gegeven.

1.3 Methaan

Methaan wordt gezien als een significant bijdragende component in de uitstoot van broeikasgassen. De relatieve bijdrage van methaan aan deze broeikasgassen is, per eenheid van massa, 21 maal groter dan die van CO_2.



Figuur 1: Door de mens veroorzaakte methaanbronnen in de wereld (bron: EPA, 1999). 70% van alle methaanemissies wordt veroorzaakt door de mens. In 1990 kwam dit overeen met 2.150 MMTCE. De resterende 30% van de methaanuitstoot (916 MMTCE) is afkomstig van natuurlijke bronnen zoals moerassen (72%), oceanen (6%), termieten (13%), en andere (9%).

De mens en zijn activiteiten zijn de grootste bron voor de uitstoot van methaan (zie Figuur *1*). Ongeveer 70% is afkomstig van menselijke activiteiten. De veehouderij is daarin een niet onaanzienlijke bron. Belangrijke bronnen van methaan in de veeteelt zijn de opslag van de mest en de methaan die vooral vrijkomt door de spijsvertering bij herkauwers. Dit verschijnsel wordt ook wel pensvergisting genoemd.

1.4 Mestopslag

Gebleken is dat bij de totale mestopslag bij boerderijen in Nederland een emissie van methaan van circa 0,1 Megaton per jaar optreedt, wat overeenkomt met 2,0 Megaton kooldioxide-equivalenten. Dit is circa 20% van de totale dierlijke emissie. De nagestreefde emissiereductie bedraagt 1,0 Megaton kooldioxide-equivalenten per jaar, wat overeenkomt met 0,05 Megaton methaan-equivalenten per jaar. Om deze reductie te bereiken dienen alle mestopslagen met een behandelingssysteem te worden uitgerust, waarbij dit systeem een rendement van 50% heeft.

De mest uit stallen van een boerderij wordt verzameld in een mestopslag, waar de mest maximaal 100 dagen wordt opgeslagen. De natuurlijke emissie aan methaan uit deze mestopslag bedraagt circa 0,1 gram methaan per dier per dag wat overeenkomt met ongeveer 0,15 liter biogas per dier per dag. Het methaangehalte in de gasfase bedraagt 40 tot 70% en voor de rest hoofdzakelijk uit CO_2 (zie Tabel 1).

Component [-]	Percentage [vol.%]
methaan (CH_4)	40-70
kooldioxide (CO_2)	30-60
andere gasvormige componenten, waaronder	1-5
waterstof (H_2)	0-1
waterstofsulfide (H_2S):	0-3

Tabel 1: Biogas samenstelling

Zoals uit Tabel 2 blijkt verschilt de hoeveelheid methaan met de soort mest. Vooral runder- en varkensmest bevatten veel methaan. In Tabel 3 zijn deze hoeveelheden uitgesplitst over deze dieren en ontwikkelingsfase waarin het dier verkeert.

Substraat [-]	Gas opbrengst [l/kg VS*]	Methaan [%]
varkensmest	340-550	65-70
rundermest	90-310	65
kippenmest	310-620	60
paardenmest	200-300	
schapenmest	90-310	
rioolslib	310-740	

Tabel 2: Gasopbrengst en methaaninhoud van diverse soorten mest na 10-20 dagen opslag bij een temperatuur van gemiddeld 30°C.
Bron: Production and Utilization of Biogas in Rural Areas of Industrialized and Developing Countries, Schriftenreihe der gtz, No. 97, p. 63, after: Felix Maramba, Biogas and Waste Recycling - The Phillipine Experience; Metro Manila, Phillipines, 1978.
**) VS = Total volatile solids, i.e. de organische fractie van vaste mestdeeltjes die zal oxideren en in gasvorm overgaan bij een temperatuur van 600°C. Het vertegenwoordigt ~9% van de massa vloeibare rundermest.*

Uitgegaan wordt van een mestopslag van 1.000 m^3 (range 500-1.500 m^3), een temperatuur van 15 ^{0}C en een methaanproductie van 40 g CH_4/m^3 mest/dag. Dit betekent een methaanuitstoot van 40 kg CH_4/dag voor de gehele mestopslag, hetgeen overeenkomt met een methaanvolume van 60 m^3/dag.

Aangezien mest niet continu of helemaal niet uitgereden kan worden (afhankelijk van de soort boerderij) zal de vulling van de mestopslag in de tijd variëren en daarmee ook de totale hoeveelheid gasproductie en methaanproductie. De totale gasuitstoot is daarmee variabel en kan fluctueren van nagenoeg nul (in de zomer, waarin de opslag nagenoeg geen mest bevat, bij koeien) tot de gasuitstoot bij een maximale vulling van de opslag (geschatte gasproductie 60 m^3 per dag).

Dier [-]	Gewicht [kg]	Mest [kg/dag]	VS [%]	B_o^* [m^3/kg]
Rund				
melkvee	635	51	7	.24
vleesvee	590	48.5	11	.24
vaars	410	35	6	.24
kalf	225	19.5	6	.24
Varken				
zeug	180	11	9	.36
big	13	2	9	.47
opgroeiend vleesvarken	32	2	9	.47
vleesvarken	80	51	9	.47

Tabel 3: Mest kentallen (bron: Safley et al., 1992).
$^*B_o$ is het maximum methaan potentieel van de mest (m^3/kg)

1.5 Pensvergisting

Zoals uit
Figuur *1* blijkt is de methaanemissie als gevolg van de spijsvertering groter dan door de opslag van mest. De methaanemissies zijn afhankelijk van het type dier, het soort voer maar ook van de geografische locatie. Zo is de methaanproduktie iets hoger in warmere streken (zie Appendix 1).
De methaan wordt voornamelijk geproduceerd door herkauwers in de eerste van de vier magen waar het plantaardig materiaal wordt gefermenteerd door micro-organismen. Deze micro-organismen, zo'n 200 verschillende soorten, zetten het plantaardig materiaal om in voedingsstoffen, zoals vluchtige vetzuren, welke het dier kan gebruiken. Methaan is hierbij een bijprodukt en wordt voornamelijk afgegeven door mond en neus.
De methaan vormt dus een deel van de energie van het voer. Men kan dan ook waarnemen dat als de efficiency toeneemt, bijvoorbeeld door een verhoogde melkproductie, er meer energie verbruikt hetgeen resulteert in een verlaagde methaanproductie.

In Tabel 4 staan een aantal cijfers voor methaanemissies ten gevolge van pensvergisting. Deze getallen zijn tot stand gekomen door middeling van Amerikaanse gegevens welke in Appendix 1 gepresenteerd zijn.

Dier [-]	Melkvee [kg/jaar]	Slachtvee [kg/jaar]
Vaars (0-12 maanden)	20.0	21.7
Vaars (0-24 maanden)	59.5	64.9
Volwassen koe	126.8	66.2
Kalf	-	23.4
Jaarling	-	47.4
Stier	-	100.0

Tabel 4: Methaanemissies t.g.v. pensvergisting.

Indien wordt aangenomen dat de dieren van 1 november tot 1 mei op stal staan en melkvee alleen overdag wordt geweid betekent dat, dat een methaanemissie-reductie van ruim 80%[1] kan worden verkregen indien de stallucht wordt gezuiverd van methaan.
Voor slachtrunderen, die het gehele zomerseizoen worden geweid betekent dat een reductie van zo'n 50%.

2 TECHNIEKEN VOOR METHAANEMISSIE-REDUCTIE

De methaanproductie is minimaal onder droge aerobe condities maar hoog in geval van drijfmest. In de relatief hoog geïndustrialiseerde veeteelt is het watergehalte van de mest hoog, waardoor dus ook de methaanproductie groot is. Gezien de huidige bedrijfsvoering is overgang naar droge mest geen optie en zal, om emissie te voorkomen, de methaan uit de mest verwijderd en opgevangen moeten worden tijdens de opslag.

Voor behandeling van de vrijkomende methaanrijke gasfase kunnen zowel fysische als biologische technieken geschikt zijn. Voor de haalbaarheid van een specifieke techniek zullen aspecten als bedrijfszekerheid, kosten, complexiteit van het systeem, onderhoud, veiligheid, energiebalans etc. van belang zijn.

De beschikbare technieken kunnen in twee groepen onderverdeeld worden:
- fysisch/chemische technieken, waaronder verbranding;
- biologische oxidatie.

Actieve-koolfilters worden vaak ingezet voor luchtzuivering. Echter, deze filters werken slecht voor kleine moleculen en zijn daarnaast gevoelig voor vocht. Daarom zijn actieve-koolfilters niet in de beschouwing meegenomen.

2.1 Fysisch/chemische Technieken

2.1.1 Incineratie

Een van de mogelijkheden voor methaanverwijdering is het affakkelen. Daarbij kan een probleem optreden door een te lage energie-inhoud van het gas. Methaanpercentages beneden de bovenste explosiegrens 20% kunnen explosiegevaar geven en vereisen extra technologische voorzieningen. Momenteel zijn er systemen op de markt welke gassen met een methaangehalte tot 5% veilig aankunnen. Deze ondergrens maakt dus dat het systeem slecht kan inspelen op de wisselende omstandigheden van het aanbod van biogas. Dit kan ondervangen worden door bijmengen van bijv. aardgas. Hierdoor worden de veiligheid en bedrijfszekerheid weliswaar aanzienlijk vergroot, maar dit maakt het systeem economisch minder interessant.

[1] Periode op stal 1 november tot 1 mei, is 181 dagen. 1 mei - 1 november van 08.00 tot 17.00 uur in wei, dat wil zeggen 15 uur op stal hetgeen overeenkomt met 7104 uur per jaar.

Andere problemen welke bij het affakkelen op kunnen treden zijn de mogelijke vorming van vervuilende componenten zoals NO_x, en SO_2. Dit zal vooral optreden als de lucht uit de stal wordt gebruikt voor het bijmengen met de biogasstroom. Hierdoor worden dan weliswaar geuremissies (ammoniak e.d.) worden voorkomen maar wordt nieuwe vervuiling gegenereerd. Affakkelen is toepasbaar bij debieten vanaf 250 m^3/uur.

2.1.2 Katalytische Oxidatie

In geval van katalytische oxidatie wordt de gasstroom over een katalysator geleid waarbij de oxidatie plaatsvindt. Dit kan onder zuurstofrijke condities, maar eveneens onder de afsluiting van lucht (pyrolyse). In het laatste geval wordt de methaan gereduceerd tot koolstof. De reactie vindt plaats bij verhoogde temperatuur en kost dus energie. Voordeel van katalytische verbranding is dat het systeem goed kan inspelen op het wisselende aanbod van biogas.
Daar deze systemen uitsluitend optimaal werken bij relatief schone gasstromen, omdat anders vervuiling van de katalysator kan optreden, is katalytische oxidatie geen goede oplossing voor de methaanreductie bij mestopslag.

2.1.3 Fotokatalytische Oxidatie

Bij fotokatalytische oxidatie (PCO) wordt gebruik gemaakt van de eigenschap dat als titaandioxide wordt bestraald met licht van 385 nm er elektronen worden vrijgemaakt. In waterig milieu leidt dit tot de vorming van hydroxylradicalen en superoxides:

$$OH^- + h^+ \rightarrow OH$$

$$O_2 + e^- \rightarrow O_2^-$$

Deze entiteiten zijn zeer reactief en kunnen organische moleculen oxideren. Dit proces wordt dan ook toegepast voor het reinigen van afvalstromen. De reactie kan zowel in de gas- als in de vloeistoffase aangewend worden. In geval van vloeistoffen is er wel de eis dat de vloeistof niet te troebel is omdat dat het licht dan onvoldoende kan doordringen. Het proces kan nog versterkt worden door toevoeging van ozon of waterstofperoxide.
Voordelen van dit proces zijn dat de reactie plaatsheeft op kamertemperatuur en dus betrekkelijk goedkope installaties gebouwd kunnen worden (PVC-leidingen). Daarbij kan zonlicht worden gebruikt als lichtbron. Wat natuurlijk als nadeel heeft dat het systeem dan slechts beperkt inzetbaar is. Bijkomend voordeel van PCO is dat ook alle andere geuremissies gereduceerd worden en niet afhankelijk is van de hoeveelheid aangeleverd gas.

2.2 Biotechnologische Technieken

De biologische oxidatie kan worden gebruikt om methaan te oxideren tot kooldioxide, om zodoende een netto-reductie van de kooldioxide-equivalenten te bereiken. Het voordeel van een biologische techniek is dat deze efficiënt kan worden uitgevoerd bij normale temperaturen en dus weinig extra energie consumeert. Een significante energieconsumptie ten behoeve van het proces is ongewenst, aangezien energieopwekking eveneens leidt tot uitstoot van broeikasgassen. Daarnaast kunnen middels een biologisch systeem simultaan aan de methaanafbraak tevens andere organische componenten worden verwijderd (zie ook Tabel 1). In relatie tot de beschreven toepassing zou de luchtfase uit stallen mee worden gezuiverd in een biologisch systeem.

Goed afbreekbaar	Redelijk afbreekbaar	Moeilijk afbreekbaar
Benzines	Ruwe olie	Perchloorethylene
Diesel olie	Creosoten	Tetrachloorethaan
Benzeen	Pentachollorphenol	PCB's
Xyleen	Lange alifatische koolstof-ketens	Gechloreerde pesticiden, w.o. DDT, heptachloor en chlordane
Tolueen	Phtalaten	
Fenolen	Trichloorethylene	
Alcoholen	Vinyl choride	
Ketonen	Ethers	
Koolwaterstoffen	Ammonia	
Acrylonitrile		
Esters		
Zwavelwaterstof		
Styreen		

Tabel 5: Overzicht van enkele biologisch afbreekbare stoffen.

Biotechnologische technieken zijn zeer effectief voor VOC's en geurstoffen met een hoge oplosbaarheid in water en voor hoge [lucht]snelheden in combinatie met lage VOC's concentraties. De overdracht van de verontreiniging van de lucht naar de waterige biomassa hangt met name af van de oplosbaarheid in water.

Een biotechnologisch luchtfilter kan worden gekarakteriseerd door:

- de VOC/geurconcentratie en de luchtstroom moet min of meer constant zijn en de concentratie verontreiniging met ongeveer 3 gram per kubieke meter bedragen;
- stof, vetten en andere deeltjes moeten verwijderd worden;
- de werkzame temperatuur ligt tussen de 15-30^{o}C;
- er mogen geen bacteriële remmers aanwezig zijn.

De efficiency van een biologisch systeem hangt af van:

- verblijftijd van de verontreiniging in de reactor;
- fluctuaties in concentratie van de VOC-/geurcomponent; en/of doorstroomsnelheid;
- temperatuurfluctuaties;
- duur van de perioden tussen VOC-/geuraanbod.

Binnen de biologisch luchtzuivering kunnen drie methoden onderscheiden worden:

- biofiltratie;
- biotrickling filter (BTF);
- bioscrubber.

In een biofilter zijn de micro-organismen geïmmobiliseerd op materiaal dat kan bestaan uit compost, turf, boomschors, polystyreenballetjes, e.d. Door dit bed, dat is aangebracht op een poreuze drager, wordt de verontreinigde lucht geleid. Belangrijk is dat de vochtigheid van het bed op peil blijft. Daarom wordt, indien nodig, de lucht vooraf bevochtigd. Een dergelijk biofilter wordt ook wel compostfilter genoemd.

Ten behoeve van meer geavanceerde toepassingen, waarbij omvang, gewicht, e.d. een rol spelen, is door Bioclear en Stork (voorheen Comprimo) een Biologisch Luchtfilter (BAF) ontwikkeld waarbij de micro-organismen zich in een membraanreactor bevinden. Hierdoor wordt een aanzienlijke ruimtewinst geboekt en een hoge graad van bedrijfszekerheid bereikt.

In een biotrickling filter zijn de micro-organismen geïmmobiliseerd op een (veelal) kunstmatig dragermateriaal met een groot oppervlak, zoals lavasteen, kool, etc. De organismen en het dragermateriaal bevinden zich in een reactor waarin water wordt gerecirculeerd door middel van een sproei-installatie. De verontreinigde lucht wordt onder in de reactor geblazen waarna bij de doorgang door de pakking de verontreinigingen worden afgebroken.

In een bioschrubber worden de VOC's en geurcomponenten eerst geabsorbeerd in een vloeistoffase, die meestal gewoon uit water bestaat. Deze vloeistoffase wordt vervolgens door een beluchte tank geleid waarin de gesuspendeerde biomassa zich bevindt.

In Tabel 6 is een overzicht van deze drie besproken technieken weergegeven.

Methode	Toepassing	Voordelen	Opmerkingen
Biofilter	• geurcomponenten en lage VOC concentraties (<= 0.5 g/m^3) • luchtdebieten van 500 – 200.000 m^3/uur, afhankelijk van het filterontwerp	• lage investeringskosten (geldt niet voor de BAF) • lage operationele kosten • breed toepassingsgebied • niet of moeilijk oplosbare stoffen worden ook af-gebroken • eenvoudig in onderhoud • enkel reactor ontwerp	• lage specifieke productiviteit • operationele parameters moeten worden gecontroleerd • groot grondoppervlak benodigd • bed met biomassa is lastig te verwijderen (zwaar en omvangrijk) • hoge retentietijden • kanaalvorming mogelijk
Biotrickling-filter	• lage tot middel grote VOC concentraties (<= 3 g/m^3) • luchtdebieten van 500 – 50.000 m^3/uur	• gemiddelde investeringskosten • lage operationele kosten • lage retentietijden – hoge volume doorzet • beperkt in omvang en gewicht • enkel reactorontwerp	• fluctuaties in het aanbod moeten in het ontwerp opgevangen worden
Bioscrubber	• Lage tot middel grote VOC concentraties (<= 3 g/m^3) • Luchtdebieten van 10.000 – 50.000 m^3/uur	• Kan fluctuataties in het aanbod goed opvangen • Goede controle van reactor condities	• Slechts wateroplosbare componenten worden afgebroken • Werking en onderhoud complexer • Extra bijmengen van lucht kan noodzakelijk zijn • Overmaat aan slurrie productie mogelijk

Tabel 6: De toepasbaarheid van de biotechnologische luchtzuiveringstechnieken.

2.3 Samenvatting

In Tabel 7 zijn de voor- en nadelen van diverse technologieën weergegeven.

In de eerste kolom is aangegeven of de technologie tevens andere componenten kan verwijderen. Vooral warmte/kracht koppeling en katalytische oxidatie zijn hiertoe niet geheel in staat. In kolom 2 is het rendement van het systeem weergegeven.

Technologie	Geur-componenten	Rendement	Bedrijfs-zekerheid	Energie-verbruik	Onderhoud	Onderhoudskosten	Inzetbaarheid	Flexibiliteit	Automatisering	Aanschafkosten	Dimensies	Opmerkingen
Fysisch/chemisch systemen												
Incineratie	ja	hoog	goed	laag tot gemiddeld	laag	laag	beperkt	laag	hoog	gemiddeld	beperkt	simpele technologie maar past niet in de huidige tijd
Katalytische oxidatie	gedeeltelijk	hoog	matig	gemiddeld tot hoog	laag	gemiddeld	hoog	hoog	hoog	gemiddeld tot hoog	laag	Idem; kans op vervuiling van katalysator waardoor storingsgevoelig
Fotokatalytische oxidatie	ja	hoog	goed	gemiddeld	laag	laag	hoog	hoog	hoog	gemiddeld tot hoog	gemiddeld	apparatuur enigszins complex, maar simpele schone technologie welke goed opschaalbaar is
Warmte/kracht	nee	hoog	goed	*Energie-levering*	gemiddeld	gemiddeld	beperkt	laag	hoog	hoog	hoog	hoog in aanschaf maar wordt terugverdiend; vooral interessant bij grote bedrijven
Biotechnologische systemen												
BAF	ja	hoog	goed	laag	laag	laag	hoog	hoog	hoog	hoog	gemiddeld tot laag	simpel systeem, laag in onderhoud goed opschaalbaar
BTF	ja	hoog	goed	laag	laag	laag	hoog	hoog	hoog	gemiddeld	hoog	idem
Compostfilter	ja	gemiddeld tot hoog	matig	laag	laag tot gemiddeld	laag	hoog	gemiddeld	hoog	laag	hoog	vereist regelmatige aandacht. Gevoelig voor seizoensinvloeden

Tabel 7: Overzicht van de diverse technologieën ten behoeve van methaanemissie-reductie.

Doc.no.: SPE-MTV-RP001
Date: 27 December 2002 / Issue: 1

3 METHAANVERWIJDERING MET BIOLOGISCHE SYSTEMEN

3.1 Algemeen

Voor de aërobe biologische behandeling van de methaanhoudende gasfase is een systeem nodig, waarin gasvormig methaan efficiënt wordt overgedragen naar een waterfase, waarna biologische afbraak in de waterfase kan plaatsvinden. Hiertoe dient tevens voldoende zuurstof aanwezig te zijn voor de aërobe afbraak van methaan naar kooldioxide. Ondanks omzetting van methaan in kooldioxide is het netto-broeikaseffect daarmee drastisch gedaald (methaan vertegenwoordigt 21 kooldioxide-equivalenten).

Uitgaande van een maximale gasproductie van 60 m^3 methaan/dag is bij 50% rendement een afbraak nodig van ~20.000 gram methaan per dag. Voor behandeling van de betreffende methaanhoudende gasfase zijn de volgende systemen door Bioclear onderzocht:

- biofiltratie gebaseerd op een membraanbioreactor (BAF);
- biofiltratie gebaseerd op een compostfilter;
- biotricklingfilter (BTF);
- bioscrubber;
- actief-slibsysteem.

De criteria bij deze studie kunnen als volgt worden samengevat:

- geschiktheid van de bioreactor voor de behandeling van methaan (een slecht wateroplosbare component);
- verzuringsgevoeligheid van de bioreactor;
- controleerbaarheid van het proces;
- geschiktheid voor een discontinu bedrijf door een variërende belasting;
- kosten.

Uit de studie bij het IMAG en Bioclear kwam naar voren dat gelet op de afgasstromen het niet haalbaar wordt geacht het afgas van varkensstallen middels biologische technieken te behandelen. Wel is het haalbaar om het afgas van de mestopslag met biologische technieken te reinigen met een biologisch systeem aangezien het hier relatief kleine stromen betreft. Berekend is dat voor een mestopslag van 1.000 m^3 een biofilter (compostfilter) nodig is van 100-150 m^3 voor 50% methaanverwijdering.
Aanbevolen wordt een compost- en een biotrickling filter nader te onderzoeken. Een biologisch luchtfilter gebaseerd op membranen werd te duur geacht, mede daar grondbeslag in een agrarische omgeving minder telt.

In de haalbaarheidstudie is door Bioclear eveneens gekeken naar een dragermateriaal. perliet en polyurethaan blijken de meest interessante dragermaterialen voor een compostfilter. De combinatie compost – polystyreen is gepatenteerd en daarom minder universeel toepasbaar. Houtsnippers lijken minder geschikt vanwege de relatief hoge bulkdichtheid, waardoor de constructie van het filter sterker moet zijn. Actieve kool is een dure drager die wordt toegepast wanneer een hoge bindingscapaciteit benodigd is. Omdat methaan niet gebonden wordt door actieve kool biedt actieve kool geen voordelen boven de andere materialen.
De meest geschikte dragers voor toepassing in een biotricklingfilter voor de behandeling van afgassen van stallen en mestopslagen zijn de plastic pakkingsringen (bijv. Pallringen) en mogelijk polyurethaan. Pakkingsringen worden in de industrie op grote schaal toegepast in gaswassers, striptorens en biotricklingfilters. Het enige nadeel van deze ringen is het relatief lage specifieke oppervlak, met name gezien de slechte wateroplosbaarheid van methaan waardoor een groot specifiek oppervlak benodigd is. Mogelijk is een polyurethaan drager hiervoor de oplossing. Structuurpakkingen en actief kool zijn vanuit kostenoverwegingen niet aan te bevelen. Lavasteen heeft als nadeel het grote gewicht en steenwol heeft naar alle waarschijnlijkheid een te geringe mechanische sterkte.

3.2 Resultaten Pilotstudie

Op basis van resultaten van de haalbaarheidsstudie is uiteindelijk besloten om een pilotstudie te maken van een compostfilter met als dragermateriaal compost en perliet. Deze pilotstudie, die uitgevoerd werd door en bij het IMAG, bestond uit een afgedekte mestsilo met een inhoud van 6 m^3 gekoppeld aan een biofilter van 160 liter en dragermateriaal bestaande uit een mengsel van compost en perliet. De lucht uit de headspace van de silo werd afgezogen en door het filter geleid. Gekeken werd onder meer naar de concentraties CH_4, CO_2, en N_2O voor en na het filter.
Tevens is bij Bioclear in een aantal microbiologische studies gekeken naar de verwijderingsresultaten van het filter na enting met verschillende bacterieculturen (reinculturen, actief slib en compost afkomstig van een stortplaats). Hierbij werden geen grote verschillen m.b.t. de affiniteit, groeisnelheid, remming als gevolg van pH-schommelingen en, of hoge nitraat- en nitrietbelasting waargenomen.
Uit de experimenten kwam naar voren dat het proces wordt geremd door de lage oplosbaarheid van methaan in water en niet door de afbraakcapaciteit van de biomassa. Dit fenomeen was ook waargenomen bij de ontwikkeling van een BAF voor methaanreductie in de glovebox voor de Spaceshuttle (Gent et al., 1999), en was de onderliggende reden om af te zien van de methaanverwijdering uit stallucht aangezien dit zeer omvangrijke installaties zou vergen.
De slotconclusie luidt dan ook dat biofiltratie een succesvolle techniek is voor de reductie van methaan uit mestopslagen en dat er gestreefd moet worden naar een zo laag mogelijk ventilatie debiet, dat wil zeggen een zo hoog mogelijke concentratie CH_4. Verder bleek eveneens, wat al min of meer bekend is, dat ammoniak en zwavelwaterstof (H_2S) zo goed als geheel worden verwijderd en ook de mestgeur grotendeels blijkt te worden gereduceerd.

3.3 Kostenanalyse

3.3.1 Uitgangspunten

De metingen tijdens de pilotstudie gingen tot maximaal 5500 mg CH_4 per m^3 afgas. Bij deze concentratie geldt voor een mestsilo van 1000 m^3 met 40 gr $CH_4.m^{-3}$ mest. dag^{-1} een filtergrootte van:

- 41 m^3 bij een verwijderingsrendement van 25%;
- 81 m^3 bij een verwijderingsrendement van 50%;
- 122 m^3 bij een verwijderingsrendement van 75%.

Indien echter de concentratie van methaan in de afgasstroom verhoogd kan worden, neemt het verwijderingsrendement toe en kan het filter verkleind worden. Indien een methaanconcentratie tegen de explosiegrens (4.4% of 30.000 $mg.m^{-3}$) wordt aangenomen wordt de filtergrootte:

- 7,5 m^3 bij een verwijderingsrendement van 25%;
- 15 m^3 bij een verwijderingsrendement van 50%;
- 22 m^3 bij een verwijderingsrendement van 75%.

Voor de duidelijkheid dient hierbij vermeld te worden dat het hierbij om een extrapolatie gaat van de resultaten verkregen tijdens de pilotstudie. Er zijn dus geen reële metingen uitgevoerd.

In de hierna volgende kostenanalyse wordt van bovenstaande gegevens uitgegaan.

3.3.2 Ontwerpparameters

Voor biofiltratie is een support medium noodzakelijk dat de groei van de micro-organismen mogelijk maakt. In deze toepassing, methaanverwijdering in het afgas van mestopslag is gekozen voor een mengsel van compost en perliet (Werf et al., 2002).
De meest simpele vorm van biofiltratie, en dus ook de goedkoopste, bestaat uit een open bak waarin dit dragermateriaal is aangebracht. Deze oplossing wordt voor deze case niet aangeraden gelet op de slechte beheersbaarheid van de vochtigheid en temperatuur van het bed. Juist in de

wintermaanden, wanneer het aanbod van methaan het grootst is, is de temperatuur laag, waardoor de efficiëntie minder is terwijl de kans op overmatige regenval groot is, hetgeen ook een goede omzetting kan belemmeren.
Het filter moet dus bestaan uit een afgesloten container, waarin het biobed is aangebracht op een poreuze drager met daaronder een de ruimte waarin de verontreinigde lucht wordt geblazen. De verontreinigde lucht is eerst door een conditioneringsunit geleid waarin de lucht zonodig op de juiste temperatuur (verwarmen/koelen) en vochtigheid gebracht wordt. Het filterbed zelf wordt door middel van sproeiers vochtig gehouden. Het vocht dat mogelijk uit het bed loopt wordt opgevangen en naar een opvang geleid. In Figuur 2 is een opzet van de installatie weergegeven.

3.3.3 Kostenopbouw

De kosten van een compostbiofilter zijn uit de volgende categorieën opgebouwd:

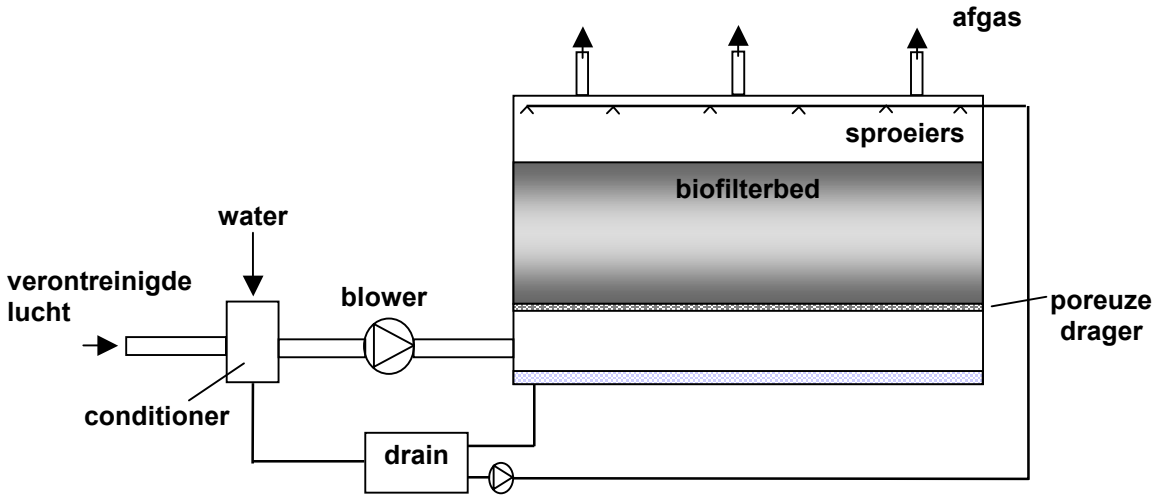
- aanschaf en bouwkundige investeringen;
- operationele kosten;
- onderhoud en bediening.

Hieronder worden deze kostenposten nader toegelicht.

3.3.4 Aanschaf en Bouwkundige Investeringen Compostfilter

Belangrijke parameters bij de aanschaf en de noodzakelijke bouwkundige investeringen zijn de uitvoering van de reactor, de grootte en de noodzakelijke bouwkundige investeringen. Kleine filters kunnen uitgevoerd worden als ronde buizen of vaten van kunststof en direct op de tank geplaatst worden zoals bijv. de filters die door Bioteg GmbH. geleverd worden[2]. Grotere installaties zullen al na gelang de ondergrond gefundeerd moeten worden hetgeen de investering aanzienlijk groter maakt. Een belangrijke parameter is ook het landbeslag. Indien deze beperkt is zal de oplossing in de hoogte gezocht moeten worden, door meerdere bedden op elkaar te plaatsen zoals bv, de Pentpack Biofilter die geleverd wordt door Biocube Inc.[3]

[2] Htto://www.bioteg.com
[3] http://www.biocube.com/pentpack.htm



Figuur 2: Schematische opzet van een biofilter.

Voor de uitvoering van de reactor kan gekozen worden uit een aantal mogelijkheden, waar onder. beton, staal of kunststof. Zo werd de 'Biobox', het biofilter dat destijds door Comprimo werd geleverd, in een uitvoering gemaakt die sterk leek op een transportcontainer (en kan dus, indien noodzakelijk, vrij simpel gestapeld worden).

Een belangrijke factor in de investeringskosten is eveneens het gewenste niveau van automatisering. Een hoger automatiseringniveau voor de controle van procesvariabelen: temperatuur, druk, debiet, pH en overall status, zal uitmonden in hogere investeringskosten.

En bijkomende factor die zeker een rol speelt in het onderhavige geval is de flexibiliteit van het systeem. Deze flexibiliteit is noodzakelijk gelet op het wisselende aanbod van de methaan, die weer een gevolg is van de wisselende belasting van de mestopslag. Dit betekent dat het luchtdebiet geregeld moet kunnen worden, zowel om de belasting van het bed te kunnen regelen als om de directe kosten zoals energie zo laag mogelijk te houden.

Een laatste kostenfactor onder dit kopje zijn de bijkomende ontwerpparameters zoals het potentieel noodzakelijke luchtvoorbehandelingssysteem. Dit is sterk afhankelijk van de omstandigheden ter plaatse, met name de plaatsing van de mestopslag. Indien die onder de stallen is gelegen zal de temperatuur in de winter niet of nauwelijks dalen zodat hiervoor waarschijnlijk geen voorzorgsmaatregelen genomen hoeven te worden terwijl in geval van mestopslag in een metalen container in de buitenlucht, in de wintermaanden sterk kan afkoelen zodat verwarming van het afgas noodzakelijk zal zijn.

3.3.5 Operationele Kosten, Onderhoud en Bediening

Met betrekking tot de operationele kosten spelen de volgende factoren een rol.

Elektriciteit
De kosten voor de ventilatoren zullen een geringere factor binnen deze kostenpost zijn. Andere elektriciteitverbruikers zijn de pomp voor de sproei-installatie, het controlesysteem, e.d.
Vervanging van het Medium
Al na gelang de operationele condities en het ontwerp moet het filterbed periodiek vervangen worden, gemiddeld staat hier 4 tot 5 jaar voor.
Periodieke Inspecties en Test
Deze kostenposten zijn minimaal en zijn ook weer sterk afhankelijk van het ontwerp. Indien, bijvoorbeeld, geen automatische pH-meting wordt uitgevoerd zal deze met enige regelmaat gecontroleerd moeten worden. Een belangrijke factor in deze is de [visuele] inspectie van bed op de mogelijke vorming van kanalen waardoor de omzetting sterk kan afnemen.
Onderhoud Systeem
Het systeem kent enkele bewegende delen zoals de pompen, en andere zaken die aan slijtage onderhevig zijn. Deze kostenpost is echter minimaal.
Overige Kostenposten
Tot de overige kostenposten kan gerekend worden het verwerken van het verontreinigde water uit de drain, percolaatwater. Gelet op de toepassing is deze post hier te verwaarlozen aangezien dit vervuilde water zonder problemen aan de mest kan worden toegevoegd.

3.3.6 Kostenschatting

De focus bij de kostenanalyse is op de filters, die afhankelijk van de methaanconcentratie in de afgasstroom, een dusdanige grootte hebben dat een verwijderingsrendement van 50% gewaarborgd is, respectievelijk, 81 m^3 en 15 m^3. De bijbehorende afgasdebieten zijn, respectievelijk ~300 en ~ 60 m^3/uur. De prijzen voor de verschillende onderdelen van het processysteem worden gepresenteerd in Tabel 8. Hierbij worden een drietal opties in ogenschouw genomen. Allereerst, de optie waarbij het systeem wordt opgebouwd rond een "bio-"reactor, optie 1. Hierbij wordt een raming van de kosten gemaakt door een "papieren" constructie van het totale systeem met de verschillende systeemonderdelen die naast de reactor van belang zijn. Bovendien wordt de met behulp van de Lang-factor een reële inschatting van de totale investeringskosten gemaakt. Verder optie 2, waarbij het uitgangspunt een commercieel compostfilter is.

Bij optie 1 is tevens de invloed van de toepassing van een tweetal verschillende staalsoorten voor de constructie totale bioreactor, en waar mogelijk verdere systeemonderdelen beschouwd. Het gaat hierbij om 'Tool Steel H11' en het corrosie bestendigere AISI 304. Dit om de potentiële corrosie van ondermeer de reactorwand van 'Tool Steel H11' door het percolaatwater het hoofd te kunnen bieden. De invloed op de prijs van een totaal systeem door de toepassing van de verschillende constructiematerialen is significant. Er wordt een vermindering van 30% voor de totaalprijs gevonden, wanneer in plaats van AISI 304 'Tool Steel H11' gebruikt kan worden Uitsluitend wanneer indien significante hoeveelheden chloride aanwezig zijn in het percolaatwater is de kans op problemen door corrosie: 'pitting' en 'cracking', groot. Het is dus zonder meer aangebracht om dit effect nader te onderzoeken.

Bij de twee andere opties wordt uitgegaan van commerciële met kunstvezelversterkte polyester compostfilters. Overeenkomstig hetgeen verwacht wordt, wordt door de toepassing van een ander constructiemateriaal een aanzienlijke verlaging van de prijs van het totaal systeem gevonden. Zoals uit het marktonderzoek blijkt is sprake van een verdere verlaging van de prijs ten opzichte van de 'Tool Steel H11'bioreactor met ~25% tot 50% bij de FILCON-bioreactor van Bioway B.V., afhankelijk van het reactorvolume .

Voor de duidelijkheid en volledigheid, in deze beschouwing is geen rekening gehouden met de bouwkundige kosten, zoals bijvoorbeeld het bouwrijp maken, de aanleg van water en elektriciteit en bovendien van een fundering e.d. Verder is een meet- en regelsysteem waarmee onder andere de pH van het percolaatwater en de CH_4-concentratie in de mestopslag worden gecontroleerd niet meegenomen. De eerste is met name van belang om het zo efficiënt mogelijk converteren van CH_4 in de bioreactor te garanderen. De laatste daarentegen is van belang om het afgasdebiet zo te kunnen regelen dat continu een maximale CH_4-concentratie bij de bioreactor kan worden aangeboden. Hetgeen resulteert in de bijbehorende verhoging van het verwijderingsrendement en, of de mogelijkheid gebruik te maken van een bioreactor met een gereduceerd volume.

Er kan gesteld worden dat nu uitsluitend de sommatie van de prijzen voor de verschillende onderdelen van het processysteem heeft plaatsgevonden. Naast deze kostenpost zullen natuurlijk bij de realisatie van dit processysteem de kosten voor 'engineering', aanstellen interne en externe uitvoerders voor constructie en installatie, managementtaken, werkkapitaal e.d., resulteren in een nadrukkelijke verhoging van de kosten van de totale investering. Een eerste schatting is mogelijk met de Lang-factor (f_L) (Jelen en Black, **1983**). Hiermee kan de grootte-orde van de totale investering op basis van de (directe) kosten voor alle [proces]systeemonderdelen, apparatuur worden gegeven. Deze factor wordt gebruikt indien er relatief weinig prijsinformatie bekend is, navenant ligt de betrouwbaarheid in het bereik van 20~30%. Voor 'solid processing' en 'liquid processing' zijn deze f_L-waarden bekend en deze zijn 4.6 en 5.7. Voor 'gas processing' is de waarde niet bekend, maar wordt op minimaal de f_L-waarde voor 'liquid processing' gesteld, i.e. $\geq$ 5.7.

Onderdeel	Details	Diverse kostenposten, excl. BTW [€, Euro]			
		Optie 1: Reactor Volume [m^3][1]			
		81		15	
		Tool Steel H11	AISI 304	Tool Steel H11	AISI 304
I. bioreactor (reëel volume)	plaatdikte 8 mm	45.200 (100 m^3)	103.500 (100 m^3)	24.000 (20 m^3)	51.000 (20 m^3)
II. aanpassing bioreactor	introductie bodemplaten voor meerdere lagen biobed, en 'mangaten' voor o.a. verwijdering biobed; waterinvoer headspace	40.000	40.000	20.000	20.000
III. biobed/vulling reactor[2]	perliet, compost en voor enting actieve slib; prijs perliet € 500/m3	45.000	45.000	10.500	10.500
IV. lucht/afgas-bevochtiger	plaatdikte 5 mm; waterkolom 3 m	22.000	32.500	22.000	32.500
V. PVC centrifugaal ventilator	persdruk 10 mbar; incl. elektromotor en fundatieplaat	950 (300 m3/uur)	950 (300 m3/uur)	700 (80 m3/uur)	700 (80 m3/uur)
		Gietstaal	AISI 316	Gietstaal	AISI 316
VI. pomp	DIN32-125; 6.3 m^3/uur; incl. elektromotor (0.55 kW)	5.100	5.600	5.100	5.600
	TOTALE INVESTERINGSKOSTEN [€]	**158.250**	**227.550**	**82.300**	**120.300**
	MATERIAALKOSTEN [€/year][3]	**5.500**	**5.500**	**1.750**	**1.750**
	OPERATIONELE KOSTEN [€/year][4]	**29.100**	**43.000**	**15.050**	**22.500**

*Tabel 8: Parameters voor de bepaling van de investeringskosten voor een gesloten compostfilter op grond van verschillende opties, over een periode van **10** jaar (gemiddelde economische levensduur voor procestechnologische systeem).*

[1]Kostenindicatie met name op basis van het DACE Prijzenboekje van de EWCI/UWO. De kostprijs van de onderdelen is voor de inflatie tot en met 2002 gecorrigeerd; [2]Voor een zuivere vergelijking van de kosten is uitgegaan van hetzelfde biobedmateriaal; bij alle gepresenteerde reactoren. [3]Totale kosten voor water- en energiegebruik, controle, én de vervanging van het biobed, de vulling van de reactor na 5 jaar, arbeidskosten hiervoor zijn tevens meegenomen.[4]Opgebouwd door de afschrijving (10%), rente: 6% van de constante waarde- lineaire afschrijving, en onderhoud (3%) excl. energieverbruik.

		Diverse kostenposten, excl. BTW [€, Euro]							
		Optie 2: Reactor Volume [m^3]				Optie 3: Reactor Volume [m^3]			
		81		15		81		15	
Onderdeel	Details	Van de Rest GVK Commerciële Polyester Compostfilters[1,2]				Bioway Commerciële Polyester FILCON-filters[3]			
I. bioreactor (reëel volume)		65.300 (3 x 30 m^3)		16.700 (20 m^3)		70.000 (2 x 40 m^3)		25.000 (20 m^3)	
II. biobed/vulling reactor[4]	perliet, compost en voor enting actieve slib; prijs perliet € 500/m^3	45.000		10.500		45.000		10.500	
III. lucht/afgas-bevochtiger	plaatdikte 5 mm; waterkolom 3 m	22.000		22.000		-		-	
IV. PVC centrifugaal ventilator	persdruk 10 mbar; incl. elektromotor en fundatieplaat	950 (300 m3/uur)		700 (80 m3/uur)		950 (300 m3/uur)		700 (80 m3/uur)	
		Gietstaal	AISI 316	Gietstaal	AISI 316	Gietstaal	AISI 316	Gietstaal	AISI 316
V. pomp	DIN32-125; 6.3 m^3/uur; incl. elektro-motor (0.55 kW)	5.100	5.600	5.100	5.100	5.600	5.100	5.600	5.100
	TOTALE INVESTERINGSKOSTEN [€]	**138.350**	**138.850**	**55.000**	**55.500**	**116.050**	**116.550**	**41.300**	**41.800**
	MATERIAALKOSTEN [€/year][5]	**5.500**	**5.500**	**1.750**	**1.750**	**5.500**	**5.500**	**1.750**	**1.750**
	OPERATIONELE KOSTEN [€/year][6]	**26.250**	**26.300**	**9.850**	**9.900**	**22.050**	**22.150**	**7.850**	**7.950**

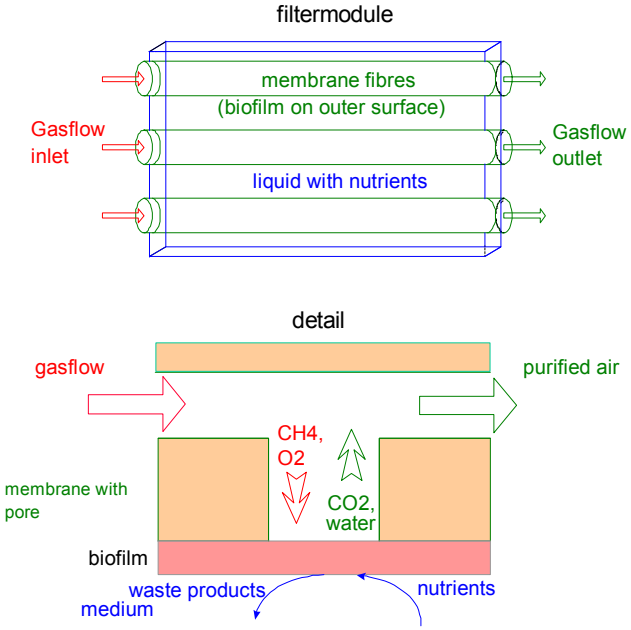
*Tabel 9: Parameters voor de bepaling van de investeringskosten voor een gesloten compostfilter op grond van verschillende opties, over een periode van **10** jaar (gemiddelde economische levensduur voor procestechnologische systeem).*

[1]Kostenindicatie op basis van de offertes van de firma Van de Rest GVK, en het DACE Prijzenboekje. Waarbij het voor de laatste om voor de inflatie gecorrigeerde prijzen gaat .[2]Identiek maar nu voor Bioway, en het DACE Prijzenboekje. Waarbij het voor de laatste om inflatie gecorrigeerde prijzen gaat. [2]http://www.vdrest.nl/GVKcompost.html; [3]Kostenindicatie op basis van de offertes van de firma Bioway, en het DACE Prijzenboekje. Waarbij het voor de laatste om inflatie gecorrigeerde prijzen gaat; [4]Voor een zuivere vergelijking van de kosten is uitgegaan van hetzelfde biobedmateriaal; bij alle gepresenteerde reactoren. [5]Totale kosten voor water- en energiegebruik, controle, én de vervanging van het biobed, de vulling van de reactor na 5 jaar, arbeidskosten hiervoor zijn tevens meegenomen.[6]Opgebouwd door de afschrijving (10%), rente: 6% van de constante waarde- lineaire afschrijving, en onderhoud (3%) excl. energieverbruik.

4 BIOLOGISCHE LUCHTFILTRATIE MET MEMBRAANFILTERS

4.1 Introductie

De ontwikkeling van een membraan biofilter voor luchtreiniging is in 1988 gestart. In dat jaar ondertekenden Comprimo en Bioclear een contract om biologische luchtfiltratie toepasbaar te maken voor langdurig verblijf in de ruimte. Nadat in 1996 Comprimo onderdeel werd van het Stork Concern is dit werk voortgezet binnen Stork Product Engineering. De eerste jaren werd er voor een optimalisatie van het reactorontwerp nauw samengewerkt met de Universiteit van Wageningen. Voor de eerste proefopstellingen is gekozen voor een zogenaamde 'plate-and-frame' opstelling. Deze configuratie bestaat uit een opeenstapeling van vlakke membranen waartussen zich om en om een luchtlaag en een vloeistoffase met micro-organismen bevindt. Bij de doorstroming van het filter met de te behandelen lucht zullen de verontreinigingen door het membraanmateriaal diffunderen, waarna deze worden afgebroken door de bacteriën in de vloeistoffase. In Figuur 3 is het principe van een biologisch membraan luchtfilter [BAF] weergegeven.



Figuur 3: Principe van een Biologisch membraan luchtfilter [BAF].

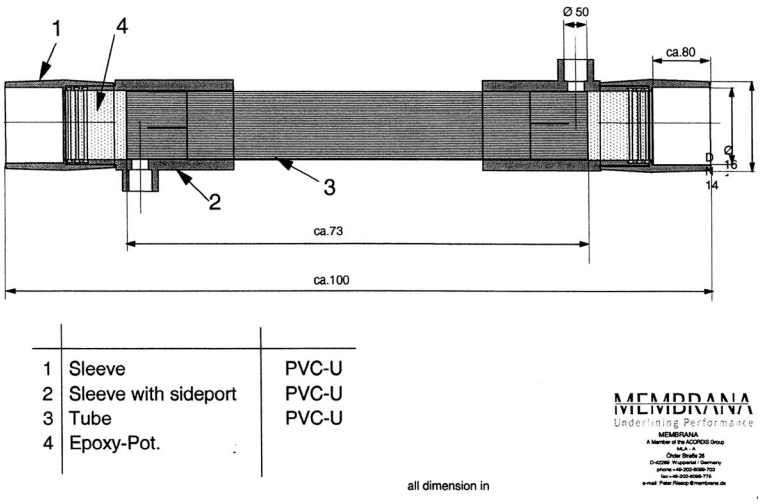
Een belangrijke mijlpaal in de ontwikkeling van de BAF werd in 1992 bereikt toen gedurende een week een BAF de lucht afkomstig van een afgesloten ruimte met daarin 4 mensen alle verontreinigingen volledig verwijderde.

Medio van de jaren negentig heeft er onderzoek plaatsgevonden naar de methaanverwijdering met behulp van een membraan biofilter. Dit project dat eveneens in opdracht van de Europese Ruimtevaart Organisatie werd uitgevoerd richtte zich op de zogenaamde 'Glovebox', de handschoenenkast die aan boord van de Shuttle en het Space Station wordt gebruikt als zuurkast voor het uitvoeren van gevaarlijke experimenten. In het luchtbehandelingsysteem van deze handschoenenkast is onder meer een CO-sensor opgenomen die nogal gevoelig bleek voor methaan. De normaliter gebruikte koolstoffilters bleken methaan onvoldoende te verwijderen en daarom is biologische luchtfiltratie beproefd. Uit de resultaten van dit project kwam naar voren dat methaan uitstekend door middel van biologische membraan filtratie uit de lucht verwijderd kan worden maar dat, als gevolg van de lage diffusiegraad van methaan in de waterfase en de betrekkelijk lage afbraaksnelheid van het methaan door de micro-organismen, vrij veel membraanoppervlak nodig is.

4.2 Membraan Filter Configuratie

De kosten van een membraan biofilter worden hoofdzakelijk bepaald door de productiekosten, waarbij het membraanmateriaal de voornaamste kostenpost is. In tegenstelling tot de luchtvoorziening in de ruimtevaart waarbij betrouwbaarheid en veiligheid een grote rol spelen, en twee of meerdere systemen parallel zijn opgesteld waardoor een “fail-safe” situatie gecreëerd wordt, kan een filter voor de methaanreductie bij mestopslag enkelvoudig worden uitgevoerd. Wisselende omstandigheden in het aanbod kunnen worden opgevangen door een modulerende pompschakeling.
Voor toepassing in de veeteelt kan dus volstaan worden met een enkelvoudige opzet, maar er zal gezien de hoge productiekosten gekozen moeten worden voor een standaardisatie van de membraanmodules.
Er zijn meerdere membraanconfiguraties mogelijk:

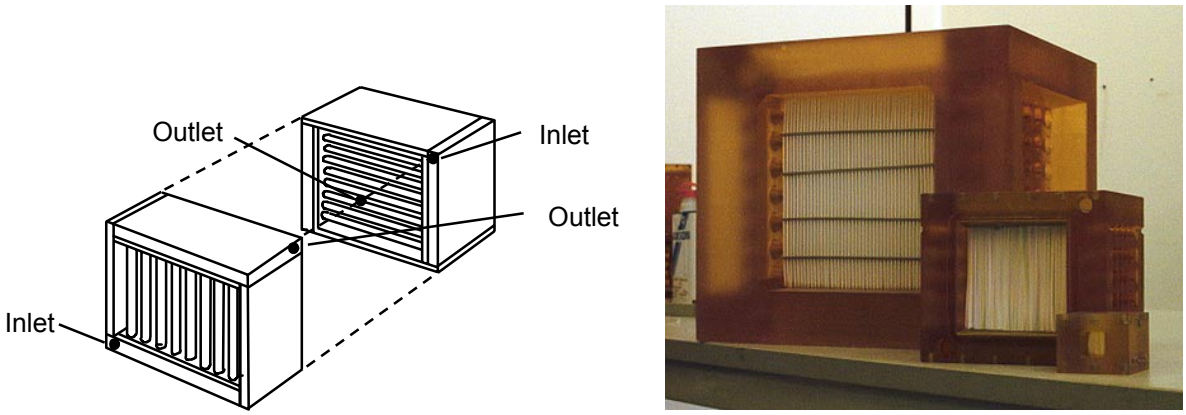
- Vlakke-plaatmodules:
  een stapeling van membraansheets met om en om een lucht en vloeistoflaag
- Spiraal gewonden modules:
  een “opgerolde vlakke plaat”, dus buisvormige module
- Capillaire modules:
  Modules bestaande uit bundels dunne buisvormige (capillaire) membranen.



Figuur 4: Voorbeeld van een ‘shell-and-tube’ mebraan filter.

Bij de capillaire membraanmodules zijn twee configuraties mogelijk, één waarbij de lucht door de capillairen wordt geblazen en waterige fase met micro-organismen zich hierom bevindt. Bij de tweede oplossing is de positie van de beide fasen precies gespiegeld, oftewelnu bevindt de fase met micro-organismen zich in de capillairen en wordt de lucht hier langst geblazen. In deze configuratie is de dikte van de capillairen zeer kritisch. Deze moeten voldoende wijd zijn om verstopping te voorkomen. Bacteriën vormen een zogenaamd biofilm op het membraanoppervlak waardoor dus deze buisjes kunnen dichtgroeien. In het algemeen hebben deze biofilms een dikte van ~100 µm. zodat de inwendige diameter van het capillair niet onder de ~300 µm. mag komen.

In het algemeen komen deze capillaire membraanfilters in de zogenaamde ‘shell-and- tube’ vorm voor (zie Figuur 5). Begin jaren negentig is door TNO de zogenaamde DAMS module ontwikkeld. Een membraanmodule waarin de capillairen dwars worden aangestroomd hetgeen in een hoge stofoverdracht resulteert en tevens een geringere drukval geeft (zie Figuur 5). Bovendien zijn deze doosvormige modules eenvoudig te stapelen. Deze membraanfilters zijn verkrijgbaar bij het Nederlandse bedrijf SSearch in Dedemsvaart, welke dit product samen met, onder meer, TNO verder heeft ontwikkeld.



Figuur 5: DAMS modules. De gasstroom staat haaks op de membranen hetgeen tot hogere stofoverdracht leidt, en een lagere drukvak over de module geeft.

In de huidige BAF-opzet wordt met een historische achtergrond Accurel als membraanmateriaal gebruikt. Door de geschiktheid van dit materiaal voor toepassingen in de medische sector werd verwacht dat sprake is van een navenant hoge prijs voor dit materiaal. Deze veronderstelling wordt onderbouwd met het gegeven dat voor de toepassing in deze sector een zeer lage verontreinigingsniveau, in het ppm-gebied, gewenst zo niet een must is.
Daarom is een marktonderzoek verricht naar de alternatieve, goedkopere polymere membraanmaterialen. De uitkomst hiervan is dat 100 tot 200 Euro een reële inschatting van de prijs per vierkante meter, voor diverse materialen: PolyVinylDiFluoride [PVDF], Teflon, PolyEthyleen [PE], PolyPropyleen [PP] etc. Klaarblijkelijk is de invloed van de productietechniek, die in geval van Accurel de zuiverheid waarborgt, op de uiteindelijke prijs van membraanmaterialen gering.
Er zit weliswaar één factor verschil in prijs, wanneer echter in ogenschouw wordt genomen dat voor de realisatie van de ultieme BAF-unit de prijs niet hoofdzakelijk wordt bepaald door het gebruikte membraanmateriaal zal duidelijk zijn dat een reductie van de totale kostprijs vooralsnog niet waarschijnlijk is. Het laatste aspect kwam naar voren toen in dit marktonderzoek naast de leveranciers van polymere materialen tevens enige potentiële bouwers van de BAF-unit op basis van verschillende materialen werden aangezocht.

5 SAMENVATTING EN CONCLUSIES

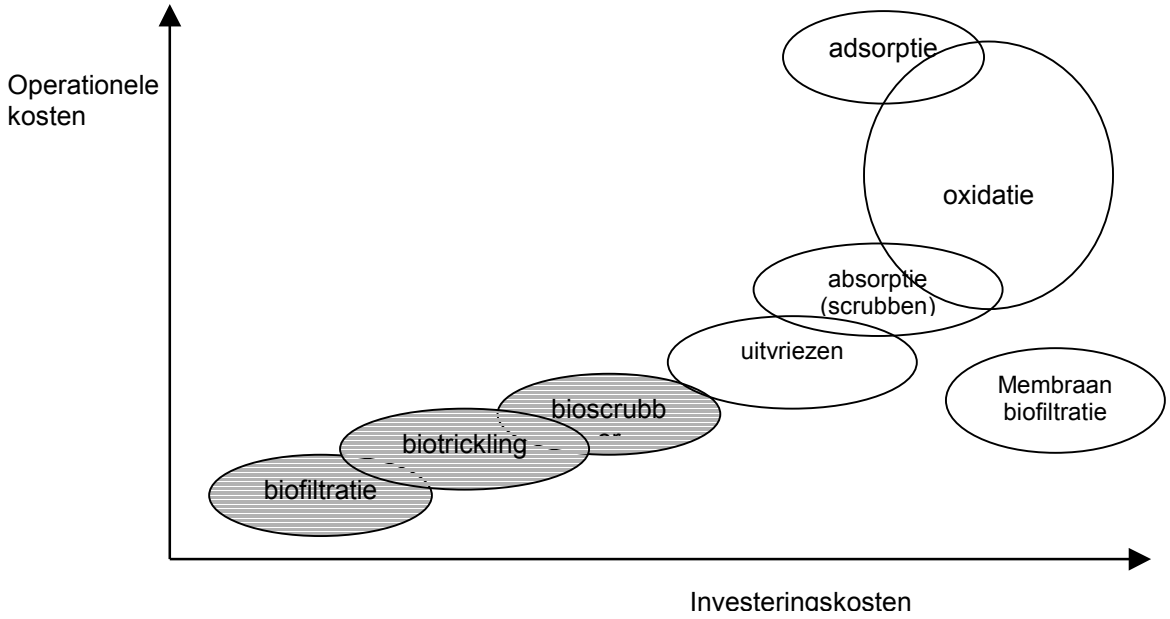
Onderzocht werd welke biotechnologische techniek: compostfilter, biotricklingfilter (BTF) of het biologisch luchtfilter (BAF), het meest efficiënt ingezet kan worden voor de reductie van methaanemissies uit stallen en mestopslag. Door het relatief grote afgasdebiet met een (te) lage CH_4-concentratie bij stallen is echter afgezien van de ontwikkeling van een biotechnologische techniek voor de reductie van deze methaanemissies, én is de aandacht op de reductie van methaanemissies uit mestopslagen gericht.
De gemiddelde grootte van een mestopslag bedraagt 1.000 m^3, met een totale gasproductie van ongeveer 60 m^3 CH_4 (100%) per dag. Uitgaande van een gemiddelde gasproductie van 60 m^3 methaan per dag is bij 50% rendement een afbraak nodig van ~20 kilogram methaan per dag. Dit resulteert bij een gemiddeld jaar in een reductie van 1,0 Megaton kooldioxide-equivalenten per mestopslag.

De focus bij de kostenanalyse is op de filters, die afhankelijk van de methaanconcentratie in de afgasstroom, een dusdanige grootte hebben dat een verwijderingsrendement van 50% is gewaarborgd, respectievelijk, 81 m^3 en 15 m^3. Een drietal opties is in ogenschouw genomen. De optie waarbij een raming van de kosten wordt gemaakt van generiek systeem dat wordt geassembleerd rond een “bio-“reactor met de verschillende, van belang zijnde systeemonderdelen. Verder twee opties waarbij als uitgangspunt een commercieel compostfilter gekozen is.

Bij de eerste optie is tevens de invloed van de toepassing van een tweetal verschillende staalsoorten voor de constructie totale bioreactor, en waar mogelijk verdere systeemonderdelen beschouwd. Het ging hierbij om ‘Tool Steel H11’ en het corrosie bestendigere AISI 304 constructiemateriaal, dit om de potentiële corrosie van ondermeer de reactorwand van ‘Tool Steel H11’ door het percolaatwater het hoofd te kunnen bieden. De invloed op de prijs van een totaal systeem door de toepassing van de verschillende constructiematerialen is significant. Er wordt een reductie van 30% voor de totaalprijs gevonden, wanneer in plaats van AISI 304 ‘Tool Steel H11’ gebruikt kan worden

Bij de twee andere opties wordt uitgegaan van commerciële compostfilters. Overeenkomstig hetgeen verwacht wordt, wordt door de toepassing van een ander constructiemateriaal een aanzienlijke verlaging van de prijs van het totaal systeem gevonden. Zoals uit het marktonderzoek blijkt is sprake van een verdere verlaging van de prijs, ten opzichte van de ‘Tool Steel H11’bioreactor, met ~25% tot 50% bij de FILCON-bioreactor van Bioway B.V., afhankelijk van het reactorvolume.

Bij deze beschouwing werd geen rekening gehouden met de bouwkundige kosten, zoals bijvoorbeeld het bouwrijp maken, aanleg water, elektriciteit en van een fundering e.d. Bovendien is een meet- en regelsysteem waarmee onder andere de pH van het percolaatwater en de CH_4-concentratie in de mestopslag kan worden gecontroleerd niet meegenomen.
Verder zal duidelijk zijn dat vooralsnog uitsluitend de sommatie van de prijzen voor de verschillende onderdelen van het processysteem heeft plaatsgevonden. Naast deze kostenpost zullen natuurlijk bij de realisatie van dit processysteem de kosten voor ‘engineering’, aanstellen interne en externe uitvoerders voor constructie en installatie, managementtaken, werkkapitaal e.d., resulteren in een nadrukkelijke verhoging van de kosten voorn de totale investering, realisatie. Een eerste schatting is mogelijk met de Lang-factor (f_L) waarmee de grootte-orde van de totale investering op basis van de (directe) kosten voor alle [proces]systeemonderdelen, apparatuur kan worden geschat. Voor ‘gas processing’, waarmee we hier van doen hebben is deze factor niet bekend. Deze wordt echter op minimaal de f_L-waarde voor ‘liquid processing’ gesteld, i.e. $\geq$ 5.7.



Figuur 6: Kostenoverzicht voor VOC-verwijdering met diverse technieken.

6 BEGRIPPEN EN AFKORTINGEN

6.1 Afkortingen

BAF	Biological Air Filter
MMTCE	Miljoen (metric) ton koolstof equivalent
ROB	Reductie Overige Broeikasgassen
SPE	Stork Product Engineering
VOC	Volatile Organic Components
VS	Vluchtige deeltjes

6.2 Begrippen

Methaan Emissie Vergelijking:

$$CH_4 = \sum_i^{staat} \sum_j^{soort} \sum_k^{type} Mest_{ij} \times MF_{ijk} \times VS_{ij} \times B_{oj} \times MCF_{ik}$$

CH_4 = Methaan geproduceerd (m^3/dag)
$Mest_{ij}$ = Totaal geproduceerde mest door een dier type *j* in staat *I* (kg/dag)
MF_{ijk} = Percentage mest verwerkt door systeem *k* van dier type *j* in staat *I*
VS_{ij} = Percentage vluchtige deeltjes voor dier type *j* in staat *I*
B_{oj} = Maximum methaan potentieel van de mest voor dier type *j* (m^3/kg VS)
MCF_{ik} =Methaanconversie-factor voor systeem *k* in staat *I*

7 REFERENTIES

Gent, M., Werf, A.W. van der; "BAF Application for Methane Removal in Glovebox; Prototype Development and Testing. Stork Engineering Consultancy" Doc.no.: 63026-0301-01, Febr. **1999**.

US Methane Emissions 1990-2020: Inventories, Projections, and Opportunities for Reduction. EPA 430-R-99-013, September **1999**.

Safley, L.M., Casada, M.E., Woodbury, J.W., Roos, K.F.; "Global methane emissions from lifestock and poultry manure. Air and radiation.", U.S. Environmental protection Agency, (ANR-445), Washington-DC, EPA 400-1-91-048, **1992**.

Werf, A.W. van der, Bemmel, J.B.M. van.; "Haalbaarheidsstudie naar de toepassing van biologische technieken voor de behandeling van methaanhoudende lucht uit stallen en mestopslagen." Eindrapport, Bioclear Projectcode: 2000.1366, Juni **2000**.

Jelen F.C. and Black L, **1983**. Cost and Optimization Engineering. Mc Graw Hill, New York, p. 538.

8 APPENDICES

8.1 Appendix 1: Emissie-factoren ten gevolge van Pensvergisting

Dier (-)	Streek (USA)				
	N. Atlantic [kg/jaar]	Z. Atlantic [kg/jaar]	N. Centraal [kg/jaar]	Z. Centraal [kg/jaar]	West [kg/jaar]
Vaars (0-12 maanden)	19.2	22.7	20.4	23.6	22.7
Vaars (0-24 maanden)	63.8	67.5	60.8	67.7	64.8
Volwassen koe	61.5	70.0	59.5	70.9	69.1
Kalf	-	-	22.6	24.0	23.5
Jaarling	-	-	47.0	47.6	47.6
Stier	-	-	-		100.0

Tabel 10: Methaanemissie-factoren voor Amerikaanse slachtrunderen (EPA, 1999).

Dier (-)	Streek (USA)				
	N. Atlantic [kg/jaar]	Z. Atlantic [kg/jaar]	N. Centraal [kg/jaar]	Z. Centraal [kg/jaar]	West [kg/jaar]
Vaars (0-12 maanden)	19.2	20.5	18.9	20.3	20.7
Vaars (0-24 maanden)	58.4	58.7	57.4	61.7	61.2
Volwassen koe	125.8	136.5	111.8	120.5	139.4

Tabel 11: Methaanemissie-factoren voor Amerikaanse melkvee (EPA, 1999).

Bijlage 5 - Berekening van emissie uit opslag voor vleesvarkensmest

1) Uitgaand van een methaanproductie van 40 g/m^3 mest/dag (zie Bijlage 3) en een mestopslag van 1000 m^3 bedraagt de emissie 14,6 ton CH_4/jaar. Wanneer de mestopslag gemiddeld slechts 6 maanden per jaar is gevuld bedraagt de emissie dus 7,3 ton CH_4/jaar. Uitgaand van een mestproductie van 1,2 ton/vleesvarkensplaats/jaar biedt de mestopslag plaats aan de mest voor 1000/(6/12)/1,2 = 1700 vleesvarkensplaatsen. De emissie uit de mestopslag bedraagt dan 7,3 ton/1700 = 4,4 kg CH_4/dierplaats/jaar of 92,0 kg CO_2-eq./dierplaats/jaar.

2) Wanneer de emissie wordt berekend volgens de IPCC methodiek (IPCC, 1996), gebaseerd op Amstel *et al.* (1993) en Casada & Safley (1990), komt de emissie iets hoger uit:

$TM = VS \times B_0 \times MCF \times D \times M \times G \times 365 \times 10^{-6}$ = 5,8 kg CH_4/dierplaats/jaar
= 121 kg CO2-eq./dierplaats/jaar

met:
TM = totale methaanemissie (kg CH_4/dierplaats/jaar)
VS = organische stof gehalte (kg/ton mest); varkensmest: VS = 101 kg/ton (Casada & Safley, 1990)
B_0 = biodegradibility (m^3 CH_4/kg VS); voor varkensmest: B_0 = 0,45 (Casada & Safley, 1990)
MCF = methaan conversie factor (%); voor Nederland: MCF = 10 (Amstel *et al.*, 1993)
D = dichtheid methaan (0,65 kg/m^3 CH_4)
M = mestproductie (kg/1000 kg levend gewicht/dag); voor varkens: M = 84 (Casada & Safley, 1990)
G = gemiddeld levend gewicht per dierplaats (kg); voor vleesvarken: (105 - 23)/2 + 23 = 64 kg

3) Wanneer in plaats van de mestproductie volgens Casada & Safley (1990) de voor Nederland gangbare mestproductie van 1,2 ton/vleesvarkensplaats/jaar wordt gehanteerd, komt de totale methaanemissie lager uit en bedraagt dan:
TM = 3,5 kg CH_4/dierplaats/jaar = 74,4 kg CO_2-eq./dierplaats/jaar.

Bijlage 6 - Berekening van elektriciteitsverbruik biofilter voor reiniging van lucht uit een opslag voor vleesvarkensdrijfmest

Uitgaand van een gasproductie van 40 g/m^3/dag zal de gasproductie uit een silo van 1000 m^3 circa 40 kg CH_4/dag bedragen. Bij een concentratie van 5.500 mg/m^3 betekent dit een ventilatie-debiet van 300 m^3/uur. Aangezien er nauwelijks drukval over het filter optreedt kan volstaan worden met een kleine ventilator van circa 50 W.

Wanneer deze ventilator 6 maanden per jaar draait bedraagt het elektriciteitsverbruik ca. 220 kWh/jaar. Uitgaand van een CO_2-emissie van 0,67 kg CO2-eq./kWh (NOVEM, 1999) bedraagt de indirecte broeikasgasemissie 147 kg CO_2-eq./jaar = 0,086 kg CO_2-eq./dierplaats/jaar.

Bijlage 7 - Berekening van emissie en kosten van vergistingsinstallatie voor vleesvarkensmest

De volgende uitgangspunten worden gehanteerd voor de behandeling van vleesvarkensmest onder Nederlandse omstandigheden:

Mestproductie (ton/vleesvarkensplaats/jaar)	Droge stof (kg/ton) [1]	Organische stof (OS) (kg/ton) [1]	CH_4 productie (m^3/kg OS) [2]
1,2	90	60	0,29

[1] IKC, 1996.

[2] Gemiddelde van literatuuronderzoek door Lent & Dooren, 2001.

Uit bovenstaande tabel volgt dat de maximale methaanproductie in een mesofiele vergistingsinstallatie 20,9 m^3/vleesvarkensplaats/jaar bedraagt oftewel 13,7 kg CH_4/vleesvarkensplaats/jaar. Bij een methaangehalte van 66% is dit gelijk aan 32 m^3 biogas/vleesvarkensplaats/jaar. Dit is 2,4 tot 4 maal zo hoog als de emissie uit de mestopslag die berekend is in Bijlage 5 onder psychrofiele condities.

De verbrandingswarmte van biogas bedraagt ongeveer 22 MJ/m^3 zodat de totale gasproductie van de vergistingsinstallatie uitkomt op 696 MJ/vleesvarkensplaats/jaar oftewel 193 kWh/vleesvarkensplaats/jaar.

Uit onderzoek is bekend dat als gevolg van lekkage van de vergistingsinstallatie enige emissie van methaan optreedt (Cumby *et al.* 2000: 2,4%; Sommer *et al.*, 2001: 3%). Wanneer uitgegaan wordt van een lekkage van 3% betekent dit dat de emissie van methaan uit de vergistingsinstallatie 0,63 m^3 CH_4/dierplaats/jaar (of 0,41 kg CH_4/dierplaats/jaar) bedraagt. Dit is gelijk aan een broeikasgasemissie van 8,5 kg CO_2-eq./dierplaats/jaar. Wanneer aangenomen wordt dat de methaanproductie in een normale mestopslag 92 kg CO_2-eq./dierplaats/jaar bedraagt (zie Bijlage 5) is de netto emissiereductie van de vergistingsinstallatie dus 92 - 8,5 = 83,5 kg CO_2-eq./dierplaats/jaar.

Uitgaand van een netto elektrisch rendement, d.w.z. na aftrek van de elektriciteit die nodig is voor het bedrijven van de vergistingsinstallatie, van 25% (Ecogas, 2000) betekent dit dat er 48 kWh elektrische energie/dierplaats/jaar geleverd kan worden. Uitgaand van een indirecte CO_2 emissiereductie als gevolg van vervanging van fossiele brandstof van 0,67 kg CO_2/kWh (NOVEM, 1999) staat dit gelijk aan een CO_2 emissiereductie van 32,3 kg CO_2-eq./jaar.

De investeringskosten van de vergistingsinstallatie bedragen bedragen 120 k€ voor 2500 vleesvarkensplaatsen (omgebouwde mestopslag, Tijmensen *et al.*, 2002) oftewel 48 €/vleesvarkensplaats. De reden dat de investeringskosten veel hoger liggen dan de investeringskosten vor de fakkelinstallatie (zie Bijlage 8) is dat de mestopslag ten behoeve van het mesofiele vergistingsproces geïsoleerd en verwarmd moet worden (zie ook het verschil in investeringskosten tussen een psychrofiele en een mesofiele vergistingsinstallatie in Tijmensen *et al.*, 2002).

De exploitatiekosten van de vergistingsinstallatie bedragen per vleesvarkensplaats en per jaar:

Afschrijving: 10%	€	4,80
Rente: 6% van *net present worth* (lineaire afschrijving)	€	1,44
Onderhoud: 3%	€	1,44
Opbrengst elektriciteit: 48 kWh à 2,5 cent/kWh (grijze stroom)	€	-1,20
Totale exploitatiekosten (per vleesvarkensplaats per jaar):	€	6,48

Er wordt in bovenstaande berekening geen rekening gehouden met financiële stimuleringsmaatregelen van de overheid om investeringskosten te verlagen of om de productie van elektriciteit uit biomassa te bevorderen.

Wanneer er vanuit gegaan wordt dat de investeringskosten wèl verlaagd kunnen worden met behulp van EIA, VAMIL, MIA, Groenfinanciering en Milieufinanciering, zullen de jaarkosten van de investering met circa € 4.500 afnemen; hierdoor nemen de exploitatiekosten af met circa € 1,80 per vleesvarken per jaar (berekeningen volgens systematiek in Willers *et al.*, 2002). Wanneer bovendien de geproduceerde energie als gesubsidieerde 'groene stroom' aan het net wordt geleverd à 9,5 cent/kWh nemen de exploitatiekosten nog eens af met € 3,36. De totale exploitatiekosten komen dan uit op 6,48 - 1,80 - 3,36 = € 1,32 per vleesvarkensplaats per jaar. Aangezien de terugleververgoeding voor 'groene stroom' ongeveer even hoog is als de prijs voor de afname van grijze stroom, maakt het voor de exploitatieberekening niet uit of alle geproduceerde energie wordt teruggeleverd aan het net of dat een deel van de elektriciteit op het eigen bedrijf kan worden benut (het elektriciteitsgebruik op een varkensbedrijf bedraagt gemiddeld 36 kWh/dierplaats (Lent & Dooren, 2001) oftewel 75% van de hoeveelheid geproduceerde elektriciteit).

Bijlage 8 - Berekening van kosten van affakkelinstallatie voor opslag van vleesvarkensmest

Uitgaand van een gasproductie van 40 g/m^3/dag zal de gasproductie uit een silo van 1000 m^3 circa 40 kg CH_4/dag bedragen. Het biogas wordt opgevangen in een gaszak van 100 m^3 en na opmenging met buitenlucht tot 10 vol% methaan, verbrand met een fakkel. Het te behandelen luchtdebiet bedraagt dan 600 m^3/dag. De investeringskosten van een gesloten fakkel met een capaciteit van 100 m^3/uur bedragen circa *fl.* 40.000,- (Hilhorst *et al.*, 2001) of € 20.000,-; de investeringskosten van de gaszak bedragen circa *fl.* 100,- per m^3 (Hilhorst *et al.*, 2001) of in totaal € 5.000,-. Aangenomen wordt dat er sprake is van € 5.000 aan diverse extra kosten zodat de totale investering € 30.000 bedraagt.

De mestopslag (1000 m^3) is 6 maanden per jaar gevuld; dit is voldoende opslagcapaciteit voor de mestproductie van circa 1700 vleesvarkensplaatsen (mestproductie vleesvarken: circa.1,2 ton/dierplaats/jaar). De investeringskosten voor een fakkelinstallatie bedragen dus € 30.000/1700 = € 17,65 per dierplaats. De reden dat de investeringskosten veel lager liggen dan de investeringskosten voor de mesofiele vergistingsinstallatie (zie Bijlage 7) is dat de mestopslag in het geval van affakkelen niet geïsoleerd en verwarmd behoeft te worden (zie ook het verschil in investeringskosten tussen een psychrofiele en een mesofiele vergistingsinstallatie in Tijmensen *et al.*, 2002).

De exploitatiekosten voor de fakkelinstallatie bedragen dan per dierplaats en per jaar:

Afschrijving: 10%	€	1,76
Rente: 6% van *net present worth* (lineaire afschrijving)	€	0,53
Onderhoud: 3%	€	0,53
Totale exploitatiekosten (per vleesvarkensplaats per jaar):	€	2,82

Uit onderzoek is bekend dat verbranding van biogas meestal onvolledig is. Wanneer uitgegaan wordt van een lekkage van 3% betekent dit dat de emissie van methaan uit de fakkelinstallatie 0,63 m^3 CH_4/dierplaats/jaar (of 0,41 kg CH_4/dierplaats/jaar) bedraagt. Dit is gelijk aan een broeikasgasemissie van 8,5 kg CO_2-eq./dierplaats/jaar. Wanneer aangenomen wordt dat de methaanproductie in een normale mestopslag 92 kg CO_2-eq./dierplaats/jaar bedraagt (zie Bijlage 5) is de netto emissiereductie van de fakkelinstallatie dus 92 - 8,5 = 83,5 kg CO_2-eq./dierplaats/jaar.

Tenslotte wordt aangenomen dat het elektriciteitsgebruik van de fakkelinstallatie gelijk is aan het elektriciteitsgebruik van het biofilter, zoals is berekend in Bijlage 6.