Die approbierte Originalversion dieser Diplom-/Masterarbeit ist an der Hauptbibliothek der Technischen Universität Wien aufgestellt (http://www.ub.tuwien.ac.at).

The approved original version of this diploma or master thesis is available at the main library of the Vienna University of Technology (http://www.ub.tuwien.ac.at/englweb/).

DIPLOMARBEIT

Aufbau und Betrieb eines Labormodells zur Untersuchung der Fluiddynamik eines Chemical Looping Combustion Wirbelschichtsystems

ausgeführt zum Zwecke der Erlangung des akademischen Grades eines Diplom-Ingenieurs unter der Leitung von

Univ. Prof. Dipl.-Ing. Dr. Hermann Hofbauer
Dipl.-Ing. Bernhard Kronberger
Dipl.-Ing. Dr. Gerhard Löffler

Inst.-Nr.: 166
Institut für Verfahrenstechnik, Brennstofftechnik und Technische Biowissenschaften

eingereicht an der Technischen Universität Wien

Fakultät für Maschinenbau

von

Christoph TAGWERKER
Matr.-Nr.: 95 25 918
Währingerstraße 55/11
1090 Wien

Wien, im März 2003

Christoph Tagwerker

Mit dieser Diplomarbeit möchte ich mich vor allem bei meinen Eltern, aber auch allen anderen für die Unterstützung und Geduld während meines Studiums bedanken.

Ein Großes Dankeschön geht auch an Dipl.-Ing. Bernhard Kronberger für die sehr gute Betreuung und die Korrektur des hier vorliegenden Werkes.

Weiters sei Dr. Gerhard Löffler für die wertvollen Fachkommentare und die Unterstützung bei diesem Projekt gedankt.

Besonders möchte ich mich bei Univ. Prof. Dr. Hermann Hofbauer für die Möglichkeit diese Diplomarbeit zu erstellen bedanken.

Kurzfassung

Chemical Looping Combustion (CLC) stellt eine vielversprechende Technologie dar, um CO_2 bei Energieerzeugungsprozessen kostengünstig abzuscheiden. Die Oxidation des gasförmigen Brennstoffs wird in einem zirkulierenden Wirbelschichtsystem in zwei Schritten durchgeführt: In einem sogenannten Fuel Reactor wird der Brennstoff durch ein Metalloxid oxidiert, während das reduzierte Metalloxid in einem darauffolgenden Air Reaktor mittels Luft wieder rückoxidiert wird. Besteht der Brennstoff nur aus Kohlenwasserstoffen, H_2 und CO, dann enthält das Abgas nur CO_2 und Wasser, welches auskondensiert werden kann, womit man nahezu reines CO_2 erhält.

In dieser Arbeit soll die Fluiddynamik eines CLC Systems mit Hilfe eines Labormodells einer zirkulierenden Wirbelschicht untersucht werden. Der Aufbau und die Inbetriebnahme dieses Models sowie des dazugehörigen Gaskreislaufsystems und der Hard- und Software zur Messwerterfassung und Anlagensteuerung sind Teil dieser Arbeit.

Das Labormodell und der Gaskreislauf konnten erfolgreich in Betrieb genommen werden. Die für einen zufriedenstellenden Betrieb notwendige minimale Feststoffumlaufrate konnte mit genügend Reserve nach oben erreicht werden. Die Gasleckagen zwischen den beiden Reaktoren konnten ebenfalls als hinreichend klein beurteilt werden.

Das Basic Design einer Industrieanlage auf Basis des spezifischen Umlaufs und der Partikel- und Gasverweilzeiten wird erstellt. Alternative Designmöglichkeiten werden diskutiert und die gemessenen Parameter implementiert.

Abstract

Chemical Looping Combustion (CLC) is a promising technology for separating CO_2 at very low costs. In a circulating fluidised bed (CFB) system the oxidation of gaseous fuels is realised in a two step process: in a so-called Fuel Reactor the fuel is oxidized by metal oxide and in an Air-Reactor the reduced metal is subsequently re-oxidized by air. For hydrocarbon fuels the Fuel Reactor flue gas contains only CO_2 and water, which can easily be separated, thus obtaining almost pure CO_2.

In this thesis the fluid dynamics of a CFB reactor system is investigated by the aim of a cold flow model of a laboratory scale CLC unit. Putting into operation the experimental test rig including a fluidisation gas recycling loop is main part of this work. Also the hard- and software for measurement signal processing and controlling of the unit was set up.

As a result the scaled model and the supply-system could be put in operation successfully. The minimum solid circulation rate necessary for reaching the performance can be reached with sufficient margin to higher ones. Also gas leakage between the two reactors were found being in an acceptable range.

Finally, a basic design of an industrial scale plant on basis of the specific solid circulation rate and the particle and gas residence time is made. Alternative design possibilities are discussed and the above measured parameters implemented.

INHALTSVERZEICHNIS

1 EINLEITUNG 1

1.1 CO_2 UND DER TREIBHAUSEFFEKT 1
1.2 CHEMICAL LOOPING COMBUSTION (CLC) 3
1.2.1 DAS CLC-KONZEPT 3
1.2.2 ÖKONOMISCHE ABSCHÄTZUNG 5

2 THEORETISCHE GRUNDLAGEN 6

2.1 WIRBELSCHICHTTECHNIK 6
2.1.1 ALLGEMEINES 6
2.1.2 BESCHREIBUNG DES ZU FLUIDISIERENDEN MATERIALS 7
2.1.3 DRUCKABFALL IM BETT 12
2.1.4 SINKGESCHWINDIGKEIT 16
2.1.5 FLUIDISIERUNGSREGIME 17
2.2 SIEBANALYSE 18
2.3 SEDIMENTATIONSANALYSE 18
2.4 THEORIE CHEMICAL LOOPING COMBUSTION 19
2.4.1 ALLGEMEINES 19
2.4.2 MASSEN- UND ENERGIEBILANZEN 19
2.4.3 REAKTORDESIGN UND ANFORDERUNGEN 22
2.4.4 SAUERSTOFFTRÄGER 23
2.5 SCALE UP 23

3 AUFBAU DES LABORMODELLS 25

3.1 DESIGN LABORMODELL 25
3.2 MESSWERTERFASSUNG UND ANLAGENSTEUERUNG 29
3.2.1 FIELDPOINT ™ SYSTEM 29
3.2.2 MESSSENSORIK 31
3.2.3 LABVIEW™- PROGRAMM 34
3.3 ANLAGENSCHEMA HE / N_2 –KREISLAUF 38
3.4 BODENDRUCKVERLUST 39
3.5 CHARAKTERISIERUNG DES BETTMATERIALS 41
3.5.1 PARTIKELGRÖßENVERTEILUNG 41

3.5.2 KLASSIFIZIERUNG NACH GELDART 42
3.5.3 LOCKERUNGS- UND SINKGESCHWINDIGKEIT 42
3.5.4 FLUIDISIERUNGSREGIME 44

4 VERSUCHSERGEBNISSE 45

4.1 DRUCKPROFILE 47
4.1.1 GESAMTE ANLAGE 47
4.1.2 AR / RISER 48
4.2 FESTSTOFFKONZENTRATION IM RISER 51
4.3 UMLÄUFE 53
4.3.1 VARIATION DER GESAMTEN BETTMASSE FÜR KONFIGURATION A 54
4.3.2 VARIATION DER GESAMTEN BETTMASSE FÜR KONFIGURATION B 55
4.3.3 VERGLEICH KONFIGURATION A UND AS 56
4.3.4 VERGLEICH KONFIGURATION A UND B 57
4.3.5 SOLID HOLD UP VERSUS DIMENSIONSLOSER UMLAUF 57
4.4 BESTIMMUNG DES ABSCHEIDERWIRKUNGSGRADES 58
4.5 LECKAGEN 59
4.5.1 MESSPRINZIP 59
4.5.2 MASSENBILANZ ÜBER AR UND FR 60
4.5.3 MASSENBILANZ ÜBER DAS GANZE SYSTEM 63
4.5.4 ERGEBNISSE 64
4.5.5 PARTIKEL- UND GASGESCHWINDIGKEIT 71

5 BASIC DESIGN EINER INDUSTRIEANLAGE 72

5.1 ANFORDERUNGEN AN GROßANLAGEN 72
5.2 ANLAGENKONZEPTE 73
5.3 SCALE UP VON HEIßMODELL AUF 2 MW DEMOANLAGE 76

6 ZUSAMMENFASSUNG 78

7 NOMENKLATUR 80

8 LITERATUR 84

9 ANHANG 87

9.1 KOMPONENTEN FIELDPOINT-SYSTEM 87
9.2 MESSENSORIK 88
9.2.1 DMD 88
9.2.2 MFC 89
9.3 BLOCK DIAGRAMME UNTERPROGRAMME 92

1 Einleitung

1.1 CO_2 und der Treibhauseffekt

Der Weltenergieverbrauch ist im letzten Jahrhundert rasant angestiegen. Es wird erwartet, dass diese Tendenz weiter anhält (vgl. Abbildung 1-1), im Speziellen in den Entwicklungsländern, da diese bestrebt sind den westlichen Lebensstandard zu erreichen.

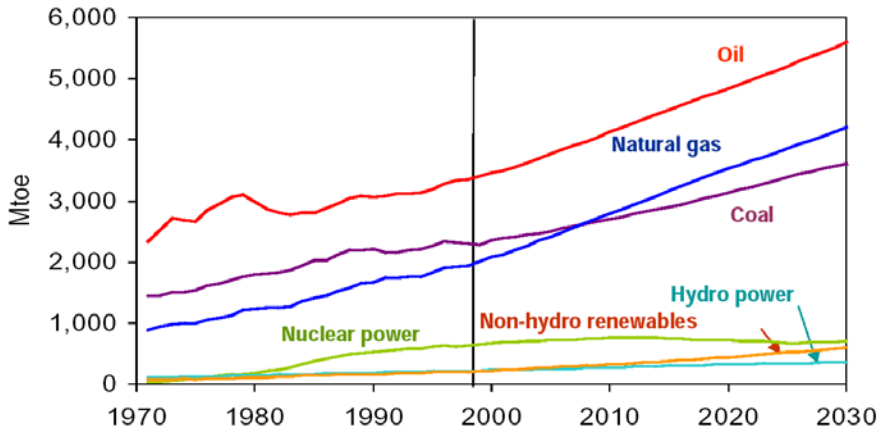
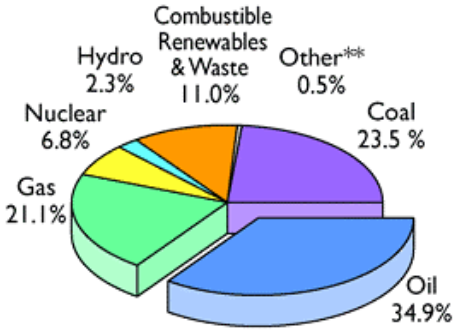


Abbildung 1-1: Entwicklung des Weltenergieverbrauchs

[International Energy Agency, www.worldenergyoutlook.org/weo/pubs/weo2002/WEO21.pdf]

Zurzeit werden ca. 80% der weltweit erzeugten Energie durch die Verbrennung von fossilen Energieträgern (wie z.B.: Erdöl, Erdgas und Kohle) erzeugt, wie in Abbildung 1-2 zu sehen ist.

Die fossilen Energieträger haben ganz wesentlich zur wirtschaftlichen Entwicklung der Industrieländer beigetragen. Die erneuerbaren Energieträger spielen trotz verstärkter Forschungen nach wie vor eine untergeordnete Rolle und haben auch ein beschränktes Potential. Sie werden, wenn nicht entsprechende finanzielle Anreize geschaffen werden, die fossilen Energieträger mittelfristig zu vernünftigen Produktionspreisen nicht ersetzen können. In vorhersehbarer Zukunft wird die Energieversorgung daher weiterhin hauptsächlich durch fossile Energieträger erfolgen.



*Excludes international marine bunkers and electricity trade.
**Other includes geothermal, solar, wind etc.

Abbildung 1-2: Weltenergie Mix im Jahr 2000

[International Energy Agency, www.iea.org/statist/keyworld2002/key2002/keystats.htm]

Es wird vermutet dass der Anstieg der atmosphärischen CO_2 Konzentration hauptsächlich durch die Verbrennung fossiler Brennstoffe zur Energieerzeugung in Verkehr, Industrie und Haushalten verursacht wird. Obwohl CO_2 das geringste Erwärmungspotential aller Treibhausgase besitzt, ist es wegen der großen emittierten Mengen das Wichtigste.

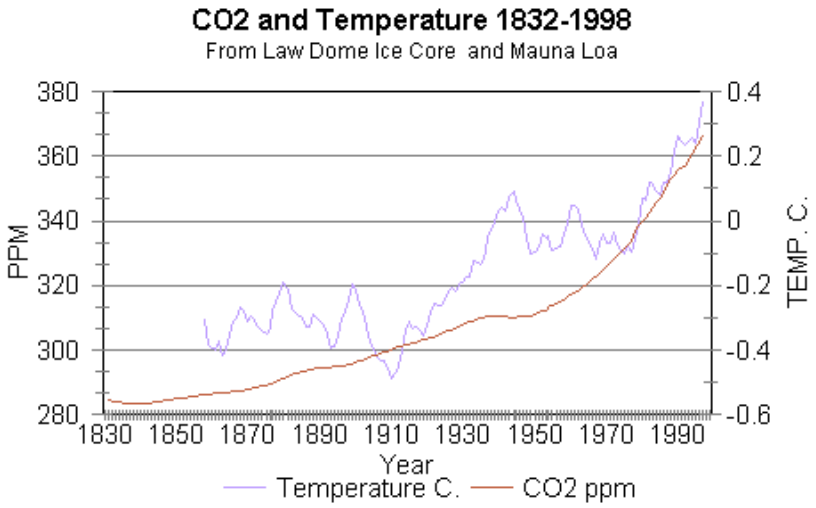


Abbildung 1-3: CO_2 und die globale Temperatur

[http://www.whole-systems.org/co2.html]

Der Zusammenhang zwischen steigender CO_2 Konzentration in der Atmosphäre und steigender globaler Temperatur ist zwar noch immer nicht völlig klar, es besteht jedoch Einigkeit darüber, dass der Mensch einen nicht zu übersehenden Einfluss auf das weltweite Klima hat. Durch Messung und Vergleich von

Kohlendioxidkonzentration und durchschnittlicher Atmosphärentemperatur über mehr als 180 Jahre ist jedoch eine direkter Zusammenhang kaum zu übersehen (Abbildung 1-3).
Das und der steigende Energiebedarf haben dazu geführt, verstärkt Anstrengungen zu unternehmen, die CO_2 Emissionen zu senken und nach neuen emissionsneutralen und vor allem kostengünstigen Verfahren zu forschen. Ein Beispiel dafür ist das von mehreren Ölkonzernen ins Leben gerufene *CO_2 Capture Project*. [CO_2 capture project, http://www.co2captureproject.org]

1.2 Chemical Looping Combustion (CLC)

Prinzipiell gibt es mehrere Optionen die oben genannten Ziele zu realisieren:

- Verstärkte Verwendung von alternativen Energieträgern
- Wirkungsgradsteigerungen bei Erzeugung und Nutzung von Energie
- Abtrennung und Speicherung von CO_2 bei Verbrennung von fossilen Brennstoffen

Da die alternativen Energieträger die fossilen Brennstoffe mittelfristig nicht ablösen werden, und das Potential von Zweitgenanntem zu gering ist um eine wirkungsvolle Absenkung der CO_2 Emissionen zu erreichen, liegt großes Interesse in der Abtrennung und Speicherung von CO_2 bei Verbrennung von fossilen Brennstoffen.

Der hohe Energiebedarf und die damit verbundenen Kosten zur Entfernung von CO_2 aus dem Rauchgas sind die Hauptprobleme aller bis jetzt eingesetzten Technologien wie z.B.: Absorption, Adsorption oder Verbrennung mit reinem Sauerstoff. Der Gesamtwirkungsgrad eines Kraftwerksprozesses wird dadurch um 15-20% vermindert. [Lyngfelt, Leckner; 2000], [Herzog; 1999].

1.2.1 Das CLC-Konzept

Chemical Looping Combustion (CLC) wurde schon mehrfach als Alternative zur herkömmlichen Verbrennung untersucht. [Ishida und Jin; 1994], [Anheden, et al; 1995]. Ursprünglich wurde das Verfahren jedoch als Möglichkeit angesehen, um den thermischen Wirkungsgrad bei der Energieerzeugung zu steigern, um dadurch die CO_2 Emissionen zu senken [Richter, Knoche; 1983].

Das System besteht aus zwei Reaktoren, einem Air- (im Weiteren AR genannt) und einem Fuel-Reaktor (im Weiteren FR genannt), siehe Abbildung 1-4. Die Oxidation des im Fuel-Reactor aufgegebenen gasförmigen Brennstoffes wird im Unterschied zu einer „konventionellen“ Verbrennung nicht mit Luftsauerstoff, sondern mittels eines

Metalloxides (MeO) durchgeführt. Das heißt, der Sauerstoff wird mittels eines Trägers mit dem Brennstoff in Kontakt gebracht. Der Brennstoff und das Metalloxid reagieren dabei nach folgender Reaktionsgleichung:

$$(2a+b)\,MeO + C_aH_{2b} \rightarrow (2a+b)\,Me + bH_2O + aCO_2 \qquad \textit{Gleichung 1-1}$$

Da sich Brennstoff und Luft nicht gemeinsam im Fuel-Reaktor befinden, sind in dessen Abgasstrom kein N_2 und daher auch keine Stickoxide (NO_x) vorhanden, sondern nur CO_2 und H_2O, das auskondensiert werden kann. Man erhält somit reines CO_2 welches verflüssigt und endgelagert werden kann.
Hier ist auch der große Vorteil dieses Verfahrens zu erkennen, da kaum zusätzliche Energie benötigt wird, um das CO_2 aus dem Abgasstrom zu entfernen.

Das aus dem Fuel-Reaktor austretende, reduzierte Metalloxid bzw. Metall (Me) wird in den Air-Reaktor geleitet, wo es gemäß Gleichung 1-2 mit Sauerstoff aus der Umgebungsluft wieder zu einem Metalloxid höherer Oxidationsstufe aufoxidiert wird.

$$Me + \tfrac{1}{2}O_2 \rightarrow MeO \qquad \textit{Gleichung 1-2}$$

Dieses wird wieder in den Fuel-Reaktor zurückgeführt, und schließt somit den Kreislauf. Der Abgasstrom des Air-Reaktors besteht nur aus N_2 und unverbrauchtem O_2.

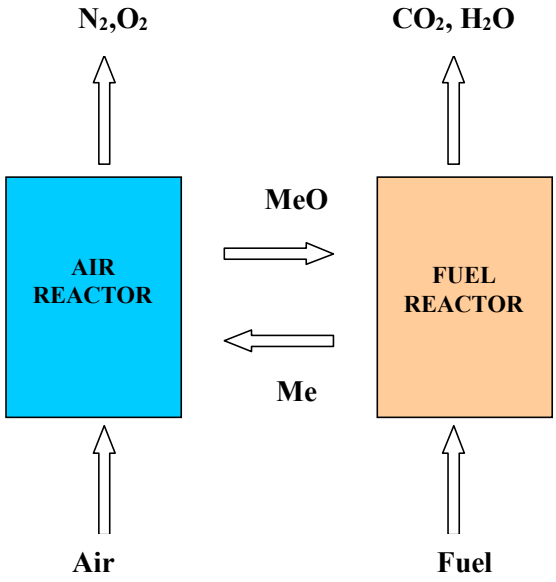


Abbildung 1-4: Schema Chemical Looping Combustion

Die Konversion von MeO zu Me gemäß Gleichung 1-1 und von Me zu MeO gemäß Gleichung 1-2 muss in einem realen System nicht zu 100% stattfinden, d.h. bei der Reduktion von MeO wird nicht ein reines Metall (Me) gebildet, sondern ein Metalloxid (MeO) niedrigerer Oxidationsstufe (z.B.: aus Hämatit (Fe_2O_3) wird Magnetit (Fe_3O_4) oder Wüstit (FeO) gebildet), [Mattisson et al; 2001].

1.2.2 Ökonomische Abschätzung

Bei einem *CLC-Prozess* ist der Energiebedarf zur Abtrennung des entstehenden CO_2 wesentlich geringer als bei anderen Technologien, da im Abgas nur CO_2 und Wasser (kann auskondensiert werden) enthalten sind, und somit die notwendigen Separationsschritte entfallen**.**

Laut Kostenschätzungen von TDA Inc. ergeben sich für einen CLC-Gasturbinen Prozess spezifische Kosten von ca. 25 €/Tonne CO_2, [Copeland et al; 2002].
Die gesamten CO_2 Emissionen von EU-Kraftwerken belaufen sich auf ca. 900 Mio. Tonnen pro Jahr. Die spezifischen Kosten zur Reduzierung dieser Emissionen mit jetzt eingesetzten Technologien (z.B.: Absorption, Adsorption und Membrantrennverfahren) können mit ca. 50 €/Tonne CO_2 geschätzt werden. Nachfolgende Tabelle zeigt das Einsparungspotential bei Applikation eines CLC-Prozesses. Die Daten basieren auf einer Gesamtreduktion der Kohlendioxidemissionen in der EU um 50%. [Navarro; 2002]

Methode der CO_2 Entfernung	**Spez. Kosten [€/Tonne CO_2]**	**Gesamtkosten [Milliarden €]**	**Zusätzl. Kosten [€cent/kWh Gas]$_1$**
Jetzt eingesetzte Technologien	50	24	0,53
Chemical Looping Combustion	25	12	0,26
Differenz (Gewinn)	25	12	0,26

Tabelle 1-1: Kostenvergleich

1 für 100% Methan; exkl. Steuern; Annahme: 900Mio. Tonnen CO_2 entstehen bei der Verbrennung von Methan

2 Theoretische Grundlagen

Hier sollen die Grundlagen der Wirbelschichttechnik, der Sieb- und Sedimentationsanalyse und das CLC-Prinzip näher erläutert werden.

2.1 Wirbelschichttechnik

Prinzipiell bestehen verschiedene Möglichkeiten zur Wahl von Reaktortypen zur Umsetzung des CLC - Konzeptes um eine am Ende auch im großen Maßstab funktionierende Kraftwerksanlage effizient betreiben zu können.
Da die Feststoffmengen für den Sauerstoffeintrag in den Brennstoffreaktor als sehr groß angenommen werden können und sich zusätzlich aus der Thermodynamik für viele mögliche Sauerstoffträgermaterialien die Forderung zum Temperaturausgleich zwischen den Reaktoren ergibt, erscheint die Wahl eines Wirbelschichtreaktorsystems als zielführend.
Da das im Rahmen dieser Arbeit untersuchte Labormodell ein zirkulierendes Wirbelschichtsystem darstellt, werden in diesem Kapitel die theoretischen Grundlagen erläutert. Weite Teile der Ausführungen dieses Kapitels sind [Hofbauer; 1996], [Grace et al; 1997] und [Kunii, Levenspiel; 1991] entnommen.

2.1.1 Allgemeines

Wird ein sich in einem zylindrischen Behälter befindliches körniges Gut über einen Gasverteilerboden von einem Gas oder einer Flüssigkeit von unten nach oben durchströmt, so kann man abhängig von der Anströmgeschwindigkeit verschiedene Zustände beobachten. Voraussetzung dafür ist, dass die Dichte des Fluids ρ_g kleiner als die Dichte des Feststoffs ρ_p ist.
Bei geringer Strömungsgeschwindigkeit wird die Schüttung nur durchströmt und ändert dabei ihre Lage nicht, es liegt ein Festbett vor. Durch schrittweise Erhöhung der Fluidgeschwindigkeit gelangt man zu einem Punkt bei dem die Schüttung expandiert, dem sogenannten *Lockerungspunkt*. Die entsprechende Strömungsgeschwindigkeit, die auf ein Leerrohr bezogen ist (Leerohrgeschwindigkeit U), wird *Lockerungsgeschwindigkeit* U_L genannt, (siehe Abbildung 2-1a und Kapitel 2.1.3.3). Die durch das aufwärtsströmende Fluid auf die Schüttung ausgeübte Kraft ist hier gleich der Gewichtskraft dieser, vermindert um die Auftriebskraft. Die Partikel sind suspensionsartig im Fluid verteilt und die Schüttung verhält sich ab diesem Punkt im Wesentlichen ähnlich einer Flüssigkeit.
Durch zunehmende Erhöhung der Leerohrgeschwindigkeit U kommt es zur Blasenbildung in der Schüttung, die ab jetzt als *blasenbildende Wirbelschicht* bezeichnet werden kann. (Abbildung 2-1b).

Eine Vergrößerung der Blasen und deren Aufstiegsgeschwindigkeit, hervorgerufen durch Koaleszenzeffekte, kann bei Steigerung von *U* in die Nähe der *Sinkgeschwindigkeit* U_S beobachtet werden. Die Blasenphase stellt jetzt die kontinuierliche Phase dar, in der Feststoffsträhnen verteilt sind. Dieser Zustand wird als *turbulente Wirbelschicht* bezeichnet. (Abbildung 2-1c)
Durch eine weitere Erhöhung von *U* verschwinden die deutlich sichtbaren Grenzen zwischen Bett und Freiraum darüber (*Freeboard*). Es entstehen Bereiche mit unterschiedlichen *Porositäten* ε. Im unteren Teil am Rand entsteht eine dichte Zone (ε=0,7-0,8), während sie im *Freeboard* sehr dünn ist (ε=0,99). Man bezeichnet diesen Zustand als *schnelle* oder *stark expandierte Wirbelschicht*. (Abbildung 2-1d)
Bei noch höheren Gasgeschwindigkeiten ist der Feststoffstrom so groß, dass die Randschicht dünner wird und es zu einem sehr hohen Partikelaustrag aus dem Behälter kommt. Dies wird als *pneumatischer Transport* bezeichnet. (Abbildung 2-1e)

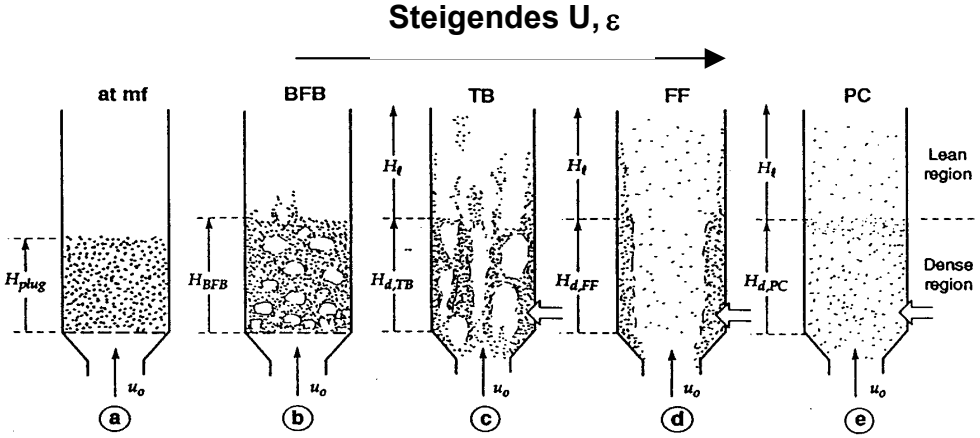


Abbildung 2-1: Strömungsverhältnisse in der Wirbelschicht bei verschiedenen Leerohrgeschwindigkeiten [Mitterlehner; 1999]; mf: minimum fluidisation; BFB: bubbling fluidized bed; TB: turbulent bed; FF: fast fluidisation; PC: pneumatic conveying

2.1.2 Beschreibung des zu fluidisierenden Materials

2.1.2.1 Partikeldichte und Äquivalentdurchmesser

Die Partikeldichte ρ_p ist aufgrund von offenen und geschlossenen Poren geringer als die Feststoffdichte. Man bezeichnet sie auch als *hydrodynamische Dichte*, da zu deren Berechnung das Volumen des Partikels herangezogen wird, das durch das Fluid umschlossen wird, d.h. das Partikel wird als Feststoff ohne Poren angesehen.

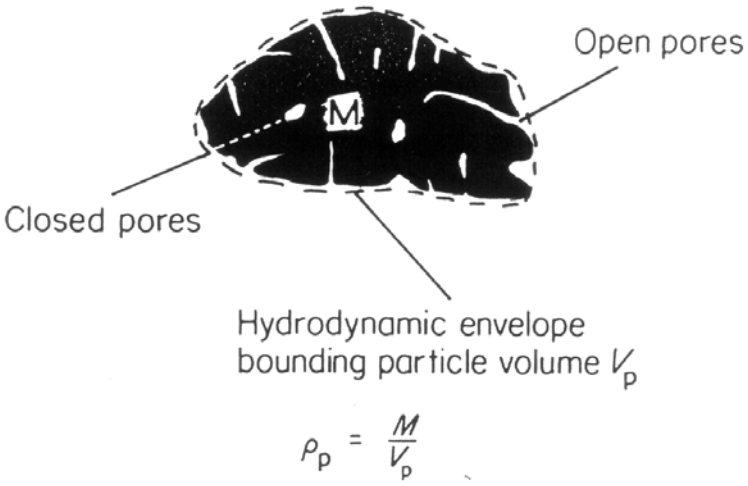


Abbildung 2-2: Definition der Partikeldichte [Hofbauer; 1996]

Neben der Dichte wird ein Partikel auch durch seine Größe, also den Durchmesser charakterisiert. Die in Wirbelschichten, wie in fast allen anderen technischen Anwendungen verwendeten Teilchen weichen jedoch von der Kugelform mehr oder weniger ab. Zur fluiddynamischen Charakterisierung wird aber meist mit einem Durchmesser gerechnet. Deshalb muss ein Äquivalentdurchmesser festgelegt werden. In nachfolgender Tabelle sind die Wichtigsten angeführt, wobei *S* die Oberfläche- und *V* das Volumen des Partikels sind.

Symbol	Bezeichnung	Erklärung	Berechnung
d_p	Siebdurchmesser	Seitenlänge des Quadrats, durch welches das Partikel durchgeht	
d_s	Oberflächenbezogener Durchmesser	Durchmesser einer Kugel mit gleicher Oberfläche	$d_s = \sqrt{\frac{S}{\pi}}$
d_v	Volumenbezogener Durchmesser	Durchmesser einer Kugel mit gleichem Volumen	$d_v = \sqrt[3]{\frac{6 \cdot V}{\pi}}$
d_{sv}	Oberflächen/Volumen-bezogener Durchmesser	Durchmesser einer Kugel mit demselben Oberflächen/Volumen Verhältnis wie das Partikel	$d_{sv} = \frac{6 \cdot V}{S}$

Tabelle 2-1: Verschiedene Äquivalentdurchmesser

Der *Formfaktor* ψ gibt die Abweichung von der Kugelform an, wobei für eine Kugel $\psi=1$ gilt.

Der Formfaktor ist definiert als das Verhältnis der Oberfläche der volumengleichen Kugel zur Oberfläche des Partikels.

$$\psi = \left(\frac{d_V}{d_S}\right)^2 = \frac{d_{SV}}{d_V}$$ *Gleichung 2-1*

Für die meisten technisch wichtigen Materialien liegt dieser zwischen 0,7 (gebrochene Kohle) und 1 (technische Glaskugeln).

2.1.2.2 Korngrößenverteilung

Die in einer Wirbelschicht angewandten Bettmaterialien können nicht als Partikel gleicher Größe angesehen werden, sondern haben eine in einem größeren Bereich liegende Korngrößenverteilung.
Der mittlere oberflächen/volumenbezogene Durchmesser d_{SV} kann aus einer Mischung kugelförmiger Materialien wie folgt berechnet werden:

$$d_{sv} = \frac{\sum_i N_i \cdot d_i^3}{\sum_i N_i \cdot d_i^2}$$ *Gleichung 2-2*

N_i bedeutet dabei die Anzahl von Partikeln mit dem Durchmesser d_i.
Wenn x_i die Gewichtsfraktion mit dem Durchmesser d_i ist dann gilt weiters:

$$d_{sv} = \frac{\sum_i x_i}{\sum_i \frac{x_i}{d_i}}$$ *Gleichung 2-3*

Bei einer Siebanalyse ergibt sich mit der Gewichtsfraktion x_i auf dem Sieb i und dem Durchmesser d_{pi} (mittlerer Partikeldurchmesser aus Sieb i und Sieb i+1):

$$d_p = \frac{1}{\sum_i \frac{x_i}{d_{pi}}}$$ *Gleichung 2-4*

Bei dieser Mittelung haben kleinere Durchmesser mehr Einfluss als größere, was auf die Wichtigkeit der kleinen Partikel bei der Fluidisierung zurückzuführen ist.

In Abbildung 2-3 ist eine Korngrößenverteilung für das in dieser Arbeit verwendete Bettmaterial beispielhaft dargestellt.

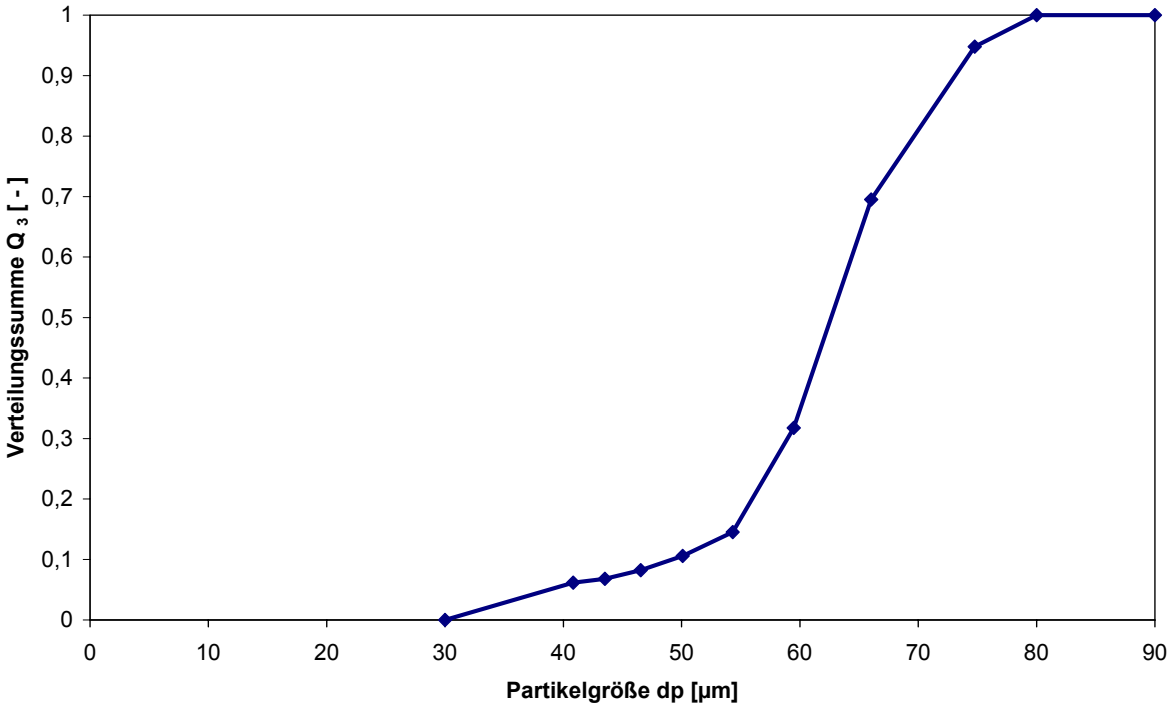


Abbildung 2-3: Korngrößenverteilung des verwendeten Bettmaterials

2.1.2.3 Festbettporosität

Bilden Schüttgüter ein Bett, ergibt sich eine gewisse Bettporosität, die im Wesentlichen von folgenden Guteigenschaften abhängt:

- Partikelform: höhere Porosität bei niedrigerem Formfaktor
- Partikelgröße: niedrigere Porosität bei größeren Partikeln
- Korngrößenverteilung: niedrigere Porosität bei weiterer Verteilung

Sie ist definiert als:

$$\varepsilon = \frac{\text{Zwischenkornvol.}}{\text{Gesamtvol.}} = \frac{\text{Gesamtvol.} - \text{Partikelvol.}}{\text{Gesamtvol.}} = 1 - \frac{m}{\rho_p \cdot V_B} \qquad \textit{Gleichung 2-5}$$

m ist die gesamte Partikelmasse, ρ_p die Partikeldichte und V_B das gesamte Bettvolumen.
Die Schüttdichte ist definiert als:

$$\rho_b = \frac{m}{V_B} \qquad \textit{Gleichung 2-6}$$

Mit Gleichung 2-5 und Gleichung 2-6 erhält man:

$$\varepsilon = 1 - \frac{\rho_b}{\rho_p}$$ Gleichung 2-7

2.1.2.4 Charakterisierung von Pulvern nach Geldart

Die Fluidisierbarkeit verschiedener Schüttgüter wird von Partikeldurchmesser und Dichtedifferenz zwischen Feststoff und Gas bestimmt. Gemäß Geldart können sie in vier Gruppen (A-D) eingeteilt werden (vgl. Abbildung 2-4). Sie gilt für Luftfluidisierung und bei Raumtemperatur und Umgebungsdruck.

Gruppe C
Dazu zählen kohäsive oder sehr feine Pulver. Diese Materialien sind aufgrund von interpartikulären Kräften schwer fluidisierbar und neigen zu Pfropfen- oder Kanalbildung. Sehr kleine (<20µm), feuchte oder unregelmäßig geformte Partikel sind dieser Gruppe zuzuordnen.
Mehl und Stärke können als typische Beispiele angeführt werden.

Gruppe A
Materialien mit kleinen mittleren Durchmessern und Partikeldichten (< 1400 kg/m³) die noch leicht kohäsiv sind. Sie sind leicht zu fluidisieren und expandieren homogen bei Überschreiten des Lockerungspunktes. Blasenbildung entsteht erst bei höheren Gasgeschwindigkeiten. Gut geeignet für stark expandierte und zirkulierende Wirbelschichten, z.B.: FCC-Kat.

Gruppe B
Sandähnlich, mit mittleren Partikelgrößen zwischen 40 µm < d_p < 500 µm und Dichten zwischen 1400 kg/m³ < ρ_s < 4000 kg/m³. Die Kohäsion ist vernachlässigbar und die Expansion nicht mehr homogen. Bereits beim Überschreiten des Lockerungspunktes starke Blasenbildung mit groß wachsenden Blasen, was eine gute Feststoffdurchmischung ergibt.

Gruppe D
Sprudelbildende, große und/oder dichte Partikel. Sind schwierig zu fluidisieren und es entstehen große, explodierende Blasen. Bei sehr unregelmäßiger Gasverteilung neigen sie zu Kanal- und Sprudelbildung.
Typische Anwendungsfälle sind die Fluidisierung von Getreide, Kaffeebohnen oder Kohle.

Die nächste Abbildung zeigt die Einteilung nach Geldart. Durch die Verwendung von dimensionslosen Dichten und Durchmessern erhält man eine normierte Darstellung und eine Entkopplung von den Maßeinheiten.
Die punktförmige Markierung charakterisiert das in diesem Projekt verwendete Bettmaterial (siehe auch Kapitel 3.5)

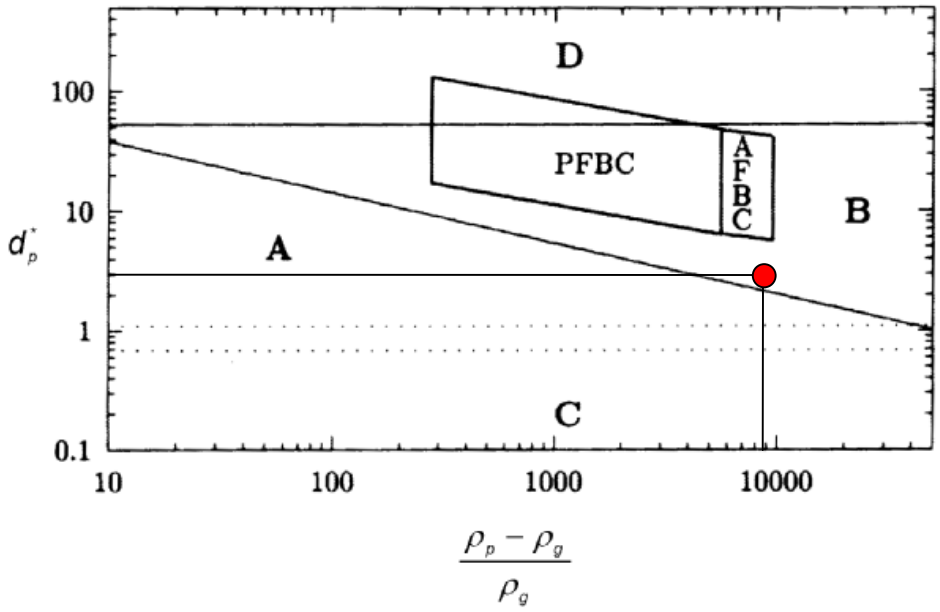


Abbildung 2-4: Klassifikation verschiedener Schüttgüter für Gasfluidisierung bei Raumtemperatur nach Geldart modifiziert von [Grace; 1986]

2.1.3 Druckabfall im Bett

2.1.3.1 Druckabfall im Festbett

Laut Carman-Kozeny gilt für Re<1

$$\frac{\Delta p}{h} = 180 \cdot \frac{(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^2} \cdot \frac{\mu \cdot U}{d_{sv}^2} \qquad \textit{Gleichung 2-8}$$

Δp steht für den Druckabfall in [Pa], h für die Betthöhe in [m], μ für die dynamische Viskosität des Gases in [Pa·s], ε die Porosität, U die Leerrohrgeschwindigkeit in [m/s] und Re die Reynoldszahl, die wie folgt definiert ist:

$$\mathrm{Re} = \frac{\rho_g \cdot U \cdot d_{sv}}{\mu} \qquad \textit{Gleichung 2-9}$$

Für Reynoldszahlen größer 1 ist die Beziehung nach Ergun anzuwenden:

$$\frac{\Delta p}{h} = 150 \cdot \frac{(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^2} \cdot \frac{\mu \cdot U}{d_{sv}^2} + 1{,}75 \cdot \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon^3} \cdot \frac{\rho_g \cdot U^2}{d_{sv}} \qquad \textit{Gleichung 2-10}$$

Im laminaren Bereich (Re<<1) ist der erste Summand der Gleichung ausschlaggebend, während es im Turbulenten (Re>>1) der zweite ist.

2.1.3.2 Druckabfall in der Wirbelschicht

Ist die Summe aus Widerstandskraft und Auftriebskraft der Gasströmung auf die Partikel gleich der Gewichtskraft aller Partikel, dann geht das Festbett in ein Wirbelbett über.
Die Kräftebilanz ist daher:

$$\Delta p \cdot A = h \cdot (1-\varepsilon) \cdot (\rho_p - \rho_g) \cdot g \cdot A \qquad \textit{Gleichung 2-11}$$

Der Druckverlust in einer Wirbelschicht ist also unabhängig von der Fluidisierungsgeschwindigkeit.
Er kann auch in folgender Form angegeben werden:

$$\Delta p = \frac{m \cdot g}{A} \qquad \textit{Gleichung 2-12}$$

m ist dabei die gesamte Bettmasse in [kg] und A die Querschnittsfläche des Wirbelschichtbehälters.
Mit diesem Druckverlust muss sozusagen die gesamte Bettmasse „gehoben“ werden.

2.1.3.3 Lockerungsgeschwindigkeit

Die Leerrohrgeschwindigkeit, bei der das Bett expandiert, wird als Lockerungsgeschwindigkeit bezeichnet. Sie stellt den Übergang zwischen Festbett und Wirbelschicht dar. Der Druckverlust an diesem Übergang ist *Punkt B* in Abbildung 2-5, also dort wo der Druckverlust im Festbett und in der Wirbelschicht gleich sind. Er kann mit Gleichung 2-10 und Gleichung 2-11 berechnet werden. Die durch Gleichsetzen dieser beiden Gleichungen erhaltene Leerrohrgeschwindigkeit *U* ist daher die *Lockerungsgeschwindigkeit* U_L.

Gleichsetzen von Gleichung 2-10 und Gleichung 2-11 mit der Porosität am Lockerungspunkt ε_L ergibt:

$$(1-\varepsilon_L)\cdot(\rho_p-\rho_g)\cdot g = 150\cdot\frac{(1-\varepsilon_L)^2}{\varepsilon_L^2}\cdot\frac{\mu\cdot U_L}{d_{sv}^2}+1{,}75\cdot\frac{1-\varepsilon_L}{\varepsilon_L^2}\cdot\frac{\rho_g\cdot U_L^2}{d_{sv}} \qquad \textit{Gleichung 2-13}$$

Formt man diese Gleichung so um, dass auf der linken Seite die Archimedes-Zahl Ar steht:

$$Ar = \frac{d_{sv}^3\cdot\rho_g\cdot(\rho_p-\rho_g)\cdot g}{\mu^2} \qquad \textit{Gleichung 2-14}$$

dann ergibt sich eine quadratische Gleichung folgender Form:

$$Ar = C_1\cdot\mathrm{Re}+C_2\cdot\mathrm{Re}^2 \qquad \textit{Gleichung 2-15}$$

Unter Verwendung empirischer Daten und Auflösen dieser Gleichung nach U_L, erhält man gemäß [Grace; 1982] eine Gleichung die von Re 0,001 bis 4000 gültig ist.

$$U_L = \frac{\mu}{\rho_g\cdot d_{sv}}\cdot\left(\sqrt{27{,}2^2+0{,}0408\cdot Ar}-27{,}2\right) \qquad \textit{Gleichung 2-16}$$

Die Lockerungsgeschwindigkeit kann auch experimentell bestimmt werden (siehe Kapitel 3.5.3)

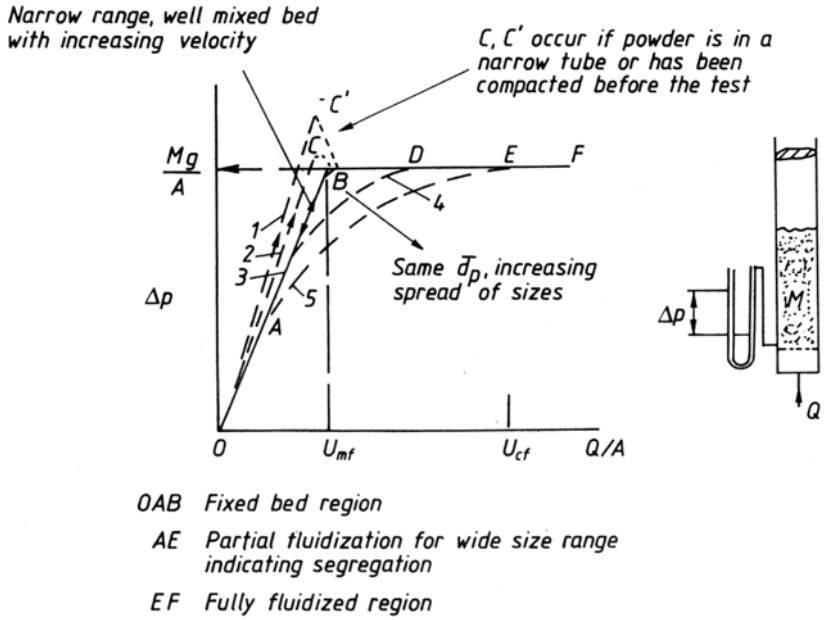


Abbildung 2-5: Druckabfall für Festbett und Wirbelschicht abhängig von der Leerohrgeschwindigkeit [Hofbauer; 1996]

2.1.3.4 Einfluss des zu fluidisierenden Materials auf den Druckabfall im Bett

Wie in Abbildung 2-5 Linienzug *0-B-F* und aus Gleichung 2-11 bzw. Gleichung 2-12 zu sehen ist, bleibt der Druckabfall ab der Lockerungsgeschwindigkeit U_L konstant. Dies gilt allerdings nur für ein Bettmaterial mit gleichem Durchmesser, d.h. ein Monokorn. Je breiter die Korngrößenverteilung ist, desto unschärfer und weniger ausgeprägt ist der Übergang vom Festbett zur Wirbelschicht. Man kann daher den Druckverlust und somit die Lockerungsgeschwindigkeit nicht eindeutig festlegen. Dies kann man gut an den Kurven *4* und *5* in Abbildung 2-5 erkennen.
Dieser Kurvenverlauf ergibt sich dadurch, dass die Fluidisierungsgeschwindigkeit für die kleineren Partikel bereits über der Lockerungsgeschwindigkeit U_L liegt, während sie für die größeren noch darunter liegt.
Die Linien *1-3* in Abbildung 2-5 ergeben sich dann, wenn das Bettmaterial komprimiert ist. Dadurch muss eine zusätzliche Kraft aufgewendet werden um die Partikel zu expandieren; als Folge davon steigt der Druckverlust.
Wandreibungseffekte, die umso größeren Einfluss haben je schmäler das Rohr ist, erhöhen den Druckverlust ebenso.
In nachfolgender Abbildung sind weitere mögliche Abweichungen des Druckabfalls dargestellt, die von Reaktorgeometrie, vom Verteilerboden und den Partikeleigenschaften beeinflusst werden.
Zu sehen sind eine blasenbildende (a), eine stoßende (b), eine kanalbildende (c), eine strahlbildende (d) und eine sprudelnde (e) Wirbelschicht.

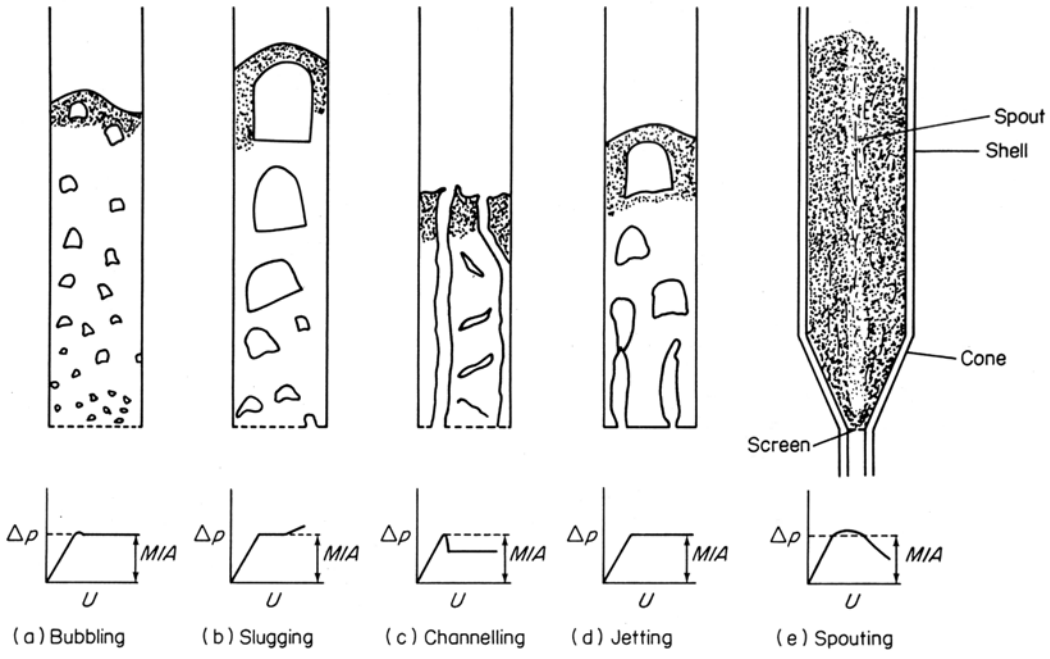


Abbildung 2-6: Verschiedene Erscheinungsbilder einer Wirbelschicht [Hofbauer; 1996]

2.1.4 Sinkgeschwindigkeit

Neben der Lockerungs- ist die Sinkgeschwindigkeit die zweite charakteristische Geschwindigkeit einer Wirbelschicht bzw. deren Bettmaterial. Bei stark expandierten Wirbelschichten und bei pneumatischer Förderung wird die Fluidisierungsgeschwindigkeit meist als ein vielfaches der Sinkgeschwindigkeit angegeben.
Sie kann durch ein Kräftegleichgewicht am Einzelpartikel berechnet werden. Dabei gilt für ein kugelförmiges, frei fallendes Partikel in einem unbegrenzten Fluid folgende Bilanz:
Gewichtskraft - Auftriebskraft - Widerstandskraft = Beschleunigungskraft

$$d_p^{\,3} \cdot \frac{\pi}{6} \cdot \left(\rho_p - \rho_g\right) \cdot g - c_W \cdot d_p^{\,2} \cdot \frac{\pi}{4} \cdot \frac{\rho_g \cdot U_S^{\,2}}{2} = d_p^{\,3} \cdot \frac{\pi}{6} \cdot \rho_p \cdot \frac{dU_S}{dt} \qquad \textit{Gleichung 2-17}$$

Wobei d_p der Partikeldurchmesser, ρ_p, ρ_g die Partikel- bzw. Gasdichte und c_W der Widerstandsbeiwert der Einzelkugel sind.
Wenn das Partikel seine Endgeschwindigkeit erreicht hat, dann ist die Beschleunigungskraft Null und es gilt für die Sinkgeschwindigkeit:

$$U_S = \sqrt{\frac{4}{3} \cdot \frac{\rho_p - \rho_g}{\rho_g} \cdot \frac{d_p \cdot g}{c_W}} \qquad \textit{Gleichung 2-18}$$

Der c_W-Wert ist eine Funktion der Reynoldszahl, wobei man den *laminaren*- (Re < 0,2, *Stokes'scher* Bereich), den *Übergangs*- (0,2 < Re < 1000) und den *turbulenten* Bereich (Re > 1000) unterscheidet.
Für den in der Wirbelschichttechnik interessanten *laminaren* Bereich gilt:

$$c_W = \frac{24}{\mathrm{Re}} \qquad \textit{Gleichung 2-19}$$

Damit ergibt sich für die Sinkgeschwindigkeit:

$$U_S = \frac{\left(\rho_p - \rho_g\right) \cdot g \cdot d_p^{\,2}}{18 \cdot \mu} \qquad \textit{Gleichung 2-20}$$

2.1.5 Fluidisierungsregime

Um die Existenzbereiche einer Gas-Feststoff Fluidisierung darzustellen, können verschiedene Zustandsdiagramme verwendet werden. Das Zustandsdiagramm von Reh wurde von Grace mit Hilfe von Literaturdaten erweitert. Es wird darin die dimensionslose Gasgeschwindigkeit $U^*=(Re/Ar^{1/3})$ gegen den dimensionslosen Partikeldurchmesser $d^*_p=(Ar^{1/3})$ dargestellt.
An der Abszisse wird eine Einteilung der Partikel nach Geldart vorgenommen.
Alle eingetragenen Geschwindigkeiten sind dimensionslos. U_L ist die Lockerungs-, U_S die Sink- und U_{SE} die Partikelaustragsgeschwindigkeit. U_c ist jene Geschwindigkeit, die den Beginn der turbulenten Wirbelschicht markiert.

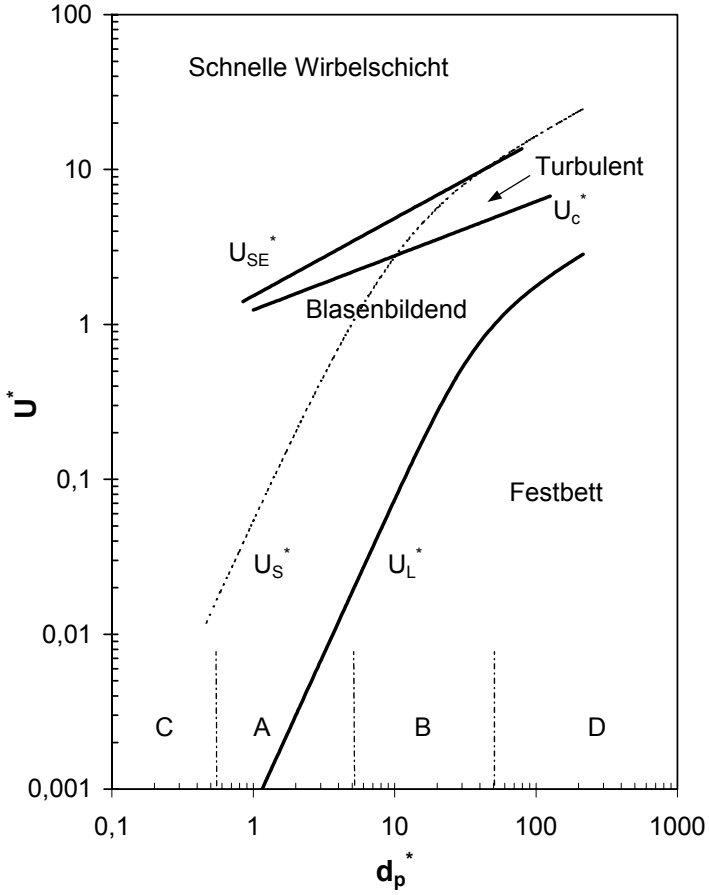


Abbildung 2-7: Bi & Grace Zustandsdiagramm für Gas-Feststoff Fluidisierung [Bi, Grace; 1995]

Das Diagramm kann in vier Bereiche unterteilt werden:

- Festbettströmung: Tritt bei kleinen Gasgeschwindigkeiten und großen Partikeln bzw. Archimedes Zahlen auf
- Blasenbildende Wirbelschicht: Bei Erreichen der Lockerungsgeschwindigkeit U_L bis zu U_c; Diese Zone vergrößert sich bei kleineren Ar-Zahlen
- Turbulente Wirbelschicht: Von U_c bis zur Partikelaustragsgeschwindigkeit U_{SE}; vor allem für Geldartpartikel A und B

- Schnelle Wirbelschicht, Pneumatische Förderung: Bei sehr hohen Gasgeschwindigkeiten und ebenfalls für Geldart A und B

Weiß man die gewünschte Fluidisierungsgeschwindigkeit, und kennt die Partikeleigenschaften, dann kann mit Hilfe dieses Diagramms der sich daraus ergebende Fluidisierungsbereich bestimmt werden.

2.2 Siebanalyse

Die Analysensiebung eignet sich zur Bestimmung der Massenanteile, die in einzelnen Korngrößenverteilungen zwischen je zwei Sieben verschiedener Maschenweite enthalten sind. Durch Abwägen dieser Massenanteile kann die Partikelgrößenverteilung bestimmt werden.
Am häufigsten wird dazu die Maschinensiebung mit vibrierendem Siebeinsatz verwendet, die auch hier eingesetzt wurde. Dabei wird auf das oberste Sieb eines Siebsatzes mit von unten nach oben steigender Maschenweite, und einer unten befindlichen Siebpfanne das Siebgut aufgegeben, und mit einem Deckel auf eine Analysensiebmaschine gespannt. Die Siebdauer wird je nach Feinanteil und Gutsfeuchte eingestellt. Je höher diese sind umso länger muss die Siebdauer sein.

2.3 Sedimentationsanalyse

Die Sedimentationsanalyse wird verwendet, um ebenso wie bei der Siebanalyse die Partikelgrößenverteilung eines Partikelkollektivs zu bestimmen. Sie beruht darauf, dass die Einzelpartikel eines dispersen Systems unter der Einwirkung einer massenproportionalen Kraft (Schwerkraft, Fliehkraft) in einem ruhenden Dispersionsmittel sedimentieren. Charakteristisches Partikelmerkmal ist die stationäre *Sinkgeschwindigkeit* U_s, die, wie in der Wirbelschichttechnik mit der Formel nach Stokes (siehe Gleichung 2-20) berechnet werden kann. Das Dispersionsmittel ist hier jedoch eine Flüssigkeit anstatt eines Gases.

Zur Bestimmung der Partikelgrößenverteilung des Bettmaterials wurde das *Pipette-Verfahren* nach Andreasen lt. DIN 66 115 verwendet. Näheres ist [Höflinger; 1995] zu entnehmen.

2.4 Theorie Chemical Looping Combustion

2.4.1 Allgemeines

Die Oxidation des Metalls im AR (Gleichung 1-1) ist exotherm, es wird ΔH_{OX} erzeugt. Die Reduktion des Metalloxids im FR (Gleichung 1-2) ist meist endotherm, es wird ΔH_{Red} konsumiert. Die Summe ergibt lt. Hess'schem Satz die gleiche Enthalpie wie eine normale Verbrennung mit Luftsauerstoff ΔH_C, d.h. ΔH_{OX} ist größer als ΔH_{Red}.
Diese Wärme kann dem AR z.B. mittels Tauchheizflächen oder Membranwänden entnommen werden. Die in den Abgasströmen der beiden Reaktoren enthaltene Energie kann in nachgeschalteten Wärmeaustauschern genutzt werden.
In einem CLC-System ist im Vergleich zu normaler Verbrennung der Brennstoffexergieverlust geringer [Richter, Knoche; 1983]. Es ist weiters möglich mehr Wärme auf einem höheren Temperaturniveau zu erzeugen, wodurch der Gesamtwirkungsgrad gesteigert werden kann. [Anheden, Svedberg; 1998]

2.4.2 Massen- und Energiebilanzen

Die nachfolgenden Berechnungen wurden aus [Lyngfelt et al; 2001] entnommen.
Gleichungen, die sich auf den AR beziehen werden mit dem Index *ox* bezeichnet, da die Partikel (der Sauerstoffträger) im AR oxidiert werden. Jene für den FR mit *red*, da sie im FR reduziert werden.

Das Luftverhältnis λ ergibt sich aus dem Volumenanteil Sauerstoff im AR-Abgas, $x_{O2,ex}$

$$\lambda = \frac{0{,}21 \cdot \left(1 - x_{O_2,ex}\right)}{0{,}21 - x_{O_2,ex}} \qquad \textit{Gleichung 2-21}$$

Das Sauerstoffverhältnis, R_O, ist eine Eigenschaft des Sauerstoffträgers, und gibt den Massenanteil Sauerstoff im Träger (Metalloxid) im völlig oxidierten Zustand an.

$$R_O = \frac{M_{f,ox} - M_{f,red}}{M_{f,ox}} \qquad \textit{Gleichung 2-22}$$

Wobei $M_{f,ox}$ die Molmasse im völlig oxidierten, und $M_{f,red}$ die Molmasse im völlig reduzierten Zustand sind.
Der Oxidationsgrad X des Sauerstoffträgers, ist dann:

$$X = \frac{M_{(t)} - M_{f,red}}{M_{f,ox} - M_{f,red}}$$ *Gleichung 2-23*

$M_{(t)}$ ist die tatsächliche Molmasse im teilweise oxidierten Zustand.
Da Sauerstoff vom AR in den FR transportiert wird, ist der mittlere Oxidationsgrad X_{ox} im AR höher als X_{red} im FR, es ergibt sich somit:

$$\Delta X = X_{ox} - X_{red}$$ *Gleichung 2-24*

Die Träger-Kapazität *C* ist ein Kennwert, der angibt, wieviel Sauerstoff für eine gegebene Konversion (= 1 - Oxidationsgrad X) übertragen werden kann; m ist dabei die Masse des Sauerstoffträgers.

$$C = \frac{1}{m} \cdot \frac{dm}{dX}$$ *Gleichung 2-25*

$$C_{ox} = \frac{R_O}{1-(1-X_{ox}) \cdot R_O}$$ *Gleichung 2-26*

$$C_{red} = \frac{R_O}{1-(1-X_{red}) \cdot R_O}$$ *Gleichung 2-27*

Die erforderlichen Konversionsraten im AR und im FR sind daher:

$$r_{ox} = \left.\frac{dX}{dt}\right|_{ox} = \frac{\dot{m}_O}{C_{ox} \cdot m_{bett,ox}}$$ *Gleichung 2-28*

$$r_{red} = \left.\frac{dX}{dt}\right|_{red} = \frac{\dot{m}_O}{C_{red} \cdot m_{bett,red}}$$ *Gleichung 2-29*

$\dot{m}_O$ ist der zur Oxidation des Brennstoffs benötigte Sauerstoffmassenstrom.

$m_{bett,ox}, m_{bett,red}$ sind die Bettmassen im AR bzw. FR.

Der Bettmaterialumlauf vom AR in den FR ergibt sich zu:

$$\dot{M}_S = \frac{\dot{m}_O}{\Delta X \cdot C_{ox}}$$ *Gleichung 2-30*

Der Umlauf vom FR zurück in den AR ist wegen des im FR zur Oxidation benötigten Sauerstoffs geringer.

$$\dot{M}_{S,ret} = \dot{M}_S - \dot{m}_O \qquad \textit{Gleichung 2-31}$$

Die Reaktion des Brennstoffs, hier CH_4 zu CO_2, genannt Gasausbeute ist:

$$\gamma_{red} = \frac{x_{CO_2,ex}}{x_{CO_2,ex} + x_{CH_4,ex} + x_{CO,ex}} \qquad \textit{Gleichung 2-32}$$

Das Gasumlaufverhältnis R_r ist das Verhältnis der gesamten Abgasmenge nach der H_2O Entfernung zur Menge des erzeugten CO_2; γ_{red} kann daher auch geschrieben werden als:

$$\gamma_{red} = \frac{1}{R_r} \qquad \textit{Gleichung 2-33}$$

Unter den Annahmen dass:

- Die Gasverluste während des Umlaufs vernachlässigt werden; ausgenommen das abgetrennte CO_2.
- H_2, Kohlenwasserstoffe und nicht brennbare Gase im umlaufenden Gas im Vergleich zu CH_4 und CO ebenfalls vernachlässigt werden können,

gilt für die Gasausbeute im AR daher:

$$\gamma_{ox} = \frac{1}{\lambda} \qquad \textit{Gleichung 2-34}$$

In nachfolgender Abbildung sind die wichtigsten Beziehungen zwischen Trägereigenschaften und Anlagenkennwerten nochmals dargestellt.

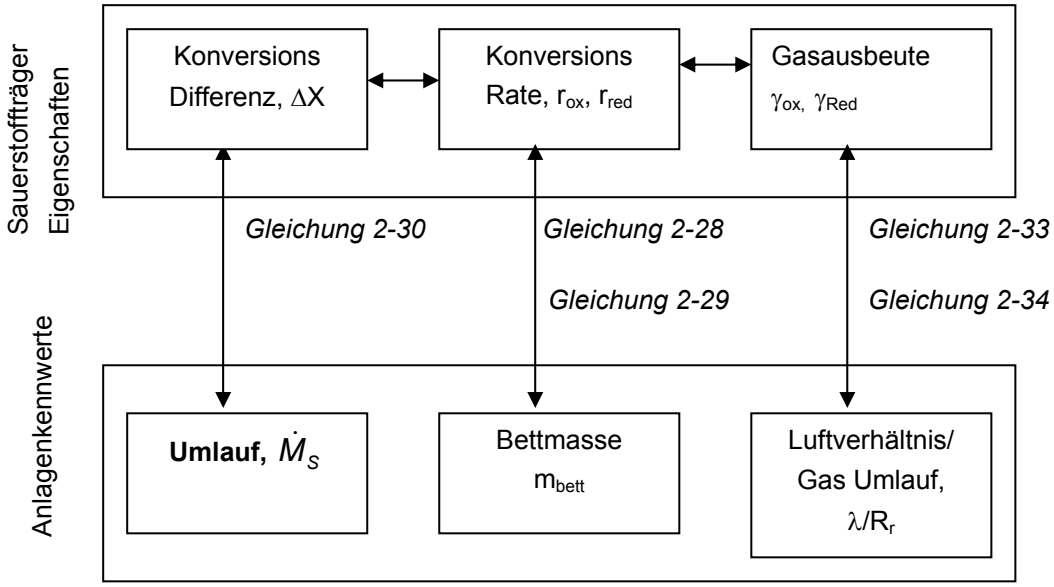


Abbildung 2-8: Beziehungen zw. Anlagendaten und Sauerstoffträger-Eigenschaften

2.4.3 Reaktordesign und Anforderungen

Grundlegend für die Funktionsfähigkeit eines CLC-Systems ist der Bettmaterialumlauf $\dot{M}_S$ Er ist, wie in Abbildung 2-8 zu sehen ist, mit der Konversionsdifferenz ΔX verknüpft, und somit entscheidend für den Brennstoffumsatz und damit die Anlagenleistung.
Die Ober- und Untergrenze für den Umlauf sollen daher in diesem Projekt in einem Kaltmodell bestimmt werden.

Aufgabe eines CLC-Prozesses ist es, CO_2 am FR Ausgang möglichst rein abzuscheiden und nicht mit Fluidisierungsluft aus dem AR zu verdünnen, da dadurch erhöhte Kosten zur Komprimierung anfallen. Außerdem sollten das CO_2 und das Brenngas die Anlage nicht über den Luftreaktor verlassen, weil so der Abscheide- und der Gesamtwirkungsgrad verringert werden.
Es gibt prinzipiell mehrere Möglichkeiten der Reaktorgestaltung. Aufgrund des für den Prozess notwendigen Gas-Feststoffkontakts und des Feststoffumlaufs ist ein zirkulierendes Wirbelschichtsystem am besten geeignet.
Da dieses System jedoch aus zwei verbundenen Wirbelschichten besteht, kann man Leckagen zwischen den Reaktoren nicht vermeiden. Eine Reduktion wird durch den Einbau von Siphonen erreicht, die eine Gasabdichtung bewerkstelligen sollen. Deren Funktionsweise und Effizienz sollen deshalb am Labormodell quantifiziert und bewertet werden.

Das Wirbelschichtsystem wird hier als extern zirkulierendes System ausgeführt: Die Abscheidung des aus der turbulent betriebenen Wirbelschicht ausgetragenen

Bettmaterials erfolgt mit Hilfe eines Zyklons, der dieses über einen Siphon in den Fuel-Reaktor zurückführt. Von hier gelangt das Bettmaterial durch die Schwerkraft wieder in einen Siphon und in den AR.
Als Bettmaterial werden Metalloxide verwendet, die gleichzeitig als Sauerstoffträger zwischen den Reaktoren dienen.
Der Gas-Volumenstrom im AR ist viel größer als jener im FR. Die treibende Kraft für den Feststoffumlauf ist die AR bzw. Riser Fluidisierung, die annähernd bzw. größer als die Partikelsinkgeschwindigkeit sein muss, damit die Partikel ausgetragen werden.

2.4.4 Sauerstoffträger

Metalloxide die zur Verwendung in einem CLC-System geeignet sein sollen, müssen genügend hohe Konversionsraten, d.h. Oxidations- und Reduktionsraten haben. Weiters müssen die Festigkeitskennwerte entsprechend hoch sein, um Partikelbruch und Abrieb möglichst zu vermeiden. Hierzu wird den Partikeln oft Al_2O_3, Yttriumoxid stabilisiertes Zirkonium (YSZ), TiO_2 oder MgO beigefügt.
Diese Kritierien können von einer Reihe von Metallen und ihren Oxiden erfüllt werden, wie z.B.: Fe, Ni, Co, Cu, Mn, und Cd.
Auf diesem Gebiet wurden ein Reihe von Untersuchungen durchgeführt. Detaillierte Informationen sind zu finden in: [Jin, Ishida; 2001]; [Jin et al; 1999]; [Ishida, Jin; 1997]; [Mattisson et al; 2001].

Grundtenor dieser Untersuchungen ist, dass Eisen und Kupfer billig sind, und gute Konversionsraten vorweisen. Nickel nach mehreren Oxidations- und Reduktionsschritten widerstandsfähiger gegen Abrieb ist und auch eine höhere Konversionsrate besitzt.
Eine Untersuchung über die Anwendung in einem CLC-System von [Lyngfelt et al; 2001] ergab, dass auf Fe basierende Sauerstoffträger dafür geeignet sind.

2.5 Scale up

Das im Rahmen dieser Arbeit getestete Kaltmodell dient als Grundlage zur Planung eines Prototyps im Labormaßstab. Um die Resultate aber übertragen zu können, ist es notwendig Gesetze der Maßstabsvergrößerung zu beachten.
Beim Scale up (oder Scale down) von Wirbelschichtreaktoren müssen die Fluiddynamik, der Wärme- und Stofftransport und die chemischen Reaktionen berücksichtigt werden. Dies soll so erfolgen, dass der Prozess und das Verhalten der Anlage im Wesentlichen nicht verändert werden. Dafür müssen geeignete

Beziehungen gefunden werden, um Ergebnisse von kleinen Modellen auf größere und umgekehrt zu übertragen, z.B. von einem Labormodell auf eine Pilotanlage.

Glicksmann [Glicksmann; 1984] hat einen Satz von Gleichungen angegeben die beim Scaling konstant gehalten werden müssen um fluiddynamische Ähnlichkeit zu erzielen (siehe Tabelle 2-2). Ist die Reynolds-Zahl kleiner 4 so kann eine vereinfachte Berechnung verwendet werden.

Nr.	Dimensionslose Kennzahl	Gleichung	
1	Partikel Reynolds Zahl (Re)	$\frac{\rho_P \cdot d_P \cdot U}{\mu_g}$	[-]
2	Partikel Froude Zahl (Fr)	$\frac{U^2}{g \cdot d_P}$	[-]
3	Durchmesser/Längen Verhältnis	$\frac{d_P}{L}$	[-]
4	Dichte Verhältnis	$\frac{\rho_P}{\rho_g}$	[-]
5	Geometrische Ähnlichkeit	$\frac{D}{L}$	[-]
6	Partikel Größenverteilung	-	[-]
7	Partikel Sphärizität	Φ	[-]

Tabelle 2-2: Scaling-Parameter nach Glicksmann

Das bei dieser Arbeit verwendete Labormodell wurde gemäß den Parametern von Glicksmann auf Grundlage der AR Daten einer Heißanlage auf Raumtemperatur umgerechnet. Dies war jedoch nicht Teil dieser Arbeit. Die sich daraus ergebenden Abmessungen und anlagenspezifischen Parameter des Labormodells sind dem nachfolgenden Kapitel zu entnehmen.

3 Aufbau des Labormodells

In diesem Kapitel werden das Design der Anlage, die Messwerterfassung und Anlagensteuerung mit LabVIEW™ und das Anlagenschema mit dem He / N_2 Kreislauf erklärt. Weiters werden anlagen- und bettmaterialspezifische Daten wie z.B. Bodendruckverluste und charakteristische Geschwindigkeiten angegeben. Es soll auch auf Probleme bei der Inbetriebnahme, wie Kalibrierung und Elektrostatik hingewiesen werden.

3.1 Design Labormodell

In nachfolgender Abbildung ist das Plexiglas-Labormodell, das auch als Kaltmodell bezeichnet werden kann, da es bei Raumtemperatur betrieben wird, zu sehen. An diesem wurden alle in dieser Arbeit dargestellten Messungen durchgeführt. FR, AR und die beiden Siphone wurden mit den Scaling-Parametern nach Glicksmann berechnet. Der Zyklon ist nach Barth-Muschelknautz [Stieß; 1994] und Daten von Hugi [Hugi; 1997] für einen Trennkorndurchmesser $d_{t,\,50}$ = 10µm ausgelegt.

Das Modell ist im Prinzip so aufgebaut wie das in Kapitel 2.4.3 beschriebene, statt Metalloxiden werden hier jedoch Mikrostrahlperlen aus Glas verwendet. Ein Foto mit einer Einzelteilbezeichung ist in Abbildung 3-1 ersichtlich. Die am Riser und AR erkennbaren Kreise stellen vorhandene Anschlüsse zur Druckmessung dar.

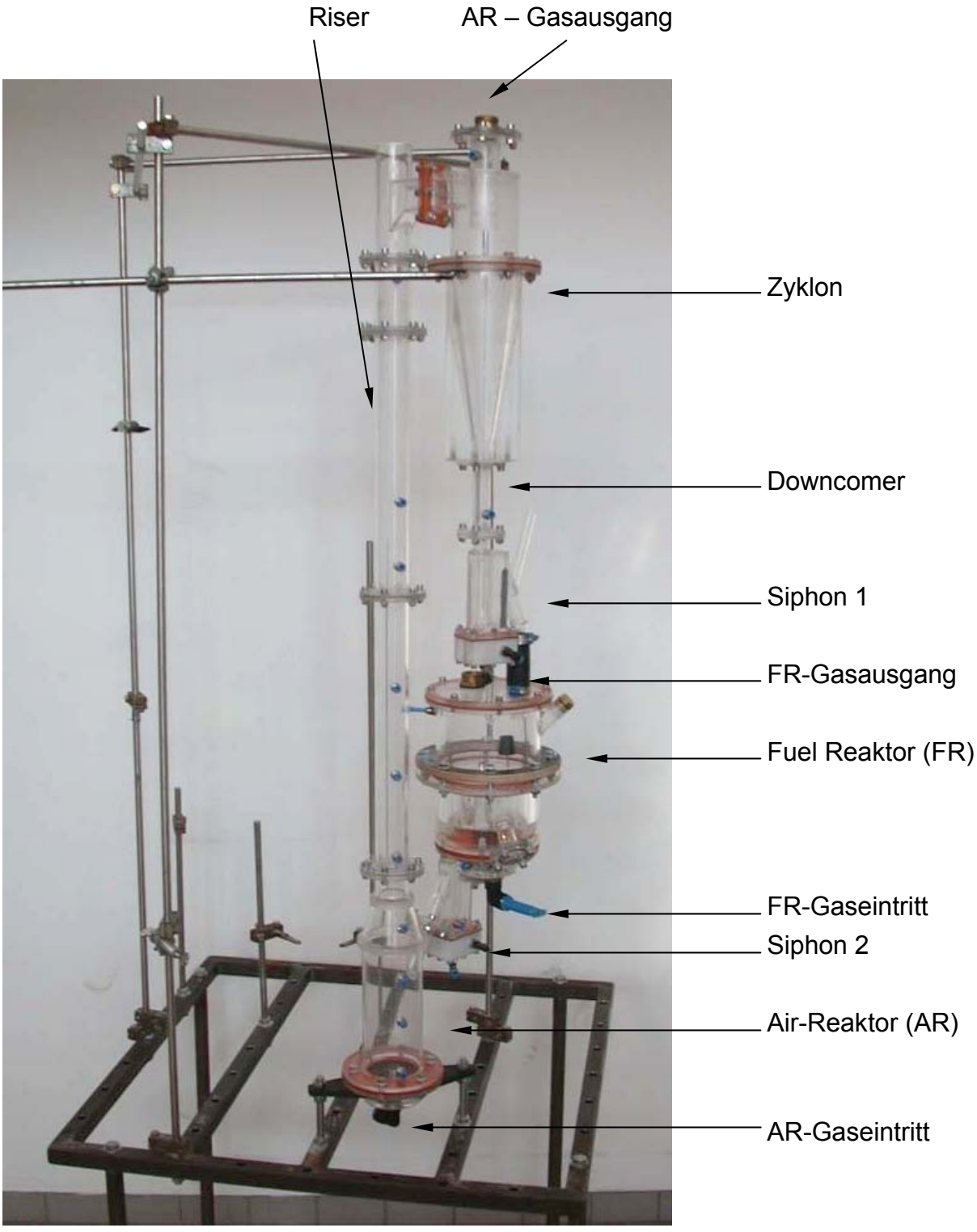


Abbildung 3-1: Foto des Labormodells (FR und Riserausgang umgebaut)

Das Standard-Labormodell - Konfiguration A - (vgl. Abbildung 3-2) wird mit einem Zyklon als Partikelabscheider ausgeführt. Die Einströmung aus dem Riser erfolgt über einen 90° Bogen und ein Einströmrohr, mit Rechteckquerschnitt am Zyklon.

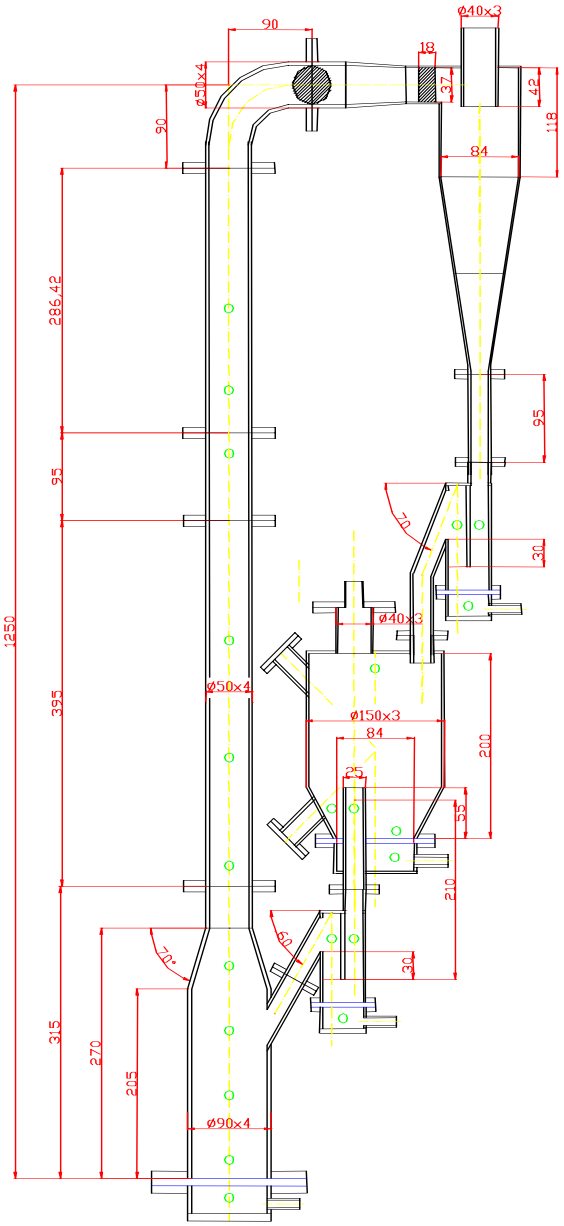


Abbildung 3-2: Design Standard Labormodell; Bilder: oben-Zyklon; unten-AR

Bei Konfiguration B (vgl. Abbildung 3-3) wird anstatt des Zyklons ein Schwerkraftabscheider verwendet. Dazu müssen der Zyklon samt Einströmrohr, ein Teil des Risers und der Zyklondowncomer entfernt und stattdessen der Schwerkraftabscheider aufgesetzt werden.

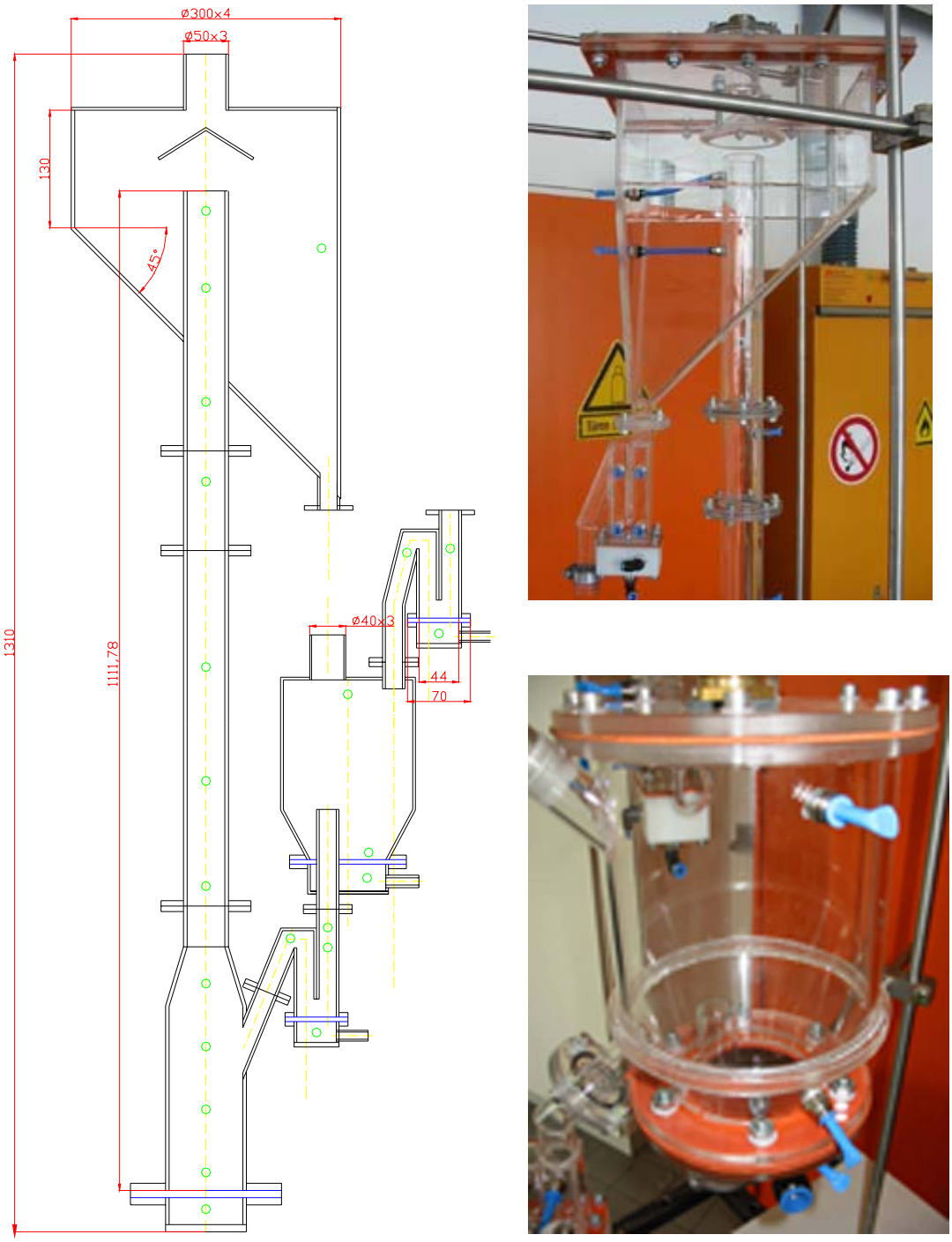


Abbildung 3-3: Design mit Schwerkraftabscheider; Bilder: oben-Abscheider; unten-FR

Nachfolgende Tabelle zeigt nochmals die verschiedenen Anlagenvariationen. Konfiguration A und B wurden bereits oben beschrieben. Bei Konfiguration AS werden das 95mm Riserzwischenstück und der Zyklondowncomer entnommen.

Konfiguration A (Standard Konfiguration)	Zyklon mit Verlängerung
Konfiguration B	Schwerkraftabscheider mit Verlängerung
Konfiguration AS	Konfiguration A ohne Verlängerung

Tabelle 3-1: Anlagenkonfigurationen

3.2 Messwerterfassung und Anlagensteuerung

Die Anlagensteuerung und Messwerterfassung erfolgt über einen Messrechner. Die Einstellung der Volumenströme erfolgt über Mass-Flow-Controller (MFC), die einen vorgegebenen Sollwert konstant halten. Gleichzeitig liefern sie die Werte der *Ist Volumenströme* zurück.
Die *Drücke*, mittels Druckmessdosen (DMD) gemessen, werden ebenfalls eingelesen und es können sowohl deren Zahlenwerte, als auch Druckprofile verschiedener Anlagenteile graphisch dargestellt werden.

3.2.1 FieldPoint ™ System

Zur Erfassung der Messsignale der Druck- und Volumenstromsensoren und zur Umwandlung in für PC-mäßige Verarbeitung geeignete Formate wird ein externes Feldbussystem verwendet. Dieses zeichnet sich v.a. durch den komponentenbasierenden Aufbau und die Kompatibilität mit der verwendeten Messsoftware (LabVIEW™ bzw. FieldPoint Explorer) aus.

3.2.1.1 Komponenten

Das verwendete *FieldPoint™* System von *National Instruments®* besteht aus folgenden Komponenten:

- *4 FP-TB-1 Terminal Bases*
- *3 FP-AI-100 Analog Input Modules;*
- *1 FP-AO-210 Analog Output Modules*
- *1 FP-1000 Network Module*
- *1 FP –PS-4 Field Point Power Supply*

Eine genaue Beschreibung der einzelnen Komponenten ist Kapitel 9.1 zu entnehmen.

3.2.1.2 FieldPoint Explorer

Der FieldPoint Explorer ist die Schnittstelle zwischen den FieldPoint™-Komponenten und LabVIEW™ und stellt die Kommunikation zwischen ihnen her. Es werden alle verwendeten Module angezeigt und editiert. (siehe Abbildung 3-4)

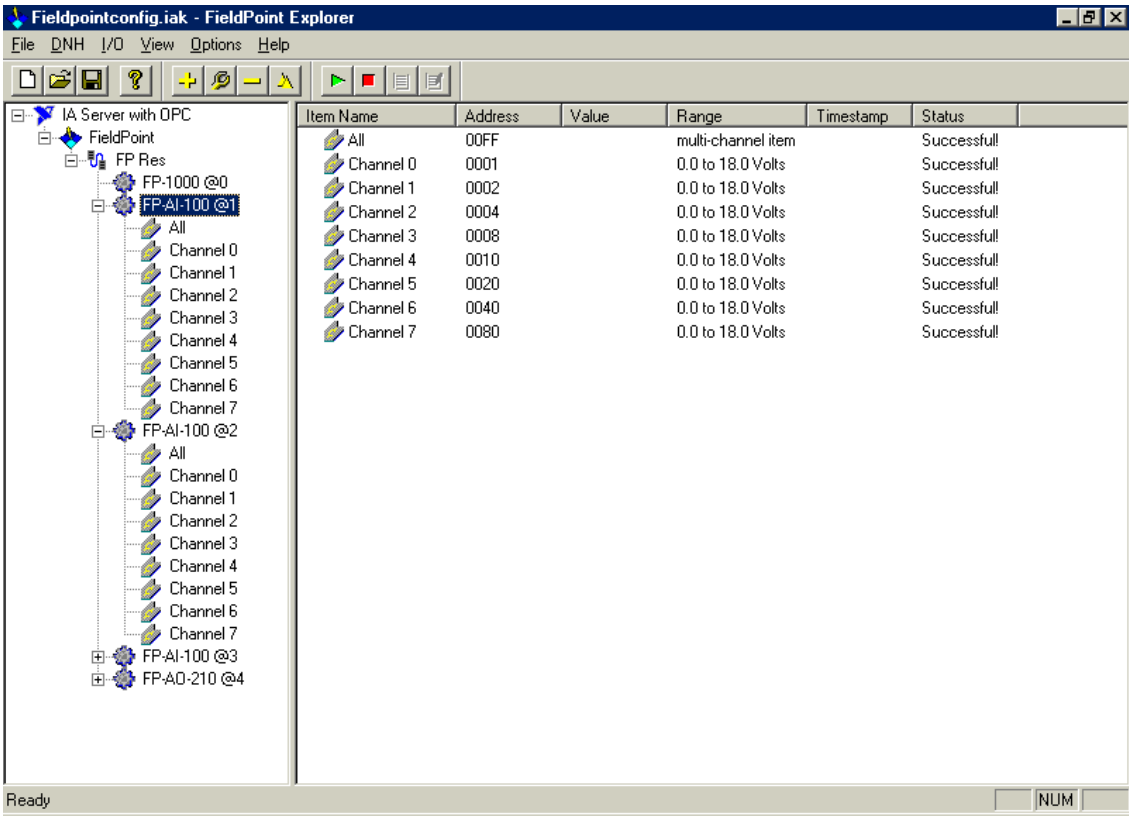


Abbildung 3-4: FieldPoint Explorer Fenster

Weiters wird die FieldPoint –Hardware (wie z.B.: Module) konfiguriert. Es werden der Typ des Eingangssignals (Strom/Spannung) und der Bereich der Sensorsignale festgelegt. Im FieldPoint Explorer kann auch auf jeden einzelnen Kanal jedes Moduls geschrieben, oder vom ihm gelesen werden.

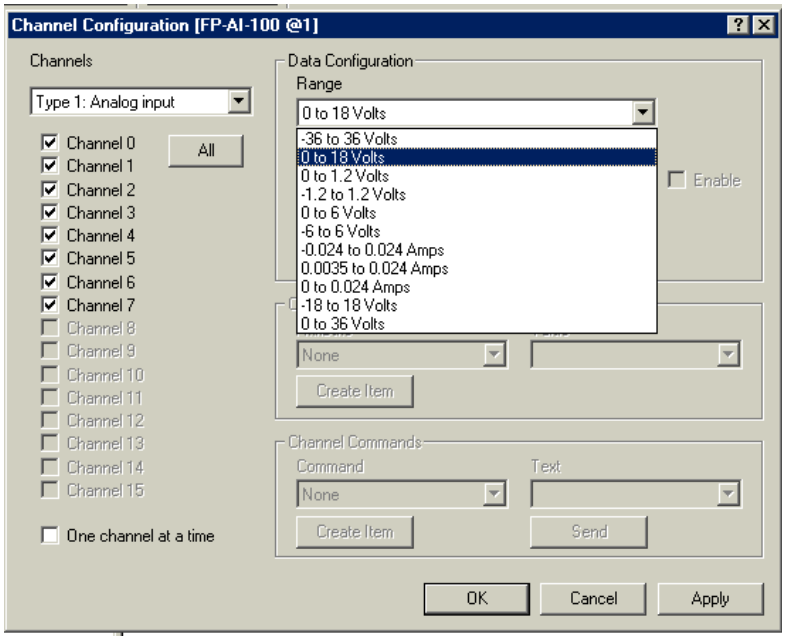


Abbildung 3-5: Kanal konfigurations Dialog Box

3.2.2 Messsensorik

3.2.2.1 Druckmessdosen

Zur Bestimmung des fluiddynamischen Zustandes der Anlage wird an mehreren Positionen der Druck bestimmt. Die verwendeten Druckmessdosen (DMD) liefern bei einer Versorgungsspannung von 0-16 Volt eine druckproportionale Ausgangsspannung mit einer Auflösung von 12 bit, die umso größer ist, je größer die Versorgungsspannung ist.
Es werden in Summe 19 Differenzdruckmessdosen der Firma *Honeywell*, Type Microswitch verwendet, die an die Eingangsmodule FP-AI-100 angeschlossen sind. Näheres dazu siehe Kapitel 9.2.1.

Type	Anzahl	Druckbereich [psi]	Druckbereich [Pa]
164PC01D37	6	0-0,36	0-2500
142PC01D	11	0-1	0-7000
142PC02D	1	0-2	0-14000
142PC05D	1	0-5	0-35000

Tabelle 3-2: Verwendete Druckmessdosen

3.2.2.2 Mass Flow Controller (MFC)

Die MFC's zur Einstellung der Fluidisierungsgasmenge müssen mit + 15 VDC und – 15 VDC versorgt werden. Der Setpoint (Eingangssollwert) muss zwischen 0 und + 5 VDC vorgegeben werden. Als Durchfluss Ausgangssignal wird ebenfalls eine Spannung von 0 bis + 5 VDC geliefert. Es werden fünf MFC's der Firma *MKS Instruments* verwendet

Type	Anzahl	Volumenstrombereich [l/min]
1179	1	0-200
1179	1	0-20
1179	1	0-5
2179	2	0-5

Tabelle 3-3: Auflistung der verwendeten Mass Flow Controller

PIN-Belegung der MFC und das Anschlussschema sind Kapitel 9.2.2 zu entnehmen.

3.2.2.3 Kalibrierung

Die FieldPoint Module lesen Spannungen ein, beziehungsweise geben sie aus und übergeben bzw. übernehmen nur dimensionslose Zahlen an bzw. von LabVIEW. Dieses unterscheidet daher nicht zwischen Strom und Spannung und liest keine Spannung ein bzw. gibt sie aus, sondern nur den Zahlenwert. Dies ist in den folgenden Ausführungen zu berücksichtigen.

DMD

Die DMD werden mit +15 VDC versorgt, und liefern bei Umgebungsdruck eine Ausgangsspannung, genannt *Offset*. Wird der Druck erhöht, steigt die Spannung proportional an.

Die Kalibrierfunktion des *kalibrierten Ist-Druckes* lautet mit x_p als DMD-Ausgangsspannung- zugleich Eingangsspannung für LabVIEW:

$$p_{kal} = K \cdot (x_p[V] - Offset[V]) \qquad \textit{Gleichung 3-1}$$

Zur Berechnung der Konstanten K wird mit Hilfe eines U-Rohr Manometers ein geringfügig kleinerer Druck p_U des DMD-Endwertes eingestellt. Die dazugehörige DMD-Ausgangsspannung DMD_u_{ex} wird abgelesen und der Offset davon subtrahiert.

$$K = \frac{p_U[Pa]}{DMD_u_{ex}[V] - Offset[V]} \qquad \textit{Gleichung 3-2}$$

Die DMD haben einen sehr starken Drift, d.h. ihr Offset verändert sich mit der Zeit Sie müssen daher in gewissen Zeitabständen neu kalibriert werden.

MFC

Bei den MFC müssen der Soll- (Vorgabewert) und der Istwert kalibriert werden. Für die Kalibrierfunktion der MFC Eingangsspannung, die als Zahl von LabVIEW an FieldPoint übergeben wird, ergibt sich mit x_V als Vorgabewert für den Volumenstrom:

$$u_{ein} = x_V[dm^3/\min] \cdot \frac{5[V]}{200[dm^3/\min]} \qquad \textit{Gleichung 3-3}$$

Für die Kalibrierfunktion des *kalibrierten Ist Volumenstromes* ergibt sich mit x_U als MFC Ausgangsspannung:

$$\dot{V}_{Kal} = x_U[V] \cdot \frac{200[dm^3/\min]}{5[V]} \qquad \textit{Gleichung 3-4}$$

Diese Gleichungen sind im Unterprogramm *MFC Kalib.* angeführt. Der Faktor für den Volumenstrom entspricht jedoch nicht dem Endwert der MFC (200, 20 und 5 l/min) sondern hat eine geringe Abweichung, die im Wesentlichen in der Umrechung von Norm- (273K) auf Betriebskubikmeter (298K) begründet ist. Diese wird durch Überprüfung des Ist-Volumenstromes mit einem Gasbalgenzähler bestimmt, und durch Annahme einer linearen Kalibrierkurve entsprechend korrigiert.
Für MFC1 ergibt sich dann z.B.:

$$u_{ein} = x_V[dm^3/\min] \cdot \frac{5[V]}{221{,}16[dm^3/\min]} \qquad \textit{Gleichung 3-5}$$

Für die 5l/min MFC wird der Volumenstrom außerdem mit einem Bubblemeter überprüft, da diese mit Volumenströmen zwischen 0-1 l/min arbeiten, und die Gasbalgenzähler für derart kleine Volumenströme sehr ungenau messen.

Da die Kalibrierfunktion von MFC1 (200l/min) nicht exakt linear ist, wird sie mit einem Polynom angenähert.
Für die MFC1 Eingangsspannung lautet dieses:

$$y = -0{,}0005 \cdot x^2 + 1{,}0541 \cdot x \qquad \textit{Gleichung 3-6}$$

Die nächste Abbildung zeigt eine Kalibrierkurve für MFC 1, die allerdings nach schon mehrfach erfolgter vorheriger Kalibrierung aufgenommen wurde. Sie soll darstellen wie genau die Anpassung mit dem Polynom an den Realwert möglich ist.
Die max. Abweichung nach Erweiterung mit dem Polynom liegt bei -0,92%. Der oben angeführte Drift ist auch bei den anderen MFC's zu beobachten, bewegt sich aber innerhalb von ca. +- 2%. Die Kalibrierung muss deshalb in regelmäßigen Zeitabständen überprüft werden.

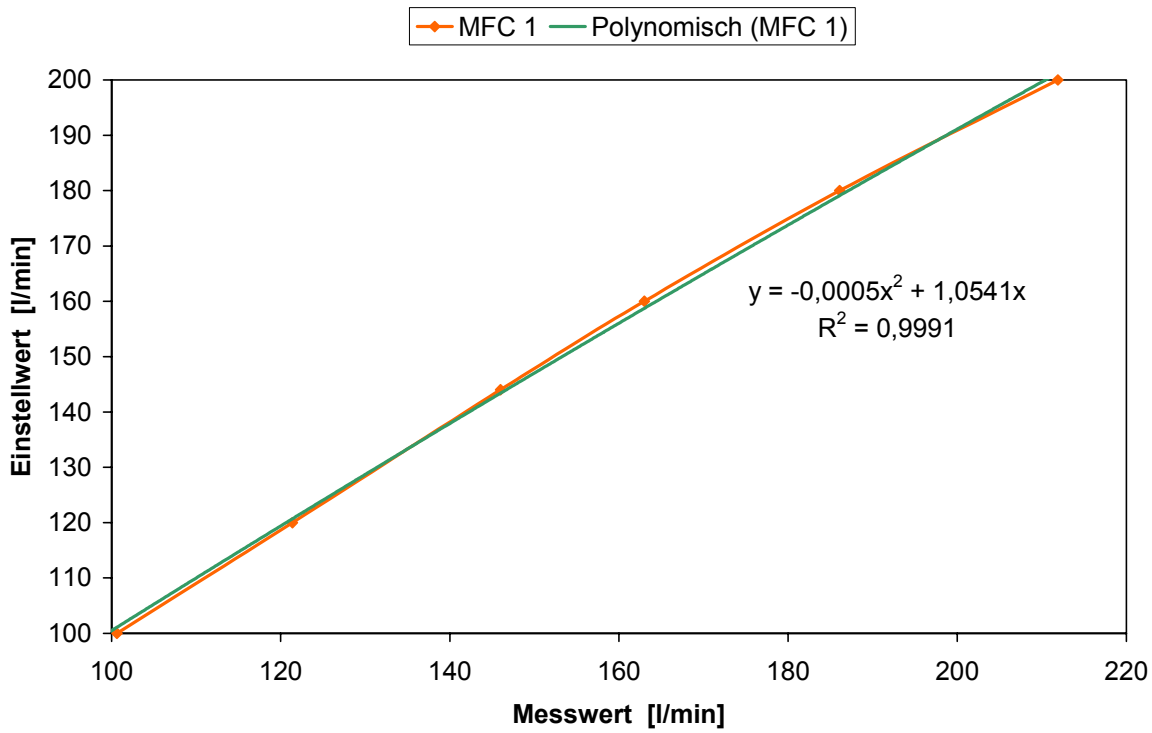


Abbildung 3-6: Kalibrierkurve MFC 1

Ebenso wie der Soll-Volumenstrom muss der eingelesene Ist-Volumenstrom mit einem Polynom angepasst werden:

Bei Verwendung von Gasen, die vom Kalibriergas abweichen, muss ein Korrekturfaktor eingeführt werden. Für He wird der Korrekturfaktor ebenfalls mittels Volumenstrommessungen mit den Gasbalgenzählern bzw. Bubblemeter bestimmt.

3.2.3 LabVIEW™- Programm

LabVIEW™ stellt die Software zur Kommunikation mit der Hardware d.h. dem FieldPoint System dar. Damit werden die Sollwerte vorgegeben, und die Istwerte zur Anzeige gebracht.
LabVIEW™ von *National Instruments®* ist eine graphische Programmiersprache, die Icons zur Programmerstellung verwendet. Im Gegensatz zu textbasierten Programmiersprachen wird der Ablauf des Programms durch den Fluss von Daten bestimmt. Hier wird mit einem Satz von Werkzeugen ein user interface - auch *front panel* genannt - erstellt, auf dem alle Anzeige- und Steuerelemente sichtbar sind. Man könnte es auch als „elektronisches Schaltpult“ bezeichnen.
Parallel zum front panel erstellt LabVIEW ein *Blockdiagramm*, in dem alle Elemente des Frontpanels als Symbole dargestellt werden. Diese und die entsprechenden

Operationen (z.B. Schleifen) müssen verbunden werden. Es ist im Aufbau einem Fließbild ähnlich.

3.2.3.1 Front panel des Hauptprogramms

Programmstart

Nachdem das Programm geladen ist, muss es mit dem *Run button* (links in der Menüleiste) aktiviert werden. Es erscheint eine Dialogbox zur Eingabe des Pfades und des Namens der Datei, in der die Messdaten gespeichert werden sollen. Die Kommunikation mit FieldPoint ist damit aktiv, d.h. es werden Daten eingelesen und ausgegeben.

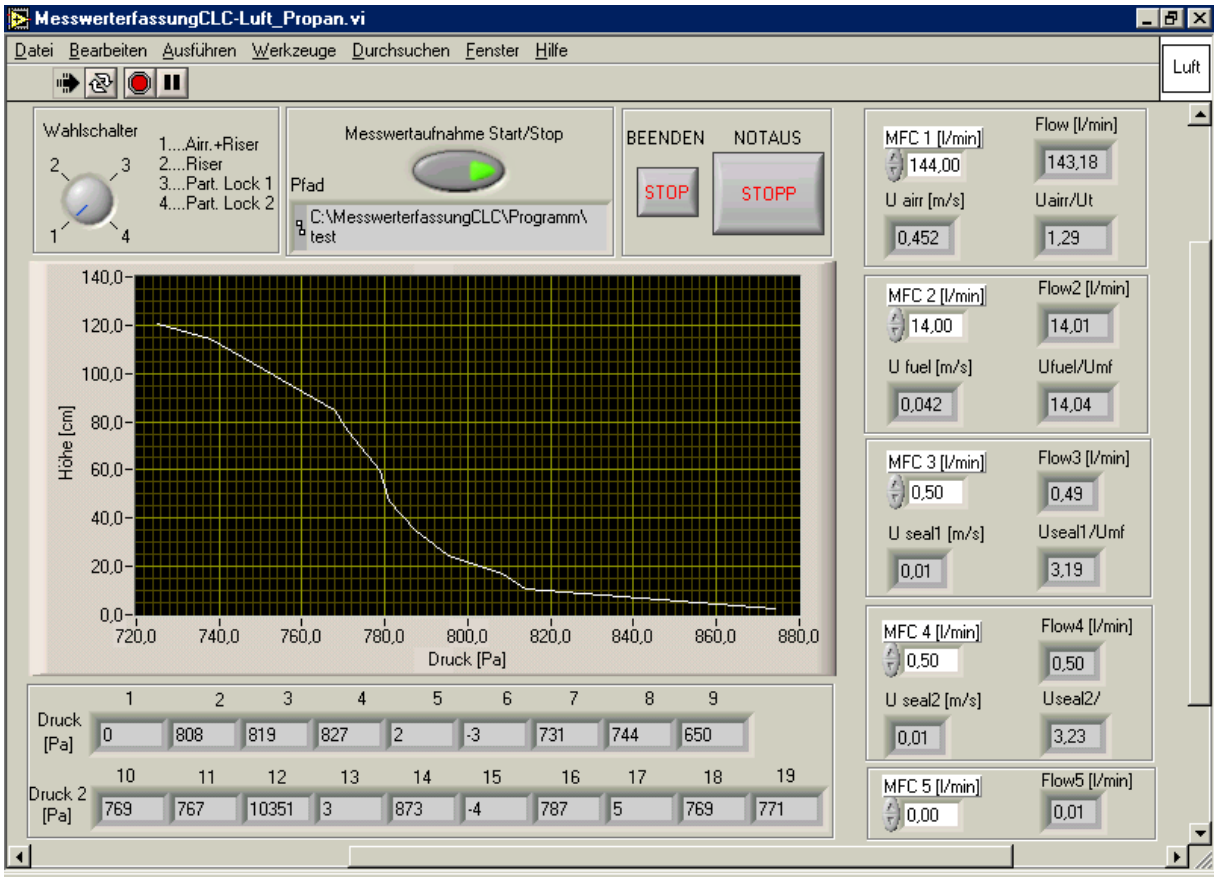


Abbildung 3-7: Bedienfenster Hauptprogramm (front panel)

Programmbenutzung

An den MFC Bedienelementen kann der Soll-Volumenstrom jedes MFC eingestellt werden. Der tatsächliche Volumenstrom und die Leerrohrgeschwindigkeit werden angezeigt.

Durch Drücken des *NOTAUS* Schalters können alle Volumenströme Null gesetzt werden, womit die Fluidisierung ausgeschaltet ist. Nochmaliges Drücken setzt wieder auf die eingestellten Werte zurück. Leuchtet der *Messwertaufnahme Start/Stop* Schalter grün, dann werden die Messdaten in die zu Beginn angegebene Datei geschrieben, deren Name und Pfad unter dem Schalter angeführt sind.

Mit dem Drehknopf kann zwischen mehreren verschiedenen Grafiken gewählt werden. D.h. die Drücke werden nicht nur als Absolutwerte (Überdruck zu Atmosphäre) im unteren Bildschirmbereich sondern auch grafisch als Profile verschiedener Anlagenelemente angezeigt. *BEENDEN* bricht die Programmausführung ab.

3.2.3.2 Block Diagramm Hauptprogramm

Das zum vorher beschriebenen front panel gehörende Block-Diagramm ist in der nächsten Abbildung zu sehen.

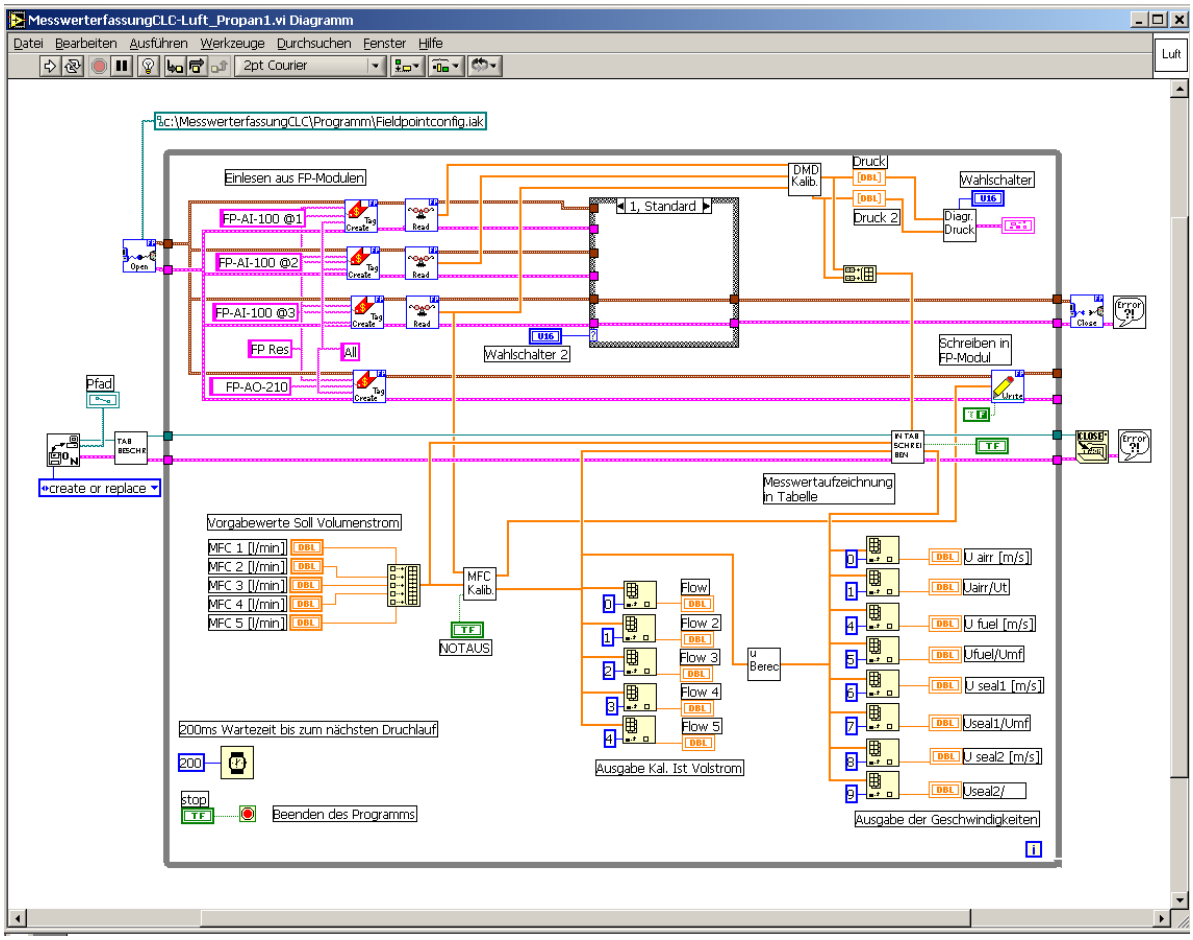


Abbildung 3-8: Block Diagramm Hauptprogramm

Das Icon *Open* am linken oberen Bildrand öffnet die FieldPoint Konfigurationsdatei, während die sich darunter befindlichen Dialogfenster öffnen, in welchem Name und Pfad der Messwertdatei angegeben werden. *TAB BESCHR* beschriftet die Spalten der Tabelle. Das Programm wird nun in einer While-Schleife (grauer Rahmen) mit einer Wartezeit von 200 ms (links unten) durchlaufen. Der Datenfluss im Programm erfolgt von links nach rechts, also von Datenquellen z.B.: Einlesewerte von FieldPoint und MFC-Vorgabewerten zu den Datensenken wie z.B.: das FieldPoint Ausgabemodul und die Anzeigeelemente. Gibt der *BEENDEN* Schalter *True* aus, dann ist die Abbruchbedingung erfüllt, und die While-Schleife wird beendet. Die Daten ‚fließen' dann rechts aus der While Schleife zu den *Close* Icons, welche die Kommunikation mit FieldPoint beenden und die Messwertdatei schließen.

Wichtigte Icons

- *Open* Öffnet die FieldPoint Konfigurationsdatei
- *Create Tag:* Befähigt das adressierte FieldPoint Modul zur Kommunikation
- *Read* Liest Daten aus dem FieldPoint Eingabemodul ein
- *Write* Schreibt Daten in das FieldPoint Ausgabemodul
- *Close* Schließt die FieldPoint Konfigurationsdatei

Eine Auflistung und Erklärung der Unterprogramme ist Kapitel 9.3 zu entnehmen.

3.3 Anlagenschema He / N_2 –Kreislauf

Für das Kaltmodell soll ein Bettmaterial mit einer Dichte von ρ=2550 kg/m³ verwendet werden. Um das Dichteverhältnis (siehe Scaling Parameter 4, Tabelle 2-2) im Vergleich zum Heißmodell konstant zu halten, muss als Fluidisierungsgas eine Mischung aus He / N_2 verwendet werden. Dieses muss jedoch aus Kostengründen im Kreislauf geführt werden. Das Anschlussschema ist in Abbildung 3-9 zu sehen.

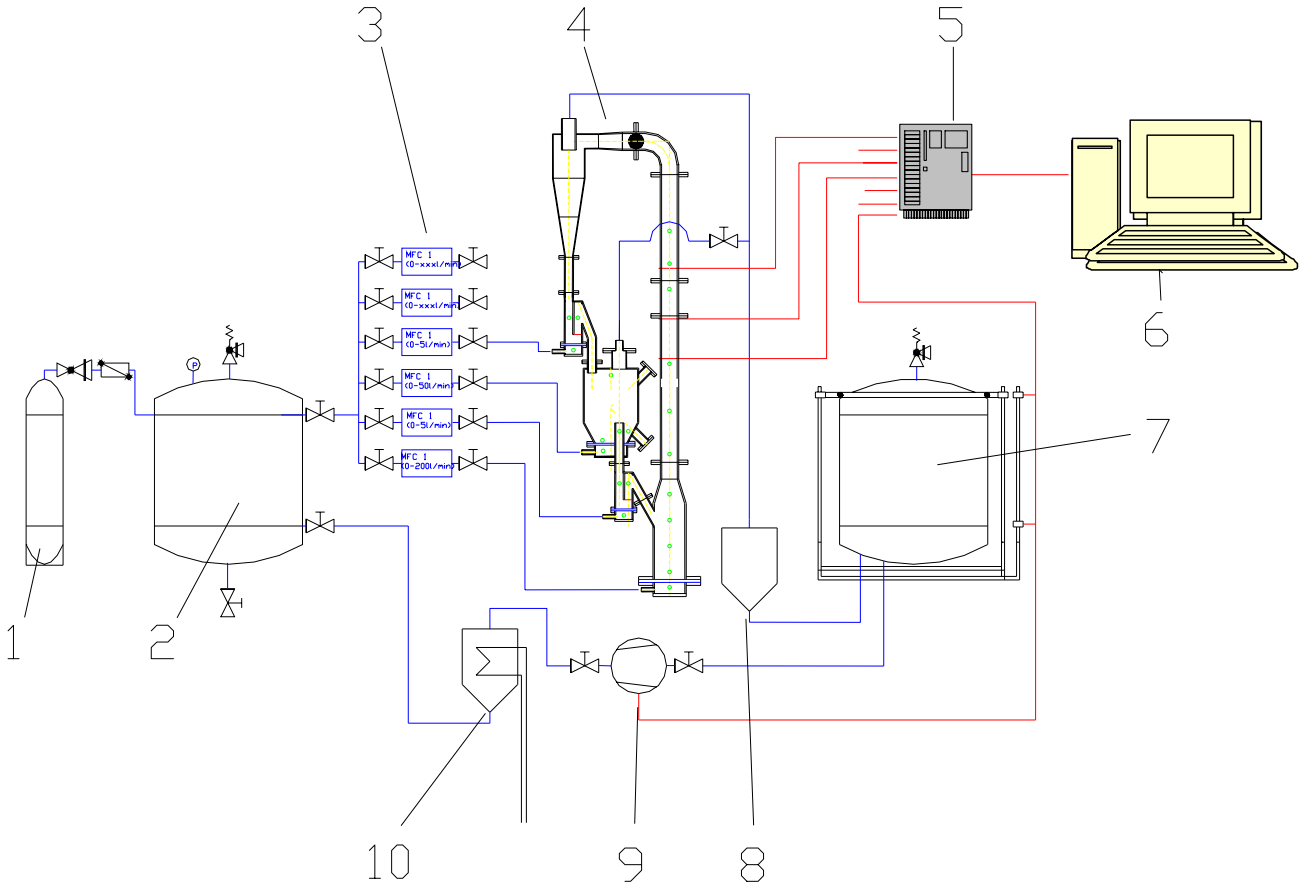


Abbildung 3-9: Anschlussschema des Kaltmodells

Komponenten:

1 *Gasflasche* mit 87% He, 13% N_2; 50 Liter – 160 bar;

2 *Druckbehälter:* 270 Liter; Betriebsdruck 1 –3 bar; max. zul. Druck: 12 bar;

3 *Massflow-Controller (MFC)*; MKS Instruments (siehe Tabelle 3-3)

Die MFC und die Windboxen der einzelnen Wirbelschichten sind mit Steckverbindungen der Firma *FESTO* ausgeführt. Somit können die MFC beliebig verwendet werden.

4 *Labormodell aus Plexiglas:* (siehe Abbildung 3-2 und Abbildung 3-3)

5 *FieldPoint-Module*

6 *Messcomputer:* Über eine serielle RS-232 Schnittstelle mit dem FieldPoint System verbunden.
7 *Gassammelsack:* 500 Liter; Umgebungsdruck; montiert in einer speziellen Vorrichtung mit höhenverstellbaren Endschaltern, die den Kompressor schalten.
8 *Partikelfilter:* Schlauchfilter
9 *Kompressor:* Drehschieberverdichter
10 *Gas/Wasser Kühler:* Kühlleistung ca. 1 kW

Vor Inbetriebnahme muss das gesamte System gespült und der Gassammelsack (7*)* mit der Gasflasche (*1)* gefüllt werden. Sie dient auch zum Ausgleich von Gasverlusten.
Aus dem Druckbehälter (*2)* strömt das Gas über die Massflow-Controller *(3),* die den gewünschten Volumenstrom regeln dem AR, dem FR, und den beiden Siphonen zu. Es verlässt die Anlage wieder über einen Gas Austritt am Zyklon und am FR, wird im Partikelfilter *(8)* von Feinanteilen getrennt, und in einen Gassammelsack geleitet. Dieser ermöglicht es das System annähernd bei Umgebungsdruck zu betreiben (durch das Gewicht eines auf dem Gassack liegenden Führungsringes entsteht ein minimaler Überdruck, während der Kompressor am Ansaugstutzen einen leichten Unterdruck erzeugt). Ein Kompressor *(9)* pumpt das Gas, das vorher noch in einem Kühler *(10)* gekühlt wird wieder in den Druckbehälter *(2)*.
Es besteht auch die Möglichkeit, die Anlage mit Luft zu betreiben. Dazu muss die Zuleitung zu den MFC's *(3)* mit einem Staubabscheider an das Druckluftnetz angeschlossen, und der vom Partikelfilter *(8)* kommende Schlauch am Gassammelsack *(7)* abgeschlossen werden. Die Fluidisierungsluft strömt damit durch die Anlage an die Umgebung.

3.4 Bodendruckverlust

Als Gasverteilerböden für AR und FR werden Lochböden verwendet. Die Auslegung, um eine gleichmäßige Gasverteilung zu gewährleisten, erfolgte gemäß [Hofbauer; 1996]. Die Siphone sind mit Glasfritten ausgestattet.

		AR	**FR**	**Siphon 1&2**
Lochanzahl	[-]	37	24	Glasfritte
Durchmesser (mittlerer Porendurchmesser bei den Siphonen)	[mm]	0.8	0.35	0.016-0.04
Dicke	[mm]	3	3	6

Tabelle 3-4: Charakterisierung der Gasverteilerböden

In der nächsten Abbildung ist der Druckverlust des AR-Lochbodens zu sehen. Für die Glasfritten ist dieser Verlauf linear. u_{AR} ist die AR-Leerrohrgeschwindigkeit, die aus dem Volumenstrom und dem Querschnitt berechnet wird.

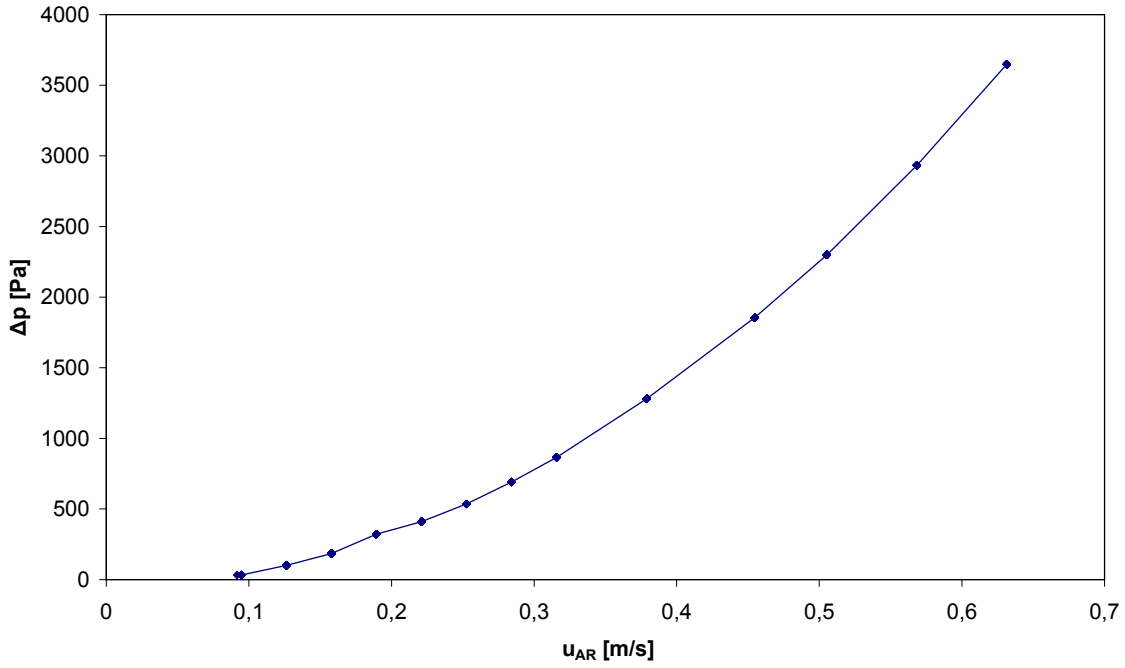


Abbildung 3-10: Druckverlust des AR-Lochbodens versus AR Fluidisierungsgeschwindigkeit

Der Druckverlust des FR-Lochbodens ist aufgrund der geringeren Lochanzahl und des kleineren Lochdurchmesser entsprechend höher. u_{FR} ist die FR-Leerohrgeschwindigkeit.

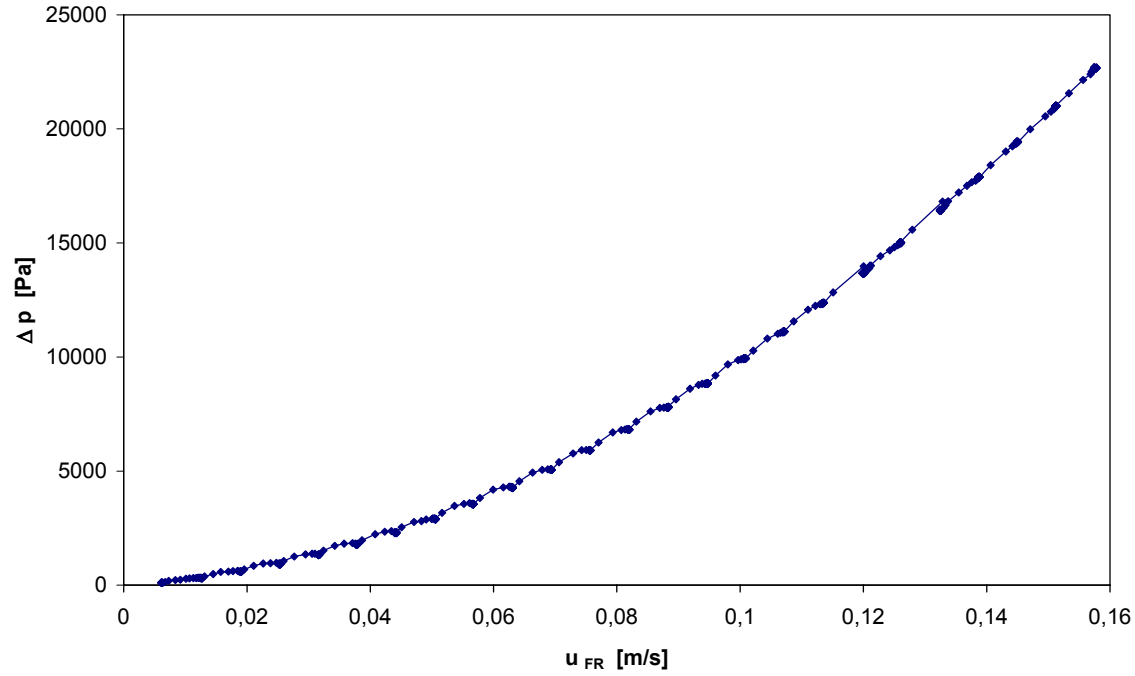


Abbildung 3-11: Druckverlust des FR-Lochbodens versus FR Fluidisierungsgeschwindigkeit

3.5 Charakterisierung des Bettmaterials

Als Bettmaterial werden Mikrostrahlperlen aus Glas verwendet. Dessen Eigenschaften sind in folgender Tabelle zu sehen.

Mittlerer Partikeldurchmesser	d_p	67,5	µm
Partikelgrößenverteilung	Abbildung 3-12	30-80	µm
Partikeldichte	ρ_p	2550	kg/m³
Schüttdichte			
Lockere Schüttung	ρ_b	1550	kg/m³
Komprimierte Schüttung		1450	
Spherizität	ϕ	1	-

Tabelle 3-5: Bettmaterial Eigenschaften

3.5.1 Partikelgrößenverteilung

Sie wird mittels Sieb- und Sedimentationsanalyse bestimmt, und sollte möglichst dem Originalmaterial in der sogenannten Heißanlage ähnlich sein. Aus der Größenverteilung kann auch gleichzeitig der mittlere Partikeldurchmesser zu 67,5 µm bestimmt werden.

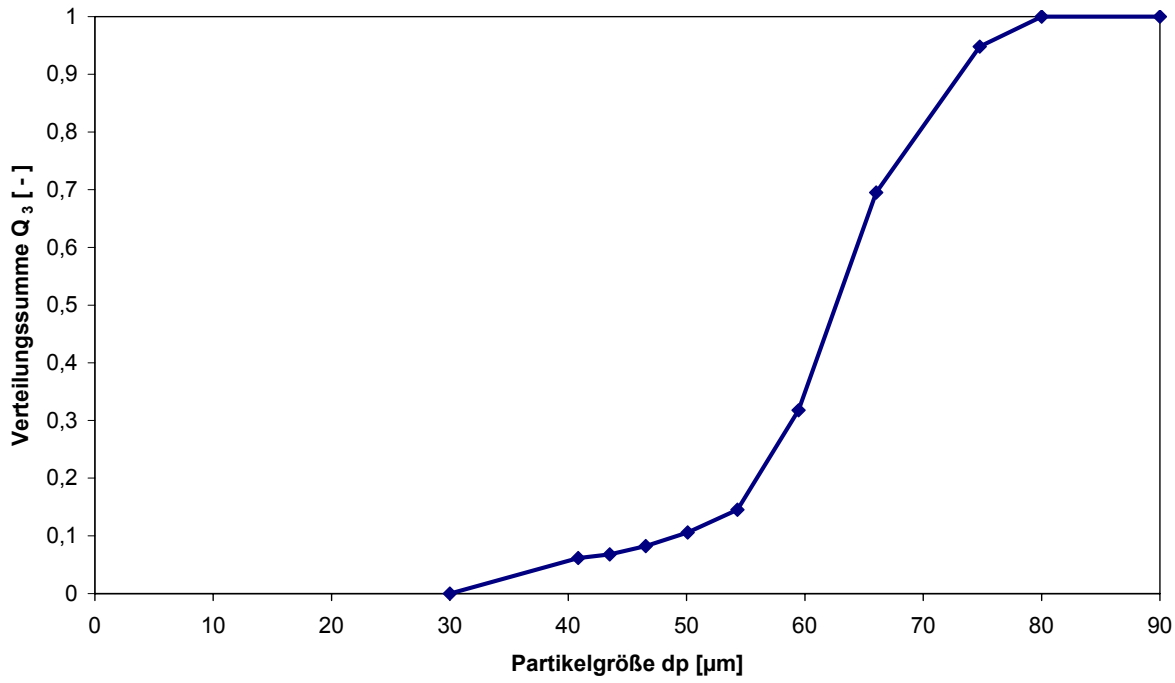


Abbildung 3-12: Partikelgrößenverteilung Bettmaterial

3.5.2 Klassifizierung nach Geldart

Das verwendete Bettmaterial fällt gemäß Geldart [Grace, 1986] in die Gruppe B.

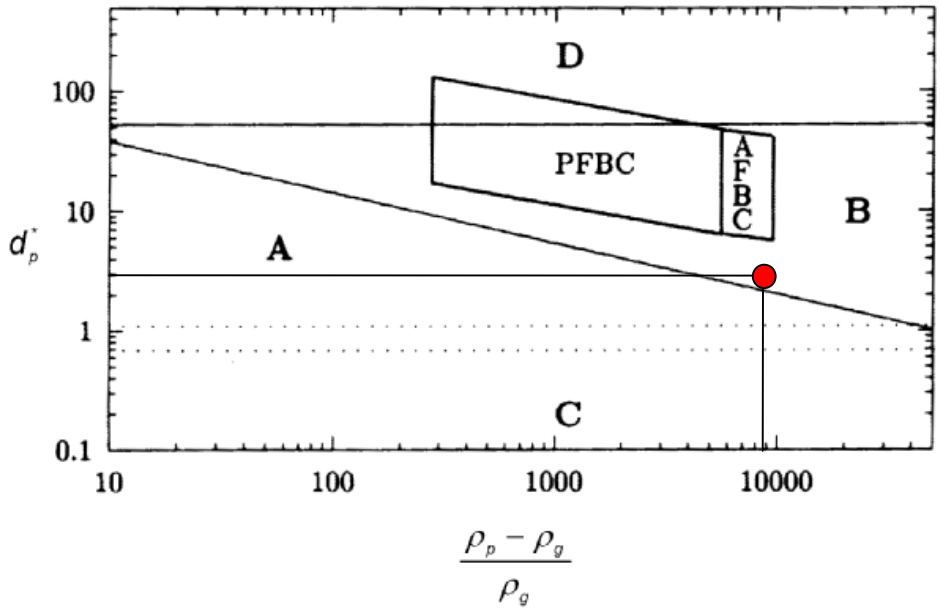


Abbildung 3-13: Klassifizierung des Bettmaterials nach Geldart gemäß [Grace ;1986]

3.5.3 Lockerungs- und Sinkgeschwindigkeit

Als Fluidisierungsgas wird ein *Gemisch aus 87% He und 13% N_2* verwendet,
Damit ergibt sich mit Gleichung 2-16 für die Lockerungsgeschwindigkeit *U_L=0,0044m/s*
Sie kann auch experimentell bestimmt werden. Da dies für das He / N_2 Gemisch aber nicht durchgeführt wurde, wird die Bestimmung der Lockerungsgeschwindigkeit beispielhaft für Luft gezeigt. Dabei wird die Fluidisierung vom blasenbildenden Regime ausgehend kontinuierlich abgesenkt, und der Druckverlust gemessen. Man erhält so aus Abbildung 3-14 für Luft einen Wert von *U_L=0,0048 m/s*. Der rechnerische Wert liegt gemäß Gleichung 2-20 ebenfalls bei *0,0048 m/s*

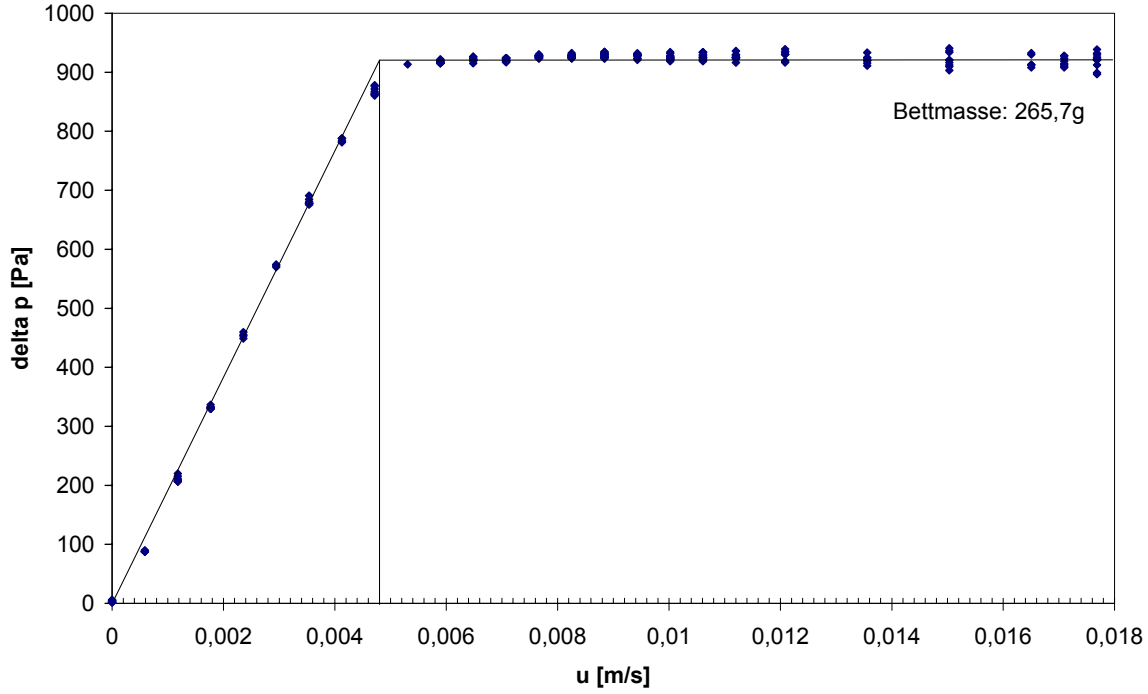


Abbildung 3-14: Experimentelle Bestimmung der Lockerungsgeschwindigkeit

Wie im Diagramm ersichtlich beträgt der Druckverlust bei vollständiger Fluidisierung Δp = 920 Pa. Der mit einer Bettmasse von 265,7g errechnete Druckverlust ist gemäß Gleichung 2-12: Δp=922 Pa

Die Sinkgeschwindigkeit wird aus Gleichung 2-20 mit berechnet und ist U_s *=0,32 m/s.*

Gaseigenschaften (87% He, 13% N_2)			
Dichte	ρ_g	0,2911	kg/m³
Dynamische Viskosität	μ	$2{,}02*10^{-5}$	Pa.s
Archimedeszahl	Ar	5,6	-
Partikeleigenschaften			
Dichte	ρ_p	2550	kg/m³
Durchmesser	d_p	67,5	µm
*Lockerungsgeschwindigkeit (*Gleichung 2-16*)*	U_L	0,0044	*m/s*
*Sinkgeschwindigkeit (*Gleichung 2-20*)*	U_S	0,32	*m/s*
Druckverlust			
Bettmasse	m	265,7	g
Experimentell (Abbildung 3-14)	Δp	920	Pa
Rechnerisch (Gleichung 2-12)	Δp	922	Pa

Tabelle 3-6: Zusammenfassung der charakteristischen Geschwindigkeiten und Druckverluste

3.5.4 Fluidisierungsregime

Im folgenden Diagramm werden die Fluidisierungsregime beim Standardbetriebspunkt (AR=144l/min, FR=9l/min; Siphon1,2=0,5l/min) mit 87% He / 13% N_2 als Fluidisierungsgas eingetragen.
Es ist zu erkennen, dass die x-Werte konstant bleiben, da die Anlage immer bei Umgebungstemperatur mit gleichem Gas und gleichen Partikeln betrieben wird, womit die Archimedes Zahl konstant bleibt.
Die dimensionslose Geschwindigkeit U^* ist umso größer, je größer die Fluidisierungsgeschwindigkeit ist. AR und Riser liegen über der Sinkgeschwindigkeit. U^*_s: Der Riser ist über dem AR angeordnet (siehe Abbildung 3-1). Dessen Geschwindigkeit ist aufgrund des kleineren Querschnittes größer als jene im AR und befindet sich in der Nähe von U_c.

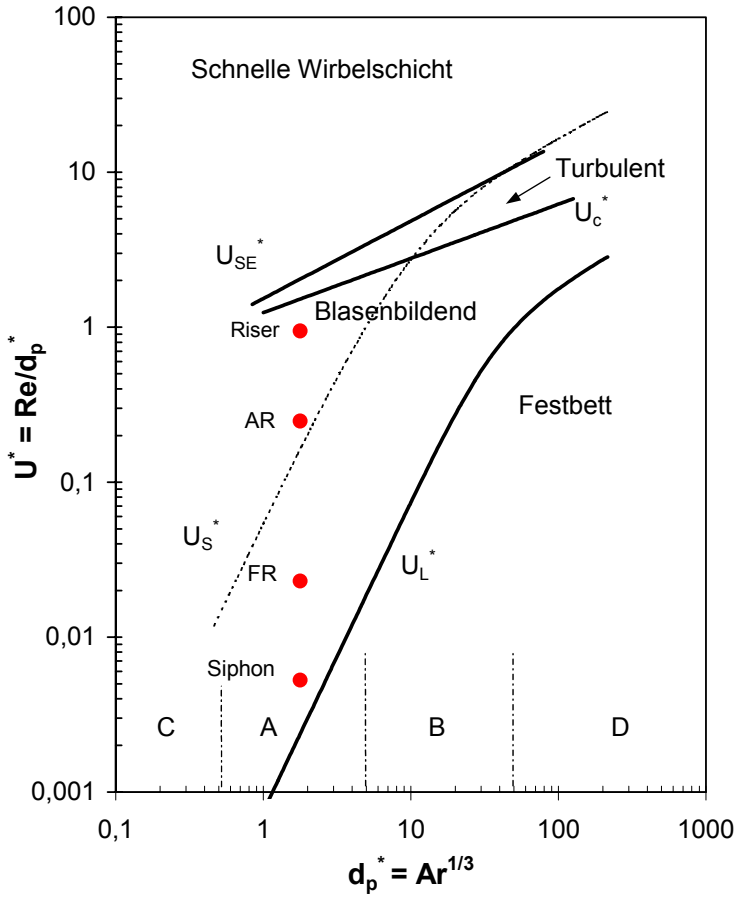


Abbildung 3-15: Fluidisierungsdiagramm [Bi, Grace; 1995]

4 Versuchsergebnisse

Für die Messungen wird das Modell mit nachfolgend angeführten Volumenströmen betrieben. Variiert wird davon nur die AR-Fluidisierung, da diese die Drücke und Umläufe festlegt. Der Standardbetriebspunkt liegt bei *144 l/min*.

	Volumenstrom [l/min]	**Leerrohrgeschwindigkeit U [m/s]**			
		AR	Riser	U_{AR}/U_s	U_{Riser}/U_s
AR	100	0,32	1,2	1	3,7
	120	0,38	1,44	1,19	4,53
	144	**0,45**	**1,73**	**1,43**	**5,44**
	160	0,51	1,93	1,59	6,05
	180	0,57	2,17	1,79	6,82
	200	0,63	2,41	2	7,58
FR	9	0,04		$6,2*U_L$	
Siphon 1	0,5	0,01		$2,2*U_L$	
Siphon 2	0,5	0,01		$2,2*U_L$	

Tabelle 4-1: Fluidisierung der einzelnen Wirbelschichten

Probleme bei der Inbetriebnahme

Nach der Inbetriebnahme des Labormodells kann bereits festgestellt werden, dass der Betrieb ohne große Schwierigkeiten abläuft. Es werden jedoch kleinere Probleme erkannt.

Das Verbindungsrohr zwischen Riser und Zyklon ist zu kurz und die Strömungsumlenkung nicht optimal. Es kommt daher zu Materialansammlungen in diesem Bereich (im Vergleich zur gesamten Bettmasse vernachlässigbar), wodurch der freie Querschnitt des Rohres halbiert wird. In Folge dessen ist die Beruhigungsstrecke für die Strömung zu kurz, was wiederum die Einlaufströmung in den Zyklon, und dessen Abscheidegrad verschlechtert. Um diesen zu verbessern wird das Tauchrohr verlängert. (siehe Abbildung 4-1).

Die im Plexiglas-Modell umlaufenden Glaspartikel haben elektrostatische Aufladungen zur Folge, die sich mit steigendem Umlauf verstärken. Es kommt dadurch zum Anhaften der Partikel, bevorzugt an Stellen an denen die Strömungsgrenzschicht ablöst, d.h. nach Kanten z.B: beim Zykloneingang, und vor allem im Riser bei den Druckmessstellen, aber auch im Zyklon-Downcomer.

Durch Zugabe geringer Mengen des Antistatikpulvers Larostat® und Erden des Stahlgerüsts können die Aufladungen verringert werden.

Der FR wird wegen der Volumenzunahme der Oxidation, des in der geplanten Heißanlage verwendeten Brenngases Methan, konisch ausgeführt. Dies soll

sicherstellen, dass die Gasgeschwindigkeit über die Höhe des Reaktors konstant bleibt. Durch Messung des Bettdruckabfalls bzw. visuelle Beobachtung kann festgestellt werden, dass aufgrund des flachen Konuswinkels das Bett in den Randbereichen nicht gleichmäßig fluidisiert wird. Der FR wird deshalb gemäß Abbildung 4-1 modifiziert und mit einem steileren Konus ausgeführt.

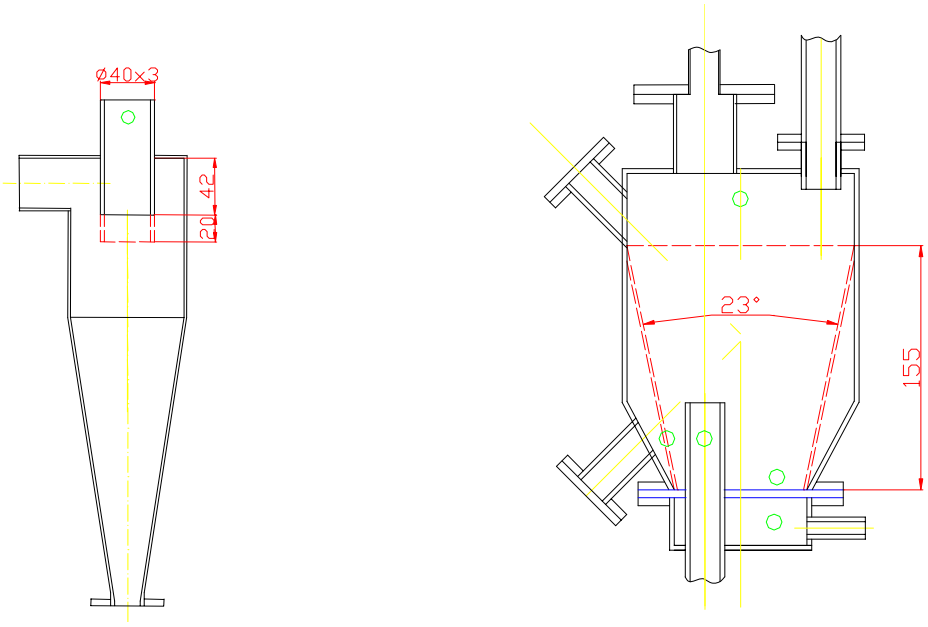


Abbildung 4-1: Modifikationen am Labormodell; (die strichlierten Linien stellen die Modifikationen dar)

4.1 Druckprofile

Alle angegebenen Drücke sind, wenn nicht anders angegeben Atmosphärenüberdrücke.

4.1.1 Gesamte Anlage

In Abbildung 4-2 ist ein Druckprofil der gesamten Anlage zu sehen.

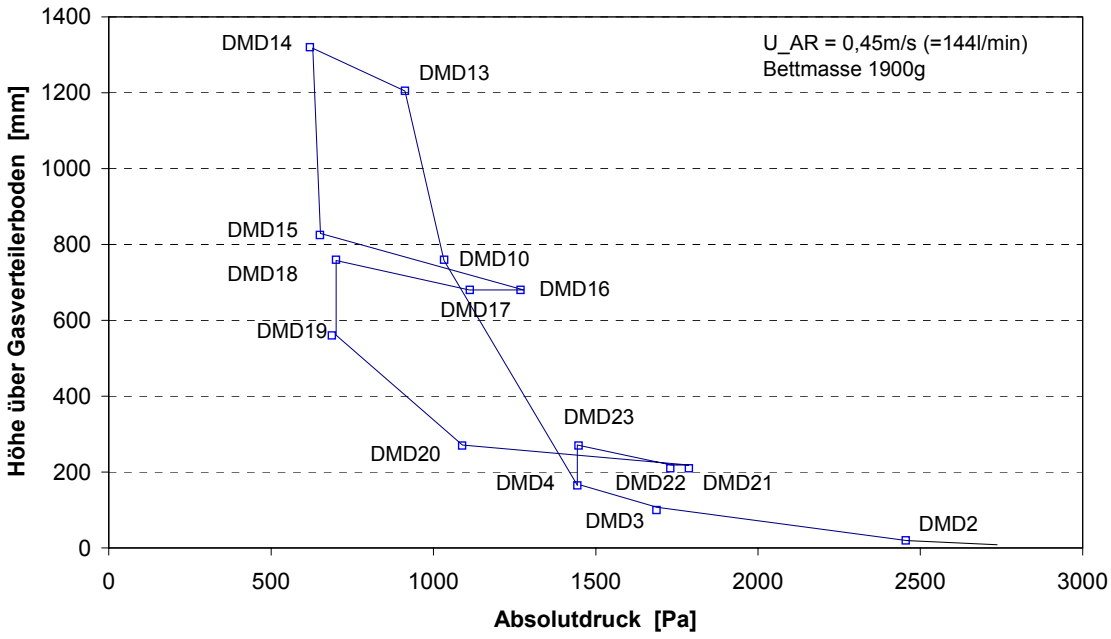


Abbildung 4-2: Druckprofil gesamte Anlage

Man erkennt, dass der Druck im unteren Bereich des AR (DMD2-DMD13) am größten ist, und mit zunehmender Höhe abnimmt. Wenn man bedenkt, dass sich Wirbelschichten annähernd wie Flüssigkeiten verhalten, dann entspricht das dem höhenabhängigen statischen Druck. Jener unmittelbar über dem Lochboden (DMD 2) ist mit 2500Pa im Vergleich zu den anderen Drücken verhältnismäßig hoch, was auf hohen Feststoffanteil schließen lässt. Messungen in der Nähe des Verteilerbodens oder in Bereichen einer Querschnittsänderung sind jedoch auf Grund von Beschleunigungs- beziehungsweise Verzögerungseffekte mit Vorsicht zu verwenden. Beim Zyklonausgang (DMD14) ist der Druck im System am geringsten, wegen des Druckabfalls durch das Tauchrohr aber immer noch über dem Umgebungsdruck. DMD 16 misst wegen der Feststoffsäule im Downcomer wieder einen höheren Druck, während DMD 17 um den Druckverlust durch Reibung am Siphonboden verringert ist. Die Funktionsweise eines Siphons kann mit einem U-Rohrmanometer verglichen werden. Durch die U-Form des Siphons und die Fluidisierung der beiden

Partikelsäulen stellt sich immer eine dem Druck entsprechende Höhe ein. Da auf einer Seite ständig Bettmaterial nachfließt steigt der Druck, wodurch auf der gegenüberliegenden Seite Material abfließen muss. Durch diesen Materialfluss wird Gasdichtheit gewährleistet.
DMD18 und 19 zeigen den Druck im FR. An DMD 20 und 21 steigt der Druck wieder, während DMD 23 den Kreislauf mit DMD 4 wieder schließt.

4.1.2 AR / Riser

Der AR / Riser ist die für die Fluiddynamik bestimmende Einheit dieses Modells. Über die AR-Fluidisierung wird der Umlauf und somit die gesamte Anlage gesteuert, da ja die FR-Betthöhe durch den Überlauf konstant gehalten wird verändert die FR-Fluidisierung das Gesamtverhalten kaum. Die nachfolgend angeführten Druckprofile sind deshalb nur für AR/Riser angegeben.

Variation der AR-Fluidisierungsgeschwindigkeit
Das folgende Diagramm zeigt ein Druckprofil für eine Bettmasse von 1500g bei verschiedenen AR / Riser-Geschwindigkeiten für Konfiguration A.

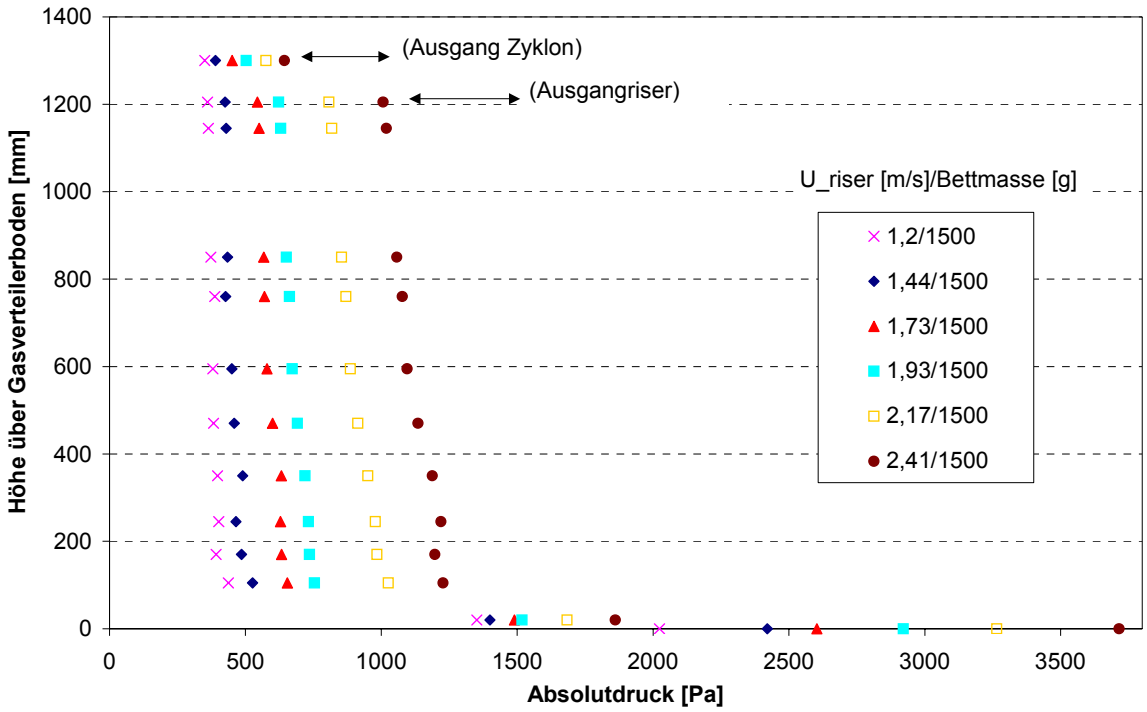


Abbildung 4-3: Druckprofil AR/Riser für verschiedene AR-Geschwindigkeiten

Man kann erkennen dass der Druck umso höher ist, je größer die Fluidisierungsgeschwindigkeit und damit der Umlauf M_S ist. Das für einen Riser typische Druckprofil (Druck nimmt von unten nach oben ab) ist auch hier sichtbar.

Die Druckdifferenz Ausgang Riser – Ausgang Zyklon, auch abhängig vom Umlauf, nimmt mit steigender Geschwindigkeit zu. Das ist auf den Druckverlust des Zykloneintritts und des Tauchrohres zurückzuführen, der ja mit dem Quadrat der Geschwindigkeit steigt.
Die unverhältnismäßig hohen Drücke nahe des Lochbodens sind aufgrund der hohen Ausströmgeschwindigkeiten auf Turbulenzeffekte desselben zurückzuführen und daher nicht aussagekräftig.

Variation der Bettmasse

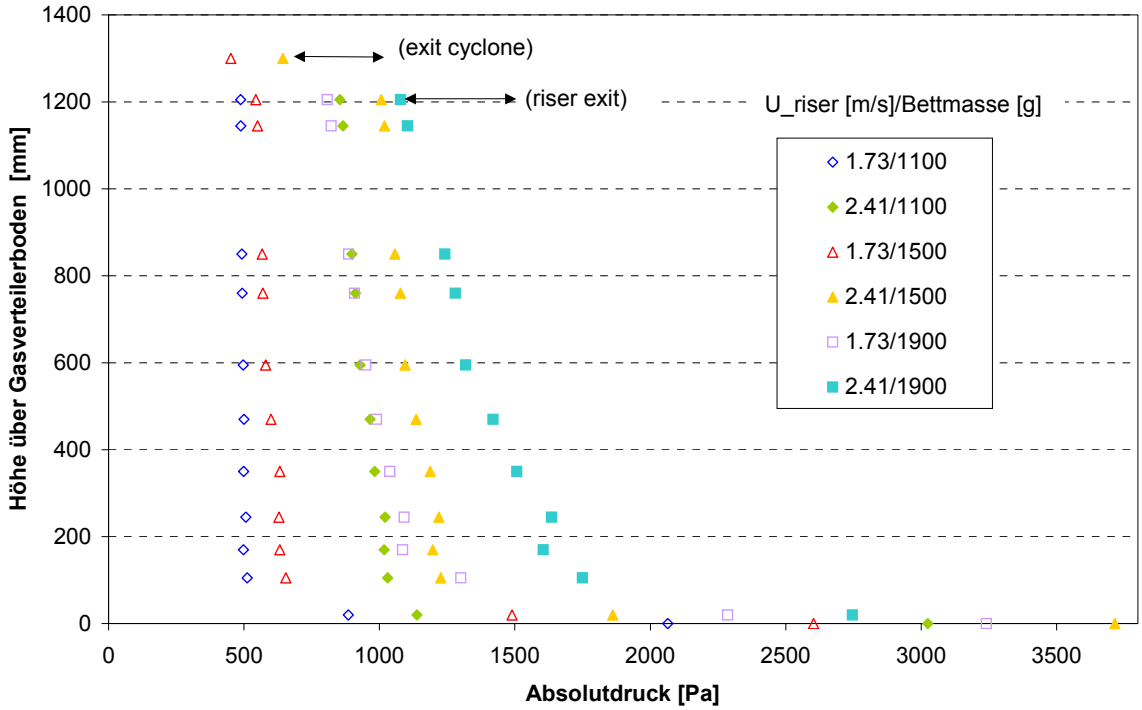


Abbildung 4-4: Druckprofil AR/Riser für verschiedene Bettmassen und Geschwindigkeiten

In der vorherigen Abbildung ist der Einfluss der Bettmasse auf das Druckprofil bei zwei verschiedenen Geschwindigkeiten zu sehen. Der Druck am Zyklon-Ausgang ist für alle Bettmassen gleich, da immer die gleiche Menge Gas austritt und hier auch keine Suspension vorliegt. Er steigt daher nur mit der Geschwindigkeit.
Am Riser-Ausgang steigt der Druck mit steigender Bettmasse und Geschwindigkeit. Da diese beiden Größen maßgebend für den Umlauf sind, kann der Druckverlust als Funktion des Umlaufs gesehen werden.
Der Gradient der Druckprofile nimmt mit steigender Masse ab, d.h. die Massenfraktion im AR/Riser nimmt zu.

Variation der Riserlänge

Es wird Konfiguration A zu Konfiguration (AS) umgebaut, d.h. der Riser verkürzt.

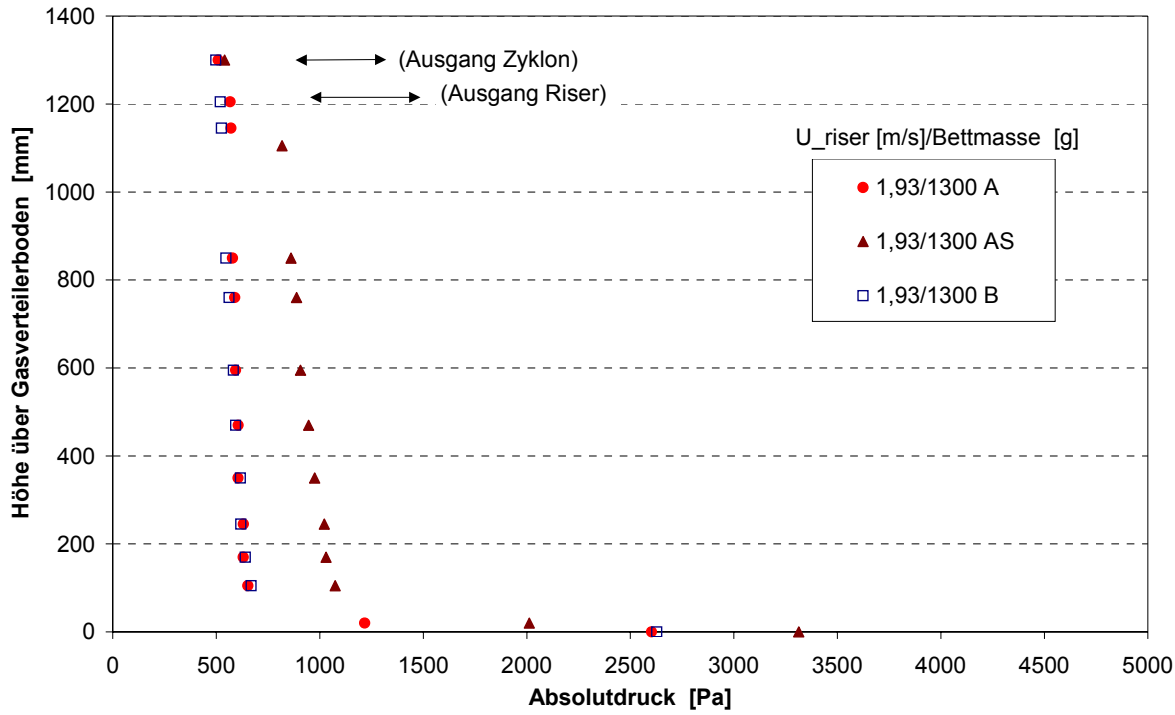


Abbildung 4-5: Druckprofil AR/Riser für verschiedene Riserlängen

Die Druckprofile sind bei Konfiguration A und B ident, während das Druckprofil bei kürzerem Riser zu größeren Drücken verschoben ist. Das kann mit einer erhöhten Feststoffkonzentration aufgrund des erhöhten Umlaufs durch den kürzeren Riser erklärt werden. (Vgl. Abbildung 4-3; hier ist der Druck bei höherer Geschwindigkeit und damit höherem Umlauf ebenfalls höher)

Der Druck im Zyklonausgang ist wie oben für alle Konfigurationen gleich.

4.2 Feststoffkonzentration im Riser

Der solid hold-up (Feststoffkonzentration) und die über den Querschnitt gemittelte Porosität ist neben der Darstellung der Druckprofile eine weitere Möglichkeit das Verhalten eines Risers zu charakterisieren.
Werden Reibungs- und Beschleunigungskräfte vernachlässigt, dann kann aus Gleichung 2-11 die Porosität berechnet werden. Hartge [Hartge et al; 1986] hat den solid hold-up aus Druckverlustmessungen und γ-Strahlungsabsorptions Messungen verglichen, und dabei gute Übereinstimmung festgestellt. Ausgenommen am Riserein- und Ausgang, wo die Beschleunigungskräfte groß sind. Es dürfte daher nur der Mittelteil des Risers berechnet werden. Zu Vergleichszwecken wird der solid hold-up aber für den gesamten Riser berechnet.

Durch Umformen von Gleichung 2-11 erhält man für Porosität und den solid hold–up:

$$(1-\varepsilon) = \frac{\Delta p}{(\rho_p - \rho_g) \cdot g \cdot \Delta h} \qquad \textit{Gleichung 4-1}$$

Variation der Geschwindigkeit

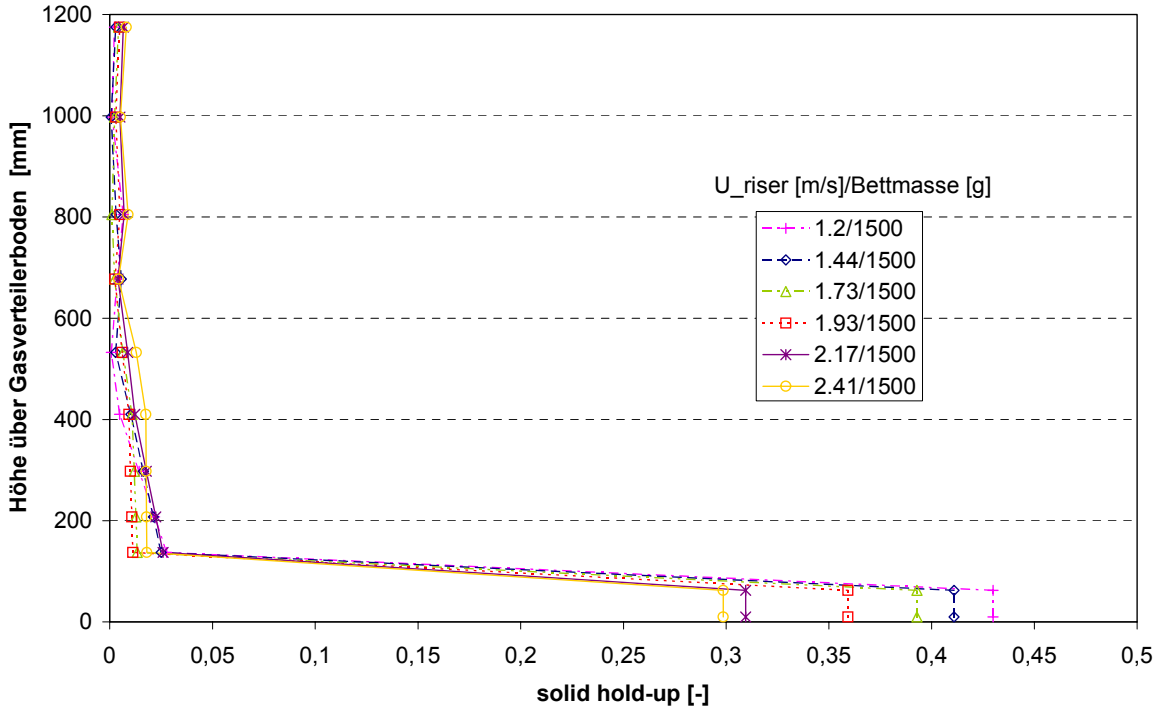


Abbildung 4-6: Solid hold-up für verschiedene Geschwindigkeiten

In Abbildung 4-6 ist zu erkennen, dass der Feststoffanteil am Boden des AR mit steigender Geschwindigkeit immer kleiner wird. (1-ε=0,43 bis 0,3). Im oberen Teil des

AR ist eine sehr starke Abnahme des solid hold-up zu beobachten, d.h. hier beginnt der Bereich der pneumatischen Förderung. Es fällt dann noch leicht ab, und bleibt im mittleren Bereich des Risers konstant, steigt jedoch bis zum Riserausgang (1000-1200mm) nochmals geringfügig an. Dieser Anstieg kann durch den Rückfluss von Material aus dem Zykloneinströmrohr erklärt werden. Weiters fällt auf, dass der solid hold-up im Riser für die höchste Geschwindigkeit am größten ist, was durch den höheren Umlauf, und die somit höhere Feststoffkonzentration im Riser zu erklären ist. Das im AR fehlende Bettmaterial (kleinerer solid hold-up) ist teilweise im Riser verteilt.

Variation der Bettmasse

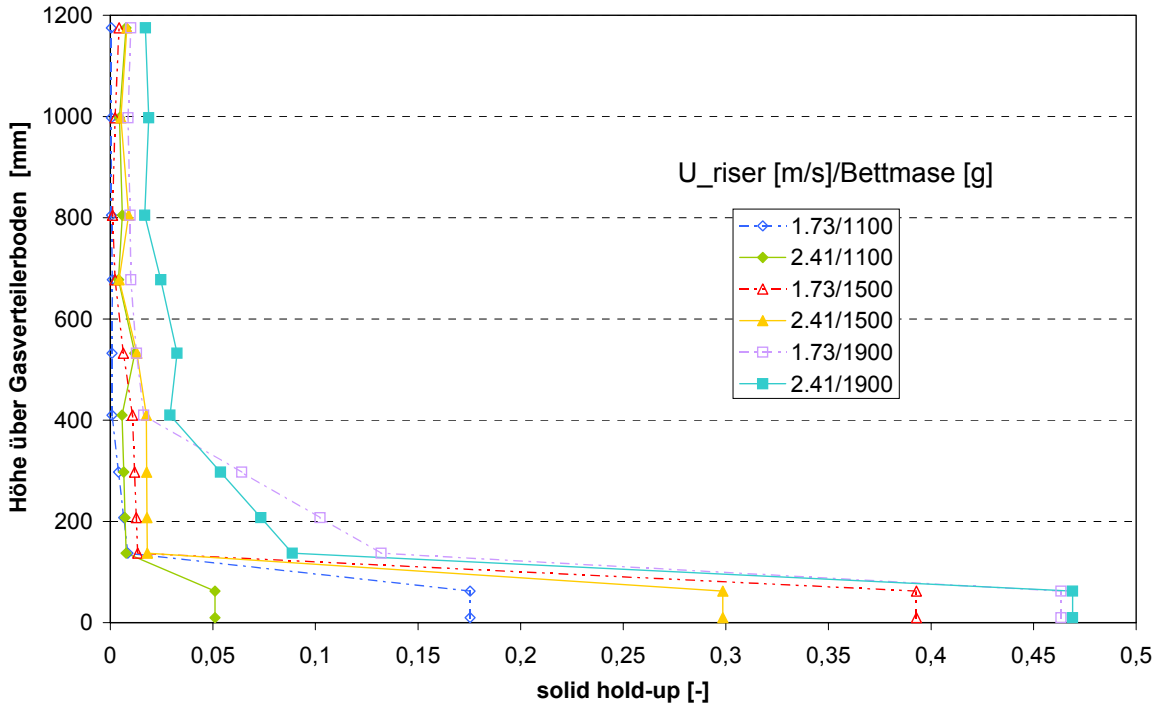


Abbildung 4-7: Solid hold-up für verschiedene Geschwindigkeiten und Bettmassen

Man sieht, dass für geringe Bettmassen (1100g) die Bettdichte im unteren AR-Bereich sehr klein ist (1-ε = 0,05 bis 0,17) und bei einer Höhe von etwa 170mm auf ca. 0,01 abfällt um danach konstant zu bleiben. Gegenteiliges ist bei großen Bettmassen (1900g) zu beobachten. Der solid hold-up liegt unten bei 0,47, fällt dann rasch auf ca. 0,08 bis 0,14, nimmt dann bis zu einer Höhe von 400mm kontinuierlich ab und bleibt dann annähernd konstant. Das kann durch die Querschnittsverengung vom AR in den Riser in einer Höhe von 270mm erklärt werden. Eine konstante Feststoffkonzentration stellt sich erst nach einer gewissen Einlaufstrecke ein. (bei ca. 400mm). Auch hier erkennt man, dass der Feststoffanteil bei höheren Geschwindigkeiten größer ist.

4.3 Umläufe

Der Feststoffumlauf ist in einem CLC-System von wesentlicher Bedeutung. Er ist wie in Gleichung 2-30 zu sehen ist, mit der Konversions-Differenz ΔX und dem Sauerstoffmassenstrom $\dot{m}_O$ verknüpft, und somit entscheidend für den Brennstoffumsatz und damit die Anlagenleistung. Er muss daher einerseits für genügend Sauerstofftransport sorgen, um eine vollständige Oxidation des Brennstoffs im FR zu ermöglichen, und andererseits den nötigen Energieaustausch zwischen den Reaktoren gewährleisten, damit die gewünschten Temperaturen aufrecht erhalten werden können.
Der Umlauf wird für verschiedene Bettmassen, zwei Partikelabscheider (Zyklon, Schwerkraftabscheider) und zwei Riserlängen gemessen. Die Fluidisierung wird gemäß Tabelle 4-1 eingestellt, d.h. es wird nur die AR-Fluidisierung variiert.
Die Bestimmung des Umlaufs erfolgt durch Messung des Zeitintervalls, in dem sich ein vorgegebenes Volumen (der Zyklondowncomer) mit Bettmaterial füllt. Diese Messungen werden für jede Geschwindigkeit fünfmal hintereinander durchgeführt und gemittelt.
In ersten Versuchen mit Luft konnte festgestellt werden, dass sich das Verhalten des Bettmaterials im Laufe eines Tages verändert. Dies ist vor allem auf die Hygroskopie des Bettmaterials, und die elektrostatischen Auf- und Entladungen des Plexiglas-Modells zurückzuführen. Um erst genannten Einfluss zu minimieren, wird das Bettmaterial aus dem Labormodell über Nacht im Trockenschrank aufbewahrt. Die elektrostatischen Aufladungen können, wie bereits erwähnt durch Zugabe von Antistatikpulver vermindert werden. Bei Verwendung des Helium/N_2 Gemisches als Fluidisierungsgas sind diese Einflüsse jedoch nicht so schwerwiegend wie bei Luft. Um sie trotzdem zu berücksichtigen, werden die Umläufe aus zwei verschiedenen Messserien gemittelt.
Eine quantitative Bewertung der Messwerte zeigt, dass die Messwerte eine Schwankungsbreite von $\pm$ 6% bei einem Vertrauensbereich von 95% (Student t-Verteilung) aufweisen. Da bei großen Umläufen das gemessene Zeitintervall sehr klein ist (im zehntel Sekunden Bereich) beträgt die Abweichung hier $\pm$ 20%.

Es konnte auch nachgewiesen werden dass die FR und Siphon-Fluidisierungen den Umlauf nicht direkt beeinflussen. Wird der FR jedoch stärker fluidisiert, so steigt die Porosität, und die sich im FR befindliche Bettmasse sinkt, da dessen Höhe durch den Überlauf vorgegeben ist. Es befindet sich daher unwesentlich mehr Bettmaterial im AR was den Umlauf erhöht. Die dadurch hervorgerufene Veränderung liegt innerhalb der Messungenauigkeit.

Ein häufig aufgetretenes Problem, vor allem bei größeren Umläufen, war die Verstopfung des Zyklon-Downcomers. Dieser und der FR-Downcomer stellen somit die limitierenden Einheiten für den Umlauf dar.

Der später angeführte spezifische Umlauf G_s [kg/m²s] ist auf den Riserquerschnitt bezogen. Es ist dies eine in der Wirbelschichttechnik durchaus übliche Kennzahl, die oft dazu verwendet wird um Anlagen verschiedener Riserquerschnitte vergleichen zu können.

4.3.1 Variation der gesamten Bettmasse für Konfiguration A

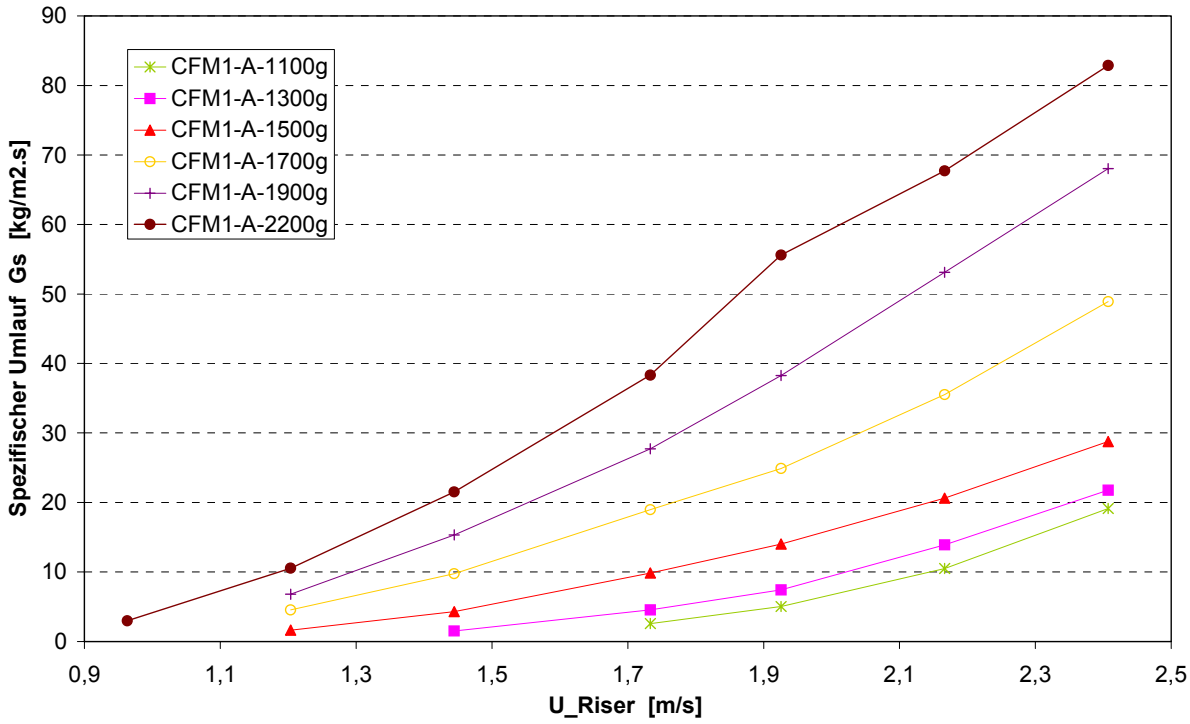


Abbildung 4-8: Umlauf bei Variation der Geschwindigkeit und Bettmasse für Standard Konfiguration A

Man sieht deutlich, dass der Umlauf stark von der Riser-Geschwindigkeit und der Bettmasse abhängt und in einem weiten Bereich variiert werden kann. Bei großen Bettmassen (1900 und 2200g) und spezifischen Umläufen G_s >50 kg/m²s wird das System instabil und der FR füllt sich aufgrund der beschränkten Transportkapazität des FR-Downcomers. Durch das im AR fehlende Bettmaterial wird der Gradient der 2200g Kurve bei 2m/s kleiner. Dies wird aber teilweise durch den höheren Druck im Downcomer kompensiert und der Umlauf kann somit weiter erhöht werden.
Bei den Bettmassen 1500g und 1700g arbeitet das System problemlos und es können auch Umläufe von 50 kg/m²s erreicht werden, weshalb die Standardbettmasse in diesem Bereich liegen sollte.

4.3.2 Variation der gesamten Bettmasse für Konfiguration B

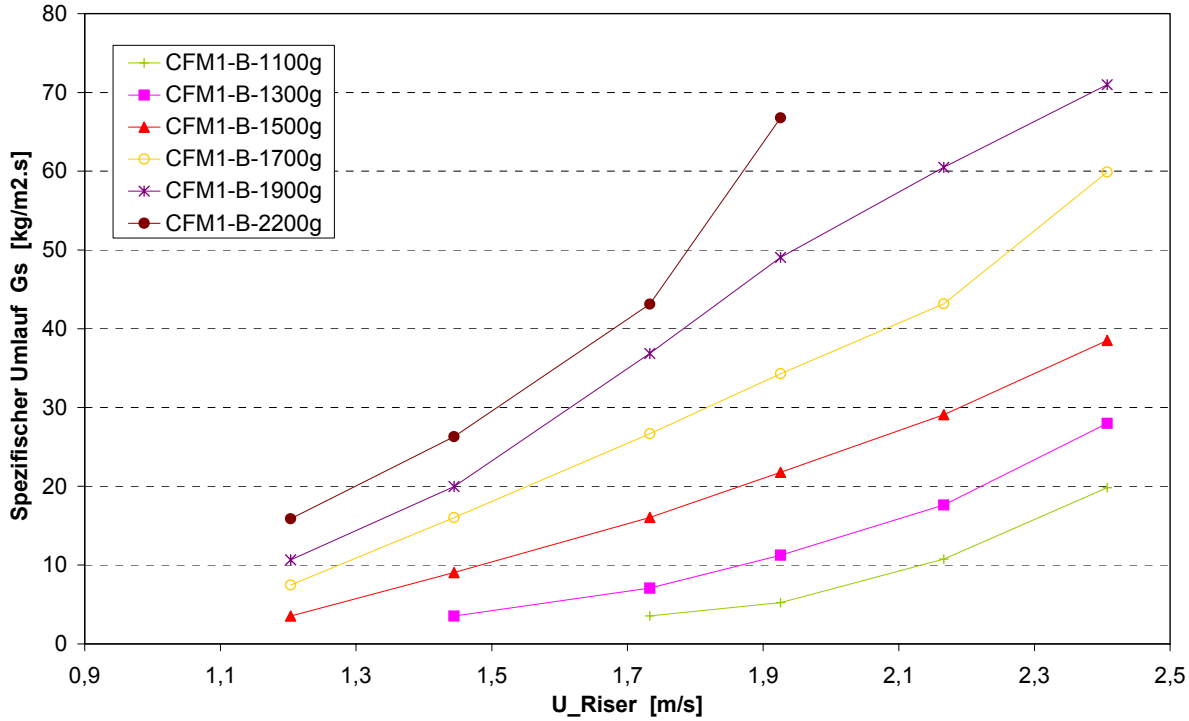


Abbildung 4-9: Umlauf bei Variation der Geschwindigkeit und Bettmasse für Konfiguration B

Hier kann ein ähnlicher Verlauf wie oben beobachtet werden. Ab G_s = 50 kg/m²s ist auch hier wieder die Downcomer Limitierung zu erkennen.

4.3.3 Vergleich Konfiguration A und AS

Die Riserhöhe ist hauptsächlich durch den Zyklon und den FR vorgegeben. Können diese kompakter gebaut werden, dann kann auch der Riser verkürzt werden.
Es soll daher auch der Einfluss auf den Umlauf bei Veränderung der Riserlänge untersucht werden.

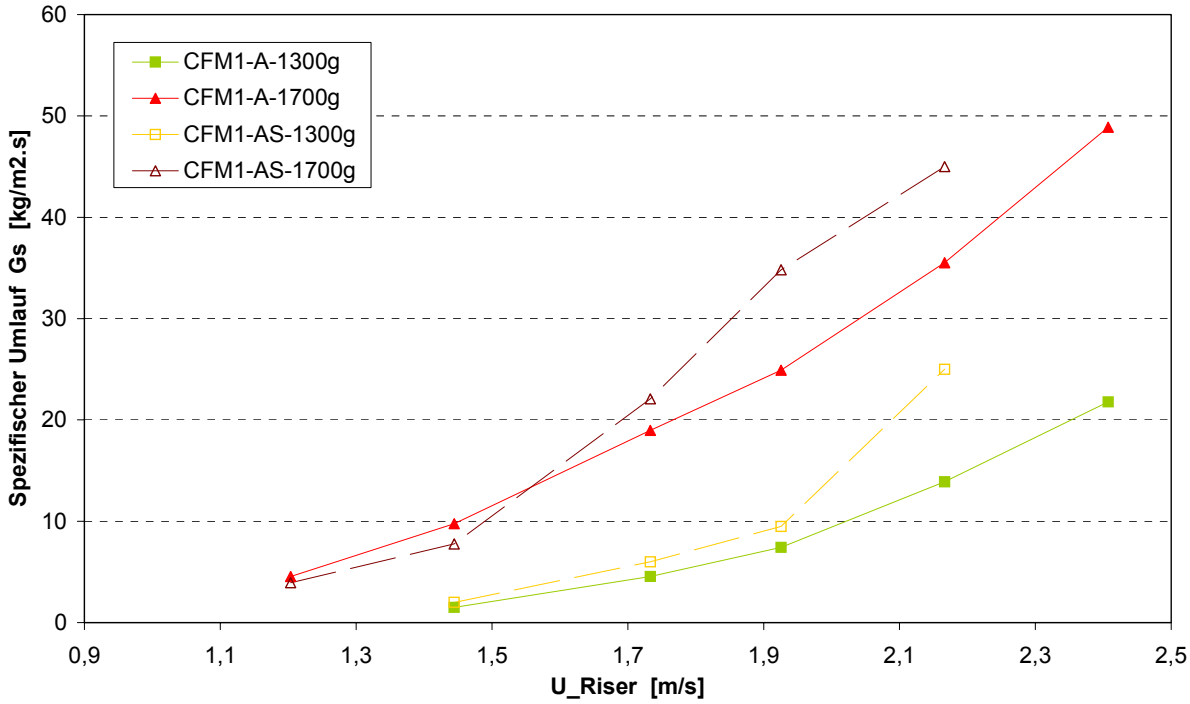


Abbildung 4-10: Vergleich Standard Konfiguration A und AS (verkürzter Riser)

Für den um 100 mm kürzeren Riser ergibt sich bei beiden Bettmassen ein höherer Umlauf. Das kann folgende Gründe haben:

1. Durch Entnahme des Zwischenstücks wird das Gesamtvolumen der Anlage kleiner und daher die Partikelkonzentration größer. Daher muss der Umlauf bei gleicher Bettmasse steigen.
2. Die Riserhöhe wird im Vergleich zur TDH kleiner. Die TDH ist jene Höhe, ab der die Partikelkonzentration einen konstanten Wert erreicht und hier gemäß Fournol [Fournol et al; 1979] ca. 10mal die Riserhöhe beträgt. Es werden dadurch mehr größere Partikel bis in den Zyklon ausgetragen, die bei längerem Riser wieder ins Bett zurückfallen.

4.3.4 Vergleich Konfiguration A und B

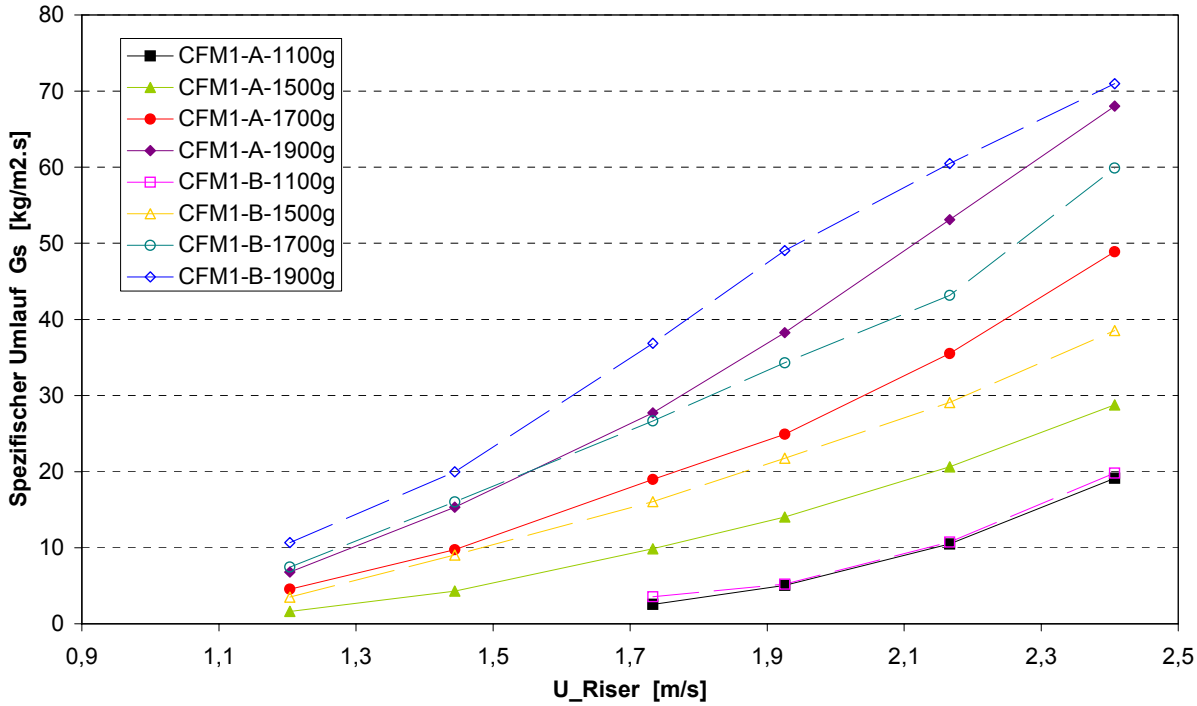


Abbildung 4-11: Vergleich Standard Konfiguration A und B (Schwerkraftabscheider)

Abbildung 4-11 zeigt eindeutig, dass der Umlauf für Konfiguration A durchwegs kleiner ist. Der Grund dafür liegt im Bettmaterial Rückfluss, der einerseits durch die Strömungsumlenkung am Riserende, und andererseits durch Zurückfallen von aus dem sich im Zyklon Einströmrohr sammelnden Bettmaterial entsteht. Dieser Reflux ist im Schwerkraftabscheider bedeutend kleiner, weil der Riser oben offen ist und der Strömungswiderstand somit kleiner ist. Außerdem ist kein Querrohr vorhanden, in dem sich Material ansammelt.

Der Umlauf am Standardbetriebspunkt (U_{Riser}=1,73m/s) beträgt für die Bettmassen 1500 und 1700g für Konfiguration A 10 - 20 kg/m²s und für B 18 – 28 kg/m²s.

4.3.5 Solid hold up versus dimensionsloser Umlauf

Der solid hold-up ist gemäß Gleichung 4-2 eine Funktion des spezifischen Umlaufs. D.h. man kann durch Messen des Druckverlustes mit Gleichung 4-1 auf den spezifischen Umlauf rückschließen.

$$(1-\varepsilon) = \frac{G_s}{(U - U_S)\cdot \rho_p} \qquad \text{Gleichung 4-2}$$

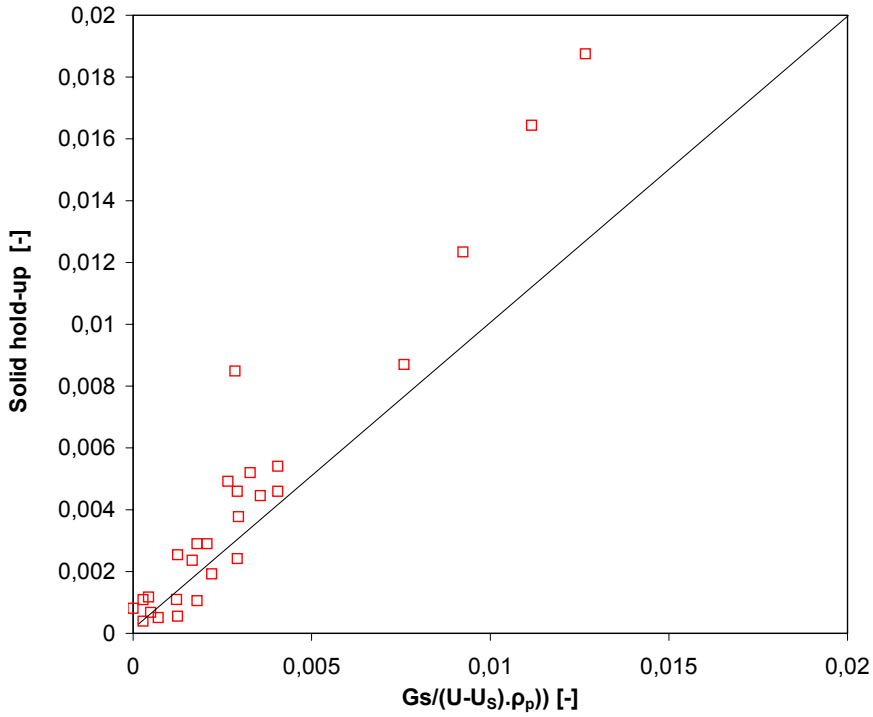


Abbildung 4-12: Solid hold up versus spezifischer Umlauf

Um den Einfluss des Bettmaterial-Rückflusses auszuschließen wird der in dieser Tabelle verwendete solid hold-up nur bis 100mm unterhalb des Riserendes berechnet.
In Abbildung 4-12 erkennt man die gute Übereinstimmung mit den Messwerten. Durch die geringen gemessenen Druckdifferenzen ist die Messunsicherheit allerdings hoch. Der praktische Nutzen dieses Zusammenhanges ist, dass es damit möglich sein sollte auch in einer sich im Betrieb befindlichen ‚Heißapparatur' den Umlauf annähernd zu bestimmen.

4.4 Bestimmung des Abscheiderwirkungsgrades

Der Abscheiderwirkungsgrad des Partikelabscheiders wurde während 15 minütigem Betrieb bestimmt. Wobei $M_{S,abg}$ das in diesem Zeitraum im Partikelfilter abgeschiedene Bettmaterial, und $M_{S,umg}$ die gesamte umgelaufene Bettmasse sind.

$$\eta = 100 \cdot \left[1 - \frac{M_{S,abg}}{M_{S,umg}} \right] \qquad \textit{Gleichung 4-3}$$

In allen durchgeführten Messungen wurden für den Zyklon und den Schwerkraftabscheider Abscheidegrade *größer 99,9%* ermittelt, was für unsere Anwendung zufriedenstellend ist.

4.5 Leckagen

Ein wesentliches Ziel einer Chemical Looping Combustion-Anlage ist es, einen möglichst hoch konzentrierten CO_2 Abgasstrom zu erhalten. Dies ist insofern wichtig, da dadurch der Energiebedarf zur Abscheidung und Kompression minimiert wird. Das aus dem FR ausströmende CO_2 sollte daher nicht mit Fluidisierungsluft vom AR verdünnt werden. Andererseits muss aber auch der Anteil von in den AR überströmendem CO_2 klein gehalten werden, weil dadurch die CO_2 Abscheideeffizienz sinkt, oder Brennstoff in den AR strömt.
Aus den oben genannten Gründen ist es daher sehr wichtig über die tatsächlichen Verunreinigungen der Abgasströme, im Folgenden Leckagen genannt, der Anlagenkonfiguration Bescheid zu wissen.

4.5.1 Messprinzip

Zur Bestimmung der Leckagen am Kaltmodell wird eine Tracer-Methode angewandt. Dem Fluidisierungsgas wird dabei an bestimmten Stellen ein leicht zu detektierendes Tracergas beigemengt und an den Abgasöffnungen dessen Konzentration bestimmt. Die genaue Aufteilung der Gasströme kann anschließend mit Hilfe einer Massenbilanz unter Berücksichtigung aller Gasströme und Konzentrationen bestimmt werden.
Um den Split (die Aufteilung) eines Gasstroms A in zwei andere Gasströme B und C zu beschreiben, wird ein Splitfaktor L eingeführt. Dieser kann Werte zwischen 0 und 1 annehmen. Ist er 0 dann geht Gasstrom A zu 100% in Gasstrom C, ist er 1 dann geht Gasstrom A zu 100% in Gasstrom B.
Um die Splitfaktoren zu bestimmen wird den Fluidisierungen des AR, FR und der beiden Siphone nacheinander Propan beigemischt und gleichzeitig die AR und FR Ausgangskonzentrationen mittels eines Flammen-Ionisations-Detektors (FID) gemessen.

Das folgende Schema zeigt alle gemessenen Konzentrationen. Die Bezeichnung der Einzelteile kann Abbildung 3-1 entnommen werden.

Tracer beigemischt in	**Gemessene Konzentrationen**		
	Am Eingang	**Am Ausgang**	
AR	c_{AR0}	c_{AR21}	c_{FR21}
FR	c_{FR0}	c_{AR22}	c_{FR22}
Siphon 1	-	c_{AR23}	c_{FR23}
Siphon 2	-	c_{AR24}	c_{FR24}

Tabelle 4-2: Gemessene Konzentrationen

Um den Einfluss verschiedener Betriebsparameter zu beurteilen, werden folgende Variationen durchgeführt:

- AR Fluidisierung; 100-200 l/min
- Bettmasse; 1,5 und 1,9kg
- $\Delta p_{\text{FR-Downcomer}}$; -200 Pa; 0 Pa; 400 Pa
- FR Fluidisierung; 9 und 14 l/min

Nachstehende Tabelle zeigt eine Auflistung aller Einstellungen für die durchgeführten Leckagemessungen:

Messung	Bett-masse [kg]	Δp [Pa]	$\dot{V}$ AR [l/min]	$\dot{V}$ FR [l/min]	Tracer beigemischt in AR [l/min]	FR [l/min]	PL1 [l/min]	PL2 [l/min]
1	1.9	n.g.	100-180	9	n.g.	n.g.	n.g.	n.g.
2	1.5	n.g.	100-200	9	1	0.4	n.g.	n.g.
4	1.5	n.g.	144	9	1	0.11	n.g.	n.g.
5	1.5	n.g.	100-200	9	1.14	0.1	1	1
6	1.5	0	100-200	9	1.2	0.1	0.1	0.3
7	1.5	400, -200	100-200	14	1.2	0.15	0.1	0.3
8	1.5	0	100-200	14	1.2	0.15	0.1	0.3
9	1.9	0	80-160	14	1.2	0.15	n.g.	n.g.

n.g. = nicht gemessen

Tabelle 4-3: Einstellungen bei den Leckagemessungen

4.5.2 Massenbilanz über AR und FR

Wie bereits vorher erwähnt wird die Leckage mittels Massenbilanzen über AR und FR (in Abbildung 4-13 als Blackbox dargestellt) für alle vier Aufgabepunkte (AR, FR, Siphon 1 und 2) berechnet. Man erhält somit acht Gleichungen für die vier unbekannten Splitfaktoren.

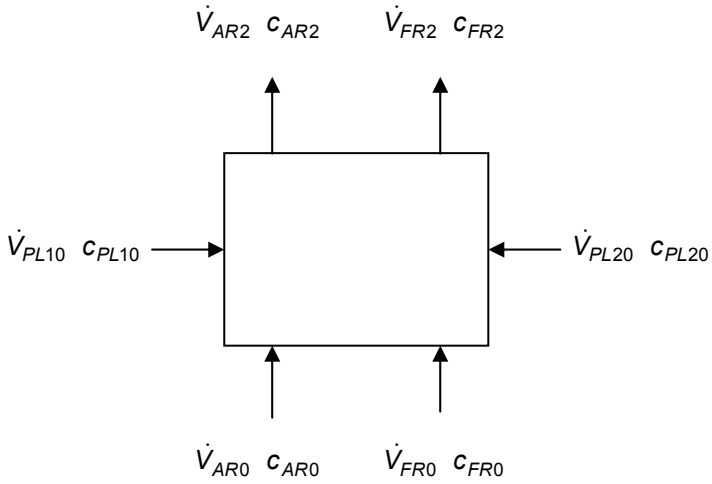


Abbildung 4-13: Bilanzierungsschema

Propanbilanz AR

Bilanziert man den Propanvolumenstrom für jeden Aufgabepunkt über den AR erhält man:

$$\begin{bmatrix} c_{AR0} \\ c_{FR0} \\ c_{PL10} \\ c_{PL20} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} 1-L_{A,F} \\ L_{F,A} \\ 1-L_{PL1} \\ 1-L_{PL2} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \dot{V}_{AR0} \\ \dot{V}_{FR0} \\ \dot{V}_{PL10} \\ \dot{V}_{PL20} \end{bmatrix} = \dot{V}_{AR2} \cdot \begin{bmatrix} c_{AR21} \\ c_{AR22} \\ c_{AR23} \\ c_{AR24} \end{bmatrix}$$

Gleichung 4-4$_{1-4}$

Der Gesamt AR-Ausgangsvolumenstrom ergibt sich aus:

$$\dot{V}_{AR2} = (1-L_{A,F}) \cdot \dot{V}_{AR0} + L_{F,A} \cdot \dot{V}_{FR0} + (1-L_{PL1}) \cdot \dot{V}_{PL10} + (1-L_{PL2}) \cdot \dot{V}_{PL20}$$

Gleichung 4-5

Propanbilanz FR

Wird der Propanvolumenstrom für jeden Aufgabepunkt über den FR bilanziert erhält man:

$$\begin{bmatrix} c_{AR0} \\ c_{FR0} \\ c_{PL10} \\ c_{PL20} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} L_{A,F} \\ 1-L_{F,A} \\ L_{PL1} \\ L_{PL2} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \dot{V}_{AR0} \\ \dot{V}_{FR0} \\ \dot{V}_{PL10} \\ \dot{V}_{PL20} \end{bmatrix} = \left(\dot{V}_{AR0} + \dot{V}_{FR0} + \dot{V}_{PL10} + \dot{V}_{PL20} + \dot{V}_{PL20} - \dot{V}_{AR2}\right) \cdot \begin{bmatrix} c_{FR21} \\ c_{FR22} \\ c_{FR23} \\ c_{FR24} \end{bmatrix}$$

Gleichung 4-6$_{1-4}$

Lösung

Um eine eindeutige Lösung für die vier Splitfaktoren zu erhalten muss man fünf der neun Gleichungen geeignet kombinieren. Das soll im Folgenden gezeigt werden.

Unter Verwendung von Gleichung 4-4_1 und Gleichung 4-6_1 kann der AR-Ausgangsvolumenstrom berechnet werden.

$$\dot{V}_{AR2} = \frac{c_{AR0} \cdot \dot{V}_{AR0} - \left(\dot{V}_{AR0} + \dot{V}_{FR0} + \dot{V}_{PL10} + \dot{V}_{PL20}\right) \cdot c_{AR21}}{c_{AR21} - c_{FR21}} \qquad \textit{Gleichung 4-7}$$

Mit Gleichung 4-6_1 erhält man $L_{A,F}$

$$L_{A,F} = \frac{c_{FR21}}{c_{AR0} \cdot \dot{V}_{AR0}} \cdot \left(\dot{V}_{AR0} + \dot{V}_{FR0} + \dot{V}_{PL10} + \dot{V}_{PL20} - \dot{V}_{AR2}\right) \qquad \textit{Gleichung 4-8}$$

Aus Gleichung 4-6_2 kann $L_{F,A}$ berechnet werden

$$L_{F,A} = 1 - \frac{c_{FR22}}{c_{FR0} \cdot \dot{V}_{FR0}} \cdot \left(\dot{V}_{AR0} + \dot{V}_{FR0} + \dot{V}_{PL10} + \dot{V}_{PL20} - \dot{V}_{AR2}\right) \qquad \textit{Gleichung 4-9}$$

L_{PL1} und L_{PL2} werden mit Gleichung 4-$6_{3\text{-}4}$ bestimmt

$$L_{PL1} = \frac{c_{FR23}}{c_{PL10} \cdot \dot{V}_{PL10}} \cdot \left(\dot{V}_{AR0} + \dot{V}_{FR0} + \dot{V}_{PL10} + \dot{V}_{PL20} - \dot{V}_{AR2}\right) \qquad \textit{Gleichung 4-10}$$

$$L_{PL2} = \frac{c_{FR24}}{c_{PL20} \cdot \dot{V}_{PL20}} \cdot \left(\dot{V}_{AR0} + \dot{V}_{FR0} + \dot{V}_{PL10} + \dot{V}_{PL20} - \dot{V}_{AR2}\right) \qquad \textit{Gleichung 4-11}$$

Da der AR Volumenstrom ca. 10-mal größer als der des FR ist, wird der Messfehler ebenfalls größer. Um diesen Fehler klein zu halten, wird die FR-Bilanz mit dem Faktor 10 multipliziert, womit der Einfluss einer schlechten Messung relativiert wird.

Durch Kombination verschiedener Gleichungen konnte herausgefunden werden dass die Verwendung aller neun die kleinsten Abweichungen ergibt, d.h. die Summe der Fehlerquadrate am kleinsten ist.

Die Berechnung der Splitfaktoren erfolgte numerisch durch Minimieren der Fehlerquadrate mit dem Solver in Microsoft Excel.

4.5.3 Massenbilanz über das ganze System

Die Leckage kann auch aus einer Bilanz über das gesamte System berechnet werden.

Gesamtbilanz:

$$\dot{V}_{AR2} + \dot{V}_{FR2} = \dot{V}_{AR0} + \dot{V}_{FR0} + \dot{V}_{PL10} + \dot{V}_{PL20} \qquad \textit{Gleichung 4-12}$$

Propanbilanz:

$$\dot{V}_{AR2} \cdot c_{AR2} + \dot{V}_{FR2} \cdot c_{FR2} = \dot{V}_{AR0} \cdot c_{AR0} + \dot{V}_{FR0} \cdot c_{FR0} + \dot{V}_{PL10} \cdot c_{PL10} + \dot{V}_{PL20} \cdot c_{PL20} \qquad \textit{Gleichung 4-13}$$

Mit der Gesamt- und der Propanbilanz erhält man schließlich die Volumenströme an den Ausgängen der Reaktoren:

$$\dot{V}_{AR2} = \frac{\dot{V}_{AR0} \cdot (c_{AR0} - c_{FR2}) + \dot{V}_{FR0} \cdot (c_{FR0} - c_{FR2}) + \dot{V}_{PL1} \cdot (c_{PL10} - c_{FR2}) + \dot{V}_{PL2} \cdot (c_{PL20} - c_{FR2})}{(c_{AR2} - c_{FR2})}$$

Gleichung 4-14

$$\dot{V}_{FR2} = \dot{V}_{AR0} + \dot{V}_{FR0} + \dot{V}_{PL10} + \dot{V}_{PL20} - \dot{V}_{AR2} \qquad \textit{Gleichung 4-15}$$

Wie schon vorher, gibt es auch hier wieder die Möglichkeiten das Tracergas in jeweils einen der Fluidisierungsströme zu dosieren.

Zumischen von Tracergas in das AR Fluidisierungsgas:

$$c_{FR0}, c_{PL10}, c_{PL20} = 0 \qquad \textit{Gleichung 4-16}$$

Aus Gleichung 4-14 erhält man:

$$\dot{V}_{AR2} = \frac{\dot{V}_{AR0} \cdot (c_{AR0} - c_{FR2}) - c_{FR2} \cdot (\dot{V}_{FR0} + \dot{V}_{PL10} + \dot{V}_{PL20})}{(c_{AR2} - c_{FR2})} \qquad \textit{Gleichung 4-17}$$

$\dot{V}_{FR2}$ kann aus Gleichung 4-15 berechnet werden

Die *Leckage in den FR* ist daher:

$$L_{A,F} = \frac{\dot{V}_{FR2} \cdot c_{FR2}}{\dot{V}_{AR0} \cdot c_{AR0}}$$ *Gleichung 4-18*

Zumischen von Tracergas in das FR-Fluidisierungsgas:

$$c_{AR0}, c_{PL10}, c_{PL20} = 0$$ *Gleichung 4-19*

Aus Gleichung 4-14 erhält man wieder

$$\dot{V}_{AR2} = \frac{\dot{V}_{FR0} \cdot (c_{FR0} - c_{FR2}) - c_{FR2} \cdot (\dot{V}_{AR0} + \dot{V}_{PL1} + \dot{V}_{PL2})}{(c_{AR2} - c_{FR2})}$$ *Gleichung 4-20*

$\dot{V}_{FR2}$ kann aus Gleichung 4-15 berechnet werden
Die *Leckage in den AR* ist daher

$$L_{F,A} = \frac{\dot{V}_{AR2} \cdot c_{AR2}}{\dot{V}_{FR0} \cdot c_{FR0}}$$ *Gleichung 4-21*

4.5.4 Ergebnisse

In den folgenden Diagrammen bezieht sich *Leckage in den AR* auf den Splitfaktor $L_{F,A}$ und *Leckage in den FR* auf $L_{A,F}$.
Der Splitfaktor L_{PL1} ergibt sich in nahezu allen Experimenten zu annähernd 1, d.h. fast 100% des Fluidisierungsgases des Siphons 1 strömen in den FR.
L_{PL2} ist in allen Experimenten annähernd 0, d.h. 100% des Fluidisierungsgases von Siphon 2 verlassen diesen in Richtung AR.

4.5.4.1 Variation der Bettmasse

Den größten Einfluss auf die Leckage hat der Bettmaterialumlauf. Wie aus nachfolgender Abbildung ersichtlich, steigt die Leckage annähernd linear mit dem Umlauf $\dot{M}_S$. Der kleinere Gradient der AR Leckage bei kleinerem Umlauf kann durch das Ausblasen von Leckagegas durch die Fluidisierung des Siphons zwischen FR und AR (Stripp Effekt), erklärt werden.

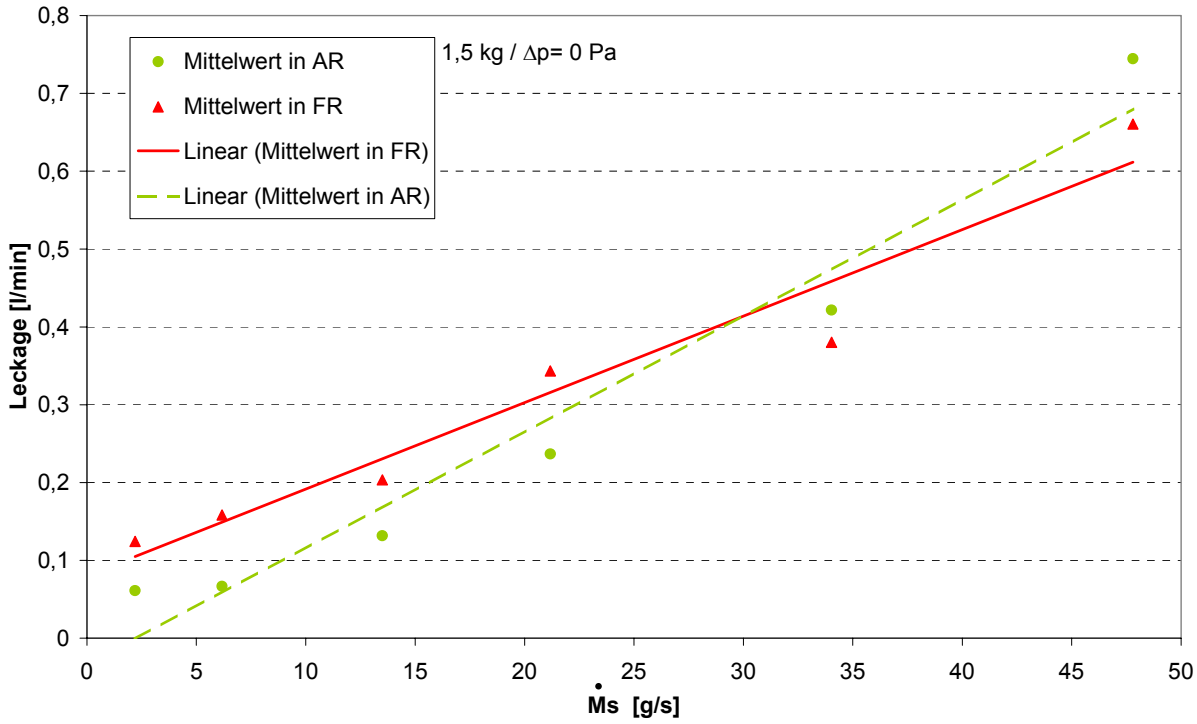


Abbildung 4-14: Abhängigkeit der Leckage vom Umlauf für 1,5kg Bettmasse und ⊿p = 0

Beim Standardbetriebspunkt (U_{AR}=1,73 m/s => $\dot{M}_S$=14 g/s) kann die mittlere Leckage mit 0,2 l/min bestimmt werden. Das bedeutet im AR bei $\dot{V}_{AR}$=144 l/min eine Verdünnung des Gases um *0,14%* und im FR bei $\dot{V}_{FR}$= 9 l/min um *2,2%*. Man erkennt daraus dass die Leckage in den FR von größerer Bedeutung ist.

Abbildung 4-15 zeigt die Leckage in den AR und FR für 1,9 kg Bettmasse. Man sieht, dass die beiden Leckagen fast gleich sind. Als Grund dafür kann der in den Siphonen gleiche Umlauf angegeben werden, welcher die Leckagen im Wesentlichen bestimmt. Außerdem sind die Siphone baugleich und arbeiten mit einer Partikelsäule zur Abdichtung.

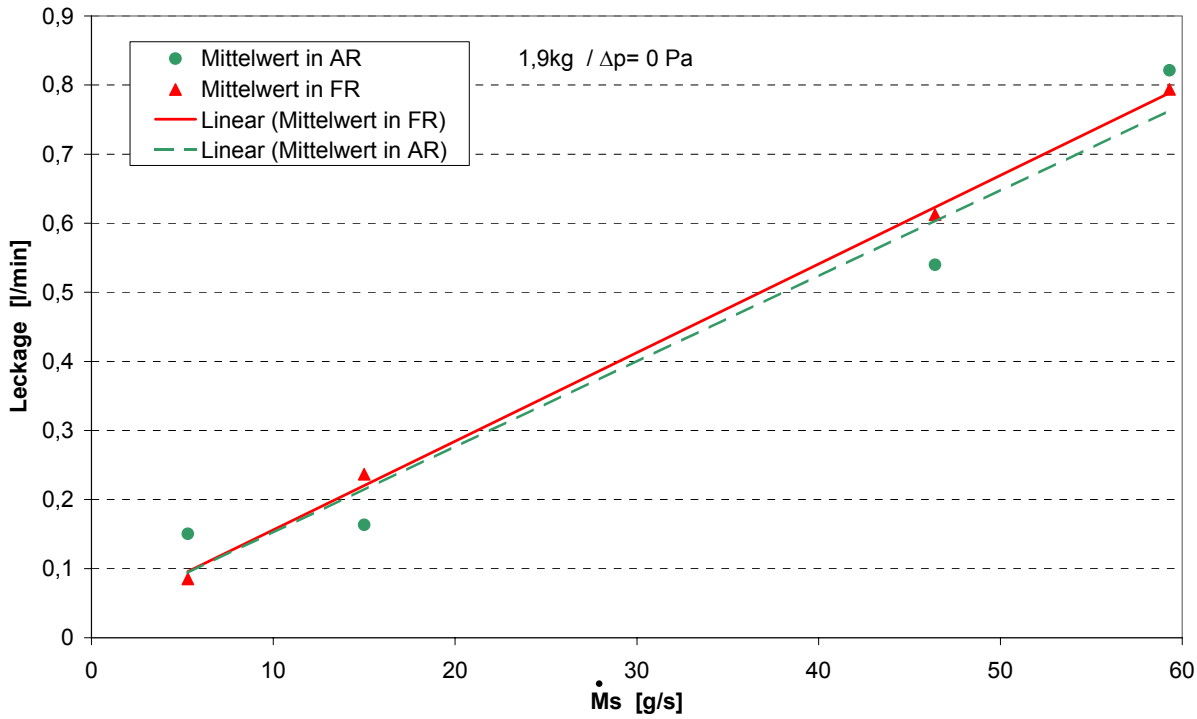


Abbildung 4-15: Abhängigkeit der Leckage vom Umlauf für 1,9kg Bettmasse und Δp = 0

Vergleicht man Abbildung 4-14 und Abbildung 4-15 ist zu erkennen, dass die Leckage nicht direkt von der Bettmasse abhängt, sondern nur indirekt über den Umlauf (größerer Umlauf bei höherer Bettmasse). Das wird bei einem Umlauf von 30 kg/s deutlich, wo die Leckage für beide Bettmassen 0,4 l/min beträgt.

4.5.4.2 Variation des FR Druckes

Obwohl schon ein relativ eindeutiger Zusammenhang zwischen Feststoffumlauf und Gasleckage festgestellt wurde, so ist es auch von Interesse inwieweit die Druckverhältnisse in der Anlage die Gasvermischung zwischen den Reaktoren beeinflussen. Die Druckvariation zwischen FR und Downcomer wurde für Δp = –200 Pa, 0 Pa und 400 Pa ($\Delta p = p_{FR} - p_{Downcomer}$) durchgeführt, wobei dies durch ein Ventil am FR-Gasaustritt realisiert wurde. Die Leckage für Δp = 0 Pa sollte zwischen –200 Pa und 400 Pa liegen, sie ist jedoch kleiner. Diese Unterschiede liegen innerhalb der mittleren Schwankungsbreite der Leckage von ca. 0,15 l/min. Es kann daher kein Zusammenhang zwischen Druck und Leckage gesehen werden.

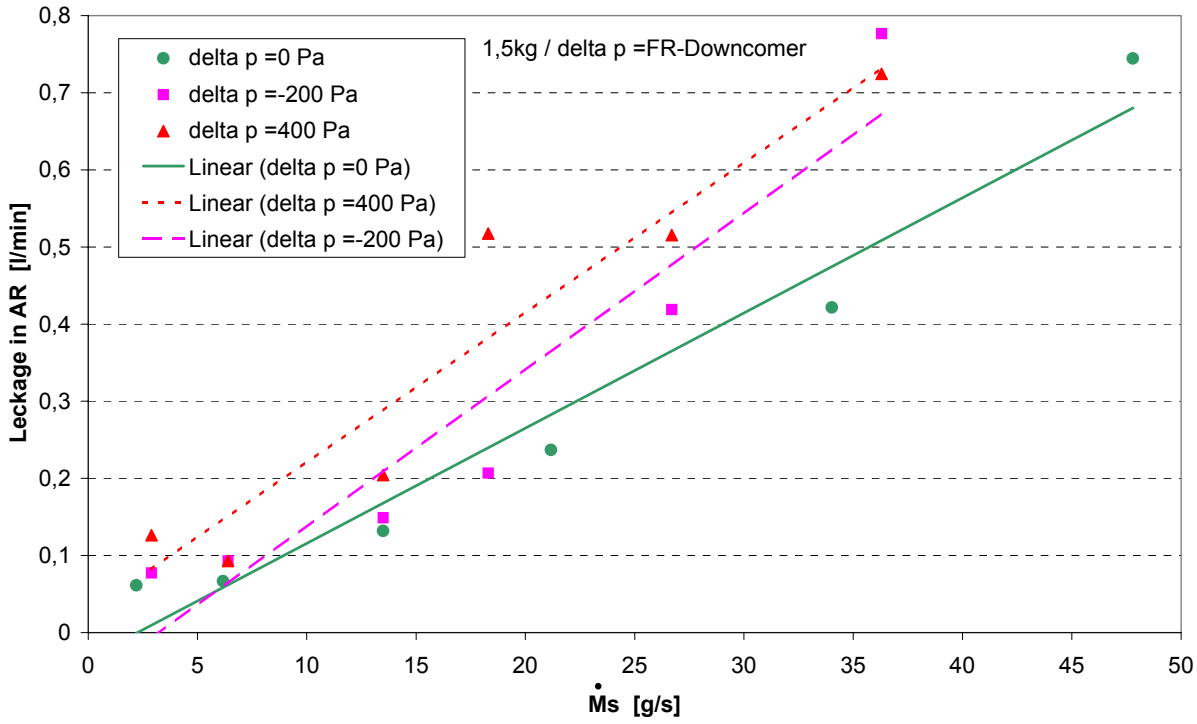


Abbildung 4-16: Abhängigkeit der Leckage vom Umlauf für Variation des FR Druckes für 1,5 kg Bettmasse

Abbildung 4-17 bestätigt das eben Gesagte. Der aus dem Umlauf berechnete Porenvolumenstrom ist für eine Porosität ε=0,4 auf der Ordinate, die gemessene Leckage auf der Abszisse aufgetragen.

Man erkennt, dass die Leckage und der Porenvolumenstrom fast gleich sind. Das Leckagegas wird sozusagen in den Partikelzwischenräumen mittransportiert. Der Porenvolumenstrom hängt nur von der Porosität und vom Umlauf ab, womit ein eindeutiger Zusammenhang zwischen Leckage und Umlauf hergestellt ist. D.h. weiters, dass eine Druckdifferenz zwischen FR und Downcomer bzw. AR unter den hier eingestellten Betriebsbedingungen keinen sichtbaren Einfluss hat. Sie kann

jedoch generell nicht vollkommen ausgeschlossen werden, da die Partikelsäulen in den Siphonen poröse Medien darstellen, und damit nicht zu 100% gasdicht sein werden.

Die Abweichungen von der 1. Mediane können durch Adsorption von Gas an den Partikeln (die Leckage ist größer als der Porenvolumenstrom) und durch Strippeffekte bei höheren Siphon Fluidisierungen erklärt werden.

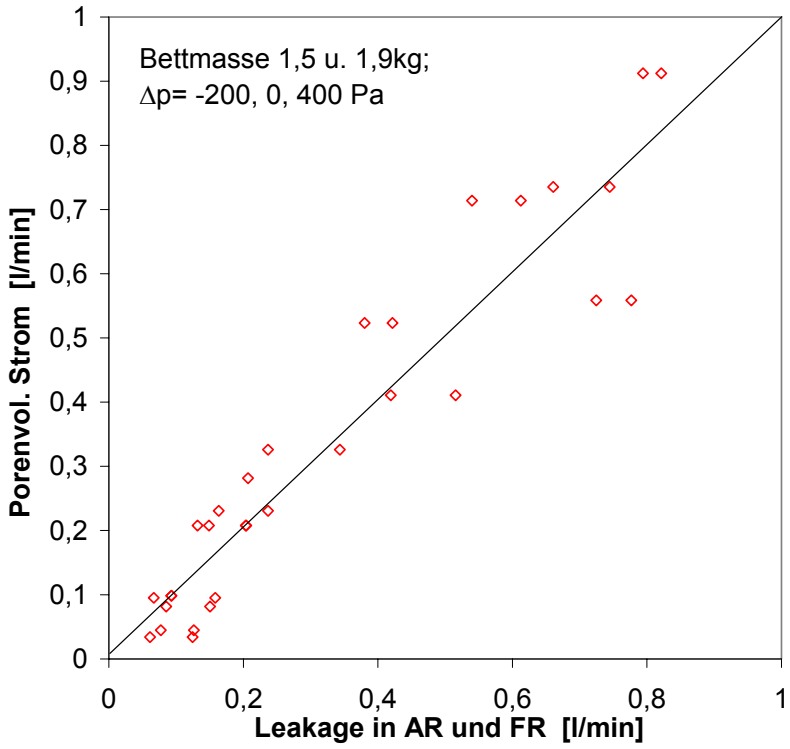


Abbildung 4-17: Zusammenhang Porenvolumenstrom-Leckage

4.5.4.3 Variation der FR-Fluidisierung

In Abbildung 4-18 erkennt man, dass die Leckagen sowohl in den AR als auch in den FR für 14 l/min FR Fluidisierung höher sind als für 9 l/min. Aufgrund der vorher genannten Abhängigkeit der Leckage vom Umlauf erscheint das unlogisch, da die FR-Fluidisierung keinen Einfluss auf den Umlauf hat.
Wäre eine Druckabhängigkeit gegeben, so müsste die Leckage in den AR für 14 l/min höher und die in den FR geringer sein, da durch die höhere FR-Fluidisierung der Druck im FR ansteigt. Beide Leckagen (in AR und FR) sind aber für 14 l/min größer.
Der gezeigte Verlauf kann daher nur durch Messungenauigkeiten erklärt werden.

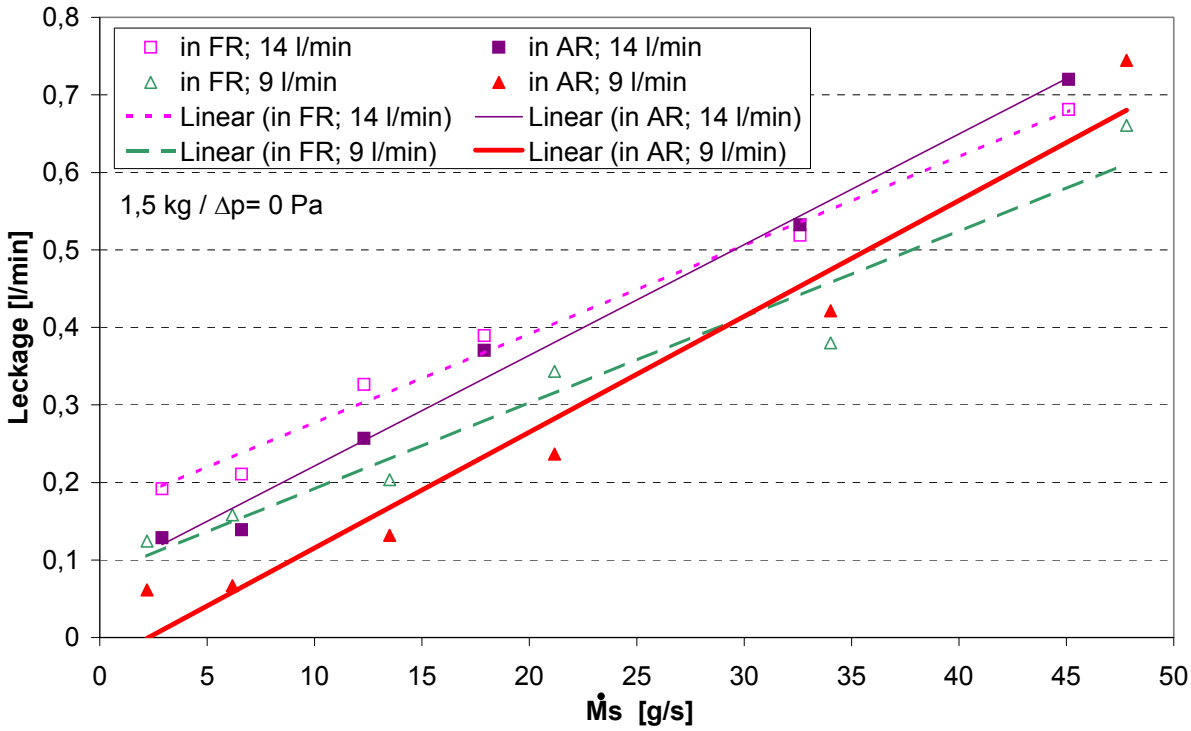


Abbildung 4-18: Leckage vs. Umlauf bei Variation der FR-Fluidisierung; 1,5 kg Bettmasse, ⊿p=0

4.5.4.4 Variation der Siphonfluidisierung

Erhöht man die Siphonfluidisierung, so vermindert man die Leckage in den nächsten Reaktor, z.B.: Siphon 2 in den AR. Das ist auf den Strippeffekt des Fluidisierungsgases zurückzuführen. Dies stellt somit eine Möglichkeit dar, um die Leckage zu reduzieren, wobei jedoch das Gas im vorhergehenden Reaktor mit Siphon Fluidisierungsgas verdünnt wird (ausgenommen H_20; es kann auskondensiert werden, dadurch steigt aber der Energieaufwand), womit die CO_2-Abscheideeffizienz der Anlage sinkt.

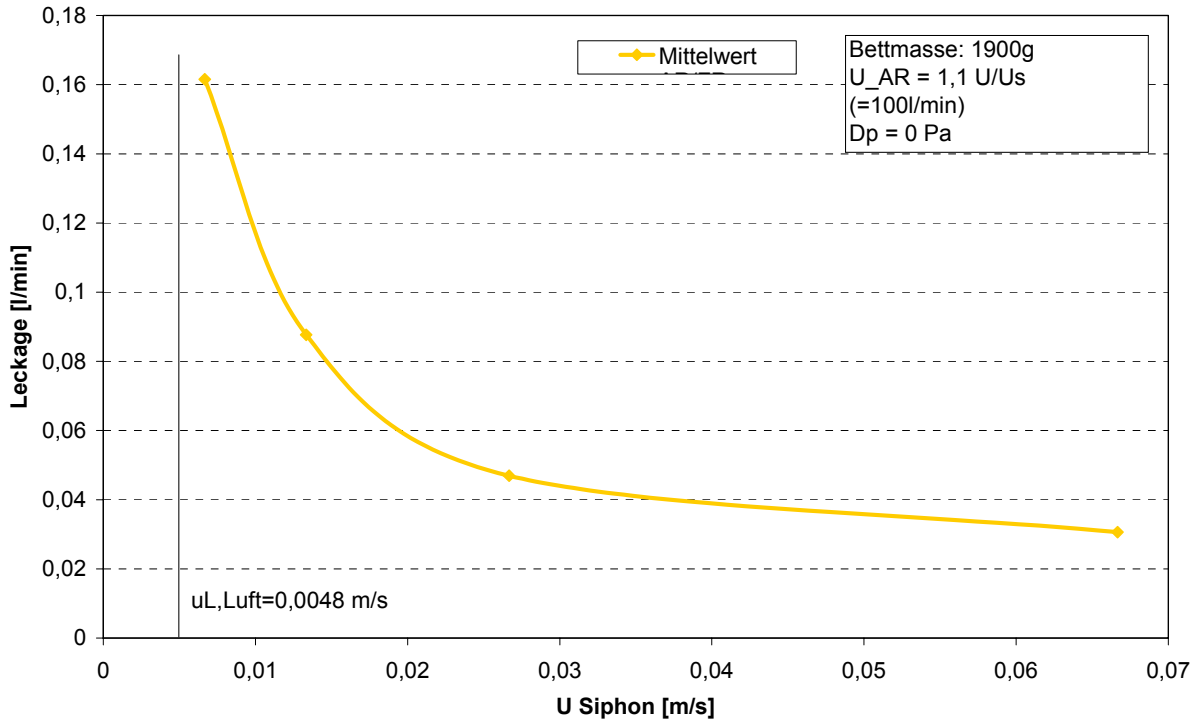


Abbildung 4-19:Leckage in den AR für verschiedene Siphon Fluidiserungsgeschwindigkeiten

4.5.5 Partikel- und Gasgeschwindigkeit

Die nächste Abbildung zeigt die Partikel- und Gasgeschwindigkeit in einem Siphon bei einem Fluidisierungsvolumenstrom von 0,5 l/min und für eine Bettmasse von 1,5kg. Die Partikelgeschwindigkeit kann aus dem Umlauf und die Gasgeschwindigkeit aus dem Porenvolumenstrom berechnet werden. Die Relativgeschwindigkeit ist die Differenz der beiden.

Die Partikel- und Gasgeschwindigkeit steigen mit dem Umlauf und haben dieselbe Richtung, was bedeutet dass Gas mit den Partikeln mittransportiert wird und somit Leckagen verursacht.

In Fall (1) ist die Relativgeschwindigkeit kleiner als die Lockerungsgeschwindigkeit U_L = 0,0042 m/s, d.h. es handelt sich um eine Festbettströmung. In den Fällen (2) und (3) ist $W_R > U_L$ und es liegt eine Wirbelschicht vor.

Da die Gas- und Partikelgeschwindigkeit die gleiche Richtung haben, strömt das gesamte Siphon Fluidisierungsgas in den folgenden Reaktor (vergleiche Splitfaktoren L_{PL1} = 1, L_{PL2} = 0). Bei einer FR Fluidisierung von 14 l/min und einer Siphon 1 Fluidisierung von 0,5 l/min sind das 3,57%. Im AR bei 100-200 l/min und ebenfalls 0,5 l/min im Siphon 2 ergeben sich 0,5-0,25%.

Das Fluidisierungsgas hat wegen des geringen Volumenstromes keinen Stripp Effekt. Durch Erhöhung der Fluidisierung wird die Gasgeschwindigkeit kleiner bis sie schließlich die Richtung ändert und mitgeschlepptes Gas ausstrippt.

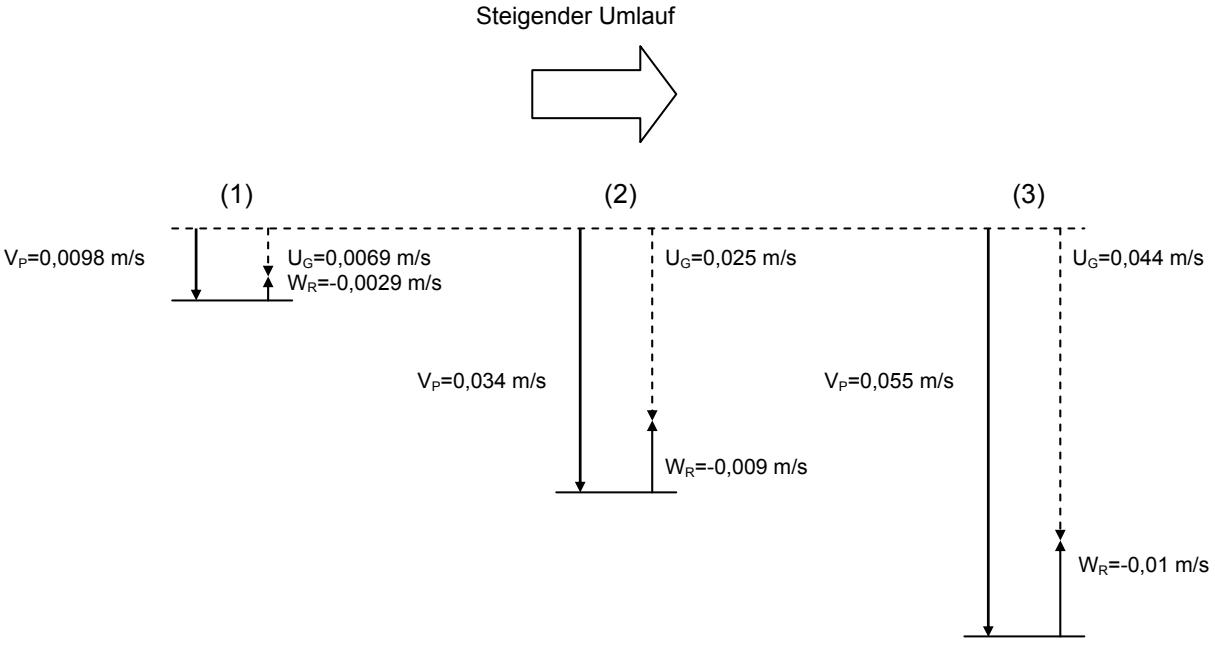


Abbildung 4-20: Schematische Darstellung der Gas- und Feststoffströme in einem Siphon für eine Porosität ε = 0,4 und 0,5 l/min Fluidisierung

5 Basic Design einer Industrieanlage

Aufbauend auf den erhaltenen Messdaten sollen verschiedene Anlagenkonzepte diskutiert, und die Hauptabmessungen einer Industrieanlage abgeschätzt werden.

Konzept
Wie sich in den zahlreichen Versuchen und den daraus gewonnenen Messdaten gezeigt hat, erfüllt das von uns verwendete Anlagenkonzept alle an ein CLC-System gestellten Anforderungen. Die geforderten Umläufe von 4,7 kg/m²·s können problemlos erreicht und die Leckagen in Grenzen gehalten werden. Die notwendigen Verweilzeiten können ebenfalls eingehalten werden. Aufbauend darauf können daher die Grundabmessungen einer Industrieanlage bestimmt werden.

5.1 Anforderungen an Großanlagen

Eine Industrieanlage soll bei größtmöglicher Leistung so klein wie möglich gebaut werden, weil dies v.a. immer auch direkt mit Anschaffungskosten verbunden ist Vergrößert man ein Labormodell bei gleichbleibenden Fluidisierungsgeschwindigkeiten auf die Größe einer Industrieanlage, so werden die Abmessungen dieser unverhältnismäßig groß. Man muss daher die Geschwindigkeiten im AR und FR entsprechend erhöhen, um bei gleicher Leistung die Anlagengröße zu vermindern.

Ein weiteres Problem stellt der Teillastbetrieb von Industrieanlagen dar. Die Temperatur soll konstant gehalten werden, um die Reaktionsbedingungen in den Reaktoren konstant zu halten. Die Dampferzeugungsrate, im Falle der Energieumsetzung in einem Clausius-Rankine Prozess, muss jedoch verringert werden. Dies kann einerseits durch einen kleineren Wärmeübergangskoeffizienten (kleinere Gasgeschwindigkeiten) und andererseits mittels kleinerer Wärmeaustauschflächen bewerkstelligt werden.
Die Anlagenleistung wird über den Brennstoffeintrag und damit die Fluidisierungsgeschwindigkeit im FR bestimmt. Weniger Brennstoff bedeutet weniger Sauerstoffbedarf und gemäß Gleichung 2-30 ist bei gleicher Konversionsdifferenz ΔX auch ein geringerer Umlauf notwendig. Dadurch wird aber auch der Wärmetransport zwischen AR und FR verringert. (Die Reaktion im AR ist meist exotherm, wogegen jene im FR meist endotherm ist, weshalb ein Wärmeausgleich zwischen AR und FR stattfinden muss). Es gibt nun mehrere Möglichkeiten um das zu realisieren, woraus sich verschiedene Anlagenkonzepte ergeben.

5.2 Anlagenkonzepte

AR und Riser übereinander angeordnet:

Diese Anordnung entspricht dem in diesem Projekt verwendeten Modell (siehe Abbildung 3-2 und Abbildung 3-3). Die Wärmeentnahme kann aus dem AR mittels Membranwänden und Tauchheizflächen erfolgen, wobei diese aber sehr starker Erosion ausgesetzt sind.
Der Wärmeübergangskoeffizient und der Wärmeausgleich zwischen den Reaktoren werden über die Geschwindigkeit und den Umlauf geregelt. Dadurch ergibt sich für diesen Anlagentyp eine beschränkte Flexibilität im Teillastbetrieb, da der Umlauf nur über die AR/Riser-Fluidisierung einstellbar ist. Eine Veränderung dieser bedingt aber ein unterschiedliches Luftverhältnis λ, welches wiederum die Abgasverluste ändert.
Dieses Konzept ist somit besser für Laboranlagen geeignet, da es im Aufbau einfacher ist. Das für Industrieanlagen bevorzugte System ist das Folgende.

AR und Riser getrennt

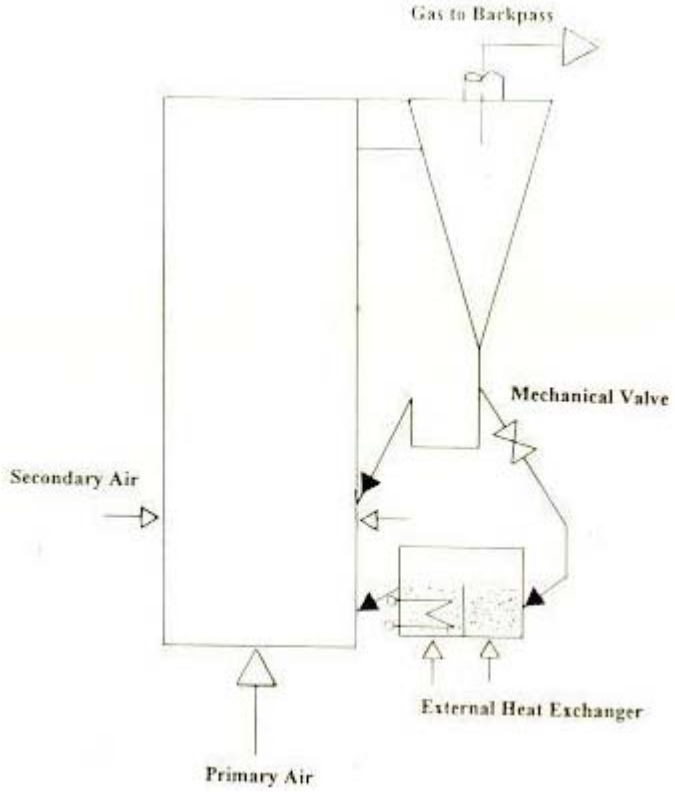


Abbildung 5-1:Schema einer Industrieanlage mit getrenntem AR und Riser [Grace et al;1997]

Das Konzept basiert auf einem CFB-System mit externem Wärmetauscher, wie es häufig zur Verbrennung von Kohle in zirkulierenden Wirbelschichten angewandt wird. (Abbildung 5-1). Im Vergleich zu dieser Abbildung, werden anstatt des externen Wärmetauschers der AR und FR angeordnet. AR und Riser werden hier als eigene

Reaktoren getrennt betrieben. AR und FR sind nebeneinander angeordnet und mit gleicher Geschwindigkeit im blasenbildenden Regime fluidisiert. Sie müssen allerdings um die Leckagen zu minimieren, durch einen Siphon getrennt werden. Über den am Zyklondowncomer angebrachten Siphon kann das Bettmaterial mit Hilfe einer Regelmöglichkeit in den FR und AR oder direkt in den Riser geleitet werden. Dadurch weist die Anlage eine bessere Regelbarkeit als die oben angeführte Konfiguration im Teillastbetrieb auf, weil der Umlauf durch den AR und FR zusätzlich zur Riserfluidisierung auch mittels Bypass geregelt werden kann.

Das sich daraus ergebende Konzept ist in Abbildung 5-2 dargestellt.

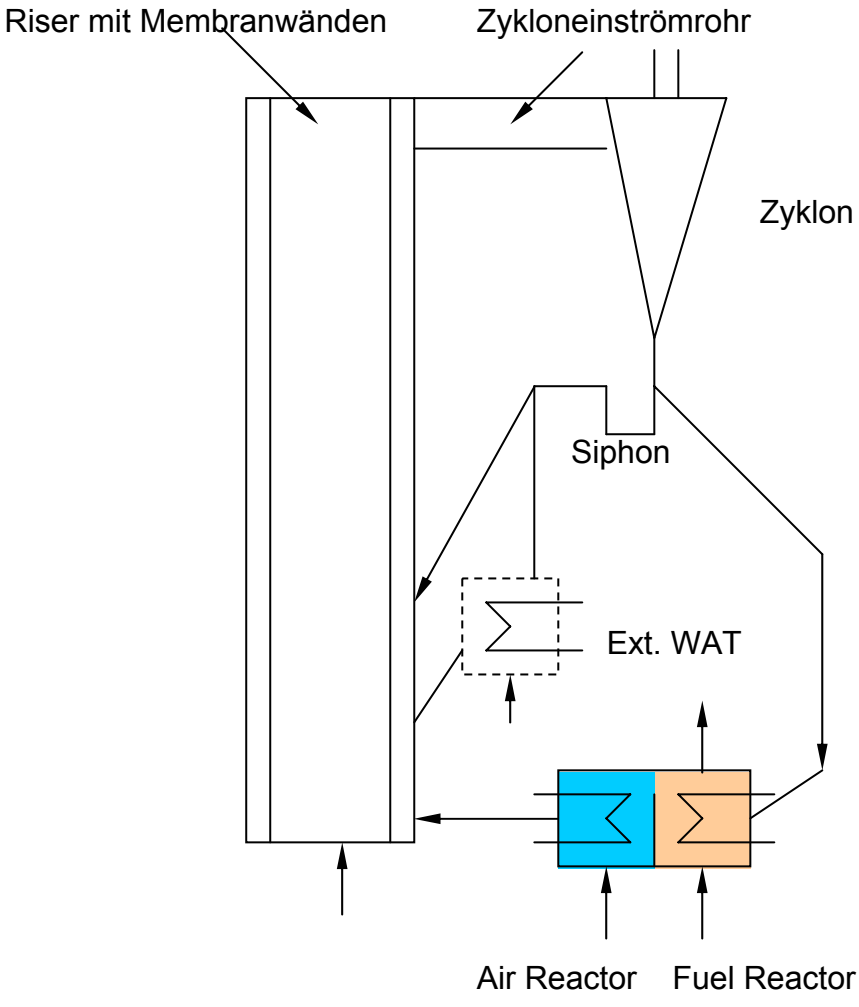


Abbildung 5-2: Modifizierte Darstellung

Es bestehen grundsätzlich mehrere Möglichkeiten dem System Wärme zu entnehmen und so die Temperaturen in AR und FR zu beeinflussen. Diese Varianten sind in Abbildung 5-2 ebenso dargestellt und Vor- und Nachteile werden im Folgenden diskutiert:

1. *Tauchheizflächen im AR und Membranwände im Riser*: Der Vorteil dieser Variante ist, dass ein zusätzlicher externer Wärmetauscher eingespart werden kann. Vorstellbar ist, dass diese Konfiguration für Partikel mit endothermer Reaktion im FR Verwendung findet. Aus Untersuchungen der Massen- und Energiebilanzen [Navarro; 2002] ist bekannt, dass dadurch die Reaktionstemperaturen in beiden Reaktoren gut geregelt werden können.

2. *Tauchheizflächen im FR*: Wenn das aktive Metal in den Sauerstoffträgern sowohl bei der Reduktion wie auch bei der Oxidation Energie freisetzt, können Heizflächen direkt im FR die Temperaturregelbarkeit positiv beeinflussen.

3. *Externer Wärmeaustauscher mit Tauchheizflächen*: diese Möglichkeit zeichnet sich durch sehr gute Regelbarkeit aus, da der Wärmeübergangskoeffizient beliebig einstellbar ist. Dabei wird der Bypassstrom gesplittet und ein Teil davon über den Wärmeaustauscher geführt. Durch geringere Geschwindigkeiten in dieser Wirbelschicht kann auch die Erosion der Heizflächen vermindert werden. Von Nachteil sind allerdings die höheren Investitionskosten.

Der aus dem Zyklondowncomer-Siphon austretende Strom wird, wie bereits oben erwähnt, aufgeteilt und in den FR und den Riser geleitet. Bei Verwendung eines externen Wärmeaustauschers wird dieser Bypassstrom abermals gesplittet und über den WT geführt.

Verhinderung der Gasvermischung:
Zwischen FR und AR muss ein Siphon eingebaut werden, der ähnlich wie die im Kaltmodell verwendeten aufgebaut ist und funktioniert. Der wesentlichste Unterschied besteht im Rechteckquerschnitt statt des üblichen Kreisquerschnittes. Die Betthöhe wird in beiden Reaktoren durch die Überlaufwehre vorgegeben.

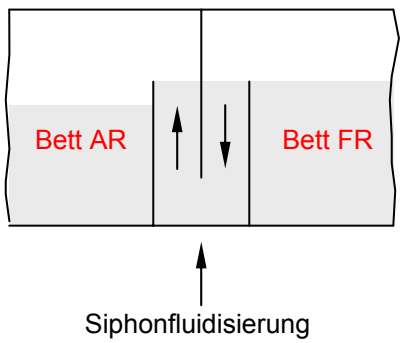


Abbildung 5-3: Skizze des Siphons zwischen FR/AR

5.3 Scale up von Heißmodell auf 2 MW Demoanlage

Die Hauptabmessungen der vorher beschriebenen Konzepte sollen hier kurz gegenübergestellt werden.

Bei den Berechnungen wurde von einer konstanten Gasverweilzeit im AR (Vorgabewert) und FR, und konstantem Lambda ausgegangen. Die geometrischen Abmessungen des Heißmodels unterscheiden sich um den Faktor 0,56 vom Labormodell (in den Versuchen verwendetes Modell).

Die FR-Geschwindigkeit in beiden 2 MW Modellen ist 10-mal größer gewählt als die im Labormodell. Das ergibt sich aus der Forderung die Abmessungen in Grenzen zu halten. Die AR-Geschwindigkeit beim Model *AR/Riser gemeinsam*, sowie beide Risergeschwindigkeiten wurden ebenfalls gewählt. Der AR-Durchmesser ist im Vergleich zum Modell mit getrennten Reaktoren aufgrund des 10 fach größeren Volumenstromes größer.

	Labormodell	Heissmodell	AR/Riser gemeinsam	AR/Riser getrennt	
Leistung		0.005	2.00	2.00	MW
Partikelgröße	65	100	200	200	µm
Riser-Geschwindigkeit	1.73	2.31	5.00	5.00	m/s
Siphon-Geschwindigkeit	0.01	0.013	0.05	0.05	m/s
Geom. Scalefaktor		1	20	20	
Luftverhältnis Lambda		1	1	1	
Temperaturen nm AR und FR	25.00	950	950	950	°C
FR-Geschwindigkeit	0.04	0.05	*0.50*	*0.50*	m/s
AR-Geschwindigkeit	0.45	0.60	*1.50*	*0.38*	m/s
Normdichte Brennstoff (Methan)		0.71	0.71	0.71	kg/m³
Normdichte Luft	1.29	1.29	1.29	1.29	kg/m³
Heizwert Methan		5.00E+07	5.00E+07	5.00E+07	J/kg
Spezifischer Sauerstoffbedarf		4.00	4.00	4.00	kg/kgfuel
BRENNSTOFF					
Brennstoff-Massenstrom		0.0001	0.04	0.04	kg/s
Brennstoff-Volumenstrom (950°C)		0.0006	0.25	0.25	m³/s
SAUERSTOFF/LUFT					
Sauerstoffbedarf (Lambda =1)		0.0004	0.16	0.16	kg/s
Gesamtluftbedarf (Lambda =1)		0.0017	0.70	0.70	kg/s
Gesamtluftbedarf (Lambda =1,2)		0.0021	0.83	0.83	kg/s
Gesamtluftvolumenstrom		0.0016	2.90	2.90	m³/s
Riser Luftmassenstr. (90% von Gesamt)			0.82	0.82	kg/s
Riser Luftvolumenstr. (90% von Gesamt)			2.84	2.84	m3/s
AR Luftmassenstr. (10% von Gesamt)			0.08	0.08	kg/s
AR Luftvolumenstr. (10% von Gesamt)			0.29	0.29	m³/s
AR					
AR Volumenstrom	0.0024	0.01	2.90	0.29	m³/s
AR-Gasverweilzeit	1.5	1.5	1.5	1.5	s
AR-Querschnitt	0.0053	0.02	1.93	0.75	m²
AR Durchmesser	*0.0820*	*0.15*	*1.57*	*0.98*	*m*
AR-Betthöhe			*2.37*	*1.44*	m
RISER					
Riser Volumenstrom	0.0024	0.0102	2.84	2.84	m³/s
Riser-Querschnitt	0.0014	0.0044	0.57	0.57	m²
Riser Durchmesser	*0.0420*	*0.0750*	*0.85*	*0.85*	*m*
FR					
FR-Volumenstrom	0.0002	0.0009	0.38	0.38	m³/s
FR-Gasverweilzeit	0.55	0.74	0.74	0.74	s
FR-Querschnitt	0.0055	0.0177	0.75	0.75	m²
FR Durchmesser	*0.0840*	*0.15*	*0.98*	*0.98*	*m*
FR Betthöhe	0.0550	0.0982	0.92	0.92	m

Tabelle 5-1: Gegenüberstellung von Anlagen verschiedener Leistung

Mit den in Tabelle 5-1 errechneten Geschwindigkeiten und den Gaseigenschaften kann das Fluidisierungsdiagramm für das Konzept *AR/Riser getrennt* für d_p=200µm und 100% Methan als Brennstoff erstellt werden (siehe Abbildung 5-4). Als Siphonfluidisierung wird Wasserdampf verwendet. Man sieht dass die Geschwindigkeit im FR nahe an der Sinkgeschwindigkeit liegt, es ist daher notwendig interne Zyklone einzubauen.

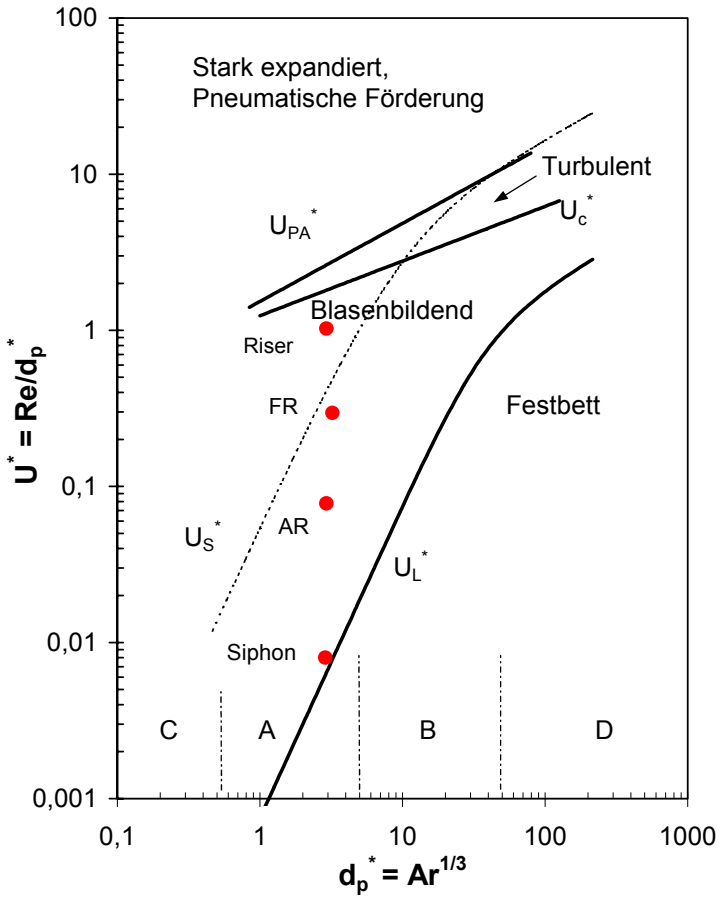


Abbildung 5-4: Fluidisierungsdiagramm der Industrieanlage

6 Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Diplomarbeit wurde ein Kaltmodell einer extern zirkulierenden Wirbelschicht eines Chemical Looping Combustion Prozesses aufgebaut, und die Fluiddynamik untersucht.
Die Messwerterfassung und Anlagensteuerung erfolgte über einen Messrechner. Als Hardware wurde ein Feldbussystem von National Instruments® (FieldPoint™) verwendet. Die dazu erforderliche Software konnte in LabVIEW™ (National Instruments) erstellt werden. Des weiteren wurde ein Gaskreislaufsystem für He/N_2-Rezirkulation aufgebaut, und erfolgreich in Betrieb genommen.

Bei den durchgeführten Messungen wurden verschiedenste Parametervariationen durchgeführt. Neben Betriebsparametern, wie Fluidisierungsgeschwindigkeiten und Bettmassen, wurden auch konstruktive Änderungen vorgenommen, um die Abhängigkeiten von Feststoffumlauf und Gasleckage zwischen den Reaktoren zu bestimmen.

Die im Riser gemessenen Druckprofile ergaben fallenden Druck mit steigender Höhe und eine Verschiebung des gesamten Druckprofils zu höheren Drücken bei steigender AR-Fluidisierungsgeschwindigkeit. Dies bedeutet, dass die Feststoffverteilung im Riser verändert wird und bei höheren Gasgeschwindigkeiten im Riser der Bettmaterialanteil im Bereich des eigentlichen AR genauso wie die mittlere Partikelverweilzeit in diesem Bereich geringer wird.

Beim Bettmaterialumlauf konnte eine Abhängigkeit von der Risergeschwindigkeit und der Bettmasse festgestellt werden, wobei der geforderte Wert von 4,7 kg/m²·s erreicht werden konnten und ein stabiler Betrieb bis 50 kg/m²·s möglich war. Die Konfigurationen mit verkürztem Riser und jene mit Schwerkraftabscheider ergaben die erwarteten höheren Umläufe als die Standardkonfiguration mit Zyklon.

Die Absolutwerte der Gasvermischung zwischen den Reaktionsbereichen entsprechen den Erwartungen und sind akzeptabel. Es wurde eine Proportionalität der Gasleckagen (beim Standardbetriebspunkt 0,2 l/min) zum Umlauf ermittelt. Ein Zusammenhang zwischen FR-Fluidisierungsgeschwindigkeit bzw. Druckdifferenz FR/Downcomer und Leckage konnte nicht bestätigt werden.
Als effektive Maßnahme zur Reduktion wurde die Erhöhung der Siphon-Fluidisierungsgeschwindigkeit festgestellt. Durch einen Strippeffekt des Feststoffmaterials im Bereich der Siphone kann einen deutliche Verringerung der Leckage erzielt werden

Das Basic Design einer Industrieanlage zeigt, dass eine Industrieanlage im Vergleich zum Labormodell mit höheren Fluidisierungsgeschwindigkeiten betrieben werden muss, um die Abmessungen zu begrenzen. Weiters bestätigen diese Abschätzungen, dass das Konzept der Laboranlage für eine industrielle Anwendung im großen Maßstab aufgrund der beschränkten Regelbarkeit im Teillastbetrieb nur bedingt geeignet ist. Ein Konzept, dass diesen Anforderungen genügt ist in dieser Arbeit beschrieben und erste Hauptabmessungen und Betriebspunkte wurden festgelegt.

7 Nomenklatur

Formelzeichen

A	Querschnittsfläche	[m²]
Ar	Archimedes Zahl	[-]
a	Stöchimetrischer Faktor	[-]
b	Stöchimetrischer Faktor	[-]
C	Sauerstoffträgerkapazität	[-]
C_{ox}	Sauerstoffträgerkapazität im AR	[-]
C_{red}	Sauerstoffträgerkapazität im FR	[-]
C_1	Konstante	[-]
C_2	Konstante	[-]
CO_2	Kohlendioxid	[mol]
C_aH_{2b}	Kohlenwasserstoff	[mol]
c_{AR0}	Eingangs Volumenanteil Tracer im AR	[-]
c_{AR2}	Ausgangs Volumenanteil Tracer im AR	[-]
$c_{AR2,1-4}$	Ausgangs Volumenanteil Tracer im AR (Aufgabepunkte 1-4)	[-]
c_{FR0}	Eingangs Volumenanteil Tracer im FR	[-]
c_{FR2}	Ausgangs Volumenanteil Tracer im FR	[-]
$c_{FR2,1-4}$	Ausgangs Volumenanteil Tracer im FR (Aufgabepunkte 1-4)	[-]
c_{PL10}	Eingangs Volumenanteil Tracer im Siphon 1	[-]
c_{PL20}	Eingangs Volumenanteil Tracer am Siphon 2	[-]
c_w	Widerstandsbeiwert	[-]
DMD_u_{ex}	DMD-Ausgangsspannung	[V]
d_i	Partikeldurchmesser der Klasse i	[m]
d_O	Siebdurchmesser	[m]
d_p	Mittlerer Partikeldurchmesser	[m]
d_p^*	Dimensionsloser Partikeldurchmesser	[-]
d_{pi}	Mittlerer Partikeldurchmesser der Klasse i	[m]
d_S	Oberflächenbezogener Durchmesser	[m]
d_{SV}	Oberflächen/Volumen bezogener Durchmesser	[m]
$d_{t,50}$	Trennkorndurchmesser	[m]
d_V	Volumenbezogener Durchmesser	[m]

D	Durchmesser	[m]
Fr	Froude Zahl	[-]
G_S	Spezifischer Bettmaterialumlauf	[kg/m²·s]
g	Erdbeschleunigung	[m/s²]
H_20	Wasser	[mol]
ΔH_C	Luftsauerstoff Oxidationsenthalpie	[J]
ΔH_{OX}	Partikel Oxidationsenthalpie	[J]
$\Delta H_{\mathrm{Re}\,d}$	Partikel Reduktionsenthalpie	[J]
h	Betthöhe	[m]
Δh	Höhendifferenz	[m]
K	Konstante	[-]
L	Länge	[m]
$L_{A,F}$	Anteil der AR-Fluidisierung in den FR (1 bedeutet 100% gehen in den FR)	[-]
$L_{F,A}$	Anteil der FR-Fluidisierung in den AR (1 bedeutet 100% gehen in den AR)	[-]
L_{PL1}	Anteil der Siphon 1-Fluidisierung in den FR (1 bedeutet 100% gehen in den FR)	[-]
L_{PL2}	Anteil der Siphon 2-Fluidisierung in den FR (1 bedeutet 100% gehen in den FR)	[-]
M	Masse eines einzelnen Partikels	[kg]
Me	Metall	[mol]
MeO	Metalloxid	[mol]
$\dot{M}_S$	Bettmaterial-Umlauf vom AR in den FR	[g/s]
$M_{S,abg}$	Im Partikelfilter abgeschiedenes Bettmaterial	[g]
$M_{S,umg}$	Gesamte umgelaufene Bettmasse	[g]
$M_{S,ret}$	Bettmaterial-Umlauf vom FR in den AR	[g/s]
$M_{f,ox}$	Molmasse Sauerstoffträger im völlig oxidierten Zustand	[g/mol]
$M_{f,red}$	Molmasse Sauerstoffträger im völlig reduzierten Zustand	[g/mol]
$M_{(t)}$	Tatsächliche Molmasse im teilweise oxidierten Zustand	[g/mol]
m	Gesamte Partikelmasse	[kg]
$m_{bett,ox}$	Bettmasse im AR	[g]
$m_{bett,red}$	Bettmasse im FR	[g]
$\dot{m}_O$	Sauerstoffmassenstrom	[g/s]
N_i	Partikelanzahl der Klasse i	[-]
O_2	Sauerstoff	[mol]

Offset	Spannungsabweichung	[V]
$p_{Downcomer}$	Druck im Zyklondowncomer	[Pa]
p_{FR}	Druck im Zyklondowncomer	[Pa]
p_{Kal}	Kalibrierter Ist-Druck	[Pa]
p_{U}	Druck am U-Rohrmanometer	[Pa]
Δp	Druckabfall	[Pa]
Re	Reynolds Zahl	[-]
R_O	Sauerstoffverhältnis des Sauerstoffträgers	[-]
S	Kugeloberfläche	[m²]
R_r	Gas Umlaufverhältnis	[-]
r_{ox}	Konversionsrate im AR	[1/s]
r_{red}	Konversionsrate im FR	[1/s]
U	Leerrohrgeschwindigkeit	[m/s]
U^*	Dimensionslose Leerrohrgeschwindigkeit	[-]
U^*_c	Dimensionslose Geschwindigkeit bei der turb. WS beginnt	[m/s]
U^*_L	Dimensionslose Lockerungsgeschwindigkeit	[m/s]
U^*_s	Dimensionslose Sinkgeschwindigkeit	[m/s]
U^*_{SE}	Dimensionslose Partikelaustragsgeschwindigkeit	[m/s]
U_L	Lockerungsgeschwindigkeit	[m/s]
U_S	Sinkgeschwindigkeit	[m/s]
u_{AR}	Fluidisierungsgeschwindigkeit AR	[m/s]
u_{FR}	Fluidisierungsgeschwindigkeit FR	[m/s]
u_{ein}	MFC-Eingangsspannung	[V]
V	Kugelvolumen	[m³]
V_B	Gesamtes Bettvolumen	[m³]
$\dot{V}_{AR}$	Volumenstrom AR	[dm³/min]
$\dot{V}_{AR0}$	Eingangs Volumenstrom AR	[m³/s]
$\dot{V}_{AR2}$	Ausgangs Volumenstrom AR	[m³/s]
$\dot{V}_{FR}$	Volumenstrom FR	[dm³/min]
$\dot{V}_{FR0}$	Eingangs Volumenstrom FR	[m³/s]
$\dot{V}_{FR2}$	Ausgangs Volumenstrom FR	[m³/s]
$\dot{V}_{kal}$	Kalibrierter Ist-Volumenstrom	[dm³/min]
$\dot{V}_{PL10}$	Eingangs Volumenstrom Siphon 1	[m³/s]

$\dot{V}_{PL20}$	Ausgangs Volumenstrom Siphon 1	[m³/s]
V_p	Partikelvolumen inklusive Poren	[m³]
v_G	Gasgeschwindigkeit	[m/s]
v_p	Partikelgeschwindigkeit	[m/s]
v_R	Relativgeschwindigkeit	[m/s]
X	Konversion	[-]
X_{ox}	Mittlere Konversion im AR	[-]
X_{red}	Mittlere Konversion im FR	[-]
ΔX	Konversionsdifferenz	[-]
x	MFC-Meßwert	[dm³/min]
$x_{O_2,ex}$	Volumenanteil Sauerstoff im AR Abgas	[-]
$x_{CH_4,ex}$	Volumenanteil CH_4 im FR Abgas	[-]
$x_{CO_2,ex}$	Volumenanteil CO_2 im FR Abgas	[-]
$x_{CO,ex}$	Volumenanteil CO im FR Abgas	[-]
x_i	Gewichtsfraktion der Klasse i	[-]
x_p	DMD-Ausgangsspannung	[V]
x_U	MFC-Ausgangsspannung	[V]
x_V	MFC-Volumenstrom Vorgabewert	[dm³/min]
y	MFC-Einstellwert	[dm³/min]

Griechische Buchstaben

ε	Porosität	[-]
ε_L	Porosität am Lockerungspunkt	[-]
γ_{ox}	Gasausbeute im AR	[-]
γ_{red}	Gasausbeute im FR	[-]
η	Abscheiderwirkungsgrad	[-]
λ	Luftverhältnis	[-]
μ	Dynamische Viskosität	[Pa·s]
ρ_b	Schüttdichte	[kg/m³]
ρ_g	Gasdichte	[kg/m³]
ρ_p	Partikeldichte	[kg/m³]
σ	Standardabweichung	[µm]
ψ	Formfaktor	[-]
Φ	Spherizität	[-]

8 Literatur

[Anheden et al; 1995] Anheden M., Näshol A.S., Svedberg G.; **"Chemical-looping combustion – efficient conversion of chemical energy in fuels into work"**; Proceedings of intersociety energy conversion engineering conference; 1995; 30; p. 75-81.

[Anheden, Svedberg; 1998] Anheden M., Svedberg G.; **„Exergy Analysis of chemical-looping combustion systems"**; Energy Convers. Mgmt; 1998; 39; p. 1967-1980.

[Bi, Grace; 1995] Bi. H. T., Grace J. R.; **"Flow regime diagrams for gas-solids fluidization and upward transport"**; Int. J. Multiphase Flow; 1995; 21; p. 1229-1236.

[Copeland et al; 2002] Copeland R.J., Alptekin G, Cesario M., Gershanovich Y.; **"Sorbent energy tranfer system (SETS) for CO_2 separation with high efficiency"**, presented on March 7, 2002 at the "Clearwater Conference".

[Fournol et al; 1973] FournolA. B., Bergougnou M.A., Baker C. G. J.; **"Solid Entrainment in a Large Gas Fluidised Bed"**; Can. J. Chem. Eng.; 1973; 51; p. 401-404.

[Grace; 1982] Grace J.R.;**"Fluidized Beds Hydrodynamics"**; Handbook of Multiphase Systems, G. Hetsroni (Ed.), Washington Hemisphere Publishing; Washington; 1982.

[Grace; 1986] Grace J.R.; **"Contacting Modes and Behaviour Classification of Gas-Solid and other Two-Phase Suspensions"**; Can. J. Chem. Eng.; 1986; 64; p. 353-363.

[Grace et al; 1997] Grace J. R., Avidan A., Knowlton T.;**"Circulating Fluidized Beds"**; Blackei Academic & Professional; 1997.

[Hartge et al; 1986] Hartge E. U., Li Y., Werther J.; **„Analysis of the local flow structure of the two phase flow in a fast fluidized bed"**; Circulating Fluidized Bed Technology (ed. Basu P.); Pergamon Press; Oxford; 1986; p 153 -160

[Herzog; 1999] Herzog H.J.; **„The economics of CO_2 capture"**; Proceedings of fourth international conference on greenhouse gas control technologies, London; Pergamon Press; 1999; p. 101-6.

[Hofbauer; 1996] Hofbauer H.; **„Unterlagen zur Vorlesung Wirbelschichttechnik"**; Vorlesungsskriptum zu LVA-Nr.:159 220; Institut für Verfahrenstechnik, Umwelttechnik und Technische Biowissenschaften; TU-Wien; 1996.

[Höflinger; 1995] Höflinger W.; **„Mechanische Verfahrenstechnik I – LVA"**; Vorlesungsskkriptum zu LVA-Nr.: 159 478; Institut für Verfahrenstechnik, Umwelttechnik und Technische Biowissenschaften; TU-Wien; 1995.

[Hugi; 1997] Hugi E.; **"Auslegung hochbeladener Zyklonabscheider für zirkulierende Gas/Feststoff-Wirbelschicht-Reaktorsysteme"**; Diss. ETH Nr. 12171; 1997.

[Ishida, Jin; 1994] Ishida M., Jin H.; **"A novel combustor based on chemical-looping reactions and its reaction kinetics"**; Journal of Chemical Engineering of Japan; 1994; 27; p. 296-301.

[Ishida, Jin; 1997] Ishida M., Jin H.; **"CO_2 recovery in a power plant with chemical-looping combustion"**; Energy Convers. Mgmt; 1197; 38; p. 187-192.

[Jin et al; 1999] Jin H., Okamota T., Ishida M. ; **« Development of a Novel chemical-looping combustion : Synthesis of a solid looping material $NiO/NiAl_2O_4$"**; Ind. Eng. Chem. Res.; 1999; 38; p. 126-132.

[Jin, Ishida; 2001] Jin H., Ishid M.; **"Reactivity study on a novel hydrogen fuelled Chemical-looping combustion"**; Hydrogen Energy; 2001; 26; p. 889-894.

[Kunii, Levenspiel; 1991] Kunii D., Levenspiel O.; **„Fluidisation engineering, second edition"**; Butterworth-Heinemann; Boston; 1991.

[Lyngfelt, Leckner; 2000] Lyngfelt A., Leckner B.; **"Technologies for CO_2 separation"**; Lyngfelt A, Azar C, editors; Minisymposium on CO_2 capture and storage, Göteborg; Chalmers University of Technology of Göteborg; 2000; p. 25-35.

[Lyngfelt et al; 2001] Lyngfelt A., Leckner B., Mattisson T.; **"a fluidized-bed combustion process with inherent CO_2 separation; application of chemical-looping combustion"**; Chemical Engineering Science; 2001; 56; p. 3101-3113.

[Mattisson et al; 2001] Mattisson T., Lyngfelt A., Cho P. ; **"The use of iron oxide as an oxygen carrier in chemical-looping combustion of methane with inherent separation of CO_2"**; Fuel; 2001; 80; p. 1953-1962.

[Mitterlehner; 1999] Mitterlehner J.; **"Basic Design einer Großanlage zur Vorwärmung und Teilreduktion von LD-Stäuben in der Wirbelschicht"**; Diplomarbeit; Institut für Verfahrenstechnik, Umwelttechnik und technische Biowissenschaften; TU-Wien; 1999.

[Navarro; 2002] Navarro P.; **"Mass- and energy balances of a novel power plant concept"**; Diplomarbeit; Institut für Verfahrenstechnik, Umwelttechnik und technische Biowissenschaften; TU-Wien; 2002.

[Richter, Knoche; 1983] Richter H.J., Knoche K.F.; **„Reversibility of combustion processes"**; ACS Symposium Series; Washington DC; 1983; 235; p. 71-85.

[Stieß; 1994] Stieß M.; **„Mechanische Verfahrenstechnik 2"**; Springer; 1994.

[CO_2 capture project, http://www.co2captureproject.org]

[CO_2 and global temperature change] CO_2 & Temperature sources, *http://www.whole-systems.org/co2.html*]

[International Energy Agency, *www.worldenergyoutlook.org/weo/pubs/weo2002/WEO21.pdf*]

[International Energy Agency, www.iea.org/statist/keyworld2002/key2002/keystats.htm]

9 Anhang

Hier ist eine genauere Beschreibung der zur Messwerterfassung und Anlagensteuerung verwendeten Komponenten zu finden.

9.1 Komponenten FieldPoint-System

FP-TB-1 Terminal Bases

32 Klemmen (8 Kanäle x 4 Anschlüsse) Anschluss-Sockel an den die MFC und DMD angeschlossen, und die Module aufgesteckt werden. Sie stellen auch die Verbindung zwischen den Modulen her.
Es stehen außerdem zwei *V* und zwei *C* Klemmen zur Verfügung, an die eine externe Spannungsversorgung angeschlossen werden kann.

FP-AI-100 Analog Input Modules;

8 Kanal, 12–Bit Eingabemodul zur Erfassung von Spannungen V_{in} oder Strömen I_{in}. Es ist nicht möglich V_{in} und I_{in} gleichzeitig einzulesen. Tabelle 9-1 zeigt die Klemmenbelegung am Terminal Base für ein FP-AI-100 Modul.
V_{sup} dient zur Spannungsversorgung der angeschlossenen Messumformer (z.B.: DMD). Sie sind intern mit der *V* Klemme des Terminal Base verbunden.
COM ist der common Anschluss für V_{in}, I_{in} und V_{sup}. Er ist ebenfalls intern mit der *C* Klemme des Terminal Base verbunden.

	Klemmennummer			
Kanal	**V_{in}**	**I_{in}**	**V_{sup}**	**COM**
0	1	2	17	18
1	3	4	19	20
2	5	6	21	22
3	7	8	23	24
4	9	10	25	26
5	11	12	27	28
6	13	14	29	30
7	15	16	31	32

Tabelle 9-1: Klemmenbelegung FP-AI-100

FP-AO-210 Analog Output Modules

8 Kanal, 10 V-Ausgabemodul zur Ausgabe von Spannungen;
V_{sup} und *COM* haben die gleichen Funktionen und sind gleich verschaltet wie bei FP-AI-100

Kanal	Klemmennummer		
	V_{out}	V_{sup}	COM
0	1	17	2, 18
1	3	19	4, 20
2	5	21	6, 22
3	7	23	8, 24
4	9	25	10, 26
5	11	27	12, 28
6	13	29	14, 30
7	15	31	16, 32

Tabelle 9-2: Klemmenbelegung FP-AO-210

FP-1000 Network Module

Ermöglicht die Kommunikation zwischen den Input/Output-Modulen und dem Messcomputer; sie erfolgt über eine serielle RS-232 Schnittstelle.

FP –PS-4 Field Point Power Supply

24V Spannungsversorgung für die Input/Output- und das Network Module.

Die Module sind wie folgt auf eine DIN-Schiene montiert:

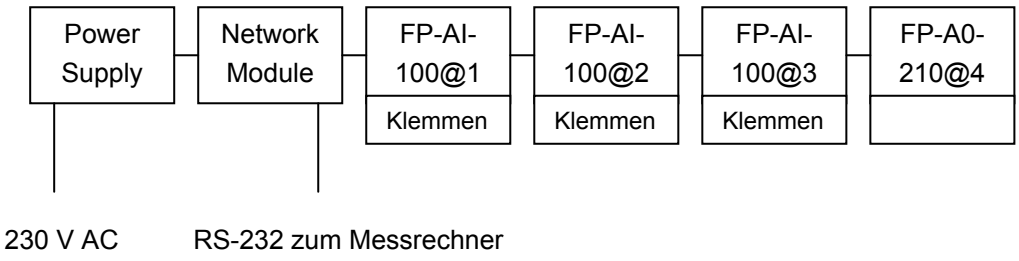


Abbildung 9-1: Skizze FieldPoint™ Komponenten

9.2 Messensorik

9.2.1 DMD

Die 19 DMD werden an FP-AI-100@1 und 2 Kanäle 0-7 und FP-AI-100@3 Kanäle 5-7 angeschlossen. Die Spannungsversorgung erfolgt mit +15 VDC, die dem Trafo zur Spannungsversorgung der MFC entnommen ist, und an die *V* und *C* Klemmen von FPAI100@1 angeschlossen ist, die wiederum mit FP-AI-100@2 und 3 verbunden ist. Die *COM* Anschlüsse aller DMD sind zusammengeführt und nur and einen *COM* Anschluss eines FP-AI-100 angeschlossen.
In der nächsten Abbildung ist das Anschlussschema für eine DMD an ein FP-AI-100 dargestellt.

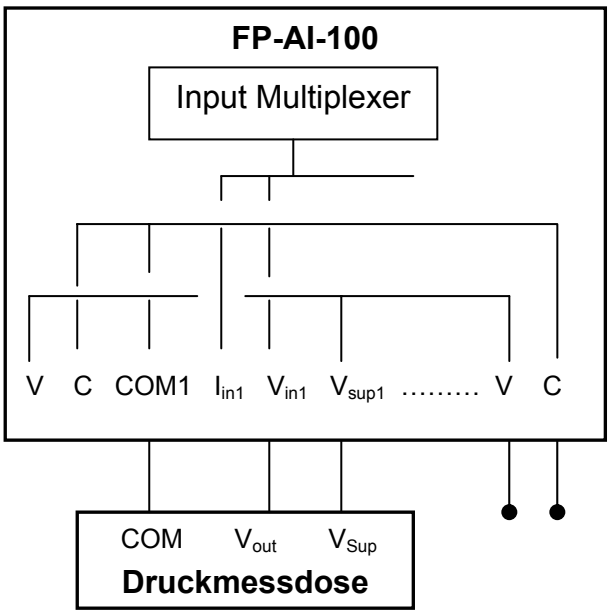


Abbildung 9-2: Anschluss einer DMD an ein FP-AI-100

9.2.2 MFC

Die MFC sind mit einem 15-poligen Sub D Stecker versehen, der folgende Pinbelegung aufweist.

PIN	Belegung
1	MKS Testpunkt
2	*Durchfluss Ausgangssignal (0 bis + 5 VDC)*
3	Ventil schließen (TTL Low)
4	Ventil öffnen (TTL Low)
5	*COM Anschluss der Versorgungsspannung*
6	*- 15 VDC*
7	*+ 15 VDC*
8	*Setpoint (o bis + 5 VDC)*
9	Keine Verbindung
10	Optionaler Eingang
11	COM Anschluss des Analogsignals
12	COM Anschluss *des Analogsignals*
13	Keine Verbindung
14	Keine Verbindung
15	Erdung des Gehäuses

Tabelle 9-3: Pinbelegung des 15-poligen Sub D Steckers

Die Sub D Stecker werden an je eine 15 polige Sub D Verteiler Buchse geführt, an der die Pins einzeln abgenommen werden können. An dieser werden dann die Spannungsversorgung und die FieldPoint Module angeschlossen. Da die MFC eine

Spannungsversorgung von + 15 VDC und – 15 VDC benötigen, muss ein Labortransformator mit zwei voneinander unabhängigen Kanälen verwendet werden. Das Anschlussschema ist der folgenden Abbildung zu entnehmen.

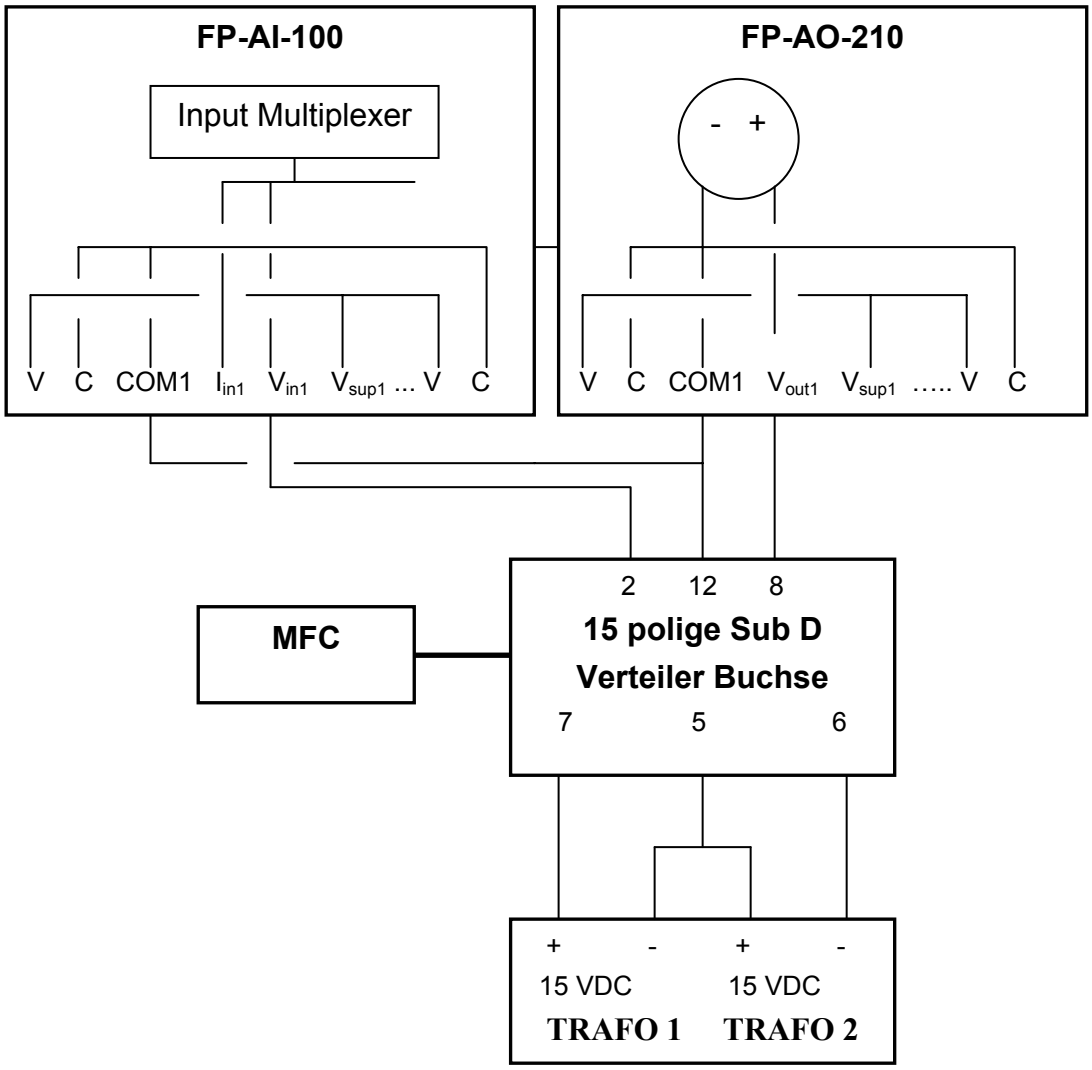


Abbildung 9-3: Anschlussschema MFC

Im nachfolgenden Bild ist die Anordnung der vorher beschriebenen Komponenten ersichtlich. Im oberen Fach kann man die FieldPoint-Module mittig, die Verteilerstecker links und die DMD rechts erkennen. Im mittleren Fach befinden sich die Transformatoren. Unten sind die MFC 1-5 montiert.

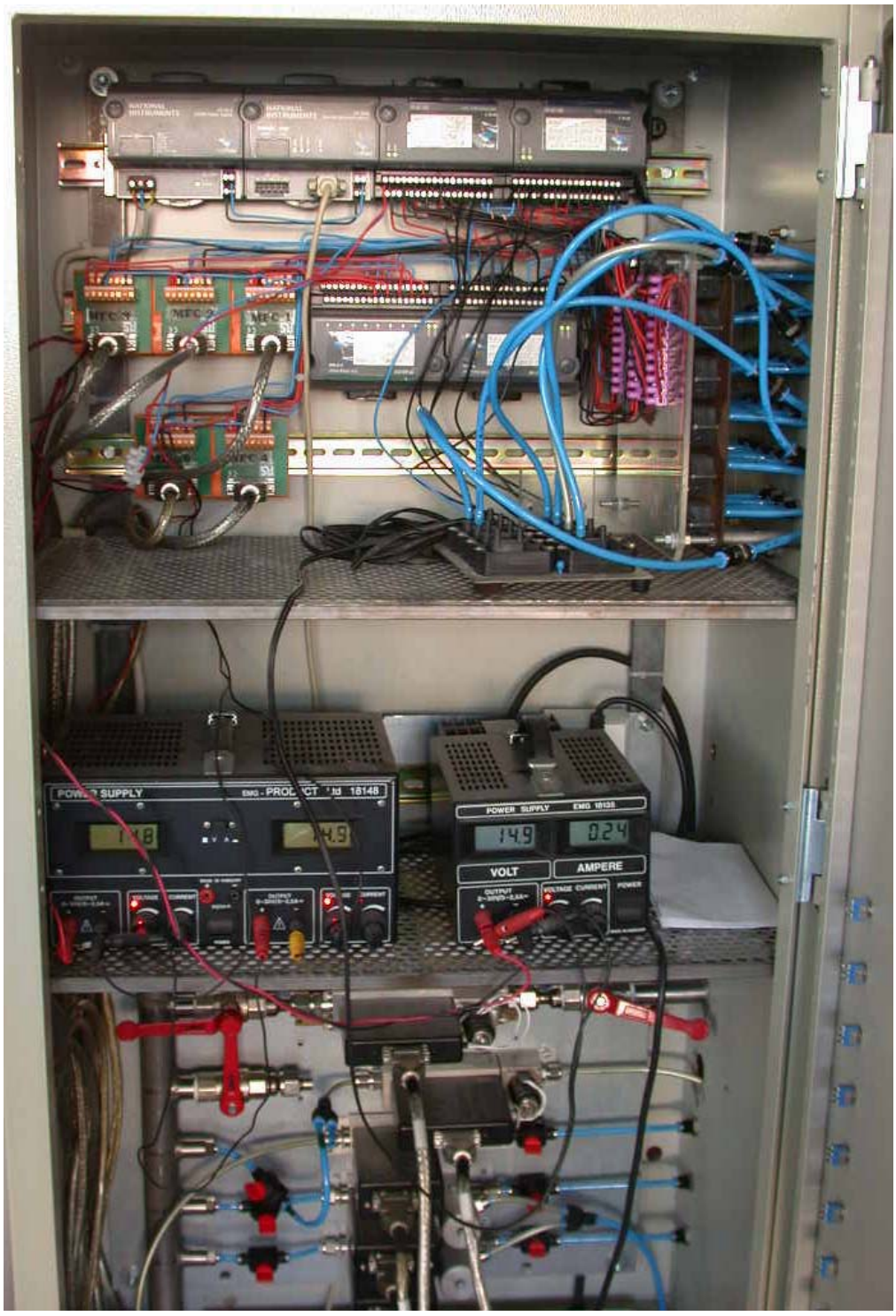


Abbildung 9-4: Foto Schaltkasten (oben: FieldPoint-Module und DMD; mitte: Trafos; unten: MFC)

9.3 Block Diagramme Unterprogramme

Um die Programmstruktur übersichtlicher zu gestalten, wird das Hauptprogramm aus mehreren Unterprogrammen aufgebaut. Sie sind als Quadrate mit schwarzem Rahmen und Text zu erkennen und werden durch Doppelklick auf das Symbol aufgerufen. Dieses Symbol erscheint dann im Unterprogramm an der rechten oberen Ecke und kann dort bearbeitet werden. Weiters wird dort festgelegt welche Daten übernommen und wieder zurückgegeben werden.
Die Übergabeobjekte müssen im Unterprogramm bei der Dateneingabe als Bedienelemente und bei der Datenausgabe als Anzeigeelemente ausgeführt sein. Im nachfolgenden Unterprogramm *DMD Kalibrierung* werden z.B. *Eingangsspannung 1-8* und *Eingangsspannung 9-16* eingelesen. Sie sind Bedienelemente, weil sie für das Unterprogramm eine Datenquelle darstellen, während die Arrays *Druck* und *Druck 2*, die ausgegeben werden, Anzeigeelemente sind.
Gemäß diesen Anschlüssen verarbeitet das Unterprogramm die übernommenen Daten und übergibt sie wieder.

DMD Kalibrierung

Die Ausgangsspannungen aller DMD werden aus den FieldPoint Modulen eingelesen, und als Arrays an das Unterprogramm weitergegeben, wo sie in einen Druck umgerechnet werden. Die 19 Drücke werden dann in zwei Arrays ausgegeben.

Die Kalibrierungsfunktion wird im Kapitel 3.2.2.3 erklärt.

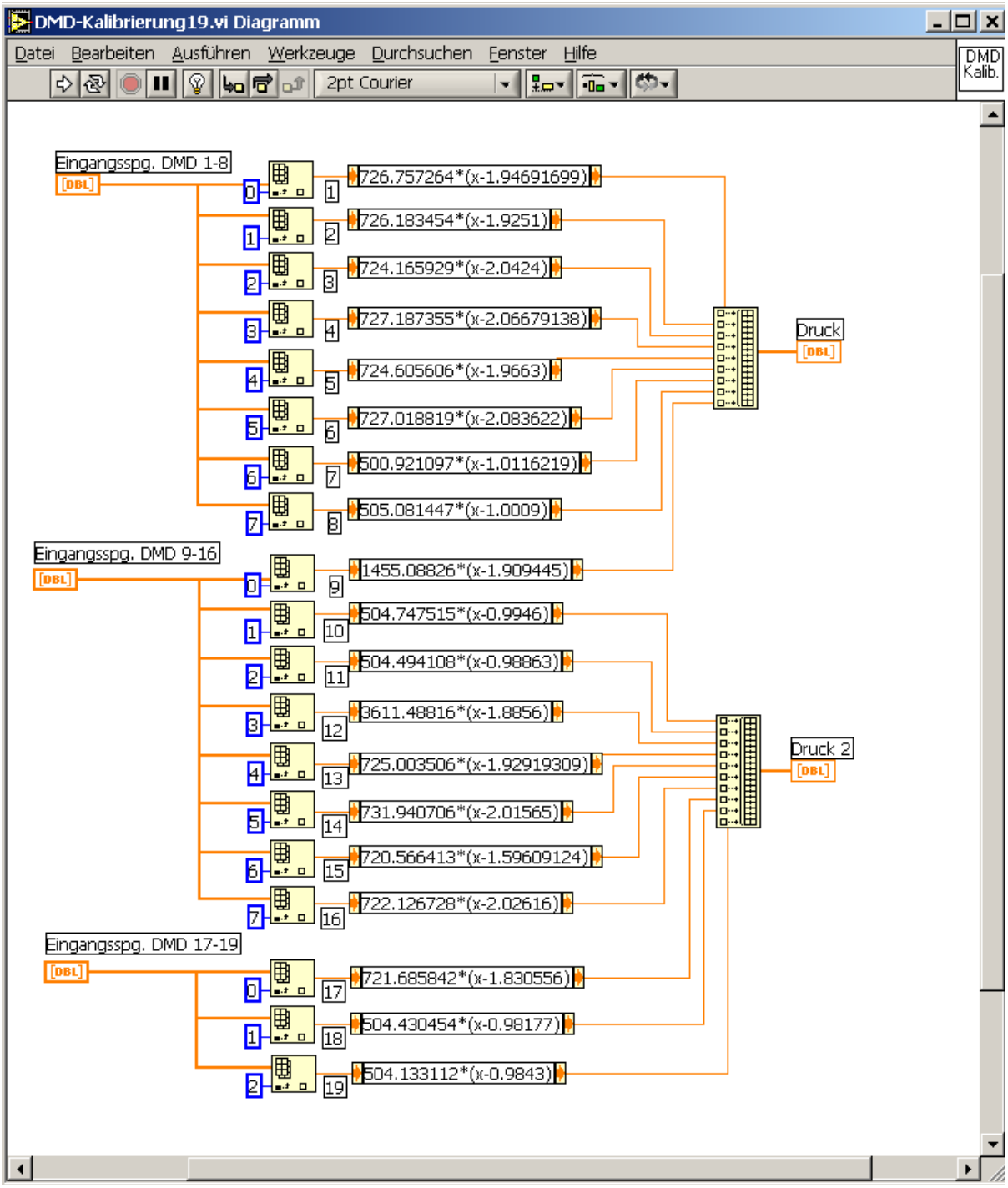


Abbildung 9-5: Blockdiagramm DMD-Kalibrierung19

Druckprofil Diagramm

Die vorher kalibrierten Drücke werden übergeben. In *DMD-Höhenzuordnung* wird jeder DMD eine Höhe zugewiesen. Dafür muss bekannt sein wo an der Anlage die DMD angeschlossen sind. Mit dem Wahlschalter, dessen Wert ebenso übergeben wird, kann ausgewählt werden, von welchem Bereich der Anlage (AR+Riser, Riser, Siphon1 und Siphon2) die Drücke angezeigt werden sollen.

Da alle 200ms ein neuer Druck eingelesen wird, muss ein sechs Sekunden Mittelwert gebildet werden, der an der Abszisse dargestellt wird. An der Ordinate werden die den jeweiligen DMD entsprechenden Höhen angezeigt.

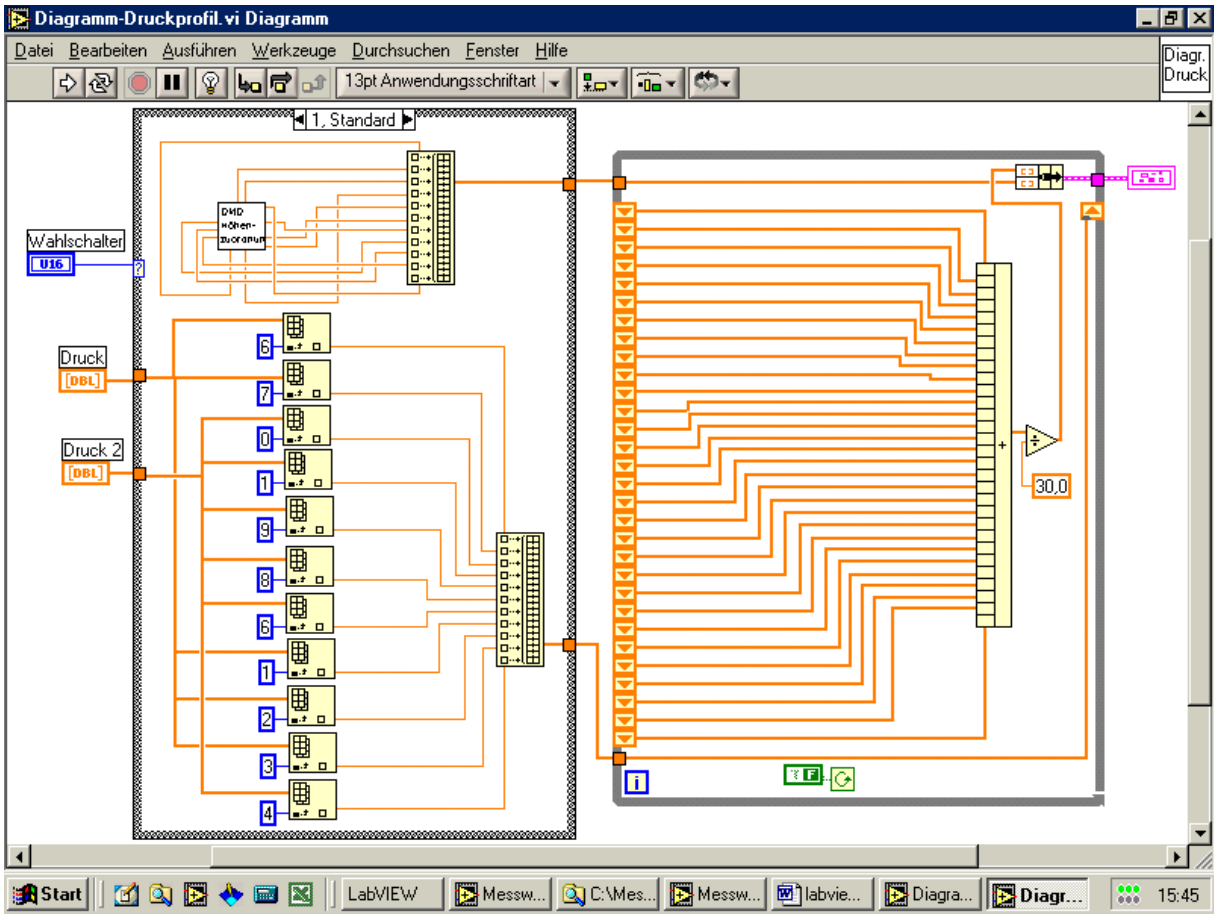


Abbildung 9-6: Blockdiagramm- Diagramm Druckprofil

MFC-Kalibrierung

Die Vorgabewerte für den Soll Volumenstrom und die Werte der Eingangsspannung des Ist Volumenstromes werden eingelesen.

Die Sollvolumenströme werden in Spannungswerte umgerechnet und als Array ausgegeben. Da aber nur fünf der am FieldPoint Modul vorhandenen Kanäle verwendet werden, muss an die letzten drei der Wert Null ausgegeben werden.

Aus den Eingangsspannungen werden die Ist Volumenströme berechnet und ebenfalls als Array weitergegeben.

Die Kalibrierungsfunktionen sind in Kapitel 3.2.2.3 erklärt.

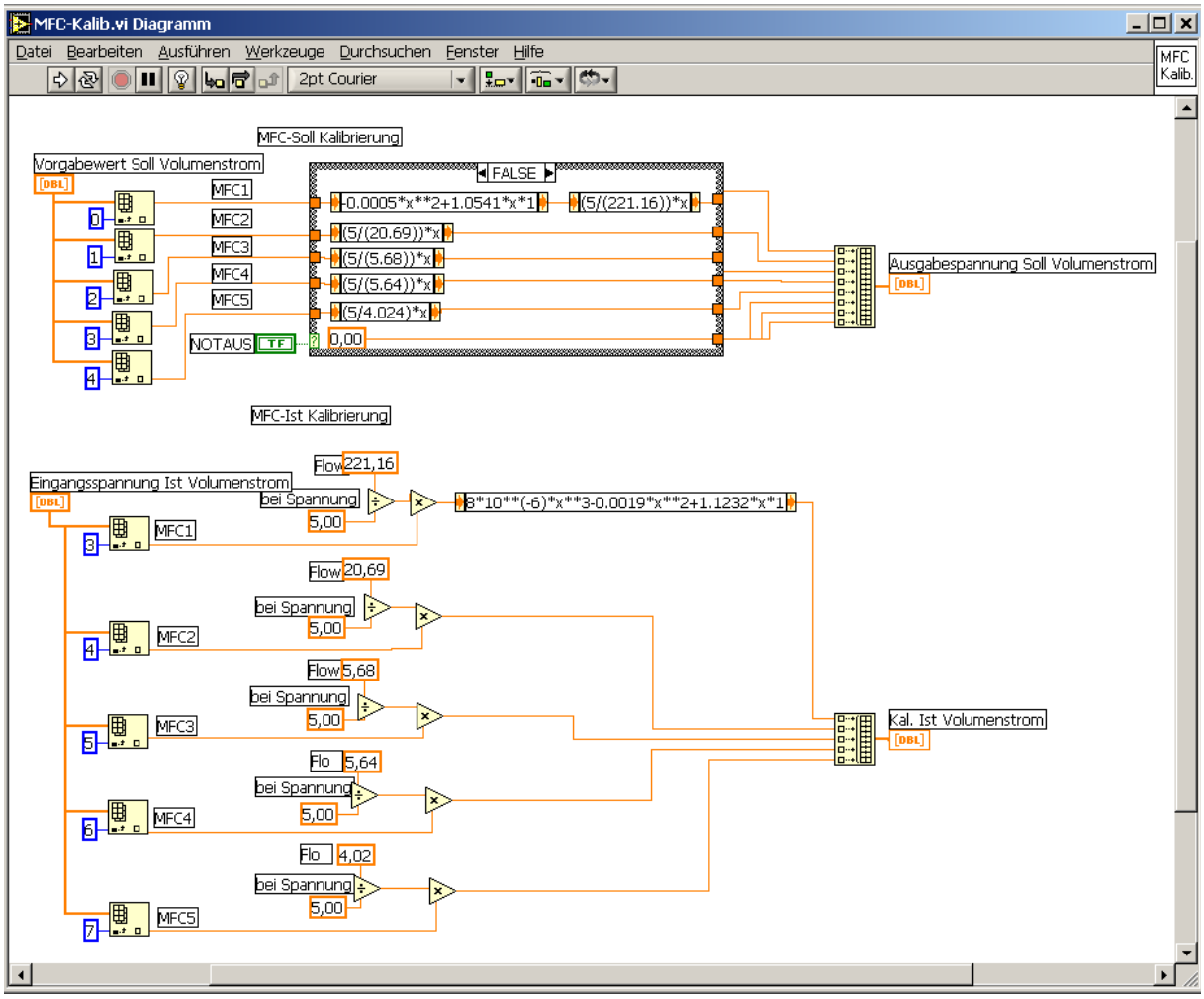


Abbildung 9-7: Blockdiagramm-MFC-Kalib

Geschwindigkeitsberechnung

Die Ist Volumenströme werden in einem Array übergeben. Zur Berechung der Leerohrgeschwindigkeiten und deren Verhältnissen zur Sink- bzw. Lockerungsgeschwindigkeit werden Unterprogramme (uAR, uFR, uLS) aufgerufen, die wiederum Volumenströme und Abmessungen einlesen, und die Geschwindigkeiten ausgeben. Alle Geschwindigkeiten und die dazugehörigen Verhältnisse werden in einem Array an das Hauptprogramm übergeben.

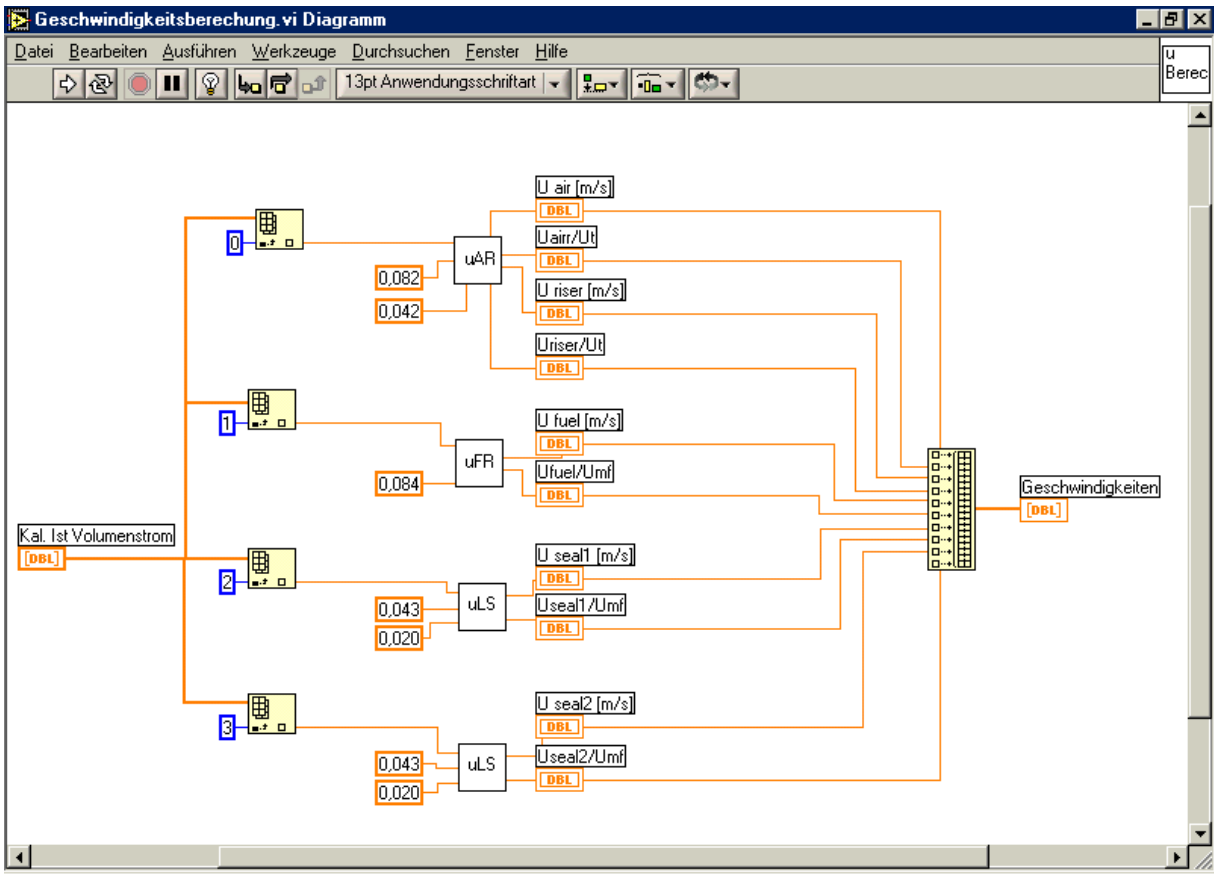


Abbildung 9-8: Blockdiagramm- Geschwindigkeitsberechnung

In Tabelle schreiben

Hier werden alle Mess- und Vorgabewerte in eine Tabelle geschrieben. Als Array eingelesen werden: *Druck, Vorgabewert Soll Volumenstrom, Kal. Ist Volumenstrom* und die *Geschwindigkeiten*. Sie werden dann in einer festgelegten Reihenfolge als String in eine vorher beschriftete Tabelle geschrieben.

Es werden auch die Eingabe bzw. Ausgabe-Datei und der Fehler übergeben.

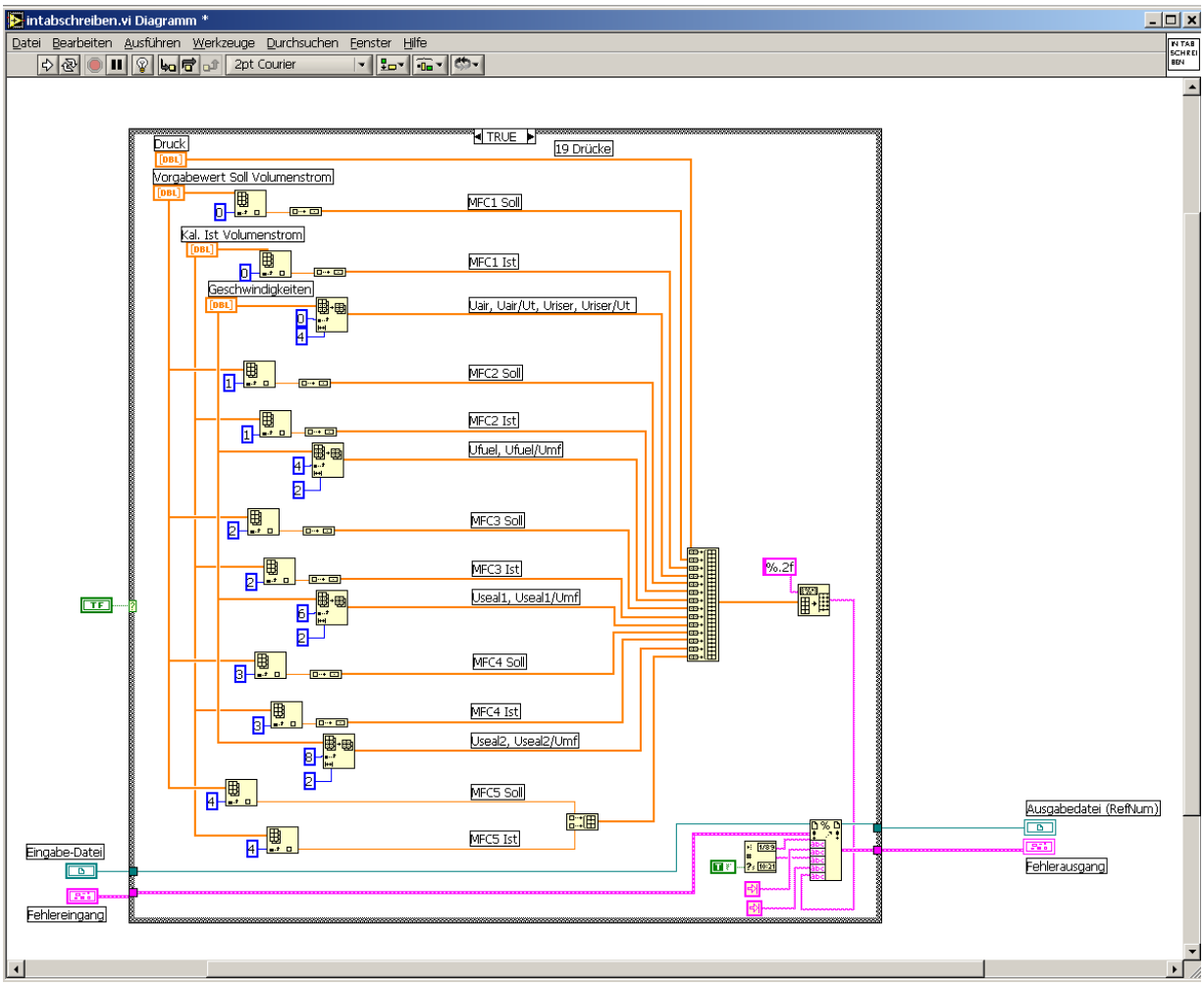


Abbildung 9-9: Blockdiagram- In Tabelle schreiben