

Die approbierte Originalversion dieser Dissertation ist an der Hauptbibliothek der Technischen Universität Wien aufgestellt (<http://www.ub.tuwien.ac.at>).

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

Dissertation

Oxyfuel Verbrennung von Klärschlamm

ausgeführt zum Zwecke der Erlangung des akademischen Grades eines Doktors der technischen Wissenschaften unter der Leitung von

Univ. Prof. Dipl.-Ing. Dr. techn. Hermann Hofbauer
Dipl.-Ing. Dr. techn. Tobias Pröll

E 166

Institut für Verfahrenstechnik, Umwelttechnik und Technische Biowissenschaften
der Technischen Universität Wien

eingereicht an der Technischen Universität Wien

Fakultät für Maschinenwesen und Betriebswissenschaften

von

Dipl.-Ing. Tondl Gregor
Matr. Nr.: 0051035
Peter Jordan Straße 18-24
1190 Wien

Wien, Jänner 2013

.....
(Gregor Tondl)

VORWORT UND DANKSAGUNG

Diese Arbeit ist im Rahmen der Projekte CO₂ freie Wirbelschicht, OxyAb und O2Fuel entstanden.

Einen herzlichen Dank an Univ. Prof. Dr. Hermann Hofbauer für die Möglichkeit an dem unter seiner Leitung stehendem Institut für Verfahrenstechnik, Umwelttechnik und technische Biowissenschaften meine Dissertation durchführen zu dürfen.

Dr. Tobias Pröll möchte ich zu allererst für die Aufnahme in seine Arbeitsgruppe „Zero Emission Technologies“ danken. Weiters möchte ich ihm für meine Betreuung danken und die zahlreichen wegweisenden Gespräche während der letzten Jahre.

Vielen Dank an David Wöss der mich während seiner Tätigkeit in seiner Bachelor Arbeit und seiner Diplomarbeit mit allem Einsatz unterstützt hat.

Weiters möchte ich Werner Höttl für die unkomplizierte und motivierende Zusammenarbeit während der gemeinsamen Tätigkeit an der TU Wien und für seine tatkräftige Unterstützung während seiner Tätigkeit für die Firma Messer danken.

Meinen Kollegen danke ich für die letzten Jahre der guten Zusammenarbeit und für das außerordentlich gute Arbeitsklima.

Joachim Rohovec für die Unterstützung seitens der Firma Messer und für den erweiterten Einblick in den Bereich der Reinsauerstoffanwendungen.

Der Firma Messer und deren Angestellten für die Möglichkeit von Technikumsversuchen an ihrem Standort durchführen zu können.

Meinem Bruder der mich durch seine Arbeiten hier am Institut unterstützt hat.

Vielen Dank an meine Eltern die mir meine schulische Ausbildung nicht nur ermöglicht sondern auch erkämpft haben.

Danke Christina für alles insbesondere dein aufopferndes Korrekturlesen in der Zeit die dir zwischen deiner eigenen Arbeit und unseren Kindern geblieben ist.

VERÖFFENTLICHUNGEN

Tondl G., Hörtl W., Pröll T., Rohovec J., Hofbauer H., "Oxyfuel combustion in a circulating fluidized bed-first results from a 100 kWth pilot plant", 9th European Conference on Industrial Furnaces and Boilers, Estoril, 26-29 April 2011

Tondl G., Wöss D., Hörtl W., Pröll T., Rohovec J., Hofbauer H., "Oxyfuel combustion of alternative fuels based on results from a circulating fluidized bed pilot rig", 62th IEA Fluidized Bed Conversion Meeting, Vienna, 29 August, 2011

Tondl G., Penthor S., Wöß D., Pröll T., Hörtl W., Rohovec J., Hofbauer H., "Oxyfuel combustion of alternative fuels based on results from a circulating fluidized bed pilot rig", 2nd Oxyfuel Combustion Conference, Australia, September 2011

Tondl G., Wöss D., Hörtl W., Pröll T., Rohovec J., Hofbauer H., "Oxyfuel Combustion of Alternative Fuels: Pilot Plant Results", International Conference on Carbon Reduction Technologies, Poland, 19-22 September 2011

Tondl G., Wöss D., Hörtl W., Pröll T., Rohovec J., Hofbauer H., "From Oxygen enrichment to Oxyfuel combustion", 63th IEA Fluidized Bed Conversion Meeting, Ponferrada, 29 November, 2011

Guio C., Tondl G., Hörtl W., Pröll T., Hofbauer H., "Cold flow model study of an oxyfuel combustion pilot plant", 19th International Congress of Chemical and Process Engineering CHISA, 2010

Wöss D., Tondl G., Hörtl W., Pröll T., Hofbauer H., "Sewage sludge treatment with oxygen enrichment and Oxyfuel combustion in CFBC-new pilot plant results", 64th IEA Fluidized Bed Conversion Meeting, Neapel, 3 June, 2012

Dietrich F., Tondl G., Wöss D., Pröll T., Hofbauer H., "Comparison of four different methods for measuring the solids circulation rate in circulating fluidized beds", Fluidization XIV Conference, Holland May 2013, eingereicht

BETREUUNG

David Wöss "Sauerstoff statt Stützbrennstoff- Sauerstoffangereicherte Verbrennung von niedrigkalorischen Festbrennstoffen in einer zirkulierenden Wirbelschicht", Diplomarbeit, 2012

David Wöss "Design Considerations for an Oxyfuel-CFB-Reactor", Bakkalaureatarbeit, 2009

Florian Dietrich "Comparison of four different methods for measuring the solids circulation rate in circulation fluidized beds", Bakkalaureatarbeit, 2012

KURZFASSUNG

Ähnlich wie der industrielle Ausstoß bestimmter Luftschadstoffe (SO_2 , NO_x , etc.) während der vergangenen Jahrzehnte bereits wesentlich reduziert wurde, muss als ein weiterer Schritt der industriellen und gesellschaftlichen Entwicklung auch die unkontrollierte Emission von klimawirksamen CO_2 überwunden werden. OxyFuel wird derzeit als Schlüsseltechnologie zur effizienten Abscheidung von CO_2 bei der Verbrennung von fossilen Energieträgern (Kohle) intensiv diskutiert. Während die Abscheidung von CO_2 bei der Verbrennung von Kohle lediglich zu CO_2 -Einsparungen führt, so ermöglicht die Kombination dieser Technologie mit alternativen (CO_2 neutralen) Brennstoffen aus erneuerbaren Quellen (Bioenergy with Carbon Capture and Storage - BECCS) eine Netto CO_2 Senke.

Bei einer Oxyfuel Verbrennung wird nicht Luft sondern eine synthetische Mischung aus Reinsauerstoff und rezirkuliertem Rauchgas als Oxidationsmittel verwendet. Durch die vorgeschaltete Abtrennung des Luftstickstoffes entsteht ein Rauchgas, welches nach Kondensation aus konzentriertem CO_2 besteht. Dieses Abgas steht als Ausgangspunkt für eine Carbon Capture and Storage (CCS) Anwendung bereit. Die Wahl des Sauerstoffgehaltes in der Anströmung stellt einen zusätzlichen Freiheitsgrad dar, der insbesondere bei der Verbrennung von niedrigkalorischen Brennstoffen neue Möglichkeiten bietet. Bei der Klärschlammbehandlung kann mit Hilfe dieser Technologie auf die sonst notwendige Zufeuerung von Stützbrennstoffen wie Schweröl verzichtet werden.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Oxyfuel Technologie für die Monoverbrennung von Klärschlamm in einer $100 \text{ kW}_{\text{th}}$ zirkulierenden Wirbelschicht realisiert. Dafür wurde eine bereits existierende Oxyfuel Versuchsanlage für die Verbrennung alternativer Brennstoffe nachgerüstet und neuerlich in Betrieb genommen. Eine Versuchskampagne mit Klärschlamm pellets und Klärschlammgranulat als Brennstoff wurde durchgeführt. Variiert wurden dabei der Wassergehalt im Brennstoff, der Sauerstoffgehalt in der Anströmung und der Sauerstoffgehalt im Abgas. Mithilfe der Ergebnisse an der $100 \text{ kW}_{\text{th}}$ Anlage wurde ein Konzept einer $60 \text{ MW}_{\text{th}}$ Oxyfuel Klärschlammverwertungsanlage erstellt. Dabei wurden verschiedene Szenarien bezüglich der Verwertung des Abgasstroms in Betracht gezogen.

Im Falle der Oxyfuel Versuche mit Klärschlamm pellets konnte eine höchste CO_2 Konzentration von 92 Vol. %_{trocken} erreicht werden. Die volumetrisch größten Fraktionen der Verunreinigung des konzentrierten CO_2 Rauchgasstroms sind O_2 und N_2 . Der O_2 ist dabei vom mindestens benötigten Sauerstoffrestgehalt, unter Vermeidung von CO Emissionen, abhängig. Dabei ist festzuhalten, dass für eine CCS Anwendung derzeitige Emissionsvorschriften nicht zwingend eingehalten werden müssten und dadurch auch geringere Restsauerstoffkonzentrationen erreicht werden könnten. Ein hoher Wassergehalt im Brennstoff wirkt sich ebenfalls negativ auf die zu erwartende CO_2 Reinheit im Abgas aus, da sich der benötigte Restsauerstoffgehalt mit zunehmendem Wasserdampf im trockenen Rauchgas erhöht.

Aufgrund der über atmosphärischen Druck betriebenen Versuchsanlage kommt es zu keinem Falschlufteintrag und der Stickstoffgehalt im Abgas entsteht lediglich aus dem im Brennstoff enthaltenen Stickstoff. Im Falle einer industriellen Anwendung müsste eine zusätzliche Verdünnung des CO_2 durch Falschlufteintrag berücksichtigt werden.

Eine Herabsetzung der Sauerstoffreinheit aus der kryogenen Luftzerlegung, von 99.95 Vol. % auf 95 Vol. % könnte ein Sechstel des Energieaufwandes für die Sauerstoffproduktion einsparen, würde jedoch die CO₂ Reinheit im Abgas um lediglich 4 Vol. %_{trocken} absenken.

Die Monoverbrennung von Klärschlamm in einer 60 MW_{th} zirkulierenden Wirbelschicht im Oxyfuel Betrieb ist möglich. Aufgrund des hohen Wassergehaltes im Brennstoff sind die erhaltenen CO₂ Konzentrationen im Vergleich zur Oxyfuel Verbrennung mit Kohle geringer. Eine nachgeschaltete Brennkammer erhöht sowohl die CO₂ Konzentration, als auch den thermischen Wirkungsgrad der gesamten Anlage.

Durch Versuche an einer 100 kW_{th} zirkulierenden Wirbelschicht konnte die Oxyfuel Verbrennung von Klärschlamm in einer realistischen Verbrennungsumgebung durchgeführt werden.

Es hat sich gezeigt, dass die Oxyfuel Verbrennung alternativer Brennstoffe wie Klärschlamm als mögliche Technologie zur Reduktion von CO₂ - Emissionen eingesetzt werden kann.

Die Ausweitung dieser Technologie auf die Verbrennung von holzartigen Brennstoffen und die damit einhergehenden Veränderungen im Ascheschmelzverhalten, das geänderte Korrosionsverhalten, die Verschiebung der Verbrennungszone im Feuerraum und einen veränderten Wärmeübergang im Kessel wären in zukünftigen Arbeiten weiter zu untersuchen.

ABSTRACT

During the last decades, air pollution from industrial exhaust (SO_2 , NO_x , etc.) have been reduced strongly. The next step has to be the reduction of CO_2 emissions to avoid its large impact on climate change.

OxyFuel combustion is a key technology for the efficient separation of CO_2 from combustion processes. While OxyFuel combustion technology for anthracite and lignite fired power plants leads to CO_2 reduction, the combination of this technology with alternative (CO_2 neutral) fuels from renewable sources has the potential to deliver "negative emissions" through the long-term removal of carbon from the biogenic cycle (Bioenergy with Carbon Capture and Storage-BECCS).

OxyFuel uses a synthetic mixture of O_2 and recycled exhaust gas where the O_2 content may be varied. Recycled exhaust gas is used to replace the nitrogen content in the combustion air. The output of the combustion is a CO_2 -rich flue gas which is best suited for capture and storage (CCS). The oxygen added is an additional degree of freedom in operation of the combustion which allows improved operation especially for low calorific fuels such as sewage sludge; in this way the use of additional fuels such as heavy fuel oil can be omitted.

Within this work, the Oxyfuel process for mono-combustion of sewage sludge was realized in a 100 kW_{th} circulating fluidized bed. An existing circulating fluidized bed has been adopted for the combustion of alternative fuels and put into operation. An experimental campaign with sludge pellets and granulate has been realized. Within this campaign, variations of water content in fuel, oxygen content in fluidization gas and oxygen content in exhaust gas were performed.

In the experimental campaign of the 100 kW_{th} pilot plant, a CO_2 concentration of 92 vol. %_{dry} could be reached. The most important impurities of the CO_2 stream, were O_2 and N_2 . The O_2 content depends on the minimum required oxygen excess to avoid carbon monoxide emissions. High moisture content in the fuel leads to a lower CO_2 concentration in exhaust gas, because of the higher oxygen excess needed.

The pilot plant was operated above atmospheric pressure, and therefore, no air leakage could be observed. When operating an industrial plant, impurities due to air leakages leading to a dilution of CO_2 , must be taken into account.

A decrease of the oxygen purity of the air separation unit from 99.95 vol. % to 95 vol. % would save a sixth of the energy amount for oxygen production. At the same time, the CO_2 concentration in the exhaust gas would decrease of 4 vol. %_{dry}.

Mono-combustion of sewage sludge in a 60 MW_{th} circulating fluidized bed under Oxyfuel conditions is possible. The high water content in the fuel leads to a lower purity of CO_2 in the exhaust gas stream compared to Oxyfuel combustion of coal. A post combustion chamber increases the CO_2 concentration in the exhaust gas stream and would also increase the thermal efficiency of the plant.

Throughout the experimental campaign, Oxyfuel combustion of sewage sludge in a circulating fluidized bed could be realized under realistic conditions.

It turned out that Oxyfuel combustion of alternative fuels like sewage sludge could be a possible solution to reduce CO₂ emissions.

Further investigations should focus on the Oxyfuel combustion of wooden fuels, and therefore on the specific behavior of ash melting, corrosion, temperature in the combustion chamber and heat transfer on the boiler side.

INHALTSVERZEICHNIS

VORWORT UND DANKSAGUNG	1
VERÖFFENTLICHUNGEN	2
BETREUUNG	2
KURZFASSUNG	3
ABSTRACT	5
INHALTSVERZEICHNIS	7
1 EINLEITUNG	10
1.1 CO ₂ -KLIMAWANDEL.....	10
1.2 ENERGIE.....	12
1.3 CARBON CAPTURE AND STORAGE.....	13
1.3.1 TECHNOLOGIEN.....	13
1.3.2 CO ₂ ENTMISCHUNG UND VERDICHUNG.....	14
1.3.3 CO ₂ TRANSPORT.....	15
1.3.4 CO ₂ LAGERUNG.....	16
1.4 DIE KOMBINATION VON BIOENERGIE UND CCS.....	18
1.5 SAUERSTOFFANREICHERUNG DER VERBRENNUNGSLUFT BEI THERMISCHEN ENTSORGUNGSANLAGEN ..	18
1.5.1 SAUERSTOFFEINBRINGUNG.....	19
1.5.2 EINSATZGEBIETE DER SAUERSTOFFANREICHERUNG.....	21
1.6 OXYFUEL VERBRENNUNG IN THERMISCHEN ENTSORGUNGSANLAGEN.....	22
1.7 BEITRAG DIESER ARBEIT ZUM DERZEITIGEN STAND DES WISSENS.....	23
1.7.1 AUSGANGSLAGE.....	23
1.7.2 HERAUSFORDERUNGEN BEI DER OXYFUEL VERBRENNUNG VON KLÄRSCHLAMM.....	24
1.7.3 ZIELSETZUNGEN DIESER ARBEIT.....	24
1.7.4 REALISIERUNG DER GESETZTEN ZIELE.....	25
2 THEORETISCHE GRUNDLAGEN	26
2.1 KLÄRSCHLAMMVERBRENNUNG.....	26
2.1.1 EINLEITUNG.....	26

2.1.2	KLÄRSCHLAMM ZUSAMMENSETZUNG	27
2.1.3	THERMISCHE BEHANDLUNG VON KLÄRSCHLAMM IN DER WIRBELSCHICHT	29
2.1.4	MECHANISMEN DER KLÄRSCHLAMMVERBRENNUNG	30
2.2	OXYFUEL TECHNOLOGIE	33
2.2.1	EINLEITUNG.....	33
2.2.2	RAUCHGASREZIRKULATION	33
2.2.3	CO ₂ VERUNREINIGUNGEN	36
2.2.4	TECHNOLOGIEN ZUR GEWINNUNG VON REINSAUERSTOFF	44
2.2.5	PROJEKTE ZUR INDUSTRIELLEN ENTWICKLUNG DES OXYFUEL PROZESSES	47
2.3	WIRBELSCHICHTTECHNIK	49
2.3.1	FLUIDDYNAMISCHE GRUNDLAGEN	49
2.3.2	PARTIKELEIGENSCHAFTEN	53
2.3.3	ZIRKULIERENDE WIRBELSCHICHT	57
2.4	DER OXYFUEL PROZESS IN DER ZIRKULIERENDEN WIRBELSCHICHT	61
2.4.1	EINLEITUNG.....	61
2.4.2	ENTSCHWEFELUNG IN DER WIRBELSCHICHT	61
2.4.3	ÜBERTRAGENE WÄRME IM OXYFUEL FALL	63
3	VERSUCHSAUFBAU	67
3.1	REAKTORDESIGN.....	67
3.2	KALTMODELL	71
3.2.1	AUSLEGUNG DES KALTMODELLS NACH [GLICKSMAN, 1993]	71
3.2.2	KALTMODELL-AUSFÜHRUNG UND INSTRUMENTIERUNG.....	73
3.3	100 kW _{TH} OXYFUEL VERSUCHSANLAGE.....	74
3.3.1	BRENNSTOFFBESCHICKUNG.....	78
3.3.2	RAUCHGASREZIRKULATIONSGEBLÄSE	79
3.3.3	GASANALYSE IN DER ANSTRÖMUNG.....	81
3.3.4	KÜHLSCHNECKENUMBAU	81
3.3.5	BETRIEBSMITTEL	83
4	ERGEBNISSE	84
4.1	KALTMODELL	84
4.1.1	DRUCKPROFIL.....	84
4.1.2	UMLAUFMESSUNGEN	85

4.2	DIE 100 kW _{TH} OXYFUEL VERSUCHSANLAGE	90
4.2.1	MESSPROGRAMM	90
4.2.2	TYPISCHE PLOTS WÄHREND DES VERSUCHSBETRIEBES.....	91
4.2.3	FLUIDDYNAMISCHE ANALYSE.....	93
4.2.4	TEMPERATURPROFIL	95
4.2.5	QUALITÄT DER VERBRENNUNG.....	96
4.2.6	ABGASZUSAMMENSETZUNG	102
4.2.7	PARTIKELVERTEILUNG	108
5	KONZEPT EINER 60 MW_{TH} OXYFUEL ZWS ZUR MONOVERBRENNUNG VON KLÄRSCHLAMM	110
5.1	MOTIVATION	110
5.2	ANLAGENBESCHREIBUNG	110
5.3	BESCHREIBUNG DES 60 MW _{TH} OXYFUEL ZWS MODELLS	111
5.4	SZENARIO 1-OHNE CCS ANWENDUNG.....	114
5.5	SZENARIO 2-MIT CCS ANWENDUNG	116
5.6	SZENARIO 3-MIT CCS ANWENDUNG UND ZUSÄTZLICHER NACHBRENNKAMMER	117
	SCHLUSSDISKUSSION DIESER DOKTORARBEIT	119
	ANHANG	121
	LITERATURVERZEICHNIS	135
	TABELLENVERZEICHNIS	141
	ABBILDUNGSVERZEICHNIS	142

1 Einleitung

1.1 CO₂-KLIMAWANDEL

Anstiege der mittleren globalen Luft- und Meerestemperaturen, das ausgedehnte Abschmelzen von Schnee und Eis, sowie der Anstieg des mittleren globalen Meeresspiegels (Abbildung 1) zeugen von einer globalen Klimaerwärmung. Die Jahre 1995-2006 gehörten zu den wärmsten seit der instrumentellen Aufzeichnung. Der mittlere globale Meeresspiegel ist seit 1993 mit einer durchschnittlichen Geschwindigkeit von 3.1 mm pro Jahr gestiegen und die Ausdehnung des arktischen Meereises um 2.7 % pro Jahrzehnt geschrumpft [IPCC, 2007].

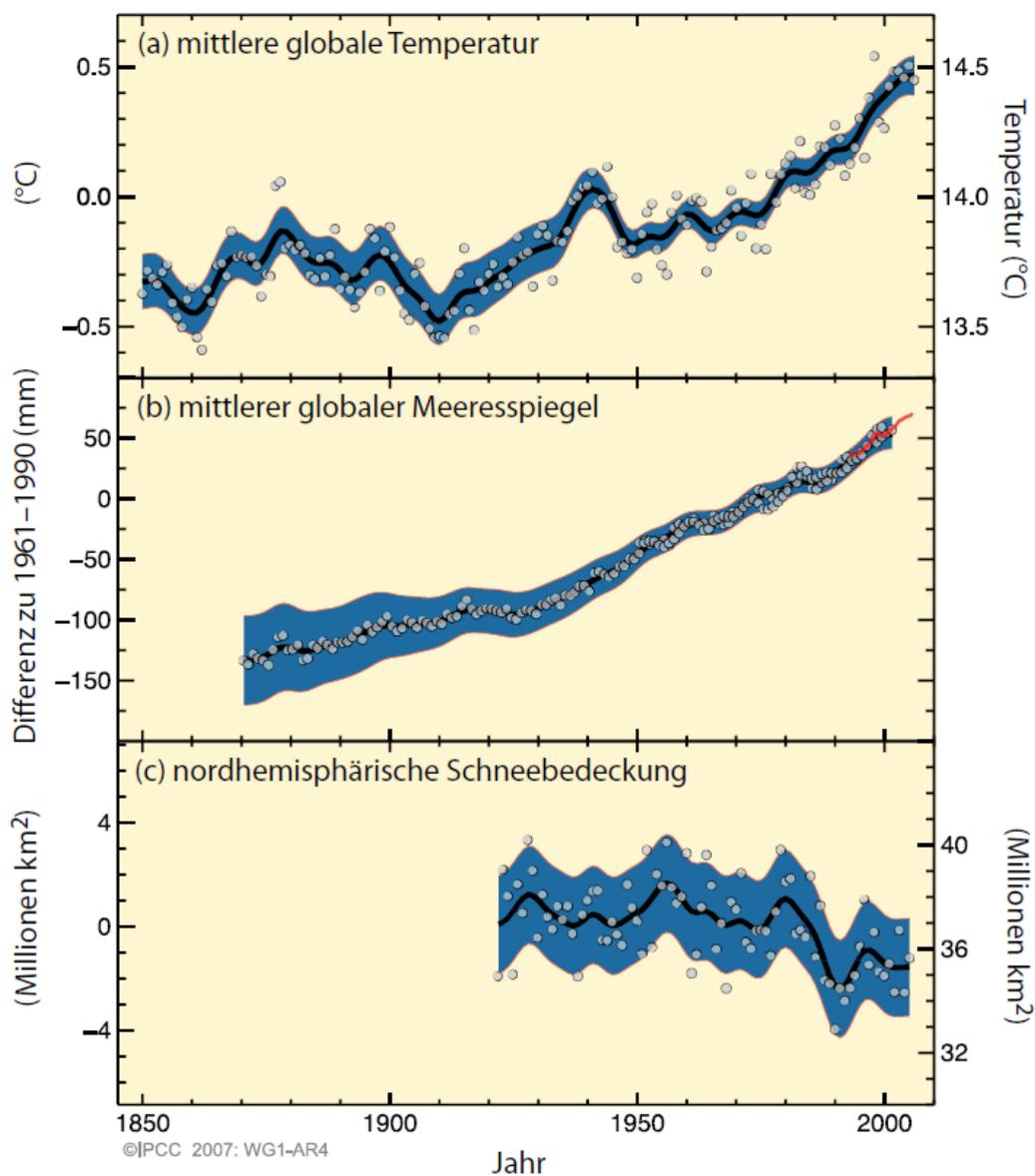


Abbildung 1 Gemessene Veränderungen der globalen Temperatur, Meeresspiegel und Schneedecke der Nordhalbkugel [IPCC, 2007]

Auswirkungen der Klimaänderung auf die natürliche und menschliche Umwelt in den Bereichen Land und Forstwirtschaft, Ökosystem, Süßwasserressourcen, Nahrungsmittel, Industrie und Gesellschaft konnten bereits beobachtet werden [IPCC, 1990]. Durch Proben aus Eisbohrkernen konnte der Verlauf der atmosphärischen Treibhausgasemissionen auch vor der Industrialisierung nachvollzogen werden. Die Entwicklung seit 1750 weist einen markanten Anstieg auf.

Globale anthropogene Treibhausgasemissionen zählen zu den Einflussfaktoren der globalen Klimaerwärmung [IPCC, 2001]. Zu den Treibhausgasen zählen CO₂ (Kohlendioxid), CH₄ (Methan), N₂O (Stickoxide) und F-Gase, wobei ersteres das wichtigste anthropogene Treibhausgas darstellt. Abbildung 2 zeigt den Anstieg der weltweiten jährlichen Emissionen anthropogener Treibhausgase von 1970 bis 2004. Weiters ist der Anteil anthropogener Treibhausgase an den Gesamtemissionen im Jahr 2004 dargestellt. Als letztes werden die Anteile unterschiedlicher Sektoren an den gesamten anthropogenen Treibhausgasemissionen gezeigt. Mit einem Anteil von 56.6 % ist CO₂ das wichtigste anthropogene Treibhausgas. Seine jährlichen Emissionen stiegen von 1970 bis 2004 um etwa 80 % [IPCC, 2007].

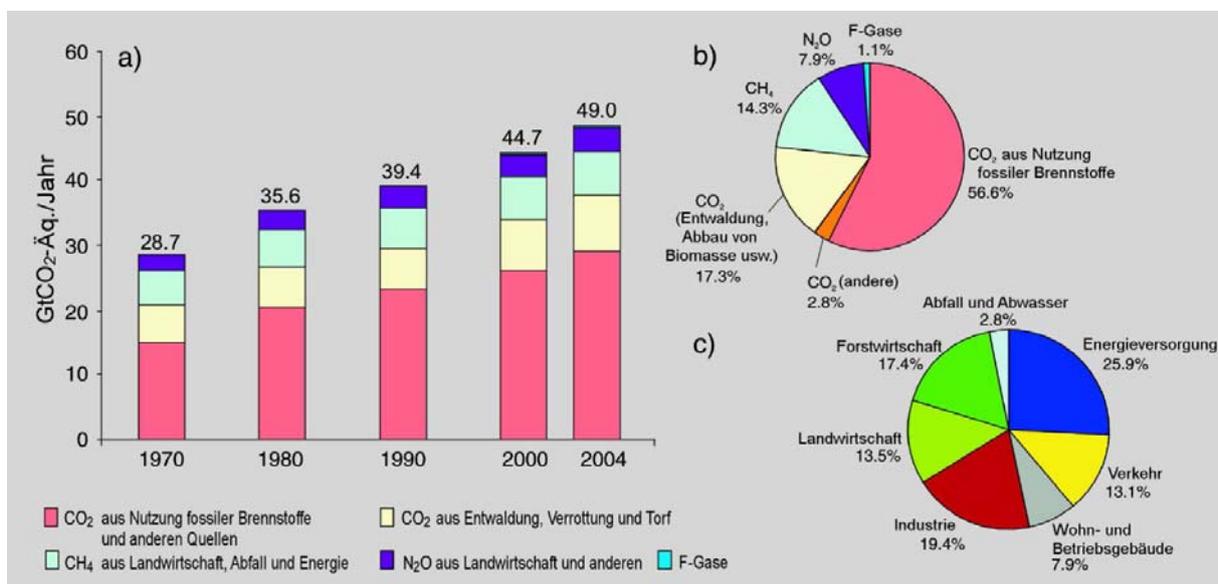


Abbildung 2 Globale anthropogene Treibhausgasemissionen [IPCC, 2007]

Aus der Entwicklung der letzten Jahre und unter Einbindung verschiedener Szenarien ist ein Anstieg der Treibhausgasemissionen zwischen 2000 und 2030 um 25-90 % zu erwarten [IPCC, 2000].

Größter Verursacher von Treibhausgasemissionen ist der Energiesektor [IEA, 2010].

Die UN Klimakonferenz im Dezember 2009, der sich alle großen Treibhausgasemittenten und nachträglich viele weitere Länder anschlossen, setzte sich als Ziel, die Erwärmung der Erde gegenüber dem vorindustriellen Niveau auf 2 C° zu begrenzen. Dies bedeutet für alle Teilnehmer des G-8 Gipfels im Juli 2009, ihre Emissionen bis 2050 um mindestens die Hälfte zu reduzieren [IEA, 2010].

1.2 ENERGIE

Seit 1980 hat sich der weltweite Energieverbrauch fast verdoppelt.

In Abbildung 3 wird der globale Primärenergieverbrauch, also jener Energieverbrauch aus natürlich vorkommenden Energieträgern, abgebildet. Für den Ausblick des Primärenergieverbrauches nach 2009 wurden drei Szenarien angenommen.

Szenario 1 zeigt den Primärenergieverbrauch unter bestehenden energiepolitischen Rahmenbedingungen, Szenario 2 den unter neuen energiepolitischen Rahmenbedingungen, welche die von den Ländern in der ganzen Welt getätigten generellen politischen Zusagen und angekündigten Pläne mit einberechnen und schließlich das 450 Szenario, welches die Treibhausgasemission im Einklang mit dem 2 C° Ziel berücksichtigt.

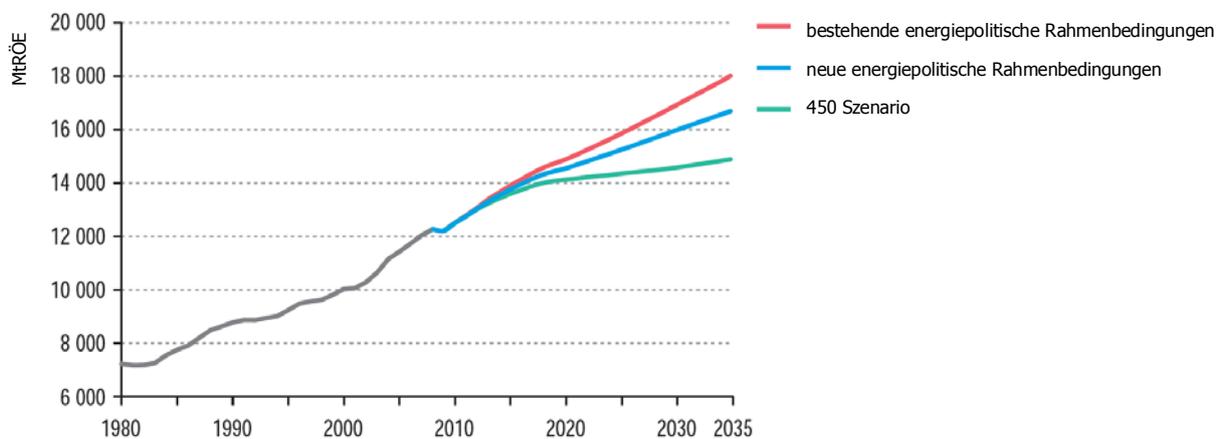


Abbildung 3 Globaler Primärenergieverbrauch 1980-2035 [IEA, 2010]

Es ist für alle drei Szenarien ein Anstieg der prognostizierten Energienachfrage zu beobachten, was in jedem Fall zur Entwicklung und Ausbau von CO₂ armen Technologien führen sollte.

Laut [IEA, 2008] müssen folgende Maßnahmen zu Erreichung der Emissionsvermeidung ergriffen werden:

- Erhöhung der Energieumwandlungseffizienz
- Ersetzen von fossilen durch erneuerbare Brennstoffe, jene Energiequellen die als unerschöpflich angesehen werden (Wind, Wasserkraft, Biomasse...)
- Nutzung alternativer nicht fossiler Energiequellen
- Umstieg auf kohlenstoffärmere Brennstoffe
- Kernergie
- effektivere Energienutzung
- Carbon Capture and Storage (CCS)

1.3 CARBON CAPTURE AND STORAGE

1.3.1 TECHNOLOGIEN

Unter Carbon Capture and Storage (CCS) wird die Abscheidung und Sequestrierung von CO_2 verstanden. Für die Kohlendioxidabscheidung werden die gängigen Technologien in folgende Kategorien eingeteilt (Abbildung 4) [IEA, 2005]:

- Pre-Combustion: CO_2 -Abscheidung aus dem Brennstoff vor der Verbrennung
- Post-Combustion: CO_2 -Abscheidung aus dem Rauchgas nach der Verbrennung
- Oxyfuel: Verbrennung mit reinem Sauerstoff
- CO_2 Abscheidung in industriellen Prozessen

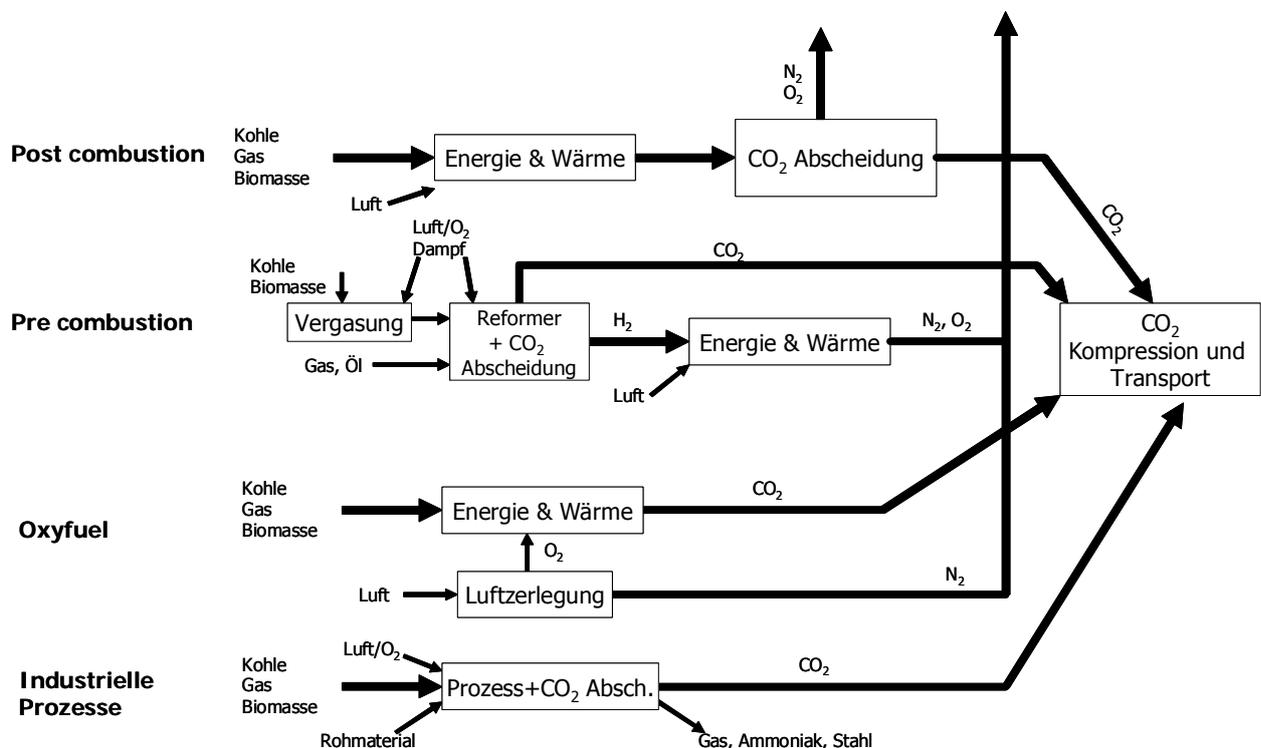


Abbildung 4 Überblick über die CCS Technologien [IEA, 2005]

Pre combustion capture: Bei der Pre combustion capture Technik wird der Brennstoff zunächst vergast oder reformiert und das CO_2 noch vor der Verbrennung abgeschieden. Durch die vorliegenden hohen CO_2 Partialdrücke kann die Gasreinigung sehr viel kleiner als beispielsweise in Post combustion capture ausgeführt werden. Der verbleibende Wasserstoff wird schließlich in einem Gas- und Dampfkraftwerk weiter verwendet.

Post combustion capture: Dabei wird das CO_2 aus dem bei der Verbrennung anfallendem Rauchgas abgetrennt. Dies kann als zusätzlicher Rauchgasreinigungsschritt in bestehenden Anlagen ausgeführt werden. Die Schwierigkeit dieser Technologie liegt einerseits in den geringen CO_2 Partialdrücken, die wiederum stark von der Verbrennung abhängen. Andererseits muss dafür eine

dementsprechend große Rauchgasmenge bewältigt werden, was sich wiederum auch auf die Größe des Rauchgaswäschers auswirkt.

Oxyfuel-Combustion ist eine Verbrennung mit reinem Sauerstoff. Auf diese Technologie wird in Kapitel 2.2 näher eingegangen.

Geteilte Verbrennung: Eine Sonderform des Oxyfuel-Combustion stellt CLC dar. Dabei handelt es sich um eine geteilte Verbrennung, die aus zwei Reaktoren besteht. Luft und Brennstoff werden dabei nicht gemischt und es entstehen zwei Abgasströme. Der erste Abgasstrom aus dem „Luftreaktor“ besteht zu einem Großteil aus Stickstoff. Der zweite Abgasstrom beinhaltet den oxidierten Brennstoff, welcher hauptsächlich aus Kohlendioxid und Wasserdampf besteht. Sowohl Brennstoffzellen (speziell die Solid Oxide Fuel Cell – SOFC) als auch Chemical Looping Combustion – CLC zählen zu diesen Technologien der sogenannten zweiten Generation. Letztere wird im Detail von Pröll [2011] behandelt.

Capture in industriellen Prozessen: Alle oben genannten Prozesse können auch für industrielle Prozesse wie Herstellung von Zement, Eisen und Stahl sowie für in der chemischen Industrie angewendet werden.

1.3.2 CO₂ ENTMISCHUNG UND VERDICHTUNG

Die isotherm-isobare Gasentmischung lässt sich unter Verwendung semipermeabler Wände grundsätzlich ohne Arbeitsaufwand ausführen [Baehr, 2000]. Die Komponenten liegen dann jedoch unter ihren Partialdrücken vor. Die Entmischungsarbeit dient nur ihrer reversiblen isothermen Verdichtung auf den Ausgangsdruck.

Die in Gleichung (1.1) dargestellte reversible Entmischungsarbeit idealer Gasgemische bezieht sich auf die Masse der Gasmischung.

Für ideale Gasgemische tritt keine Mischungsenthalpie auf. Die reversible Entmischungsarbeit bezogen auf die Masse des Gasgemisches kann nach Gleichung (1.2) angeschrieben werden.

$w_{t,rev}^{Entm} = -\Delta^M g = -\Delta^M h + T\Delta^M s = T\Delta^M s$	(1.1)
$w_{t,rev}^{Entm} = -\frac{RT}{M} \sum_{i=1}^N x_i \ln x_i$	(1.2)

In Abbildung 5 wurde der minimale Arbeitsaufwand einer Gasentmischung, bezogen auf die Masse an CO₂, für verschiedene CO₂ Partialdrücke in der Gasmischung aufgetragen [Bolland, 2006]. Hervorgehoben wurde der CO₂ Partialdruck von Luft mit 3*10⁻⁵ bar, von einer herkömmlichen Rauchgasmischung einer Luftverbrennung mit 0.12 bar und einer Oxyfuel Verbrennung mit etwa 0.9 bar.

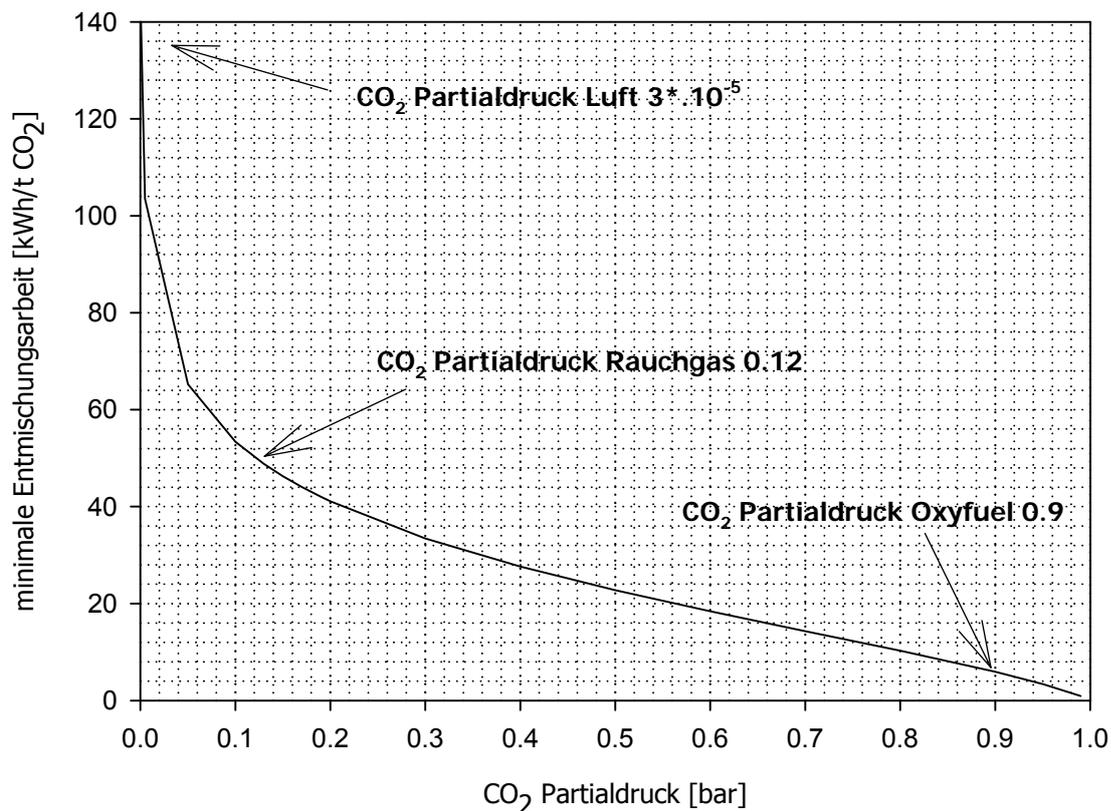


Abbildung 5 Minimaler Arbeitsaufwand einer Gasentmischung für verschiedene CO₂ Partialdrücke

Es ist dabei zu erkennen, dass ein geringer CO₂ Partialdruck im Gasmischung zu einer hohen spezifischen Entmischungsarbeit führt. Beispielsweise liegt die minimale spezifische Entmischungsarbeit für ein Luftgemisch bei 145 kWh/tCO₂ und für ein Rauchgasgemisch bei etwa 50 kWh/tCO₂.

Dieser Energieaufwand könnte entfallen, wenn die Qualität der CO₂ Reinheit einer Oxyfuel Verbrennung für eine CCS Anwendung genügt (siehe Tabelle 1). Doch auch wenn eine höhere Reinheit des CO₂ gefordert ist, so würde der theoretische Energieaufwand lediglich 6 kWh/tCO₂ betragen.

Um das CO₂ möglichst kostengünstig transportieren zu können, muss es unter hohem Druck verflüssigt werden. Derzeit gibt es noch keine Erfahrung über den Energieaufwand einer CO₂ Verflüssigung eines Oxyfuel Prozesses. Posch et. al. [2011] geben in einer Studie für den Energieaufwand einer Rauchgasverflüssigung eines Oxyfuel Prozesses einen Energieaufwand von 140-310 kWh/tCO₂ an. In einer anderen Studie von Stadler et. al. [2011] wurde der Energiebedarf mit nur 120-135 kWh/tCO₂ berechnet.

1.3.3 CO₂ TRANSPORT

Nachdem das CO₂ abgeschieden und verdichtet wurde, muss es in spezielle CO₂ Lagerstätten transportiert werden. Generell besteht für große Mengen an CO₂ die Möglichkeit einer Förderung

einerseits mittels Pipelines und andererseits, aus Kostengründen, auch über See mittels Tankschiff. Weiters besteht auch die Möglichkeit, verdichtetes CO₂ mittels LKW zu transportieren, jedoch ist diese Transportoption nur für sehr geringe Mengen an CO₂ wirtschaftlich. In Abbildung 6 werden die CO₂ Transportkosten in Abhängigkeit der zu fördernden Distanz für verschiedene Transportmittel dargestellt. Falls die Möglichkeit besteht, das CO₂ über den Seeweg zu transportieren, so ist etwa ab einer Distanz von 1000 km der Transport mittels Tankschiff kostengünstiger.

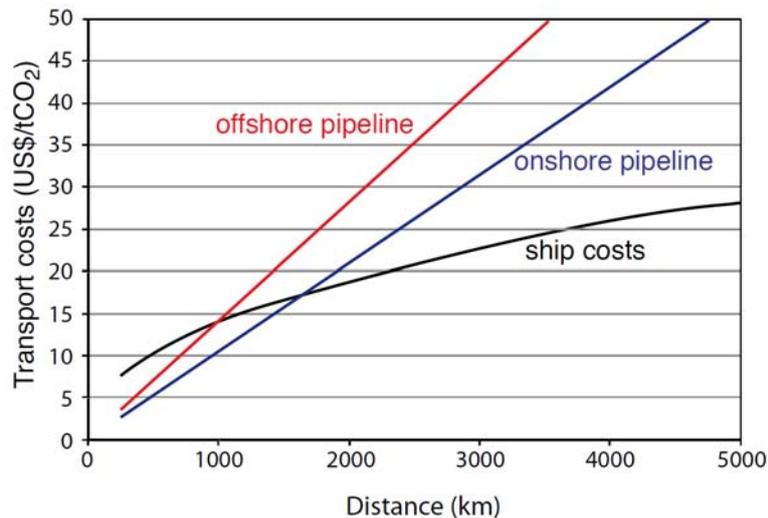


Abbildung 6 CO₂ Transportkosten in US\$/tCO₂ sowohl für den Transport mit Tankschiffen, als auch für onshore und offshore pipelines [IEA, 2005]

Da der Transport von Erdgas via Pipelines eine bereits etablierte Anwendung ist, gibt es bereits dementsprechende Standards, die die Reinheit des Erdgases beschreiben. Diese Standards der minimalen Gasreinheit gelten jedoch nicht für die Beförderung von CO₂. Lediglich in Anwendungen zur Erhöhung der Erdölförderrate „Enhanced Oil Recovery“ (EOR) gibt es schon eine langjährige Erfahrung, die hier bereits bestehenden Standards müssen jedoch noch für eine CCS Anwendung adaptiert werden. Als Beispiel ist ein niedriger Gehalt an Stickstoff für den EOR Prozess wichtig, jedoch ist dies nicht zwingend für eine CCS Applikation notwendig [IEA, 2005].

1.3.4 CO₂ LAGERUNG

Nachdem das CO₂ transportiert wurde, muss es gelagert werden. Generell unterscheidet man neben der weiteren industriellen Verwertung, drei Technologien der Lagerung:

- Geologische Lagerung
- Lagerung im Ozean
- Lagerung von CO₂ als Feststoff mittels Reaktion mit mineralischer oder organischer Materie

Für die geologische Lagerung von CO₂ gibt es wiederum, wie in Abbildung 7 dargestellt, verschiedene Methoden. Die CO₂ Lagerung in erschöpften Gas oder Öl Lagerstätten wie unter 1 in Abbildung 7 findet grundsätzlich in einer Tiefe von 800 m statt. Methode 2 zeigt die Möglichkeit, die Lagerung von CO₂ für die Förderung von Öl und Gas zu verwenden (EOR). Weiters gibt es unter 3 die Möglichkeit

tiefe saline Aquifere als Lagerstätte zu benützen und CO₂ dabei in Wasser zu lösen. Punkt 4 zeigt, wie alte Kohlebergwerke zur Lagerung von CO₂ dienen können.

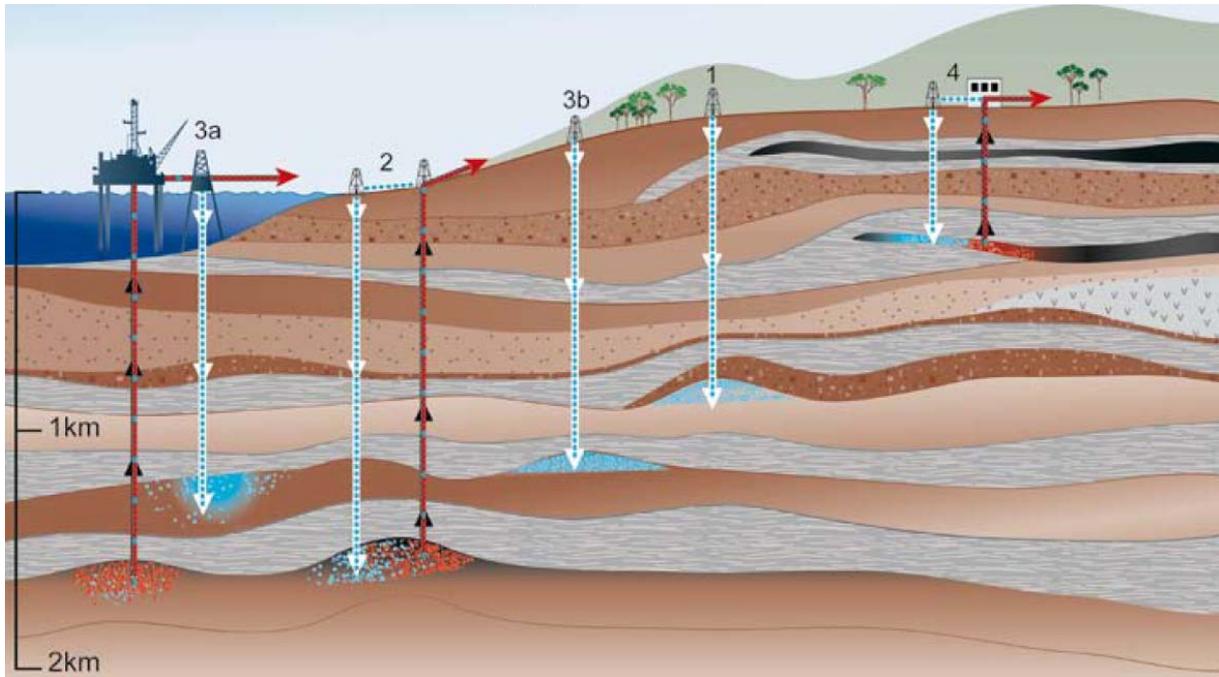


Abbildung 7 Methoden (1: aufgelassene Öl und Gas Lagerstätten; 2: Benützung von CO₂ für eine EOR Anwendung; 3: Tiefe Saline Formationen; 4: CO₂ in alte Kohle Lagerstätten) der CO₂ Lagerung in tiefen geologischen Untergrundformationen [IEA, 2005]

Das Risiko von Leckagen einer geologischen CO₂ Lagerung kann in zwei Kategorien unterteilt werden: globale Risiken, in der sich die Freisetzung von CO₂ in die Atmosphäre auf das globale Klima auswirkt und lokale Risiken einer CO₂ Leckage, die sich sowohl auf den Menschen als auch auf das Ökosystem und das Grundwasser auswirken kann. Eine CO₂ Konzentration in der Luft über 7-10 % hat sofort gesundheitliche Auswirkungen auf den Menschen.

Eine weitere Möglichkeit der Lagerung von CO₂ bieten Tiefseelagerstätten in Tiefen unterhalb von 1000 m. Dies kann mittels Pipelines von Schiffen, oder auch von onshore Bohrtürmen bewältigt werden. Derzeit gibt es jedoch noch kein Pilotprojekt dazu. Die Sicherheit dieser Lagerung und deren Auswirkungen (Lösung im Wasser bei hohem Druck) sind jedoch noch ungewiss.

Die Mineralisation oder auch die Reaktion von CO₂ mit Mineralien würde Kohlendioxid längerfristig aus der Atmosphäre entziehen. Dabei entstehen jedoch große Mengen an Feststoff die ihrerseits wiederum einen Einfluss auf die Umwelt ausüben können.

Die industrielle Nutzung von CO₂ beinhaltet chemische und biologische Prozesse, welche eine Reaktion mit CO₂ erfordern. Es werden derzeit rund 120 MtCO₂ pro Jahr industriell (exklusive EOR) genützt. Diese Option kann jedoch nur gemeinsam mit einer Lagerung eine Alternative bieten, da die industriell benötigten CO₂ Mengen bei weitem nicht dem derzeitigen CO₂ Ausstoß (49 GtCO₂ pro Jahr) entsprechen [IEA, 2005].

Eine Auflistung der Anforderungen an die Reinheit des zur Verdichtung bereitgestellten CO₂ ist in Tabelle 1 aufgelistet. Derzeit gibt es jedoch noch keine einheitlichen Bestimmungen.

Tabelle 1 Verschiedene Spezifikationen der CO₂ Qualität [Toftegaard, 2010]

Parameter	Mittlere Qualität, Lagerung in Aquiferen	Hohe Qualität, Lagerung im Ozean	U.S. Specifications
Pressure	110 bar	110 bar	-
Temperature	50 °C	50 °C	<50 °C
CO ₂	>96 Vol. %	>96 Vol. %	>95 %
H ₂ O	<500 ppm	<50 ppm	<480 ppmv
N ₂ , Ar	<4 Vol. % ^a	-	<4 Vol. %
O ₂	<4 Vol. % ^a	<100 ppm	<10 ppm
SO ₂	<200 mg/Nm ³	<50 mg/Nm ³	-
H ₂ S	-	-	<10-200 ppm
NO _x	-	-	-
NH ₃	-	-	-
CO	-	-	-
CH ₄	-	-	-
HC's	-	-	< 5 %
H ₂	-	-	-
Glycol	-	-	< 0.04 ppmv

^a Summe von N₂, O₂, and Ar sollten <4 Vol. %

1.4 DIE KOMBINATION VON BIOENERGIE UND CCS

Die Verwertung von Biomasse als alternativen Energieträger mit der Abscheidung des dabei entstandenen CO₂ kurz „BECCS“ (Bioenergy with Carbon Capture and Storage) kann sozusagen „negative CO₂ Emissionen“ zur Folge haben und besitzt damit einen speziellen Vorteil gegenüber anderen Technologien, welche CO₂ Emissionen lediglich reduzieren [IEA, 2011][Ricci, 2012] [Carbo, 2011] [Vergragt, 2010][Kraxner, 2002].

Der Preis pro abgeschiedener Tonne CO₂ mittels CCS verringert sich mit der Größe der Anlage. Generell wird daher der Preis pro Tonne abgeschiedenem CO₂ für Biomassekraftwerke eher höher sein, da sie grundsätzlich kleiner als z.B. Kohlekraftwerke sind. Für den Fall einer Co-Feuerung von Biomasse mit Kohle könnte jedoch die CO₂ Abtrennung mittels CCS auch sehr effektiv eingesetzt werden [IEA, 2008, 2].

1.5 SAUERSTOFFANREICHERUNG DER VERBRENNUNGSLUFT BEI THERMISCHEN ENTSORGUNGSANLAGEN

Sauerstoffanreicherung in Verbrennungsprozessen hat in den letzten Jahren in verschiedensten Bereichen entscheidend an Bedeutung gewonnen. Beispiele dafür finden sich in der Energietechnik, in der thermischen Abfallentsorgung sowie in der Metallurgie. Gründe für diese Entwicklung sind in der thermischen Abfallentsorgung die Steigerung von Entsorgungskapazitäten, die Verringerung des Zusatzbrennstoffverbrauchs sowie strengere Umweltschutzgesetze.

Sauerstoffanreicherung der Verbrennungsluft bei der Verbrennung von Klärschlamm wurde bereits von zahlreichen Studien untersucht [Sänger, 2000] [Chin, 2008][Lacava, 1999].

1.5.1 SAUERSTOFFEINBRINGUNG

In industriellen Prozessen haben sich aus sicherheitstechnischen Gründen zwei verschiedene Möglichkeiten, Sauerstoff in den Verbrennungsraum einzubringen, etabliert (Abbildung 8) [Baukal, 1998]:

- Vormischung
- Eintrag über Sauerstoffflanzen

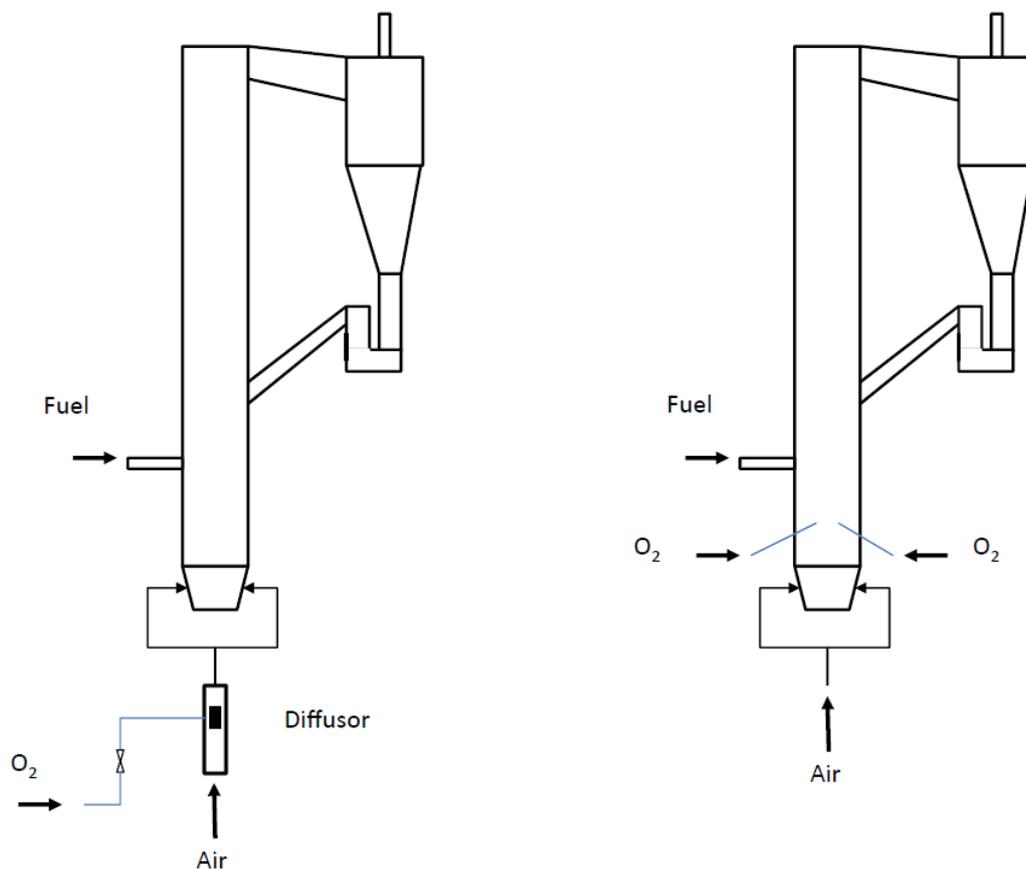


Abbildung 8 Schematische Darstellung der Vormischung (links) und Eintrag über Sauerstoffflanzen (rechts) [Baukal, 1998]

Vormischung: Bei der Vormischung wird der Sauerstoff, bevor er in die Brennkammer gelangt, mit der Verbrennungsluft vermischt. Dies wird auch als „low-level O₂ enrichment“ oder „premix enrichment“ bezeichnet [Chin, 2008]. Um eine möglichst optimale Vermischung des reinen Sauerstoffes mit der Verbrennungsluft zu begünstigen, wird meist, wie in Abbildung 8 dargestellt, ein Diffusor verwendet. Strahlenbildung kann auch mittels Rohrführung über mehrere Rohrgelenke nach der Vermischung erfolgen. Über die maximale Sauerstoffkonzentration bei der Anreicherung gibt es verschiedene Ansätze. Lacava [1999] gibt an, dass für eine Konzentration von 25 % Sauerstoff in der Verbrennungsluft noch keine sicherheitstechnischen Probleme entstehen sollten. In anderen Quellen

werden sogar problemlose Anreicherungen bis zu 28 % [Baukal, 1998] und auch 30 % [Chang, 2010] erreicht.

Dadurch, dass der Sauerstoff nicht direkt in den Verbrennungsraum eingebracht wird, werden Sauerstoffstrahlen und dadurch „Hot Spot“ Zonen mit erhöhter Temperatur vermieden. Der Nachteil dieser Methode liegt in der Ausführung der Anströmung, welche für den Einsatz von sauerstoffangereicherter Luft angepasst werden muss (Einsatz von Edelstahl). Ergebnisse einer 16 MW_{th} blasenbildenden Wirbelschicht unter Sauerstoffanreicherung wurden von Penthor [2012] behandelt.

Reinsauerstoffeintrag über Lanzen: Bei dieser Anwendung wird der Reinsauerstoff mittels Lanzen direkt in die Brennkammer eingebracht. Im Gegensatz zur Sauerstoffanreicherung sind für diese Methode geringere Investitionen nötig und sie eignet sich dementsprechend für ein eventuelles Nachrüsten von bestehenden Anlagen. Für Rostfeuerungen kann beispielsweise die Temperatur über dem Rost gesteigert werden, ohne dabei den eigentlichen Rost zu beschädigen.

Wird dieses Verfahren in Kombination mit der Methode des „air Staging“ [Eldrainy, 1996] verwendet, so können die NO_x Emissionen im Vergleich zur Sauerstoffanreicherung geringer ausfallen. Die Verkleidung und Ausmauerung des Brennraumes muss dabei durchdrungen werden. Dies kann einerseits zu erhöhten Wärmeverlusten und andererseits zu einer geringeren Lebensdauer des Reaktors führen.

Reinsauerstoffeintrag über Lanzen bei einer Klärschlammfeuerung wurde schon von Ludwig [2001] behandelt. Dabei konnte der Durchsatz um 37 % gesteigert werden und der Bedarf an Stützbrennstoff (Öl, Erdgas) um 42 % reduziert werden.

1.5.2 EINSATZGEBIETE DER SAUERSTOFFANREICHERUNG

Derzeit wird in der Industrie in vielen Bereichen Sauerstoffanreicherung bzw. Reinsauerstofffeuerung eingesetzt. Eine detaillierte Liste der Einsatzgebiete ist in Tabelle 2 zu sehen.

Tabelle 2 Überblick über gängige Einsatzgebiete der Sauerstoffanreicherung bzw. der Reinsauerstofffeuerung und deren primären Nutzen nach Reed [1997] mit Ergänzungen von Wöss [2009]

Industriezweig	Einsatzgebiet	primärer Nutzen
Aluminium	Umschmelzen	1, 2
Chemische Industrie	Verbrennung	1, 2, 3, 4
Eisen und Stahl	Siemens-Martin-Ofen	2, 1
	Schmelzeinrichtungen	2, 1
	Lichtbogenschmelze	1, 2
	Schmiedeofen	1, 2
Glasherstellung	regenerative Schmelzer	1, 2, 4
	Schmelzeinheit	1, 2, 4
	Wechselbehälter	1, 2, 4
Kupferproduktion	Schmelzen	1, 2, 3
	Anode	2
Papier- und Zellstoffherstellung	Kalkbrennofen	1, 2, 3
	Schwarzlauge	1, 2
Petrochemie	FCC Regenerator	1
	Claus Prozess	1
Ziegelindustrie	Ziegelbrennen	1, 2, 3
Zement	Kalzinieren	1

Unter dem primären Nutzen gelten für die Nummern 1, 2, 3, 4: Produktionssteigerung, Energieeinsparung, Qualitätssteigerung und Emissionsreduktion

Es zeigt sich, dass speziell bei Hochtemperaturprozessen, wie zum Beispiel der Metallurgie und der Zementproduktion, die sauerstoffangereicherte Verbrennung im Bereich Produktionssteigerung und Energieeinsparung eingesetzt wird.

1.6 OXYFUEL VERBRENNUNG IN THERMISCHEN ENTSORGUNGSANLAGEN

Derzeit werden alternative Brennstoffe vorwiegend mit Luft verbrannt. Das dabei entstehende Abgas besteht zum überwiegenden Teil aus dem Stickstoff der Luft und enthält je nach Luftüberschuss, unter dem die Verbrennung stattfindet, etwa 10-15 Vol. %_{trocken} CO₂.

Die Abscheidung des CO₂ aus dem Abgas bei diesen geringen Konzentrationen ist mit einem relativ hohen Energieaufwand verbunden, da für die meisten diesbezüglich in Frage kommenden Verfahren die gesamte Abgasmenge auf einen höheren Druck verdichtet werden muss. Beim Oxyfuel-Ansatz entsteht ein Abgas mit wesentlich höheren CO₂ Konzentrationen. Hier kann direkt nach der Kondensation des Wasserdampfes eine Verdichtung des Abgases bis zur selektiven Verflüssigung des CO₂ erfolgen.

Da bei der Oxyfuel-Technologie nicht Luft mit einem vorgegebenen Sauerstoffgehalt zum Einsatz kommt, kann in der synthetischen Mischung aus Reinsauerstoff und Verbrennungsgas der Sauerstoffgehalt in der Anströmung variiert werden. Dies stellt einen zusätzlichen Freiheitsgrad dar, der besonders bei der Umsetzung niedrigkalorischer Reststoffe neue Möglichkeiten bietet. So kann beispielsweise bei der Klärschlammverbrennung auf die derzeit notwendige Zufeuerung von Schweröl oder speziell aufbereitetem Schreddermaterial verzichtet werden. Der Wegfall des Luftstickstoffs erlaubt zudem die Optimierung der Prozessführung ohne der Bildung thermischer Stickoxide, die bei der Verbrennung mit Luft entstehen würden.

Oxyfuel Verbrennung alternativer Brennstoffe bietet daher nicht nur eine Technologie zur CO₂ Abscheidung, sondern auch die Möglichkeit der Stützbrennstoffeinsparung durch die sauerstoffangereicherte Verbrennung niedrigkalorischer Brennstoffe (Abbildung 9).

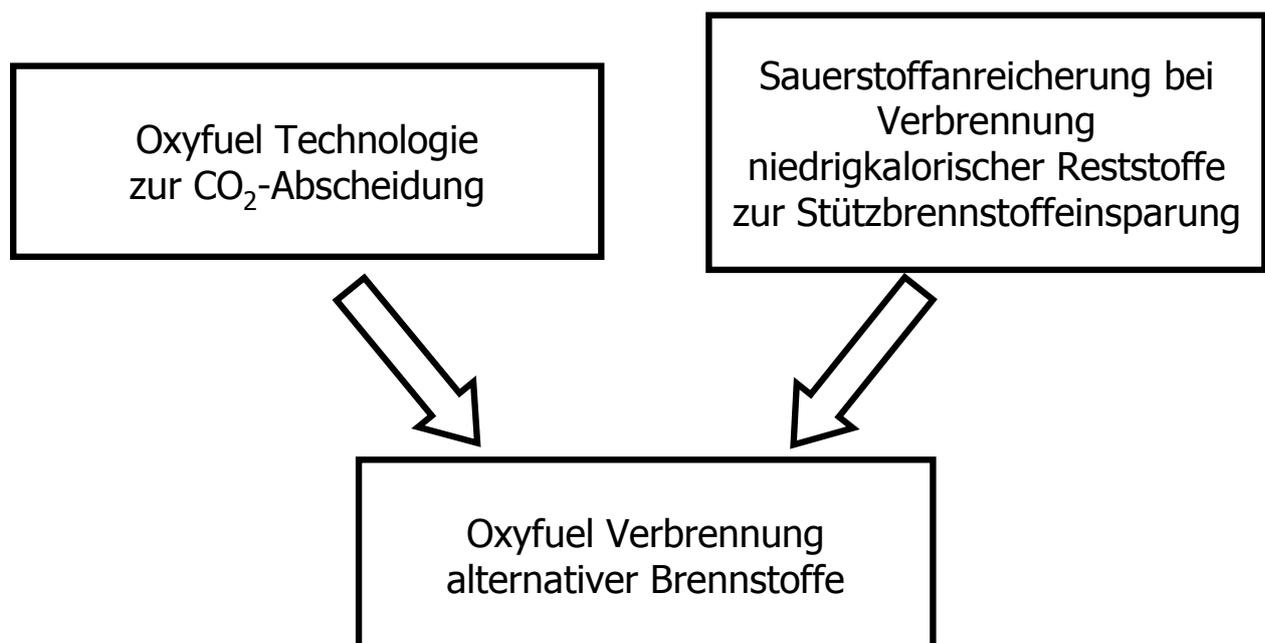


Abbildung 9 Nutzen der Oxyfuel Verbrennung in thermischen Entsorgungsanlagen

Der hier verfolgte Ansatz macht das CO₂ aus thermischen Entsorgungsanlagen bereit für eine gezielte Abscheidung (Capture-Ready). Stammt der Kohlenstoff im Brennstoff aus erneuerbaren, also CO₂ neutralen Quellen, wie bei der Verbrennung von Biomasse (darunter Klärschlamm), ermöglicht dies die Realisierung einer Netto-CO₂-Senke [IEA, 2008, 2]. Dieser Ansatz bietet speziell für thermische Entsorgungsanlagen folgende Vorteile:

- Einsparung fossiler Stützbrennstoffe und damit eine CO₂ Emissionsreduktion
- Durchsatzsteigerung
- Nachrüstung bestehender Anlagen möglich
- Geringere Abgasmengenströme / höhere Konzentrationen
- CO₂ – abscheidfähiges Konzept (Capture-Ready Waste Treatment)
- Potenzielle Netto-CO₂-Senkung bei Sequestrierung des CO₂

Eine vergleichbare Technologie mit ähnlicher Wirkung wäre die Co-Verbrennung von Reststoffen in großen, auf CO₂ Abscheidung ausgelegten Kohlekraftwerken, die ebenfalls nach dem Oxyfuel-Prinzip arbeiten. Hier bedeutet aber die Beseitigung der Schadstoffe, wie Schwermetalle, die in bestimmten Brennstofffraktionen enthalten sind, einen zusätzlichen Aufwand bei der Abgasbehandlung, der in diesem Fall für das gesamte Abgas des Kraftwerkes notwendig wäre. Für thermische Entsorgungsanlagen sind diese Abgasbehandlungsschritte Standard und sind auf Grund der hier höheren Rohgaskonzentrationen wirtschaftlich besser darstellbar.

1.7 BEITRAG DIESER ARBEIT ZUM DERZEITIGEN STAND DES WISSENS

1.7.1 AUSGANGSLAGE

Im Rahmen des FFG-Projektes „CO₂- freie Wirbelschichtverbrennung“ in Kooperation mit Messer Austria GmbH wurde eine als zirkulierende Wirbelschicht ausgeführte 100 kW_{th} Oxyfuel Versuchsanlage für die Verbrennung von Kohle dimensioniert, anhand fluidodynamischer Studien am Kaltmodell optimiert, als Heißenanlage gebaut und in Betrieb genommen. Die Versuchsanlage besteht aus einem zylindrischen Riser mit einer Höhe von 5 m und einem Durchmesser von 0.15 m [Hörtl, 2010].

In einer ersten Versuchskampagne konnte bereits eine CO₂ Konzentration von 85 % erreicht werden. Das Rauchgasrezirkulationsgebläse stellte jedoch einen limitierenden Faktor dar und so konnte nur eine maximale Leistung von 34 kW_{th} erreicht werden. Eine optimierte Betriebsführung hinsichtlich der Erweiterung des Betriebsbereiches war jedoch zu diesem Zeitpunkt noch nicht möglich.

Ziel der darauf folgenden Schritte im Rahmen des FFG Projektes „OxyAB“ und des Projektes „O₂Fuel“ war die vollständige Erfassung des möglichen Betriebsbereiches und die Adaptierung der Versuchsanlage für die Verbrennung von alternativen, insbesondere niedrigkalorischen, Brennstoffen.

1.7.2 HERAUSFORDERUNGEN BEI DER OXYFUEL VERBRENNUNG VON KLÄRSCHLAMM

Die Oxyfuel Verbrennung alternativer niedrigkalorischer Brennstoffe liefert einerseits den Vorteil, einen hoch reinen CO₂ Gehalt im Abgas für eine Sequestrierung bereitzustellen und andererseits durch eine optimierte Prozessführung die Möglichkeit der Stützbrennstoffeinsparung durch erhöhte Sauerstoffkonzentration in der Anströmung.

Um diese Ziele zu erreichen müssen folgende Effekte berücksichtigt werden:

- Aufrechterhaltung der Fluidisierung, auch für geringere Volumenströme, insbesondere für einen sauerstoffangereicherten Betrieb
- Werkstoff- bzw. korrosionsspezifische Probleme für erhöhte Sauerstoffkonzentrationen in der Anströmung und erhöhte Emissionen im Abgas
- Verdichtung von heißem feuchten Rauchgas
- Vermeidung von „Hot Spots“ durch schlechte Durchmischung des Reinsauerstoffes
- Veränderungen des Ascheschmelzverhalten aufgrund der Brennstoffeigenschaften bzw. durch Begleitstoffe
- Verschiebung der Verbrennungszone
- Veränderter Wärmeübergang im Kessel
- Ein minimaler Feststoffumlauf wird benötigt für eine erhöhte Wärmeentnahme des Bettmaterials um die Verbrennungstemperatur im Reaktor zu limitieren

1.7.3 ZIELSETZUNGEN DIESER ARBEIT

Diese Doktorarbeit soll zum Verständnis der Oxyfuel Verbrennung von Klärschlamm in der Wirbelschicht beitragen und dabei eine Entscheidungsgrundlage für eine Umrüstung bereits bestehender thermischer Verwertungsanlagen auf den Betrieb unter Oxyfuel Bedingungen bieten. Die einzelnen Ziele dieser Arbeit sind:

- Möglicher Arbeitsbereich für Klärschlamm mit erhöhtem Wassergehalt in Bezug auf den Sauerstoffgehalt im Verbrennungsgas
- Zu erwartende Emissionen speziell für CO, O₂ und NO_x
- Optimierte Prozessbedingungen für erhöhten CO₂ Anteil im Rauchgas
- Anhand von Versuchsergebnissen validiertes Massen- und Energiebilanzmodell zur Bewertung des Potenzials dieser Technologie für die industrielle Anwendung
- Bewertung der technischen Machbarkeit einer industriellen thermischen Klärschlammverwertungsanlage für einen Oxyfuel Betrieb.

1.7.4 REALISIERUNG DER GESETZTEN ZIELE

Um die oben genannten Untersuchungen durchführen zu können, musste die bereits erwähnte bestehende Versuchsanlage für die Oxyfuel Verbrennung alternativer Brennstoffe umgebaut und schließlich in Betrieb genommen. Speziell für die Einbringung des Brennstoffes mussten Adaptionen durchgeführt werden. Eine Neukonstruktion der kompletten Rauchgasrezirkulation sollte die Erweiterung des möglichen Betriebskennfeldes erlauben. Optional sollte die Versuchsanlage auch mit Luft oder mit sauerstoffangereicherter Luft betrieben können, auch die Sicherheit während des Anfahrprozesses sollte damit erhöht werden. Durch fluiddynamische Untersuchungen am Kaltmodell sollten weiters Rückschlüsse zur Bestimmung der Feststoffumlaufzeit in der Heißeinlage gezogen werden können.

2 Theoretische Grundlagen

2.1 KLÄRSCHLAMMVERBRENNUNG

2.1.1 EINLEITUNG

Im Bereich der Biomasse zählt Klärschlamm zu den Sekundärprodukten da dessen Energie nur indirekt von der Sonne gewonnen wurde [Kaltschmitt, 2009].

Klär- und Fäkalschlämme bestehen aus einer Mischung von aus dem Abwasser entnommenen festen Inhaltsstoffen (Primärschlamm) und dem bei der mikrobiellen Abwasserreinigung entstandenen Bakterien Schlamm (Überschussschlamm) [BAWP, 2011].

Für kommunale Abwasserreinigungsanlagen wird im Wesentlichen zwischen der mechanischen, der biologischen und der chemischen Reinigungsstufe sowie der Schlammbehandlung unterschieden.

Der Zulauf des Abwassers führt über eine Rechenanlage, zu einem Sand- und Fettfang bis hin zur Vorklärung. Dabei kann ein Feststoffanteil von 50-70 Gew.% abgetrennt werden, welcher als Primärschlamm bezeichnet wird. In der biologischen Reinigungsstufe werden Bakterien oder andere Mikroorganismen verwendet welche, die organischen Verbindungen zum Wachstum bzw. Aufbau von Biomasse und die anorganischen Inhaltsstoffe (Nitrit, Ammonium-Stickstoff) oxidieren (Nitrifikation). Während dieser Zeit müssen die Mikroorganismen mit Sauerstoff versorgt werden. In einem zweiten Schritt kann der im Nitrat gelöste Sauerstoff zum weiteren Abbau von Kohlenstoffverbindungen genutzt werden (Denitrifikation). In der chemischen Reinigungsstufe wird zumeist der Phosphor entfernt. Der in der chemischen Reinigung entstehende Schlamm wird Fällschlamm genannt. In einem letzten Schritt ist der aus der Abwasserreinigung anfallende sogenannte Primärschlamm aus der Vorklärung, der Überschussschlamm aus der biologischen und der Fällschlamm aus der chemischen Reinigungsstufe einer Schlammbehandlung zu unterziehen [Abw. Rtl, 2008] [Werther, 2000]. Prinzipiell kann der Klärschlamm, welcher einer Schlammbehandlung unterzogen wurde, entweder in einem Faulturn zur Gewinnung von Methangas oder direkt in einer thermischen Anlage entsorgt werden.

In Abbildung 10 ist die Entwicklung des österreichischen Klärschlammaufkommens sowie dessen Verwertung und Entsorgung bei kommunalen Kläranlagen dargestellt. Die sonstige Klärschlammverwertung bzw. Entsorgung umfasst unter anderem die Bereiche Kompostierung, Landschaftsbau, Zwischenlagerung, Bauzuschlagstoff und Kleinmengenabgaben. Dabei zeigt sich, dass bei der Entwicklung der unterschiedlichen Verwertungs- und Entsorgungspfade der Anteil an thermischer Verwertung weiter ansteigt, während der deponierte Klärschlammanteil deutlich sinkt.

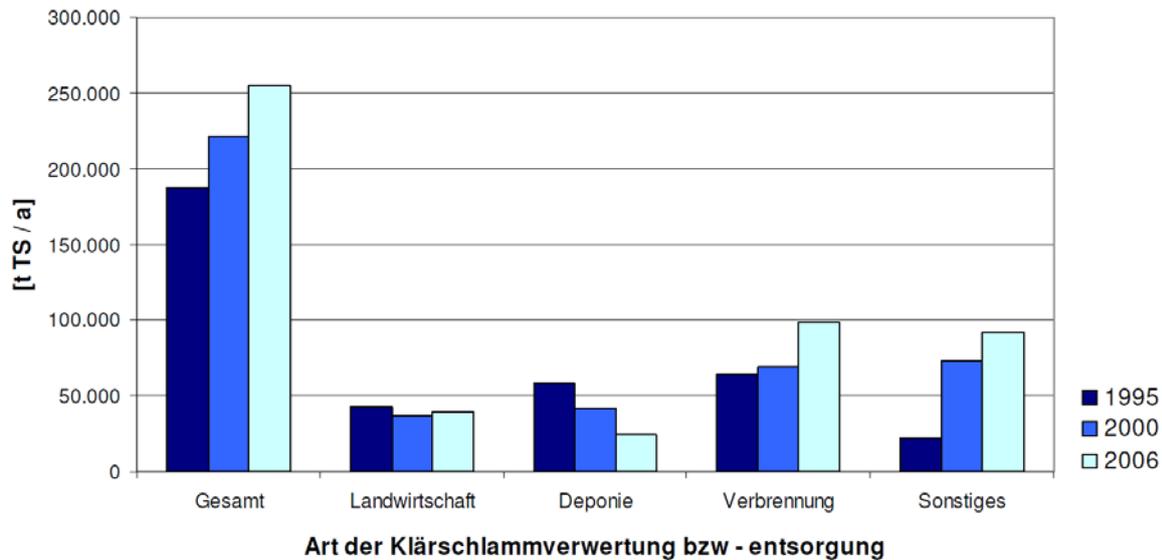


Abbildung 10 Entwicklung des Klärschlammaufkommens sowie Verwertung und Entsorgung bei kommunalen Kläranlagen ≥ 2.000 EW in den Jahren 1995, 2000 und 2006 [Abw. Rtl, 2008]

2.1.2 KLÄRSCHLAMM ZUSAMMENSETZUNG

Die Zusammensetzung von Klärschlamm unterscheidet sich deutlich von beispielsweise Kohle. Zu den wichtigsten Eigenschaften von Klärschlamm, die speziell für die Verbrennung relevant sind, zählen [Werther, 2000]:

- Ein flüchtiger Bestandteil von bis zu 90 %
- Ein Ascheanteil von bis zu 50 Gew. % im Trockenanteil
- Ein hoher Wasseranteil von bis zu 80 Gew. %

Die organische Trockensubstanz besteht aus Cellulose und synthetischen Chemikalien. Der anorganische Anteil von Klärschlamm besteht vor allem aus Sand (Straßen) und Salzen (Enteisung von Straßen, Fäkalien). In quantitativ viel kleineren Mengen sind Schwermetallsalze enthalten, die von korrodierenden Metallen (Autos, Stahlkonstruktionen, Metallrohre) stammen [Stammbach, 1987].

Im Hinblick auf den zu erwartenden hohen Wassergehalt ist ein dementsprechend geringer Heizwert zu erwarten. In Abbildung 11 wird der Energieinhalt in Abhängigkeit des Wassergehaltes für eine gegebene Zusammensetzung der Trockensubstanz dargestellt. Klärschlamm nach einer mechanischen Entwässerung besteht aus einem Wassergehalt von ungefähr 70 Gew. % und einem Heizwert von 3000 kJ/kg.

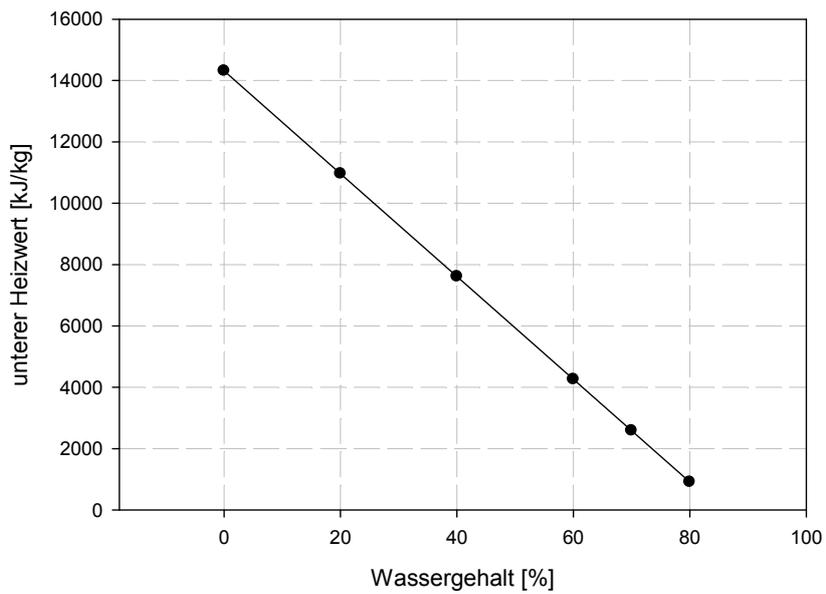


Abbildung 11 Energieinhalt dargestellt als Heizwert in Abhängigkeit des Wassergehaltes des Klärschlammes

Der Wassergehalt wirkt sich jedoch nicht nur auf den Heizwert sondern auch auf die Art der Einbringung in den Reaktor aus. In Abbildung 12 sind die mechanischen Eigenschaften, welche für eine Förderung relevant sind, dargestellt.

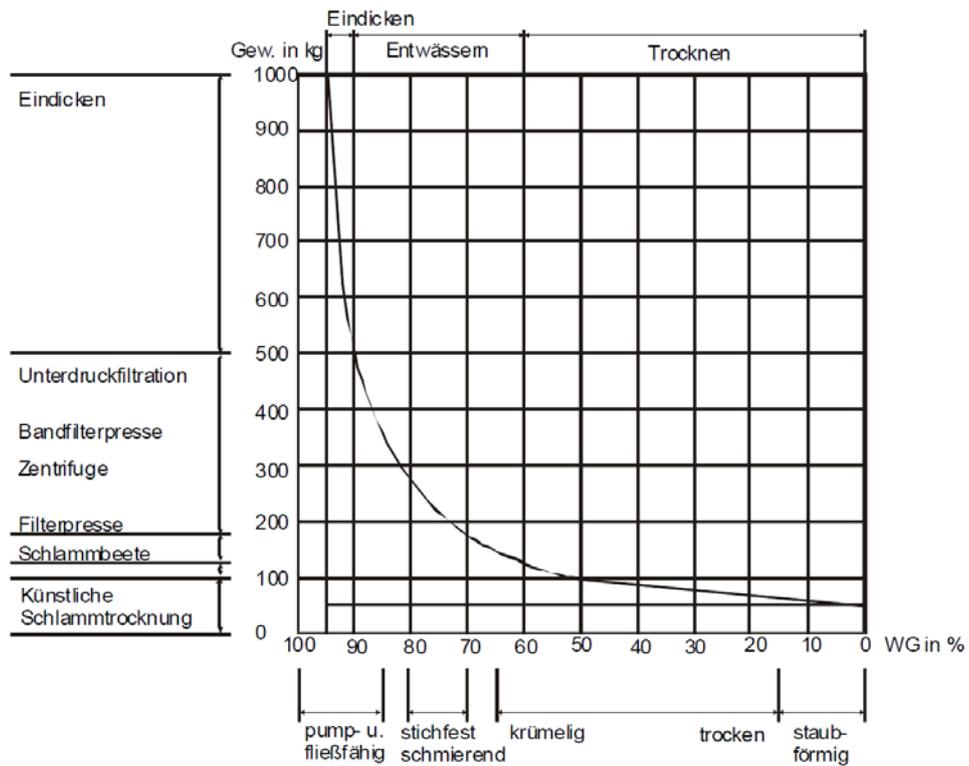


Abbildung 12 Eigenschaften des Klärschlammes in Abhängigkeit vom Wassergehalt, sowie die eingesetzten Verfahren zur Entwässerung [UmwBA, 2001]

Man erkennt, dass sich die Art der Einbringung in den Reaktor je nach Wassergehalt des Klärschlammes ändert. Die Pump- und Fließfähigkeit endet ab einem Wassergehalt von etwa 80 %. Ab einem Wassergehalt von etwa 65 % wird der Klärschlamm krümelig und kann mittels einer Förderschnecke gefördert werden. Dazwischen ist eine zähe, stichfeste Region, in der der Klärschlamm schwer zu fördern ist [Werther, 2000]. Für großtechnische Anwendungen werden für diesen Bereich Spezialpumpen oder Exzentrerschnecken eingesetzt [Thomé-Kozmiensky, 1998].

Die Zusammensetzung des Klärschlammes, welche in Tabelle 3 mit anderen Brennstoffen verglichen wird, hängt von der Art des Klärschlammes (Primär, Sekundär-, Faulschlamm, stabilisiert oder unstabilerter,...) und die Herkunft (kommunale oder gewerbliche Kläranlage, Kläranlage im städtischen oder ländlichen Bereich, Größe der Kläranlage,...) ab.

Tabelle 3 Vergleich der Brennstoffzusammensetzung verschiedener Brennstoffe [Lindner, 2001] [Libra, 2011]

Elementar-Analyse (Mass. %, waf)	Holzbrennstoffe	Primärschlamm	Müll	Steinkohle
Kohlenstoff	50-55	53.3	47-52	83.3
Wasserstoff	5-6	7.2	0.63	5.4
Sauerstoff	39-44	32	40-42	9.2
Stickstoff	0.1-0.2	5.3	0.16-0.25	1.1
Schwefel	0-0.1	2.1	0.002-0.003	1.1
Asche (Mass. %, wf)	0.1-8	25	12-50	3.8
Wassergehalt	5-60	90-95	15-40	3.5

2.1.3 THERMISCHE BEHANDLUNG VON KLÄRSCHLAMM IN DER WIRBELSCHICHT

Um die verschiedensten Verfahren der thermischen Behandlung von Klärschlamm zu beschreiben, können die Technologien in drei Kategorien eingeteilt werden: die Monoverbrennung, die Co-Verbrennung und alternative Verfahren.

In Abbildung 13 werden diese Möglichkeiten der thermischen Behandlung beziehungsweise der Verwertung von Klärschlämmen dargestellt.

Der feuchte Klärschlamm mit einem Feuchtigkeitsgehalt von über 70 Gew. % kann nicht autotherm verbrannt werden. Für die Monoverbrennung des Klärschlammes muss eine entsprechende Vortrocknung stattfinden. Hingegen ist es möglich auch feuchten Klärschlamm zu verbrennen, wenn Stützbrennstoff (z.B. Öl, Gas, Abfall...) verwendet wird. Die Monoverbrennung von Klärschlamm findet meistens in Wirbelschichtöfen bei einem Feuchtigkeitsgehalt von rund 50-68 Gew. % statt [Werther, 2000].

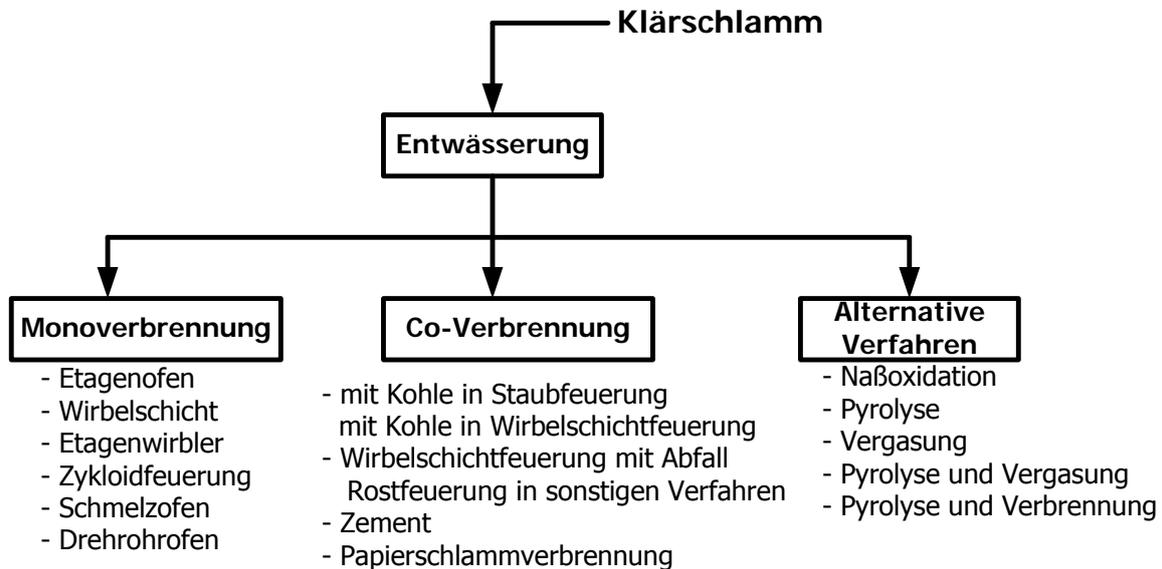


Abbildung 13 Möglichkeiten der thermischen Behandlung bzw. Verwertung von Klärschlämmen [Werther, 2000]

Der Ascheanteil der Trockensubstanz, der bis zu 50 Gew. % betragen kann, muss mit einem entsprechendem Ascheabzug entfernt werden. Ein hoher Anteil an Stickstoff, Chlor, Schwefel, Dioxin und Furan erfordert eine entsprechende Rauchgasnachbehandlung, um die örtlichen Emissionsvorschriften einzuhalten [Leckner, 2003].

Im Falle einer thermischen Verwertung ist die Erreichung eines möglichst hohen Heizwertes des Klärschlammes und damit auch ein dementsprechend hoher Trocknungsgrad des Materials wünschenswert. Der Energieaufwand für den gewünschten Trocknungsgrad verläuft jedoch nicht linear proportional zum gewünschten Trocknungsgehalt sondern aufgrund von zu überwindenden Adsorptionswärmen und Kapillarkräften überproportional. Weiters funktioniert die für hohe Trockensubstanzgehalte erforderliche thermische Trocknung mit deutlich geringeren Wirkungsgraden als die mechanischen Entwässerungsverfahren [Wolf, 1994].

2.1.4 MECHANISMEN DER KLÄRSCHLAMMVERBRENNUNG

Durch die speziellen Eigenschaften von Klärschlamm hinsichtlich Wasseranteil, Ascheanteil und Anteil an flüchtigen Bestandteilen sind die Mechanismen der Verbrennung deutlich unterschiedlich im Vergleich zu einer Kohleverbrennung. Im folgenden Abschnitt wird speziell auf Mechanismen die für die Vorgänge in Wirbelschichtöfen relevant sind, eingegangen. Zu den wichtigsten Mechanismen der Verbrennung zählen deshalb die Trocknung, die Freisetzung der flüchtigen Bestandteile, der Koksabbrand und Entgasung.

2.1.4.1 Trocknung und Entgasung

Versuche von Ogada et al. [1995] haben gezeigt, dass Trocknung und Entgasung bei der Verbrennung von Klärschlamm in der Wirbelschicht gleichzeitig ablaufen (Abbildung 14). Die Versuche wurden mit Schlammteilchen mit einem Durchmesser zwischen 4 bis 20 mm durchgeführt.

Für Einzelteilchen gilt, dass die Entgasung am Partikelrand eintritt, während noch eine Trocknung des Partikelkerns stattfindet [Thomé-Kozmiensky, 1998]. Die von innen kommenden Dampfströme kühlen das Partikel wodurch die Entgasung von Klärschlamm mit höherem Wassergehalt länger dauert als jene von trockenen Klärschlammteilchen.

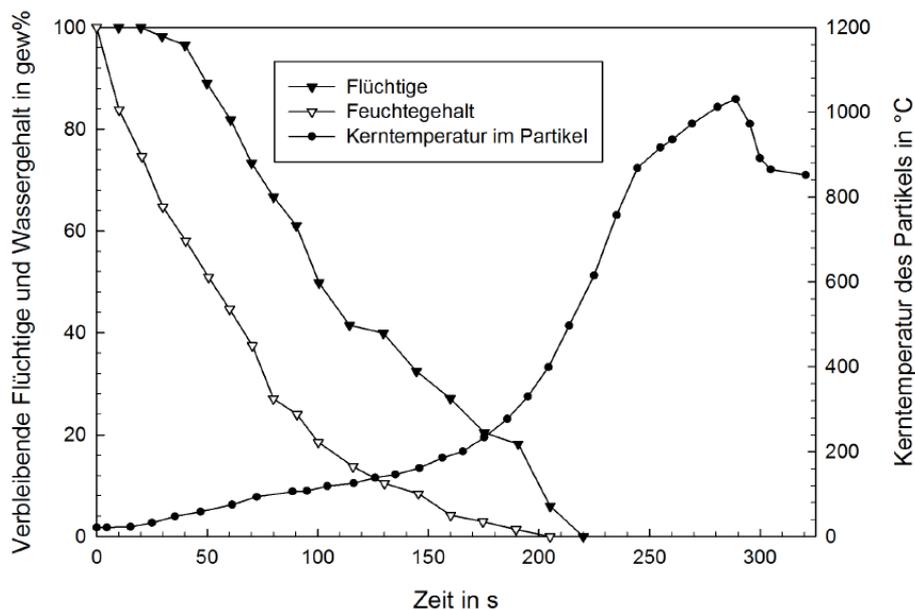


Abbildung 14 Wasser-, Flüchtige und Temperaturprofile eines Klärschlammteilchens nach Werther [2000] angepasst von Christa [2011]

2.1.4.2 Entgasung und Verbrennung des flüchtigen Anteils

Die Entgasung von Klärschlamm beginnt schon ab einer Temperatur von 150 °C. Dies ergaben Messungen des Heizwertes von getrockneten Klärschlammteilchen bei steigender Temperatur. Ab einer Temperatur von 200 °C wurde nur noch die Hälfte des anfänglichen Heizwertes gemessen. Dies deutet auf eine Entgasung bei geringen Temperaturen hin [Vesilind, 1996].

Die Menge verflüchtigter Feststoffe bei langer Verweilzeit wächst mit höherer Endtemperatur, steigender Aufheizrate und kleinerem Durchmesser [Stammach, 1987].

Die Gaszusammensetzung des flüchtigen Bestandteils besteht zu einem Großteil aus H_2 , CO , CO_2 und C_xH_y . Der Hauptanteil bildet CO und Kohlenwasserstoffe [Werther, 2000].

2.1.4.3 Koksabbrand im Wirbelbett

Der Koksanteil ist durch den hohen Anteil an flüchtigen Bestandteilen relativ gering. Er weist eine hohe spezifische Oberfläche und aufgrund der Trocknungs- und Entgasungsvorgänge eine sehr feine

Porenstruktur auf. Der hohe Ascheanteil, welcher wiederum zu einem hohen Anteil aus Eisen besteht, fördert die Reaktivität für den Koksabbrand [Werther, 2000].

2.1.4.4 Verhalten des Klärschlammes in der stationären Wirbelschicht

Da die Verbrennung der Flüchtigen einen hohen Anteil am gesamten Energieinhalt ausmacht, sind bei der Verbrennung in der Wirbelschicht vor allem der Ort der Entgasung und der Verbrennungsort der Flüchtigen von großer Bedeutung.

Wird der Klärschlamm ins Wirbelbett eingebracht, treten wegen des exzellenten Wärmeüberganges in der Wirbelschicht dort Trocknung und Entgasung auf. Da es aber unabhängig davon, ob das Wirbelbett bezogen auf die vollständige Oxidation des ins Bett eingebrachten Brennstoffes über- oder unterstöchiometrisch betrieben wird, zu lokaler Sauerstoffunterversorgung im Bereich der schnell entgasenden Brennstoffpartikel kommt, wird die Oxidation der Entgasungsprodukte teilweise in den Freiraum über dem Wirbelbett verschleppt (partial heat release). Dies führt zu einem Temperaturanstieg im Freiraum gegenüber dem Wirbelbett.

Bei Klärschlamm sind die flüchtigen Bestandteile hauptverantwortlich für die Wärmefreisetzung. Dies ist speziell bei der Verbrennung von nassem Klärschlamm in der Wirbelschicht von Bedeutung, da sich die Wärmefreisetzung zwischen Wirbelbett und Freiraum aufteilt. Um die Betttemperatur nicht zu stark sinken zu lassen muss für die Verbrennung von Dickschlamm Stützbrennstoff zugefeuert werden. Die Wärmeaufteilung zwischen Wirbelbett und Freiraum sollte so gestaltet werden, dass die Wärme im Bett freigesetzt wird, um Stützbrennstoff einzusparen. Jedoch muss beachtet werden, dass die Temperatur im Freiraum höher als 850 C° bleiben muss, um Emissionen gering zu halten. Bei einer zu hohen Betttemperatur muss jedoch auf den Ascheschmelzpunkt geachtet werden. Versuche von Wang et al. [2012] haben gezeigt, dass der Ascheschmelzpunkt bei einem hohen Eisengehalt in der Asche bis unter 1000 C° absinken kann.

2.1.4.5 Verhalten des Klärschlammes in der zirkulierenden Wirbelschicht

Im Vergleich zur stationären Wirbelschicht erfolgt bei der zirkulierenden Wirbelschicht eine Erhöhung der Geschwindigkeit in der Anströmung. Dies führt zu einem hohen Feststoffaustrag, welcher dem Wirbelbett wieder rückgeführt werden muss.

Auf Basis der Erfahrungen in der stationären Wirbelschicht, ist für ein Klärschlammteilchen in der zirkulierenden Wirbelschicht ebenfalls von einem gleichzeitigen Ablauf von Trocknung und Entgasung auszugehen. Da Klärschlamm im Vergleich zu anderen Brennstoffen einen sehr hohen Anteil an flüchtigen Bestandteil aufweist, kann von einer höheren Wärmefreisetzung nach der Feststoffabscheidung ausgegangen werden. Die gewünschte Betttemperatur kann mittels Wärmeabfuhr aus dem umlaufendem Bettmaterial geregelt werden. Dies verschafft einen großen Vorteil gegenüber der stationären Wirbelschicht, speziell für eine Betriebsführung mit erhöhtem Sauerstoffgehalt in der Anströmung zur Durchsatzsteigerung.

2.2 OXYFUEL TECHNOLOGIE

2.2.1 EINLEITUNG

Das OxyFuel Prinzip der Verbrennung mit Reinsauerstoff und rezirkulierendem Rauchgas wird in Abbildung 15 dargestellt. Der Reinsauerstoffstrom wird aus einer vorgeschalteten Luftzerlegung gewonnen und um die Temperatur in der Brennkammer, speziell am Düsenaustritt, nicht zu hoch ansteigen zu lassen, muss Rauchgas rezirkuliert werden. Die Rauchgasmenge nach Abzug der Rezirkulation ist dabei wesentlich geringer als bei einer Verbrennung mit Luft und durch den Wegfall des Luftstickstoffes besteht das Rauchgas hauptsächlich aus Wasserdampf und CO_2 . Nach Kondensation des Wasserdampfes steht ein Gasstrom mit einer hohen CO_2 Reinheit bereit. Bisher wurde eine maximale CO_2 Reinheit von 92 Vol. % [Scheffknecht, 2011] erreicht.

Die Wahl der Sauerstoffkonzentration in der Anströmung ist ein zusätzlicher Freiheitsgrad für die Optimierung der Prozessführung, der speziell in Wirbelschichtenanlagen genutzt werden kann. So kann beispielsweise bei der Klärschlammverbrennung auf die derzeit notwendige Zufeuerung von hochkalorischen Stützbrennstoffen verzichtet werden.

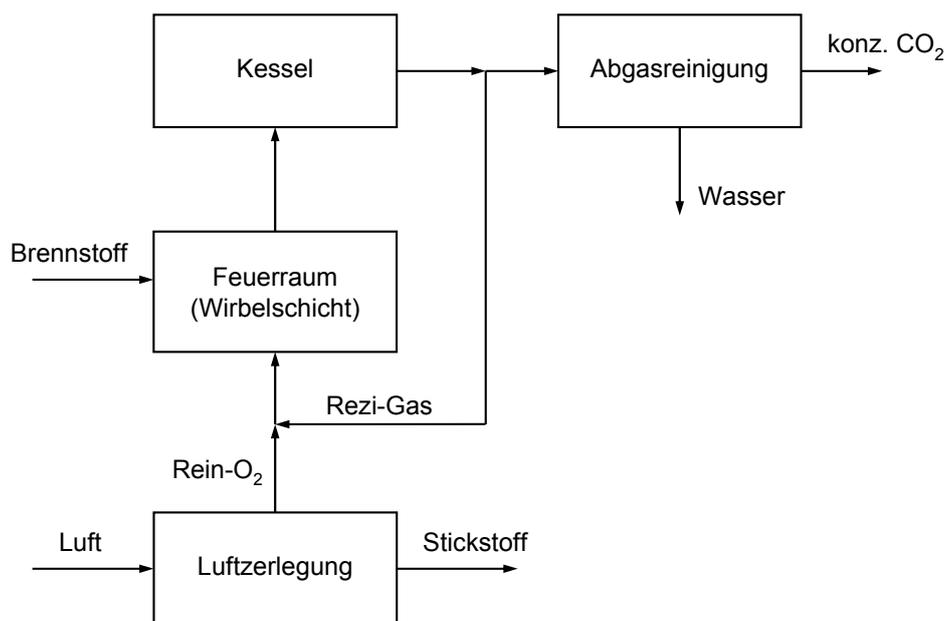


Abbildung 15 Das Oxyfuel Prinzip

2.2.2 RAUCHGASREZIRKULATION

2.2.2.1 Varianten der Rauchgasrezirkulation

Für die Wahl der Rauchgasrezirkulation sind mehrere Gestaltungsmöglichkeiten offen. Grundsätzlich wird jedoch zwischen zwei Rezirkulationsvarianten unterschieden [Kather, 2007]:

- Trockene Rezirkulation
- Nasse Rezirkulation

Bei der trockenen Rezirkulation wird Rauchgas, nachdem es entstaubt, entschwefelt und vorgetrocknet wurde, wieder in die Brennkammer rückgeführt. Dadurch wird ein eventuelles Korrosionsrisiko gesenkt und die Verdichtung fällt deutlich einfacher aus. Nachteilig ist jedoch, dass damit die Baugröße der Komponenten zur Rauchgasnachbehandlung (aufgrund der größeren Rauchgasmenge) deutlich größer ausfallen muss.

Bei der nassen Rezirkulation wird das heiße Rauchgas direkt nach der Brennkammer rückgeführt. Dadurch kann nicht nur der Rauchgasrezirkulationskanal kurz gehalten werden, sondern der Rauchgaskanal nach der Rezirkulation kann ebenfalls entsprechend klein gestaltet werden.

Die Unterschiede beider Varianten werden in Tabelle 4 dargestellt.

Tabelle 4 Unterschiede der trockenen und der nassen Rezirkulation

Trockene Rezirkulation	Nasse Rezirkulation
<ul style="list-style-type: none"> • geringere Kosten für den eingesetzten Verdichter • weniger Korrosion • weniger Wassergehalt in der Brennkammer, wirkt sich positiv auf den benötigten Restsauerstoffgehalt aus 	<ul style="list-style-type: none"> • kleinere DeNo_x, DeSO_x • höherer H₂O und geringerer CO₂ Partialdruck in der Brennkammer, welcher sich positiv auf die Chemie der Verbrennung auswirkt (reaktivere Atmosphäre)

Eine Rauchgasrezirkulation erhöht nicht nur die Konzentration von CO₂, sondern auch von allen anderen Komponenten, wie Restsauerstoff, Emissionen und insbesondere Staubanteil. Der höhere Staubanteil muss nicht nur bei der Auslegung des Zyklons, sondern auch als zusätzliche Belastung für das Rauchgasrezirkulationsgebläse beachtet werden. Um diesem Problem entgegenzuwirken, kann im beschriebenen Fall das Rauchgas nach der Staubabscheidung rezirkuliert werden, wie es auch bei der Konstruktion der 100 kW_{th} Versuchsanlage umgesetzt wurde [Höhl, 2009].

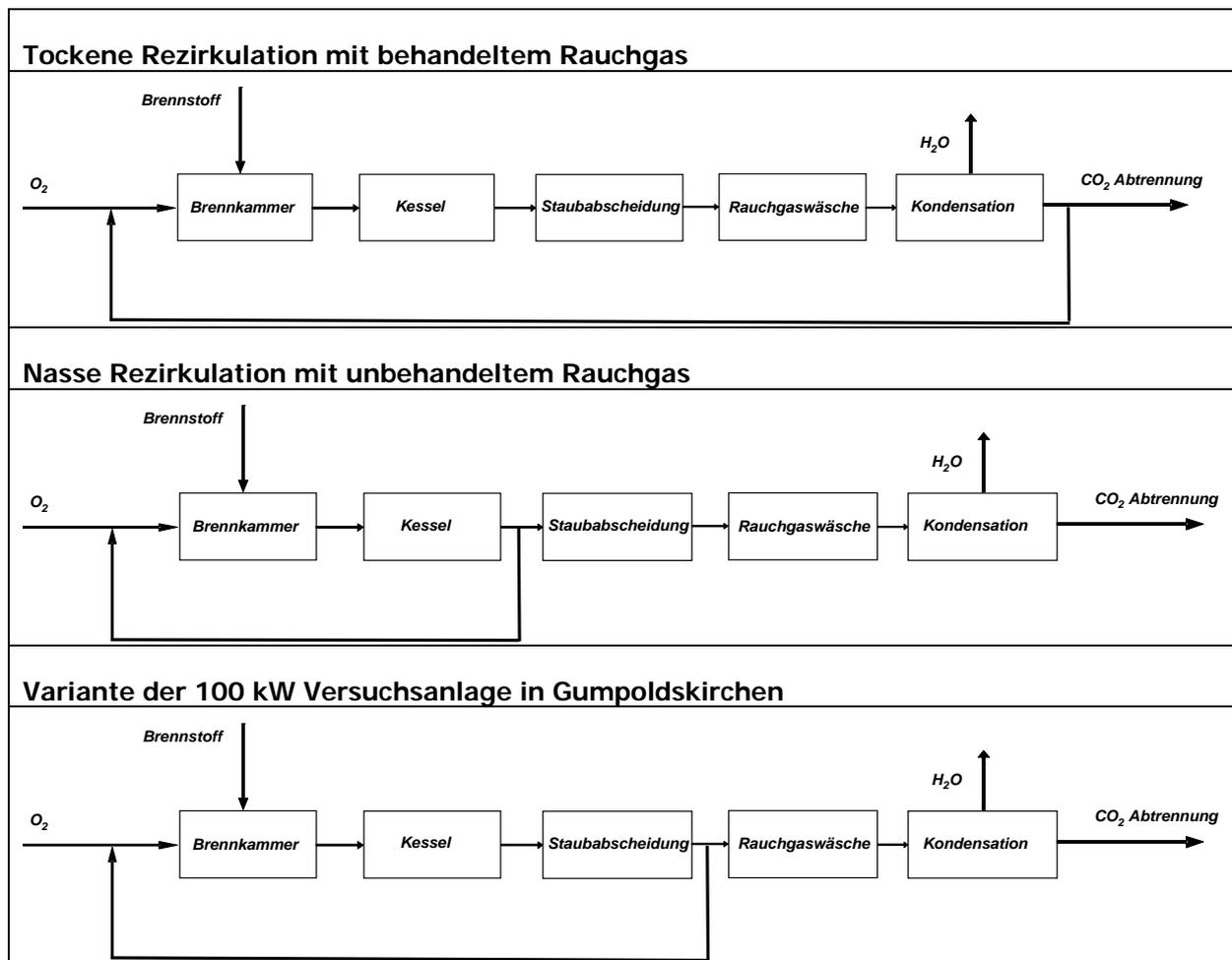


Abbildung 16 Darstellung der zwei wichtigsten Varianten der Rauchgasrezirkulation und Prinzip der Oxyfuel Versuchsanlage

In Abbildung 16 werden die verschiedenen Varianten der Rauchgasrezirkulation veranschaulicht. Als Vergleich dient die Variante, die für den Betrieb der Versuchsanlage gewählt worden ist, bei der die Rauchgasrezirkulation nach der Staubabscheidung angebracht wurde, um den Verdichter nicht mit zu hohen Staubbelastungen zu beschädigen.

2.2.2.2 Rezirkulationsrate

Die Wahl der Rezirkulationsrate [Kather, 2006], [Becher, 2010] ist ein entscheidender Faktor für den Oxyfuel Prozess, da sie die Sauerstoffkonzentration in der Anströmung bzw. im Oxidationsgas bestimmt.

Sie ist definiert als

$$\omega = \frac{\dot{m}_{\text{rezi}}}{\dot{m}_{\text{Brennk}}} \quad (2.1)$$

Wobei \dot{m}_{rezi} als der Massenstrom definiert ist, welcher aus dem Abgas in die Brennkammer rückgeführt wird und \dot{m}_{Brennk} der gesamte Massenstrom am Ende der Brennkammer inklusive des rezirkulierten Anteils ist.

Die Rezirkulationsrate ist für die Menge an rezirkuliertem Rauchgas und somit auch für die Menge der einzelnen Rauchgaskomponenten mit verantwortlich. Der Einfluss der Rauchgasrezirkulation der verschiedenen Rauchgasanteile auf die CO_2 Reinheit im Rauchgas wird in *Kapitel 2.2.3 CO_2 Verunreinigungen* behandelt.

Dadurch beeinflusst die Rezirkulationsrate die Temperatur in der Brennkammer. Speziell in der Wirbelschicht, in der die Möglichkeit besteht, Wärme aus dem Bettmaterial (in der Regel Fließbettkühler, im Falle der 100 kW_{th} Oxyfuel Versuchsanlage eine Kühlschnecke) zu entziehen, beeinflusst die Rezirkulationsrate die dem Bettmaterial zu entziehende Wärme. Dies wird in *Kapitel 2.4.3 Übertragene Wärme im Oxyfuel Fall* näher behandelt.

2.2.2.3 Rezirkulationstemperatur

Bei der Verbrennung mit Luft als Fluidisierungsmedium kann die in den Reaktor eintretende Luft durch eine Luftvorwärmung auf eine entsprechende Temperatur gebracht werden. Dies erhöht die Verbrennungstemperatur in der Brennkammer, ist jedoch ein zusätzlicher energetischer Aufwand.

Bei einer Oxyfuel Verbrennung kann die Temperatur in der Brennkammer auch durch die Rauchgasrezirkulationstemperatur reguliert werden.

Die Wahl der Rezirkulationstemperatur wird durch anlagenspezifische Größen begrenzt. So wird der untere Temperaturbereich, bei der Verbrennung von Kohle und Klärschlamm, durch den Taupunkt der Schwefelsäure im Rauchgas bestimmt. Da dieser je nach Rauchgaszusammensetzung variiert, wird von einer Mindesttemperatur von 200 °C ausgegangen. Für die obere Grenze der Rezirkulationstemperatur gilt es Wirkungsgradeinbußen durch zu hohe Verdichterleistungen zu vermeiden. Führt man eine nasse Rezirkulation mit Partikelabscheidung, wie es im Versuchsbetrieb der Fall ist, durch, wird außerdem die obere Grenze der Rauchgasrezirkulationstemperatur durch die maximal erlaubte Betriebstemperatur des eingesetzten Filters bestimmt. Somit ergibt sich für den Versuchsbetrieb ein technisch machbarer Bereich von 200-250 °C. Würde man eine Rauchgasrezirkulation vor der Staubabscheidung durchführen, so wäre die maximale Temperatur durch die Spezifikation des eingesetzten Verdichters festgesetzt.

2.2.3 CO_2 VERUNREINIGUNGEN

CO_2 Verunreinigungen im Rauchgas sind Gaskomponenten, die entweder durch die Zusammensetzung des Brennstoffes, durch die vorhandenen Prozessbedingungen, durch Komponenten in der Sauerstoffzuführung oder durch Falschlufft entstehen.

Der Grad der CO_2 Verunreinigung wird durch ökonomische, ökologische, prozessbedingte und durch die Anforderungen einer Sequestrierung bestimmt [Spilthoff, 2011].

In Abhängigkeit der Rezirkulationsrate verlässt der Rauchgasanteil, der nicht in die Brennkammer rückgeführt wird, den Kessel. Nach vollständiger Kondensation des Rauchgases wurden in den Versuchen an der 100 kW_{th} Oxyfuel Anlage ein CO₂ Gehalt von über 90 Vol. %_{trocken} erreicht [Tondl, 2011]. Zu den wichtigsten Verunreinigungen im Abgas hinsichtlich einer CCS Anwendung zählen SO_x, NO_x, HCl und Hg, alle nicht kondensierbaren Komponenten (O₂, CO, NO, H₂, N₂, CH₄, Ar) und Wasser [Spliethoff, 2011][White, 2010][Toftgaard, 2010].

Um das Rauchgas für eine Sequestrierung bereitzustellen, muss es nach konventionellen Gaswäscheinrichtungen einer weiteren CO₂ Aufbereitung unterzogen werden. Derzeit gibt es noch keine verbindlichen Spezifikationen der CO₂ Reinheit für eine Sequestrierung [Wall, 2011, 2].

2.2.3.1 Wassergehalt im Rauchgas

Die Rezirkulation des Rauchgases bewirkt nicht nur eine höhere Konzentration an CO₂ im Rauchgas sondern wirkt sich auch konzentrationssteigernd auf alle inerten Gaskomponenten, sowie auf die Endprodukte der Verbrennung (H₂O und N₂) im Rauchgas aus. Der Wassergehalt im Rauchgas ist, abgesehen vom Luftüberschuss, abhängig vom Wassergehalt im Brennstoff und von der Konzentration an Wasserstoff in der Trockensubstanz. In Abbildung 17 wurde der Wassergehalt des Abgases in Abhängigkeit des Wassergehaltes im Brennstoff für eine Luftverbrennung und für eine Oxyfuel Verbrennung dargestellt. Dabei ist zu erkennen, dass im Oxyfuel Fall grundsätzlich von einem höheren Wassergehalt als im Luftfall auszugehen ist. Dieser Unterschied wird jedoch geringer mit steigendem Wassergehalt im Brennstoff. Weiters ist der Wassergehalt im Abgas auch abhängig vom Wasserstoffgehalt des trockenen Brennstoffes, der für Klärschlamm in etwa 5 % ausmacht.

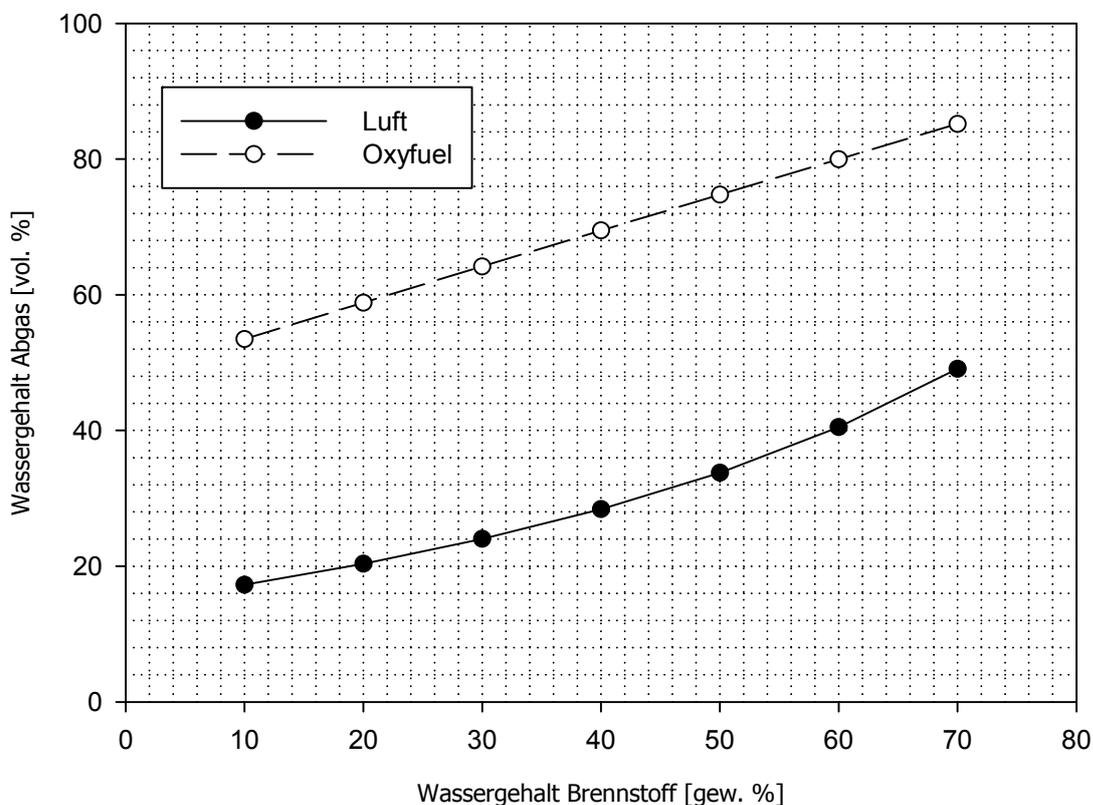


Abbildung 17 Wassergehalt im Abgas in Abhängigkeit des Wassergehaltes im Brennstoff

Beispielsweise erhält man bei der Verbrennung von Klärschlamm mit einem Wassergehalt von 10 Gew. % im Luftfall 17 Vol. % Wassergehalt im Abgas, im Oxyfuel Betriebsfall 53 %. Würde man Klärschlamm in einer Monoverbrennung mit einem Wassergehalt von 70 Gew. % verbrennen so würde man im Falle einer Oxyfuel Verbrennung sogar 85 Vol. % erreichen.

2.2.3.2 Sauerstoffüberschuss

Ein wichtiger Betriebsparameter bei der Auslegung einer Anlage im Oxyfuel Betrieb ist der zu verwendende Sauerstoffüberschuss [Kather, 2006]. Ziel ist es, einen möglichst geringen O₂ Gehalt im Abgas bei gleichzeitiger Geringhaltung der CO Emissionen, zu erreichen.

Ein geringer Sauerstoffgehalt im Abgas hat folgende Vorteile.

- Durch die Erhöhung der CO₂ Reinheit im Abgas können Energieeinsparungen bei der CO₂-Verdichtung erreicht werden
- Wirkungsgradverluste durch eine erhöhte Sauerstoffproduktion können vermieden werden

Da im Oxyfuel Fall auch Restsauerstoff rezirkuliert wird, ist das stöchiometrische Verbrennungsverhältnis der Brennkammer immer höher als das des Prozesses.

Um das stöchiometrische Verbrennungsverhältnis auszudrücken, kann die Systemgrenze sowohl um die ein- und austretenden Ströme der Brennkammer $\lambda_{\text{Brennkammer}}$ oder aber um die des Prozesses λ_{Prozess} gezogen werden. Diese zwei Ausdrücke werden in Abbildung 18 veranschaulicht.

Der Eintrag von Sauerstoff in die Brennkammer $\dot{m}_{O_2, \text{fluid}}$ setzt sich sowohl aus dem Massenstrom der Reinsauerstoffeinbringung $\dot{m}_{O_2, \text{rein}}$ als auch aus dem Massenstrom des Sauerstoffanteils im rezirkuliertem Rauchgas $\dot{m}_{O_2, \text{rezi}}$ zusammen (Gleichung 2.2).

$\lambda_{\text{Brennkammer}}$ wird in Gleichung (2.3) in Abhängigkeit des minimal erforderlichen Sauerstoff $\dot{m}_{O_2, \text{min}}$ und des restlichen Sauerstoffmassenstrom am Ausgang der Brennkammer $\dot{m}_{O_2, \text{Brennkammer}}$ dargestellt.

Für den Ausdruck von λ_{Prozess} in Gleichung (2.4) muss außerdem der Massenstrom des Sauerstoffanteils im rezirkulierten Rauchgas abgezogen werden.

Für den Zusammenhang von $\lambda_{\text{Brennkammer}}$ und λ_{Prozess} ergibt sich außerdem die Gleichung (2.5) [Becher, 2010].

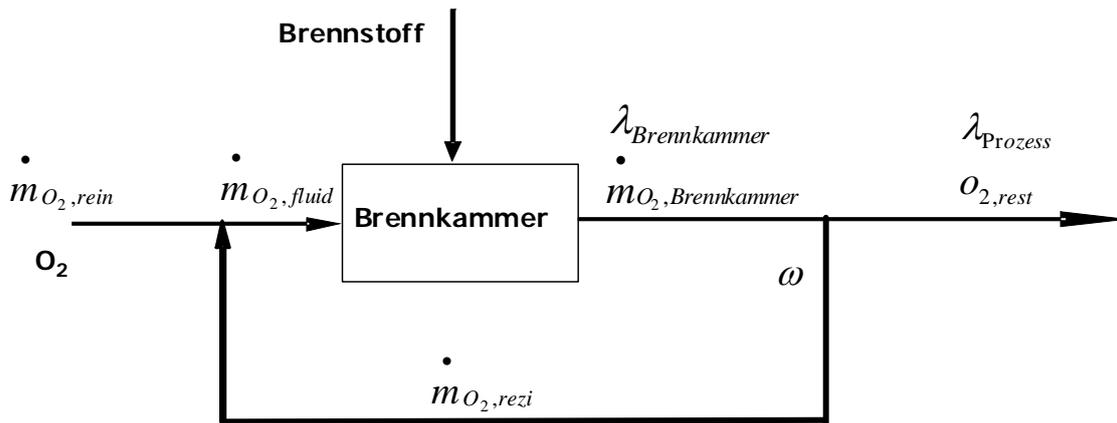


Abbildung 18 Stöchiometrisches Verbrenungsverhältnis im Oxyfuel Prozess

$\dot{m}_{O_2, fluid} = \dot{m}_{O_2, rein} + \dot{m}_{O_2, rezi}$	(2.2)
$\lambda_{Brennkammer} = \frac{\dot{m}_{O_2, min} + \dot{m}_{O_2, Brennkammer}}{\dot{m}_{O_2, min}}$	(2.3)
$\lambda_{Prozess} = \frac{\dot{m}_{O_2, min} + \dot{m}_{O_2, Brennkammer} - \dot{m}_{O_2, rezi}}{\dot{m}_{O_2, min}}$	(2.4)
$\dot{m}_{O_2, rest} = \lambda_{Prozess} - 1 = (\lambda_{Brennkammer} - 1) * (1 - \omega)$	(2.5)

Abbildung 19 zeigt den Zusammenhang von Rezirkulationsrate und Sauerstoffgehalt im Abgas für verschiedene stöchiometrische Verbrenungsverhältnisse der Brennkammer. Für ein gegebenes stöchiometrisches Verbrenungsverhältnis der Brennkammer sinkt der Restsauerstoffgehalt im Abgas mit zunehmender Rezirkulationsrate. Der Grund ist eine ansteigende Menge an Sauerstoff, die durch mehr Rezirkulation wieder in die Brennkammer rückgeführt wird. Beispielsweise wird bei einem $\lambda_{Brennkammer}$ von 1.25 und einer Rezirkulationsrate von 0.7 annähernd 3 Vol. %_{feucht} Restsauerstoff im Abgas erreicht.

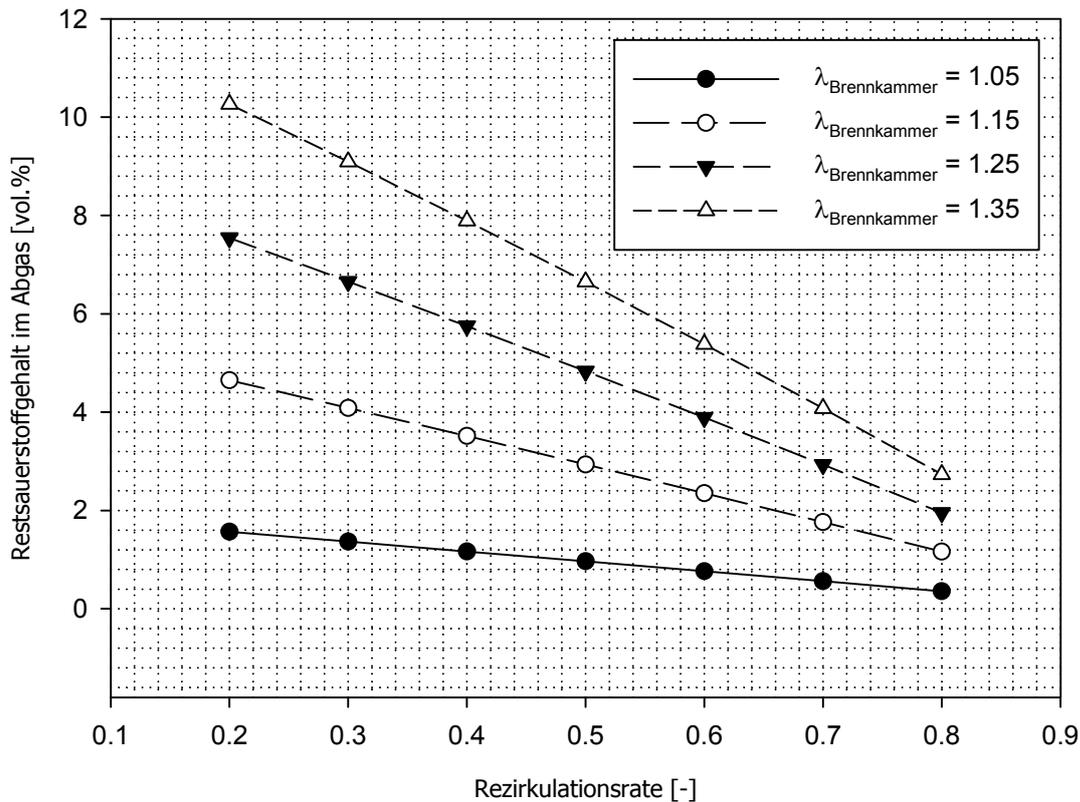


Abbildung 19 Zusammenhang von Rezirkulationsrate und Restsauerstoff bei gegebenem stöchiometrischen Verbrennungsverhältnis der Brennkammer

2.2.3.3 Emissionen

NO_x und SO_x

Im Vergleich zu einer Luftverbrennung sind die gemessenen Schadstoffkonzentrationen (NO_x, SO_x, CO...) bezogen auf das tatsächliche, trockene Rauchgasvolumen am Ende des Prozesses im Oxyfuel Betriebsfall wesentlich höher [Kather, 2011][Mieske, 2008]. Folgende Effekte sind für die höheren Konzentrationen verantwortlich:

- geringeres Rauchgasvolumen, geringere Verdünnung
- hoher Wasseranteil im Rauchgas, Schadstoffkonzentrationen werden auf das trockene Gas bezogen

Durch den Wegfall des Luftstickstoffes ist das Rauchgasvolumen, welches nicht rezirkuliert wird, geringer als das Rauchgasvolumen einer Luftfeuerung.

Beispielhaft für die Auswirkungen einer Oxyfuel Feuerung auf das Emissionsverhalten ist die NO_x Bildung.

In Abbildung 20 wurde die NO_x Emission in Abhängigkeit des Wassergehaltes des Brennstoffes für den Fall einer Luftverbrennung und für den Fall einer Oxyfuel Verbrennung aufgetragen.

Dabei wurde die Stickstoff-Konversionsrate (Massenanteil der Ausgangsbestandteile im Brennstoff der sich im Abgas als NO_x wiederfindet) sowohl bei der Luftverbrennung als auch bei der Oxyfuel-Verbrennung mit 0.17 angenommen. Dies entspricht in etwa Emissionswerten, die bei der Klärschlammverbrennung mit Luft gemessen werden.

Der Restsauerstoffgehalt wurde in beiden Fällen mit 3 Vol. % im trockenen Rauchgas angenommen. Der Sauerstoffgehalt in der Anströmung bei der Oxyfuel-Verbrennung wurde mit 40 % festgesetzt.

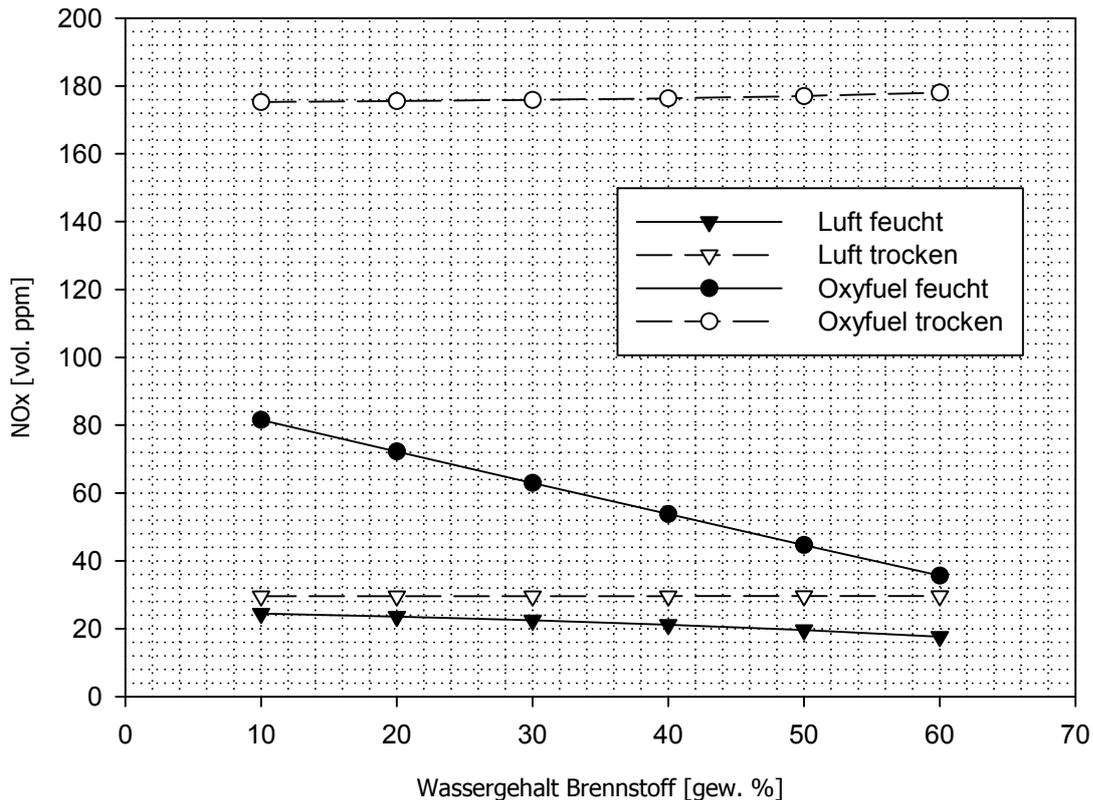


Abbildung 20 NO_x Emission in Abhängigkeit des Wassergehaltes des Brennstoffes für eine Luft- und Oxyfuel-Verbrennung

Die Emissionen von NO_x sind bei der Oxyfuel-Verbrennung sowohl im trockenem als auch im feuchten Rauchgas wesentlich höher als bei einer Verbrennung mit Luft. Dies wird durch den Effekt der geringeren Rauchgasmenge deutlich. Vergleicht man nur die NO_x Emission des trockenen Rauchgases, so erhält man für dieselbe Gesamtkonversionsrate im Oxyfuel Fall ca. die sechsfache Konzentration im Vergleich zu einer Luftverbrennung.

Weiters wird die Konzentration durch den Effekt des hohen Wasseranteils im Rauchgas verändert. Da bei einer Oxyfuel-Verbrennung von nassem Klärschlamm ein Wassergehalt von bis zu 85 Vol. % im Abgas zu erwarten ist, wirkt sich dies auf die Werte des trockenen Rauchgases deutlich aus. Beispielsweise ergibt eine Oxyfuel-Verbrennung von Klärschlamm mit einem Wassergehalt von 60 Gew. % eine gemessene NO_x Emission von 178 Vol. ppm im trockenem Rauchgas. Für das feuchte Rauchgas entspricht dies einem Wert von lediglich 35 Vol. ppm.

Grundsätzlich sind die Emissionswerte bezogen auf die Brennstoffwärmeleistung im Oxyfuel Fall deutlich geringer [Norman, 2009][Duan, 2011]. Alle Effekte zusammen führen zu einem deutlichen Unterschied im Emissionsverhalten zwischen einer Oxyfuel- und einer Luft- Verbrennung.

Aus diesem Grund ist es vorteilhaft, Emissionen auf die Brennstoffwärmeleistung zu beziehen. Bestehende gesetzliche Schadstoffrichtlinien müssten sowohl für eine atmosphärische Emission als auch hinsichtlich einer Sequestrierung angepasst werden [Spliethoff, 2011].

Parallel zu den Berechnungen der NO_x Emissionen bei der Oxyfuel-Verbrennung sind auch höhere Konzentrationen an SO_x zu erwarten. Ein hoher Schwefelgehalt im Rauchgas kann zu Korrosionsproblemen im Kessel führen.

Die experimentellen Ergebnisse der SO_x Emissionen im Vergleich zu einer Luft-Verbrennung sind jedoch nicht eindeutig [Toftegaard, 2010][Stewart, 2011].

Kohlenmonoxid

Folgende Reaktionen sind für die Oxidation des Kohlenstoffes in einer Oxyfuel-Verbrennung entscheidend [Scala, 2010, 2].

$C_n + O_2 \rightarrow CO_2$	(2.6)
$C_n + \frac{1}{2} O_2 \rightarrow CO$	(2.7)
$C_n + CO_2 \rightarrow 2 CO$	(2.8)
$CO + \frac{1}{2} O_2 \rightarrow CO_2$	(2.9)

Die Reaktionen (2.6) und (2.7) sind für die Oxidation des Kohlenstoffes verantwortlich. Reaktion (2.8) beschreibt die Boudouard Reaktion und (2.9) die Oxidation des Kohlenmonoxides.

Unterschiede zwischen dem Verhalten einer Oxyfuel-Verbrennung und einer Luft-verbrennung wurden von Rathnam [2008] untersucht. Dabei stellte sich bei der Verbrennung in einer CO₂ Atmosphäre ein höherer Anteil an flüchtigen Bestandteilen als in den Experimenten in einer N₂ Atmosphäre ein.

Auch wenn das Oxidationsgas zu einem hohen Anteil aus CO₂ besteht, so ist Reaktion (2.9) bei einer entsprechenden Verweilzeit für die vollständige Verbrennung des CO Anteils im Rauchgas verantwortlich. Eine höhere Verweilzeit wird durch die Verwendung einer Nachbrennkammer erreicht.

2.2.3.4 Restliche Gaskomponenten im Rauchgas

Argon

Argon findet sich hauptsächlich aufgrund von Verunreinigungen bei der Herstellung von reinem Sauerstoff mittels einer kryogenen Luftzerlegung im Rauchgas wieder. Energieeinsparung durch geringere Sauerstoffreinheit wurde schon in mehreren Studien behandelt [Spliethoff, 2011] [Davison, 2007][Zanganeh, 2007][Simpson, 2007], jedoch muss für einen höheren Grad an verunreinigtem Sauerstoff, zusätzliche Energie für die nachgeschaltete CO₂ Verflüssigung des Rauchgases aufgewendet werden.

Würde man beispielsweise vor der Rezirkulation des Rauchgases eine PSA Anlage zwischenschalten, so würde ein Anreichern der nicht kondensierbaren Gase (N₂, O₂, Argon) verhindert werden [Fan, 2011]. In diesem Fall wären auch die Auswirkungen der Verunreinigungen des reinen Sauerstoffes nach der kryogenen Luftzerlegung nicht so tragend. Der sonst mit dem rezirkulierten Rauchgas eingebrachte Sauerstoff müsste dabei zusätzlich bereitgestellt werden und der Energieaufwand einer PSA Anlage berücksichtigt werden.

Stickstoff

Stickstoff zählt wie Sauerstoff und Argon bei Umgebungsbedingungen zu den nicht kondensierbaren Gasen. Diese Gase werden erst nach der Kondensation in einer CO₂ Verflüssigungsanlage verarbeitet. Konventionelle Kessel werden mit leichtem Unterdruck (bei ca. -2 mbarg) betrieben, damit unbehandeltes Rauchgas nicht in die Atmosphäre entweichen kann. Weil der Rauchgasweg nicht vollkommen dicht gegenüber der Atmosphäre ist, tritt während des Betriebes Falschlufft in das System ein. Der Anteil an Falschlufft im Rauchgas hängt stark vom Zustand der Anlage ab und nimmt im Verlauf der Zeit zu. Dementsprechend schwer ist es, einen allgemein gültigen Falschluffteintrag zu bestimmen, wobei mit einem Anteil von 3-10 % des Rauchgases gerechnet werden kann [Kather, 2011].

Für herkömmliche Luft-Verbrennungen stellt der Falschluffteintrag nur dahingehend ein Problem dar, dass nicht vorgewärmte Luft in das System eindringt. Die Gesamteffizienzverluste sind in diesem Fall nur sehr gering bis vernachlässigbar. Im Falle einer Oxyfuel-Verbrennung verunreinigt der Falschluffteintrag den CO₂ Strom im Rauchgas dahingehend, dass ein erhöhter Anteil an Stickstoff im Rauchgas zu finden ist. Die Dichtheit des Rauchgasweges gegenüber der Atmosphäre ist daher ein wichtiger Faktor für neu geplante Oxyfuel-Anlagen und wirkt sich auf die Effizienz der Anlage entsprechend aus. Ein hoher Eintrag an Falschlufft entspricht einem hohen Energieaufwand für die Verflüssigung des CO₂ aus dem Rauchgas.

2.2.4 TECHNOLOGIEN ZUR GEWINNUNG VON REINSAUERSTOFF

2.2.4.1 Kryogene Luftzerlegung

Der theoretische Mindestaufwand zur Herstellung von Sauerstoff durch Luftentmischung unter Annahme von einem idealen Gasgemisch liegt bei 0.05 kWh/kg O₂.

Abseits des theoretischen Mindestaufwandes liegt der reale Aufwand einer kryogenen Luftzerlegung bei ungefähr 0.25-0.30 kWh/kg O₂ [W.F.Castle, 2002] [Bolland, 2006], [Göttlicher, 1997], [Spliethoff, 2011] bei einer Sauerstoffreinheit von 99.5 %. Der restliche Anteil von 0.5 % besteht primär aus Argon. Durch die Integration einer kryogenen Luftzerlegung, die für die speziellen Anforderungen des Oxyfuel Betriebes ausgelegt ist, könnte der spezifische Energieverbrauch auch unter 0.2 kWh/kg O₂ [Higginbotham, 2011] gesenkt werden.

Die Entwicklung verschiedener kryogener Luftzerlegungsanlagen hinsichtlich des spezifischen Energieverbrauches in kWh/Nm³ über die letzten Jahre wird in Abbildung 21 dargestellt. In den letzten fünf Jahren konnte eine Energieeinsparung in der Sauerstoffproduktion von 6 % erreicht werden. Der größte Anteil am Energieaufwand einer kryogenen Luftzerlegungsanlage entfällt auf die Verdichter-Einheit.

Der Energiebedarf zur O₂ Herstellung kann gesenkt werden, wenn eine geringere O₂ Reinheit verwendet werden kann. Der spezifische Energiebedarf einer O₂ Herstellung in Abhängigkeit der O₂ Reinheit wird in Abbildung 22 gezeigt. In einer Studie von Anderson et al. [2006] würde eine Reduktion der O₂ Reinheit von 95 % einer Energieeinsparung der gesamten Anlage von 1.6-4 % entsprechen [Andersson, 2006].

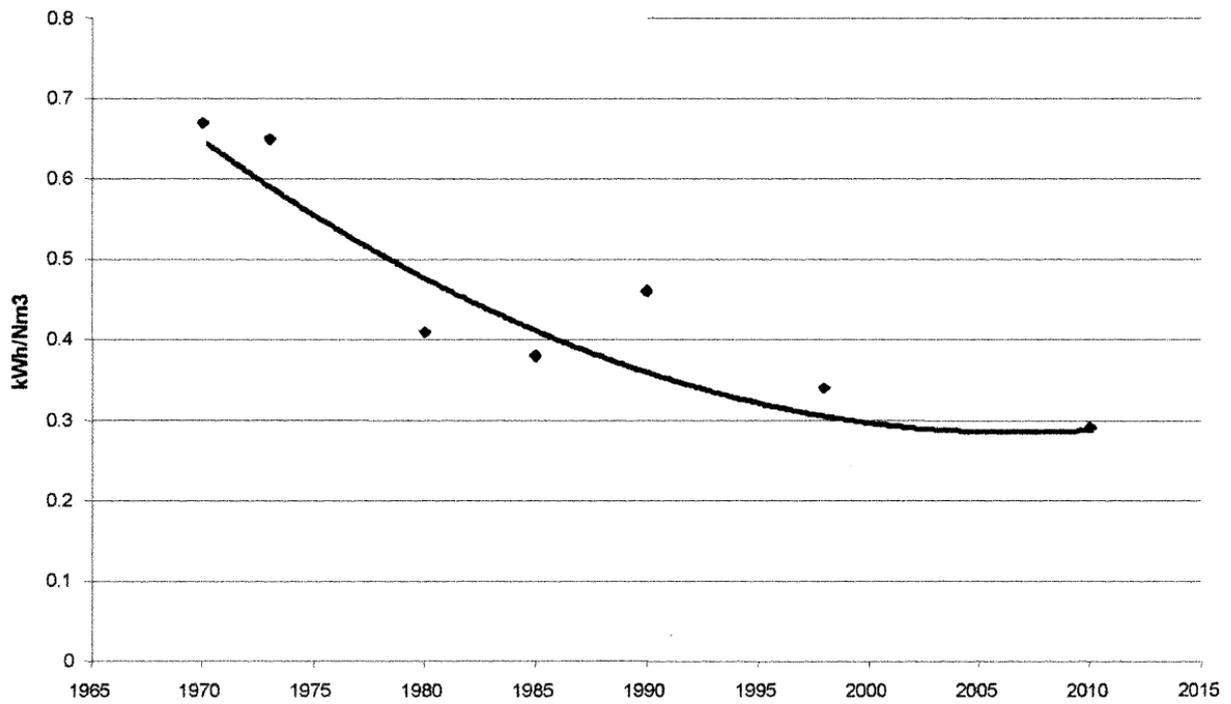


Abbildung 21 Spezifischer Energieaufwand zur Herstellung von rein Sauerstoff in Laufe der Zeit [W.F.Castle, 2002]

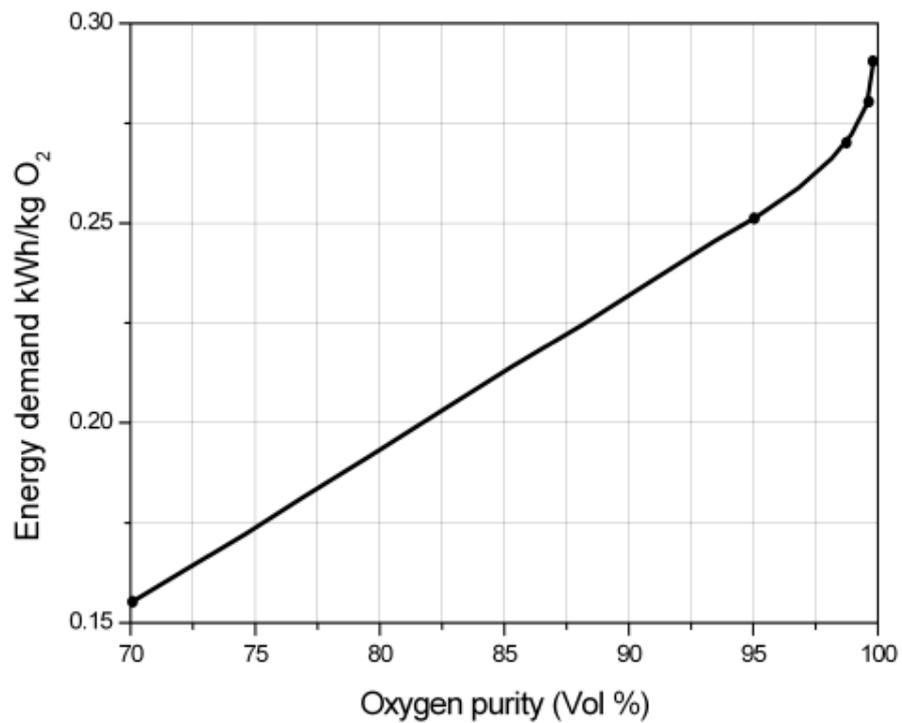


Abbildung 22 Spezifischer Energieaufwand zur Herstellung von reinem Sauerstoff in Abhängigkeit der Sauerstoffreinheit [Spliethoff, 2011]

2.2.4.2 Weitere Anlagenkonzepte zur Reinsauerstoffherstellung

Elektrolyse

Für die elektrolytische Herstellung von Reinsauerstoff wird elektrische Energie im Ausmaß von 8,6-9,8 kWh/Nm³O₂ benötigt. Weil dieses Verfahren mehr Energie benötigt als im Prozess erzeugt wird, scheidet es als mögliche Herstellungsalternative aus.

Membrantrennverfahren

Die Gaspermeation ist der Membranprozess, welcher für die Abtrennung von Gasen, insbesondere bei der Luftzerlegung eingesetzt wird. Sie beruht auf die unterschiedlichen Permeabilitäten von Gasen in Polymeren.

Zwei Eigenschaften bestimmen die Leistung einer Membran:

- Trennfaktor/Selektivität

Die Effizienz bzw. die Wirtschaftlichkeit ist durch den Trennfaktor gekennzeichnet. Der Trennfaktor ist das Maß für die Selektivität einer Membran, bestimmte Gase durch Permeation voneinander zu trennen.

- Permeabilität

Die Permeabilität bestimmt den Volumenstrom, unter bestimmten Betriebsbedingungen, durch eine bestimmte Membran. Sie ist somit für die Größe der Membrantrennfläche verantwortlich.

Für Reinsauerstoffanwendungen ist sowohl eine hohe Selektivität als auch eine hohe Permeabilität erforderlich. Dies stellt spezielle Anforderungen an die Membrantechnik, da sich in der Regel die Selektivität umgekehrt proportional zur Permeabilität verhält.

Einstufige Membranprozesse werden in der Regel für Sauerstoffanreicherungen eingesetzt. Dabei wird ein Sauerstoffgehalt von 30-60 % in der sauerstoffangereicherten Luft erhalten. Für höhere Sauerstoffkonzentrationen muss der Membranprozess mehrstufig gestaltet werden [Baker, 2002].

Speziell für die Oxyfuel-Verbrennung von Kohle, wo auch geringere Sauerstoffkonzentrationen im Oxidationsgas möglich sind, könnten Membrananwendungen von Interesse sein. Dabei handelt es sich um Hochtemperaturmembranen, die bei einer Temperatur von 850 C° betrieben werden [Stadler, 2011]. Im Zufluss, oder auch Feed genannt, wird vorgewärmte und verdichtete Luft verwendet. Der Sauerstoff durchdringt die Membran und gelangt an der Permeatseite zum rezirkulierenden Rauchgas, welches als Spülgas eingesetzt wird. Die für den Oxyfuel-Prozess geringen Sauerstoffpartialdrücke können für diesen Prozess ausgenützt werden. Das Verfahren befindet sich zurzeit jedoch noch in einem Entwicklungsstadium.

PSA-Verfahren

Das PSA-Verfahren (Pressure Swing Adsorption) beruht auf den physikalischen Adsorptionseigenschaften speziell behandelter Molekularsiebe. Um N_2 oder O_2 kostengünstig und mit Reinheitsgraden von bis zu 99,9 % (Stickstoff) bzw. 93 % (Sauerstoff) zu erzeugen, benötigen PSA-Anlagen lediglich saubere, trockene Luft. Diese wird auf bis zu 10 bar verdichtet, gereinigt und anschließend durch eine Schüttung aus Partikel mit Molekularsiebeigenschaften geführt. Die Art des benötigten Gases (O_2 oder N_2) entscheidet, ob ein Kohlenstoffmolekularsieb (CMS) oder Zeolite eingesetzt werden.

Eine kontinuierliche Stickstoff- bzw. Sauerstoffversorgung wird durch Umschalten des Gasstroms ermöglicht: Während ein Behälter in Betrieb ist, wird der andere durch Absenken des Drucks regeneriert. Die unerwünschten Gaskomponenten werden freigesetzt und an die Atmosphäre abgegeben.

Beim VPSA-Verfahren (Vacuum Pressure Swing Adsorption) handelt es sich um eine Modifikation des PSA-Verfahrens. VPSA-Anlagen arbeiten mit einem Gebläse, das einen Überdruck von ca. 1,5 bar erzeugt, und einer Vakuumpumpe, die während des Regenerierzyklus zum Einsatz kommt. Dadurch kann der Energieverbrauch reduziert werden.

2.2.5 PROJEKTE ZUR INDUSTRIELLEN ENTWICKLUNG DES OXYFUEL PROZESSES

Erste Erfahrungen konnten auch schon an Demonstrationsanlagen erlangt werden. Dazu gehört die 30 MW_{th} Kohlestaubfeuerung „Schwarze Pumpe“ [Strömberg, 2009]. Dabei wurde sowohl eine kryogene Luftzerlungsanlage als auch eine CO_2 Aufbereitung installiert. Die Versuchsergebnisse sollen für die Planung der in 2015 zu errichtenden 250 MW_e industriellen Oxyfuel Kohlestaubfeuerung am Standort „Jänschwalde“ einfließen.

Im Bereich der zirkulierenden Wirbelschichten ist derzeit die größte Anlage „CUIDEN“ [Lupion, 2011] in Ponferrada in Spanien zu Testzwecken in Betrieb. Sie wurde für einen Luftbetrieb von 15 MW_{th} und im Oxyfuel Betrieb bis auf 30 MW_{th} ausgelegt [Alvarez, 2011]. Die Ergebnisse dieser Tests sollen ähnlich wie im Fall „Schwarze Pumpe“, der Konstruktion der 320 MW_e Anlage „Compostilla“ dienen [Kuivalainen, 2010].

Eine Aufstellung aller derzeit betriebenen und geplanten Oxyfuel-Anlagen wird in Abbildung 23 gegeben. Dabei sind sowohl Wirbelschichten als auch Staubfeuerungen und sonstige Oxyfuel Anwendungen aufgelistet.

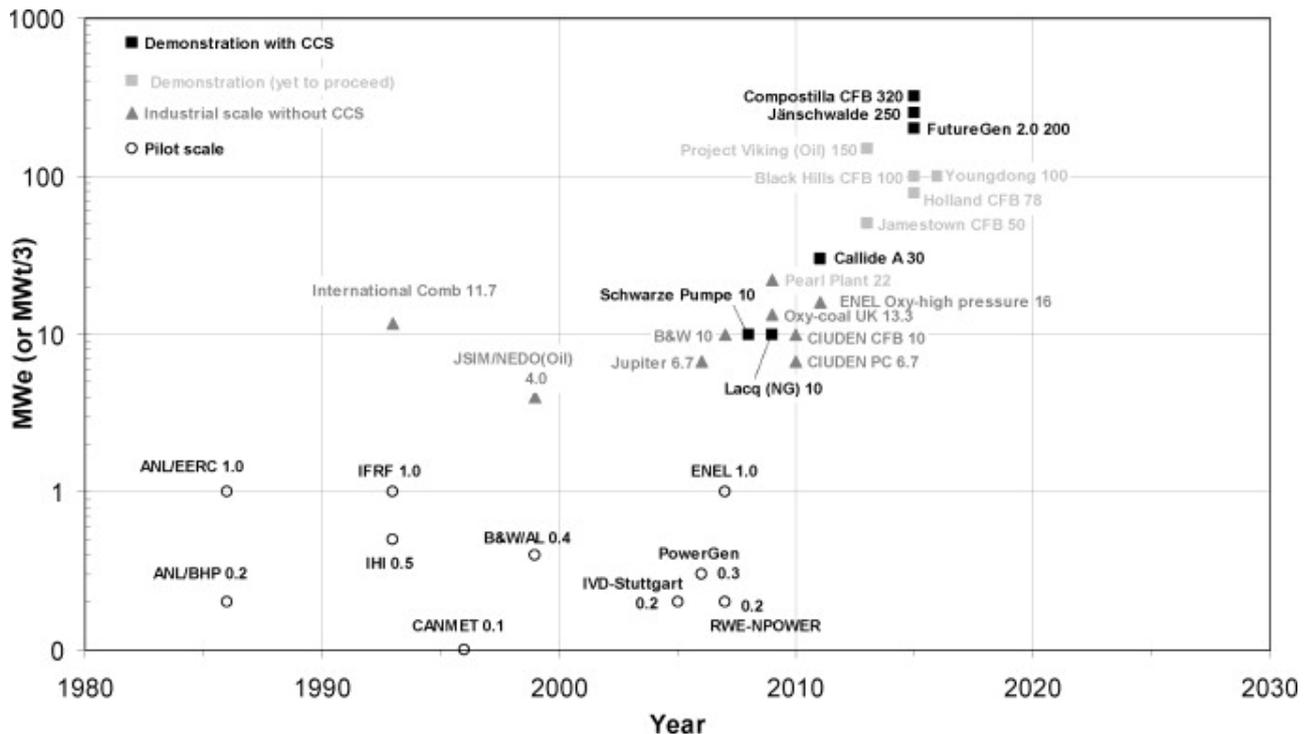


Abbildung 23 Historische Entwicklung des Oxyfuel Prozesses [Wall, 2011]

Eine weitere 4 MW_{th} zirkulierende Wirbelschicht wurde im Projekt "Foxymet" [Varonen, 2011] zu Versuchszwecken unter Oxyfuel Bedingungen betrieben. Dabei traten keine wesentlichen Probleme auf und eine CO₂ Reinheit von 83 Vol. %_{trocken} konnte erreicht werden. Geringe CO Konzentrationen wurden mit einem Sauerstoffrestgehalt von 3,5 Vol. %_{feucht} erreicht.

Im Bereich der experimentellen Versuche an zirkulierenden Wirbelschichten im Labormaßstab wurde von Versuchen an einer 330 kW_{th} [Ahn, 2011] zirkulierenden Wirbelschicht an der University of Utah berichtet. Es gibt bei dieser Anlage zwar nicht die Möglichkeit einer externen Bettmaterialkühlung, jedoch können während des Betriebes Bettmaterialproben gezogen werden. Dies dient der späteren Analyse der Aschezusammensetzung.

Ergebnisse einer 100 kW_{th} [Jia, 2009] und einer 0.8 MW_{th} Anlage [Jia, 2011] bei CANMET in Ottawa sind ebenfalls verfügbar. Weiters befindet sich eine 100 kW_{th} zirkulierende Oxyfuel Wirbelschicht an der Czestochova University of Technology [Czakiert, 2009] in Betrieb.

An der TU Graz wurde eine 100 kW_{th} zirkulierende Wirbelschicht errichtet "The BIOX Plant" welche die Möglichkeit einer Bettmaterialkühlung durch einen Fließbettkühler bietet [Hohenwarther, 2009].

Eine 95 kW_{th} blasenbildende Oxyfuel Wirbelschicht mit Rezirkulation des heißen und feuchten Rauchgas wurde an der Universidad de Zaragoza in Betrieb genommen [Romeo, 2011].

Weitere Arbeiten an einer kleinen blasenbildenden Wirbelschicht im Batch-Betrieb, die an der Consiglio Nazionale delle Ricerche in Neapel aufgestellt wurde, behandeln die direkte Entschwefelung [Scala, 2009] und die Verbrennungseigenschaften von Kohlepartikel [Scala, 2010] im Oxyfuel-Betrieb. Ebenfalls eine blasenbildende Wirbelschicht, die mit einer synthetischen Gasmischung fluidisiert wird,

befindet sich am Instituto de Carboquímica in Zaragoza. Arbeiten, in denen die Effekte, die bei der Verbrennung von Kohle im Oxyfuel Betrieb auftreten, wurden veröffentlicht [Abad, 2011].

2.3 WIRBELSCHICHTTECHNIK

Im folgenden Kapitel werden die wichtigsten Grundlagen der Wirbelschicht in Bezug auf die vorliegende Arbeit gegeben. Bei der 100 kW_{th} Oxyfuel Versuchsanlage handelt es sich um eine zirkulierende Wirbelschicht.

2.3.1 FLUIDDYNAMISCHE GRUNDLAGEN

2.3.1.1 Lockerungsgeschwindigkeit

Wenn eine Strömung einen Behälter mit Feststoffpartikeln von unten durchströmt, so entsteht ein gewisser Druckabfall. Um die Abhängigkeit des Druckabfalls von der Strömung im Festbett zu beschreiben wird die Gleichung (2.14) nach Ergun verwendet.

$\frac{\Delta p}{H} = \underbrace{150 * \frac{(1 - \varepsilon)^2}{\varepsilon^3} * \frac{\mu * U}{(d_{sv})^2}}_{\text{laminarer Anteil}} + \underbrace{1.75 * \frac{1 - \varepsilon}{\varepsilon^3} * \frac{\rho_G * U^2}{d_{sv}}}_{\text{turbulenter Anteil}}$	(2.14)
--	--------

Je nach Reynoldszahl der Strömung wird eher der laminare oder der turbulente Anteil für den Druckabfall verantwortlich sein.

Ab einer gewissen Strömungsgeschwindigkeit gelangt man an einen Punkt wo der Wirbelschichtzustand beginnt. Der Druckabfall gemäß Gleichung 2.14 entspricht dann dem Gewicht der Schüttung vermindert durch den Auftrieb gemäß Gleichung 2.15

$\Delta P = (1 - \varepsilon) * (\rho_p - \rho_g) * g * H$	(2.15)
--	--------

Dabei ist festzuhalten, dass der Druckabfall im Gebiet der Wirbelschicht unabhängig von der Strömungsgeschwindigkeit ist. Die Grenze der Strömungsgeschwindigkeit zwischen Festbett und Wirbelschicht wird als Lockerungsgeschwindigkeit bezeichnet. Experimentell kann der Lockerungspunkt durch die verschiedenen Druckverläufe im Festbett und in der Wirbelschicht bestimmt werden.

Zur Berechnung der Lockerungsgeschwindigkeit kann der Druckabfall im Festbett aus Gleichung (2.14) dem Druckabfall in der Wirbelschicht aus Gleichung (2.15) gleichgesetzt werden, da am Lockerungspunkt der Druck im Festbett jenem Druck der voll ausgebildeten Wirbelschicht entsprechen muss.

Durch Umformen erhält man Gleichung (2.16):

$\underbrace{\frac{\rho_G * (\rho_P - \rho_G) * (d_{SV})^3 * g}{\mu^2}}_{Ar} = 150 * \underbrace{\frac{1 - \varepsilon}{\varepsilon^3}}_{C_1} * \underbrace{\frac{U * d_{SV} * \rho_G}{\mu}}_{Re_L} + \underbrace{\frac{1.75}{\varepsilon^3}}_{C_2} * \underbrace{\frac{U^2 * (d_{SV})^2 * \rho_G^2}{\mu^2}}_{Re_L^2}$	(2.16)
--	--------

Oft wird diese Gleichung verkürzt dargestellt:

$A_R = C_1 * Re_L + C_2 * Re_L^2$	(2.17)
-----------------------------------	--------

Dabei gilt für die Archimedes Zahl:

$A_R = \frac{\rho_G * (\rho_P - \rho_G) * (d_{SV})^3 * g}{\mu^2}$	(2.18)
---	--------

Und für die Reynoldszahl am Lockerungspunkt:

$Re_L = \frac{\rho_G * (d_{SV}) * U}{\mu}$	(2.19)
--	--------

Zur Berechnung der Lockerungsgeschwindigkeit kann die vereinfachte Form von Gleichung (2.17) in der ε aufgrund von experimentellen Daten festgelegt wird, auch wie folgt geschrieben werden.

$U_L = \frac{\mu}{\rho_G * (d_{SV})} * \left[\sqrt{33.7^2 * 0.0408 * Ar - 33.7} \right]$	(2.20)
---	--------

Die Gleichung gilt für den gesamten Reynoldsbereich von $Re=0.001-4000$ und hat sich für verschiedenste Materialien gut bewährt.

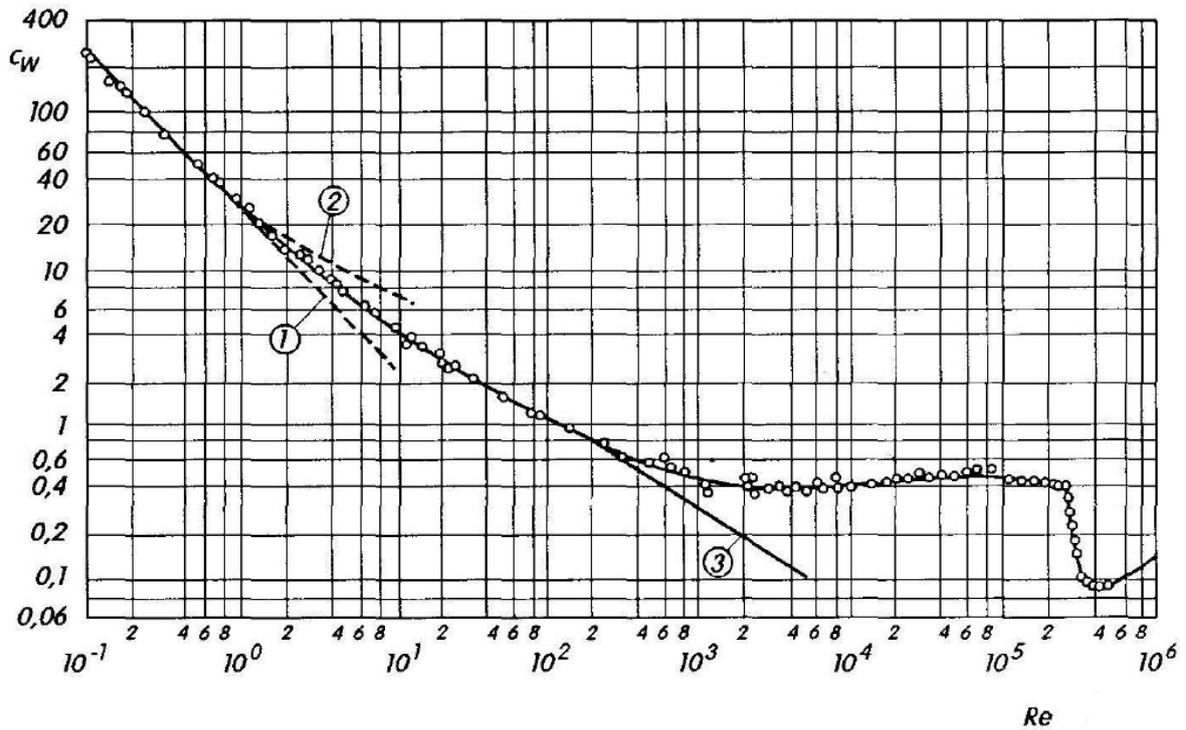
2.3.1.2 Schwebegeschwindigkeit

Eine Erhöhung der Gasgeschwindigkeit führt zum Ende der Wirbelschicht die als Schwebegeschwindigkeit bezeichnet wird. Die Schwebegeschwindigkeit U_s beschreibt die Geschwindigkeit, bei der ein Einzelpartikel in Schweben gehalten wird.

Über das Kräftegleichgewicht aus Gewichtskraft, Auftriebskraft und Widerstandskraft kann zur Beschreibung der Schwebegeschwindigkeit folgender Ausdruck für kugelförmige Partikel verwendet werden:

$U_s = \sqrt{\frac{4}{3} * \frac{(\rho_P - \rho_G) * d_p * g}{\rho_G * C_w}}$	(2.21)
---	--------

Grundsätzlich kann der Widerstandsbeiwert der Kugel C_w als Funktion der Reynoldszahl dargestellt werden. In Abbildung 24 sind für die Abhängigkeit des Widerstandsbeiwertes als Funktion der Reynoldszahl drei unterschiedliche Bereiche zu erkennen. Eine laminare Strömung besteht für den Bereich $Re < 0.2$, für $0.2 < Re < 1000$ ein Übergangsbereich und für $Re > 1000$ besteht ein turbulenter Bereich.



- Kurve 1: Theorie nach G.G. Stokes (1856)
- Kurve 2: Theorie nach C.W. Oseen (1911)
- Kurve 3: Numerische Ergebnisse nach B. Fornberg (1988)

Abbildung 24 Widerstandsbeiwert C_w in Abhängigkeit der Reynoldszahl [Schlichting, 2006]

Die Reynoldszahl aus Abbildung 24 ist dabei wie folgt zu bilden:

$Re = \frac{\rho_g * U_S * d_P}{\mu}$	(2.22)
---------------------------------------	--------

Der Widerstandsbereich und daraus die Schwebegeschwindigkeit kann dann wie folgt berechnet werden.

- a) Laminarer Bereich ($Re < 0.2$ Stokes' scher Bereich)

$C_w = \frac{24}{Re}$	(2.23)
-----------------------	--------

Und für die Schwebegeschwindigkeit im laminaren Bereich ergibt sich

$$U_{S,Stokes} = \frac{(\rho_P - \rho_G) * g * d_P^2}{18 * \mu}$$

(2.24)

b) Turbulenter Bereich (Re>1000, Newton'scher Bereich)

$$C_w = 0.43$$

(2.25)

Und für die Schwebegeschwindigkeit im turbulenten Bereich gilt

$$U_{S,newton} = \sqrt{\frac{4(\rho_P - \rho_G) * g * d_P}{3 \rho_G * 0.43}}$$

(2.26)

c) Übergangsbereich (0.2<Re<1000)

$$C_w = \frac{24}{Re} + \frac{4}{\sqrt{Re}} + 0.4$$

(2.27)

Für den Übergangsbereich ist die Bestimmung der Schwebegeschwindigkeit nicht mehr explizit möglich.

2.3.2 PARTIKELEIGENSCHAFTEN

Einzelpartikel

Grundsätzlich kann der Korngröße von sphärischen Partikeln eindeutig bestimmt werden. Für den Fall von Partikelformen, die von einer Kugel abweichen, werden folgende Äquivalenzdurchmesser verwendet.

Tabelle 5 Äquivalentdurchmesser

Symbol	Bezeichnung	Beschreibung	Berechnung
d_p	Siebdurchmesser	Seitenlänge des Quadrats durch das das Partikel durchgeht	-
d_s	Oberflächenbezogener Durchmesser	Durchmesser der Kugel mit derselben Oberfläche wie das Partikel	$d_s = \sqrt{\frac{S_P}{\pi}}$
d_v	Volumenbezogener Durchmesser	Durchmesser der Kugel mit demselben Volumen wie das Partikel	$d_v = \sqrt[3]{\frac{6 \cdot V_P}{\pi}}$
d_{sv}	Oberfläche/Volumenbezogenen Durchmesser	Durchmesser der Kugel mit demselben oberfläche/volumen Verhältnis wie das Partikel	$d_{sv} = \frac{6 \cdot V_P}{S_P}$

Man kann einige dieser Äquivalenzdurchmesser miteinander verknüpfen wenn man einen Formfaktor einführt. Weiters können technisch interessante Materialien auch über ihren Formfaktor beschrieben werden. Er ist definiert als:

$\psi = \frac{\text{Oberfläche der volumengleichen Kugel}}{\text{Oberfläche des Partikels}}$	(2.28)
--	--------

$\psi = \frac{d_{sv}}{d_v} = \frac{d_v^2 \pi}{d_s^2 \pi} = \left(\frac{d_v}{d_s} \right)^2$	(2.29)
--	--------

Für die meisten technisch relevanten Materialien liegen die Formfaktoren zwischen 0.7 für gebrochene Kohle und 0.99 für technische Glaskugeln.

Schüttgüter

Zur Beschreibung der Eigenschaften von Schüttgütern werden folgende Kenngrößen verwendet:

- Partikelgrößenverteilung
- Porosität
- Schüttdichte

Bei den in der Wirbelschicht verwendeten Partikeln handelt es sich meist um Partikel unterschiedlicher Größe. Zur Beschreibung des gesamten Feststoffinventars wird die Partikelgrößenverteilung verwendet.

Durch die Erweiterung des Äquivalenzdurchmessers d_{sv} aus

Tabelle 5, auf den gesamten Partikelhaufen erhält man schließlich Gleichung (2.30). m_i bedeutet dabei die Masse der i -ten Klasse der verschiedenen Gewichtsfractionen und d_i den entsprechenden Durchmesser.

Für den oberflächen/volumenbezogenen mittleren Durchmesser eine Partikelgrößenverteilung gilt folgender Ausdruck:

$d_{sv} = \frac{\sum m_i}{\sum \frac{m_i}{d_i}}$	(2.30)
--	--------

Für die Porosität in der Wirbelschicht gilt folgende Definition:

$\varepsilon = \frac{\text{Zwischenkornvolumen}}{\text{Gesamtvolumen}} = \frac{\text{Gesamtvolumen} - \text{Partikelvolumen}}{\text{Gesamtvolumen}}$	(2.31)
--	--------

Zur Beschreibung der Schüttdichte wird folgender Ausdruck verwendet.

$\rho_b = \frac{M}{V_B}$	(2.32)
--------------------------	--------

Die Schüttdichte ρ_b hängt von der Masse der gesamten Partikel M und des gesamten Bettvolumens V_B ab.

2.3.2.1 Klassifikation der Partikel nach Geldart

Da es sich auch beim Oxyfuel Prozess um eine Gas/Feststoffwirbelschicht handelt, hängt der Strömungszustand sowohl vom Gas und dessen Geschwindigkeit als auch von den Partikeleigenschaften ab.

Um die Fluidisierungseigenschaften von Partikeln besser beschreiben zu können, wird folgende Klassifizierung verwendet [Geldart, 1973]:

Gruppe C:

Es handelt sich dabei um sehr feine Partikel ($d_p < 20 \mu\text{m}$), die meist in irgendeiner Form kohäsiv (Zwischenpartikelkräfte überwiegen) sind. Ebenso zählen sehr feuchte und unregelmäßig geformte Partikel zu dieser Gruppe. Die Fluidisierung dieser Partikel ist extrem schwierig, da sie zu Propfen- oder zu Kanalbildung neigen.

Gruppe A:

Es handelt sich hierbei immer noch um sehr kleine Partikel (d_p zwischen $30\text{-}100 \mu\text{m}$), die zwar noch leicht kohäsiv sind, jedoch weniger als die Partikel der Gruppe C. Die Partikel dieser Gruppe zeigen bereits gute Fluidisierungseigenschaften. Beim Überschreiten des Lockerungspunktes tritt zunächst eine homogene Expansion und erst bei höheren Gasgeschwindigkeiten eine Blasenbildung auf. Viele katalytische Crackanlagen arbeiten mit Katalysatoren dieser Gruppe.

Gruppe B:

Für Partikel dieser Gruppe sind die kohäsiven Kräfte bereits vernachlässigbar (Trägheitskräfte überwiegen). Meist handelt es sich um Partikel der Größe d_p $100\text{-}800 \mu\text{m}$. Die Bildung von Blasen beginnt beim Überschreiten des Lockerungspunktes und eine homogene Expansion tritt hier nicht auf. Durch die Bildung von Blasen entsteht eine gute Feststoffdurchmischung. Quarzsand gehört zu dieser Gruppe

Gruppe D:

Große Partikel mit einem Partikeldurchmesser von $d_p > 1\text{mm}$ mit einer sehr hohen Dichte werden der Gruppe D zugeordnet. Diese Wirbelschichten werden meist als Sprudelschichten ausgeführt. Praktische Anwendungsfälle sind in der Nahrungsmittelindustrie zu finden oder bei der Fluidisierung von landwirtschaftlichen Produkten, wie z.B. Getreide oder Kaffeebohnen.

Die Grenze dieser Partikelgruppen als Funktion der Dichtedifferenz in Abhängigkeit der mittleren Korngröße werden in Abbildung 25 abgebildet [Geldart, 1973].

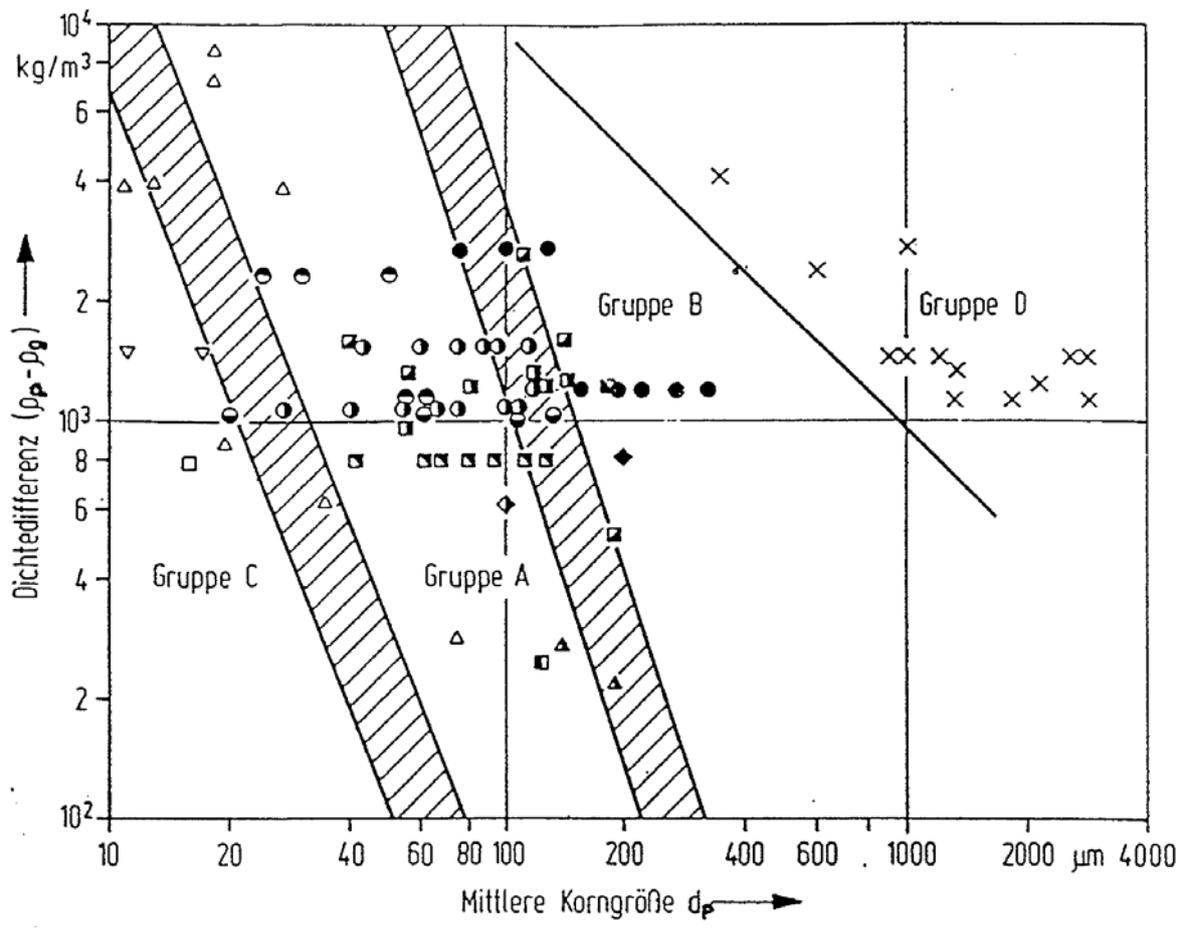


Abbildung 25 Klassifikation der Partikel nach ihren Fluidisierungseigenschaften [Geldart, 1973]

2.3.3 ZIRKULIERENDE WIRBELSCHICHT

Mit zunehmender Gasgeschwindigkeit ändert sich das Fluidisierungsregime. In Abbildung 26 werden z.B. verschiedene Feuerungssysteme in Abhängigkeit der Gasgeschwindigkeit dargestellt. Darin ist zu erkennen, dass man grundsätzlich in Festbettfeuerung, Wirbelschichtfeuerung und Staubfeuerung unterscheidet.

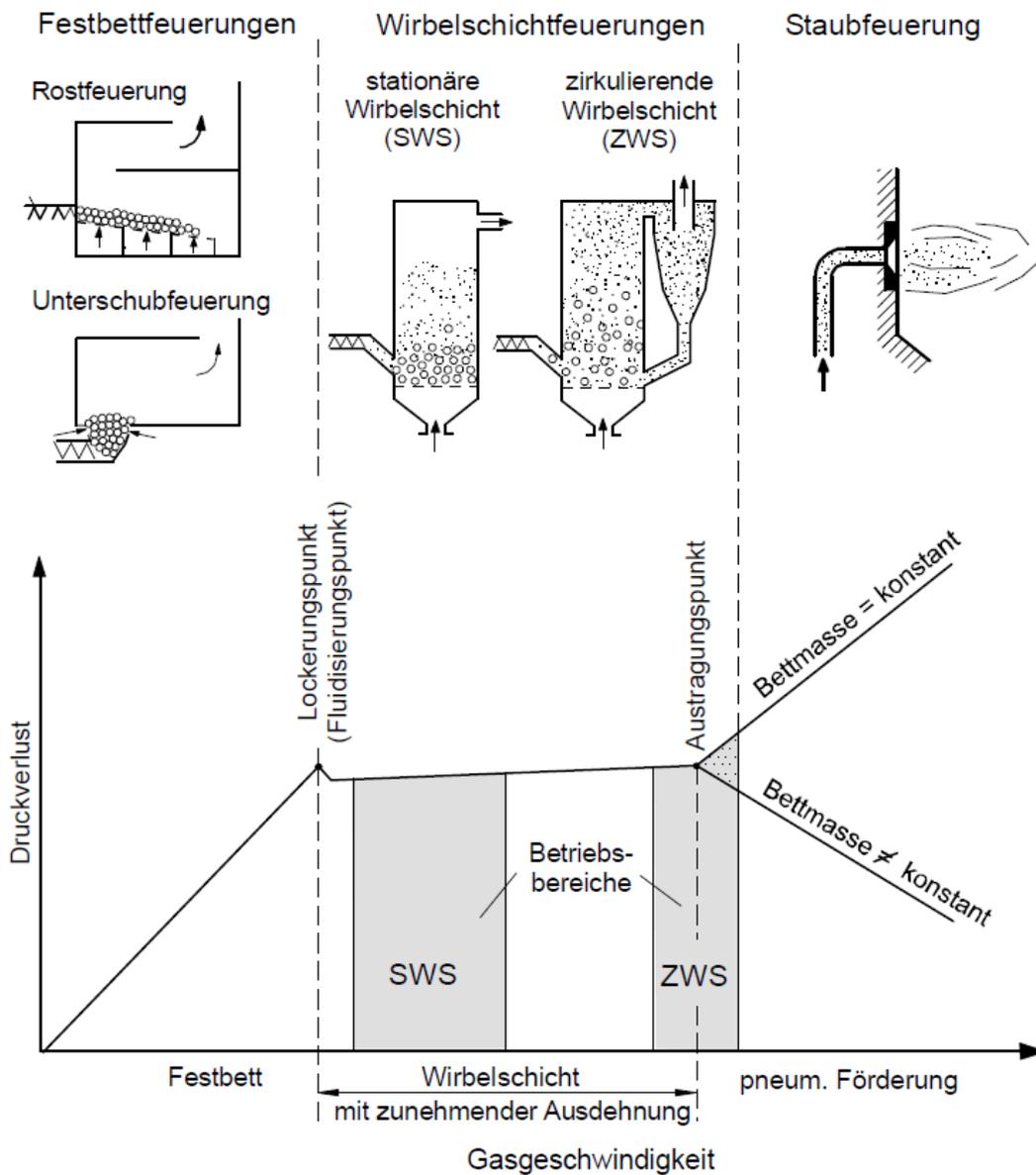


Abbildung 26 Einteilung der Feuerungssysteme nach der zunehmenden Gasgeschwindigkeit: Festbettfeuerung, Wirbelschichtfeuerung, Staubfeuerung [Kaltschmitt, 2009]

Für Gasgeschwindigkeiten oberhalb des Lockerungspunktes wird zwischen dem expandierten Bett, das blasenbildende (bubbling) Regime, die stoßende Wirbelschicht (slug flow), die turbulente Wirbelschicht (turbulent regime) und schließlich die schnelle Wirbelschicht, auch zirkulierende

Wirbelschicht genannt (fast fluidization), unterschieden (Abbildung 27). Darüber hinaus entsteht für noch höhere Gasgeschwindigkeiten der pneumatische Transport.

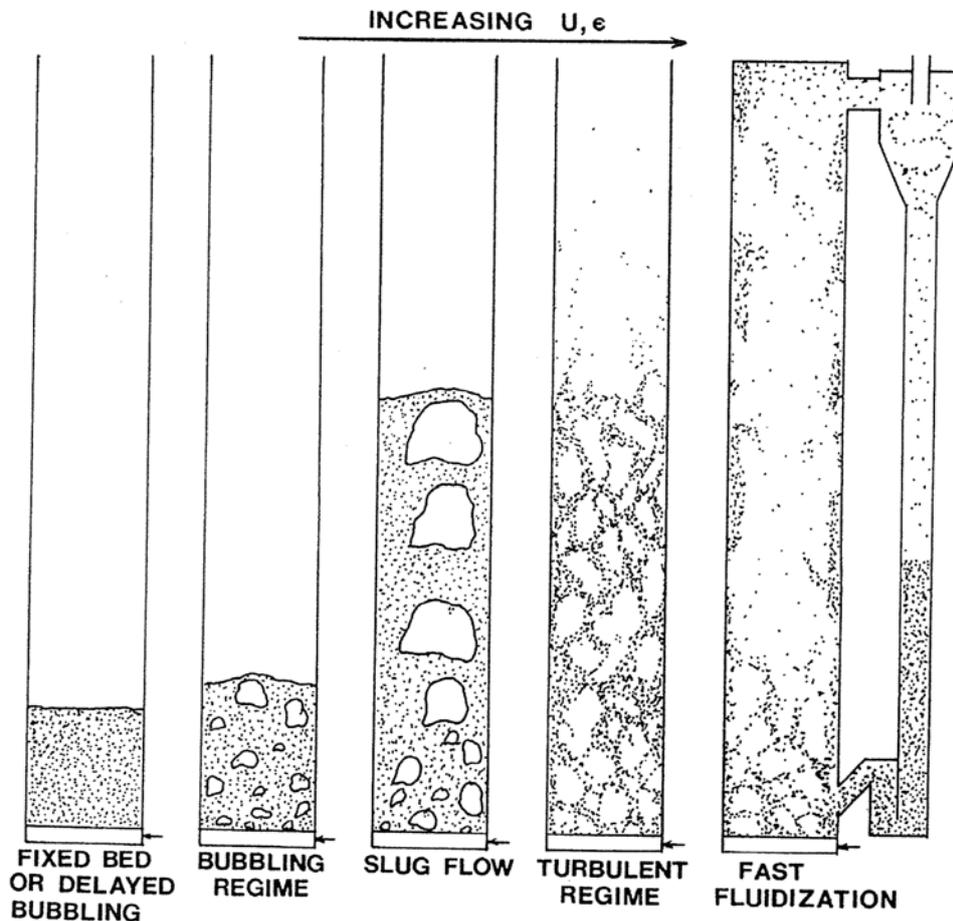


Abbildung 27 Fluidisierungsregime nach [Grace, 1990]

Durch die hohen Gasgeschwindigkeiten in der zirkulierenden Wirbelschicht entstehen entsprechend hohe Feststofffrachten, die eine Rückführung in den Reaktor erfordern. Diese wird meist durch einen externen Zyklon erreicht.

In Abbildung 28 wird die Feststoffverteilung für jedes Fluidisierungsregime aufgetragen. Für die zirkulierende Wirbelschicht, welche als schnell fluidisiert bezeichnet wird, ist das Profil der Feststoffkonzentration auch abhängig vom Feststoffdurchsatz. Man erhält im unteren Teil eine dichte Zone mit einer Porosität von $\varepsilon=0.7-0.8$ und im oberen Teil eine Zone mit geringerem Feststoffanteil und demnach einer höheren Porosität von $\varepsilon=0.99$.

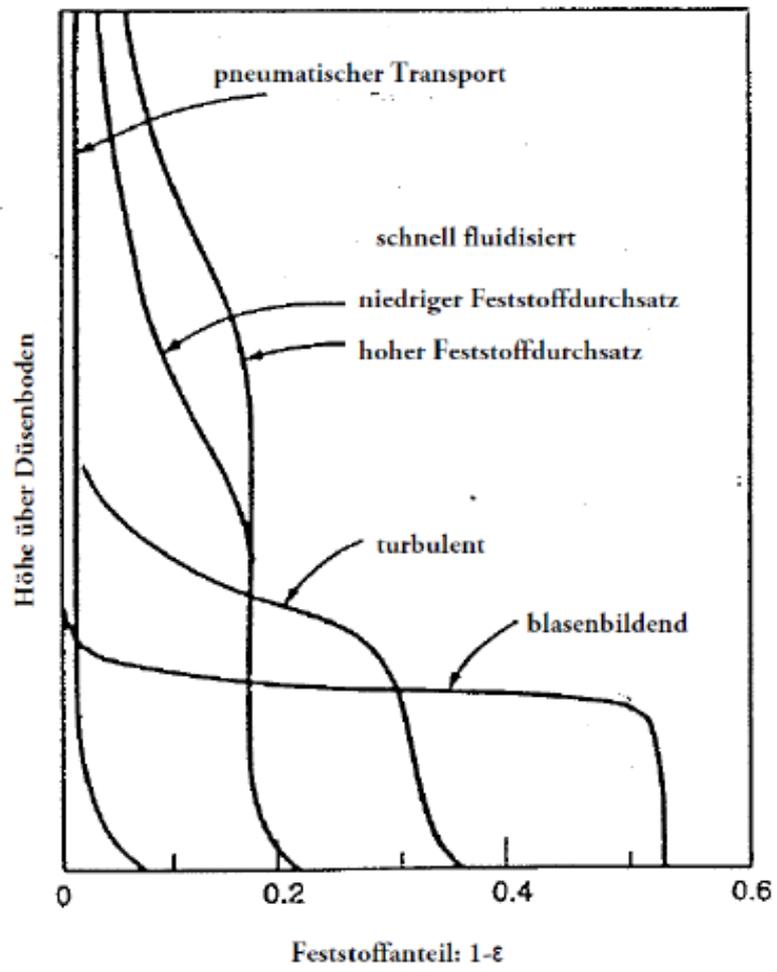


Abbildung 28 Feststoffverteilung in Wirbelschichten [Levenspiel, 1999]

Um das Fluidisierungsregime für die gewählten Gas- als auch Partikeleigenschaften zu bestimmen, kann das Diagramm nach [Grace, 1990] verwendet werden. Die Buchstaben C, A, B und D in Abbildung 29 verweisen auf die Klassifikation der Partikel nach Geldart. Darin sind die Gas- und Partikeleigenschaften als $U^* = Re/d_p^*$ und $d_p^* = Ar^{1/3}$ dargestellt. Die Lockerungsgeschwindigkeit wird als die U_{mf} Linie dargestellt und die Schwebegeschwindigkeit ist dabei die v_T Linie.

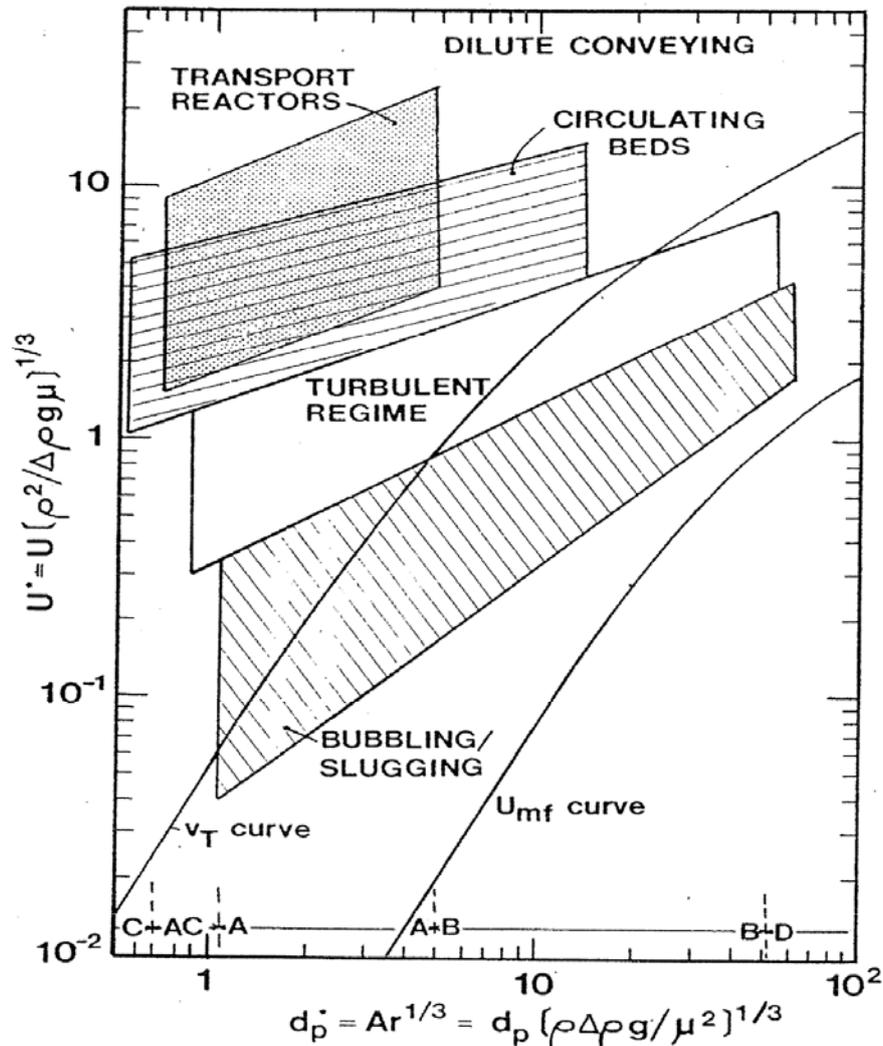


Abbildung 29 Fluidisierungsregime für Gas/Feststoffreaktoren [Grace, 1990]

Jedes Fluidisierungsregime besitzt ein breites Feld an Gas- und Partikeleigenschaften. Bei Geldart-A Partikeln reicht das blasenbildende Regime durch die starken kohäsiven Kräfte und durch die Möglichkeit der Clusterbildung der Einzelpartikel über die Schwebegeschwindigkeit hinaus.

2.4 DER OXYFUEL PROZESS IN DER ZIRKULIERENDEN WIRBELSCHICHT

2.4.1 EINLEITUNG

Ein Großteil der Oxyfuel Projekte werden mithilfe von Kohlestaubfeuerungen durchgeführt. Abseits der Anwendung von Kohle bietet der Oxyfuel Prozess in der Wirbelschicht jedoch einige Vorteile [Duan, 2011]:

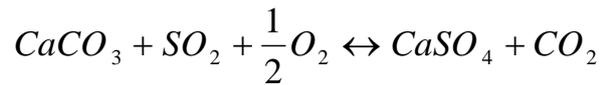
- Durch ein Anheben der Sauerstoffkonzentration im Fluidisierungsgas entstehen geringere Volumenströme in der Brennkammer bei gleichem stöchiometrischem Verbrennungsverhältnis wie im Luftfall. Durch die geringeren Volumenströme kann die Brennkammer an sich, und auch alle Anlagenkomponenten nach der Rezirkulation, kleiner als im Vergleich zu einer Luftfeuerung gestaltet werden. Im Vergleich zu Kohlestaubfeuerungen ergibt sich für die Verbrennung in einer zirkulierenden Wirbelschicht die Möglichkeit, einen hohen Anteil der Wärme direkt aus dem Bett abzuführen.
- Wirbelschichten bieten grundsätzlich viele Vorteile im Vergleich zu Kohlestaubfeuerungen die sich auch im Oxyfuel Prozess verwirklichen lassen, wie eine hohe Flexibilität in Bezug auf Brennstoffe, geringe NO_x Emissionen, In situ Entschwefelung mittels Kalkstein, geringe Verbrennungstemperaturen für Brennstoffe mit niedrigem Ascheschmelzpunkt.
- Durch die Verfeuerung von Biomasse besteht die Möglichkeit, eine negative CO₂ Bilanz zu erzielen (Below Zero Emission).

2.4.2 ENTSCHEWELUNG IN DER WIRBELSCHICHT

Wirbelschichten bieten die spezielle Möglichkeit, Schwefeldioxid bei Verbrennungsreaktionen in situ abzutrennen. Dies erfolgt mittels Ca-basierten Materialien (Kalkstein CaCO₃, Dolomit CaMg(CO₃)₂, Calciumoxid CaO), da diese am wirtschaftlichsten sind.

Für herkömmliche Wirbelschichten mit Luft als Verbrennungsmedium treten als wichtigste Reaktionen einer Entschwefelung Gleichung (2.33) und (2.34) auf [Stewart, 2010]. (2.33) ist dabei die Reaktion die bei der Kalzinierung abläuft und (2.34) die eigentliche Entschwefelung. Diese Reaktionen werden als indirekte Entschwefelung bezeichnet.





(2.35)

Im Fall einer Oxyfuel Verbrennung wirkt sich der hohe Gehalt an CO_2 im Fluidisierungsgas auf die Kalkbildung aus und die Kalzinierung beginnt erst bei einer höheren Temperatur als bei einer herkömmlichen Luftfeuerung [Hotta, 2011]. In diesem Fall tritt eine direkte Entschwefelung laut Gleichung (2.36) auf [Stewart, 2011] [Wu, 2011].

Vergleicht man die direkte Entschwefelung zwischen einer Luftfeuerung und einer Oxyfuel Verbrennung in einer zirkulierenden Wirbelschicht, so muss man auf den Einfluss der CO_2 Konzentration und des Wasserdampfes eingehen.

Eine Erhöhung des Wasserdampfgehaltes erhöht zwar die Reaktivität, jedoch kann die SO_2 Umsatzrate auch durch einen zu hohen Wassergehalt abnehmen wenn es zu Agglomerationen kommt [Stewart, 2011].

Für dieselben Methoden der Entschwefelung berichten mehrere Autoren höhere Konzentrationen an SO_x Emissionen im Oxyfuel Fall im Vergleich zu einer herkömmlichen Luftfeuerung [Tan, 2012] [Wu, 2011]. Hauptgrund dafür ist sicherlich der Anstieg der Konzentrationen der Emissionen, wenn Emissionswerte auf das Rauchgasvolumen bezogen werden [Scheffknecht, 2011, 2].

Vergleicht man jedoch SO_2 Umsatzraten, so erhält man bessere Ergebnisse bei einer Oxyfuel Feuerung im Vergleich zu einer Luftfeuerung.

Beispielhaft dafür sind die Ergebnisse an der 30 MW_{th} Oxyfuel zirkulierenden Wirbelschicht in Ponferrada, [Hotta, 2011], die in Abbildung 30 dargestellt werden. Dabei ist zu erkennen, dass die höchsten Einbindungsraten der Entschwefelung im Oxyfuel Fall erreicht werden, jedoch erst bei höheren Temperaturen.

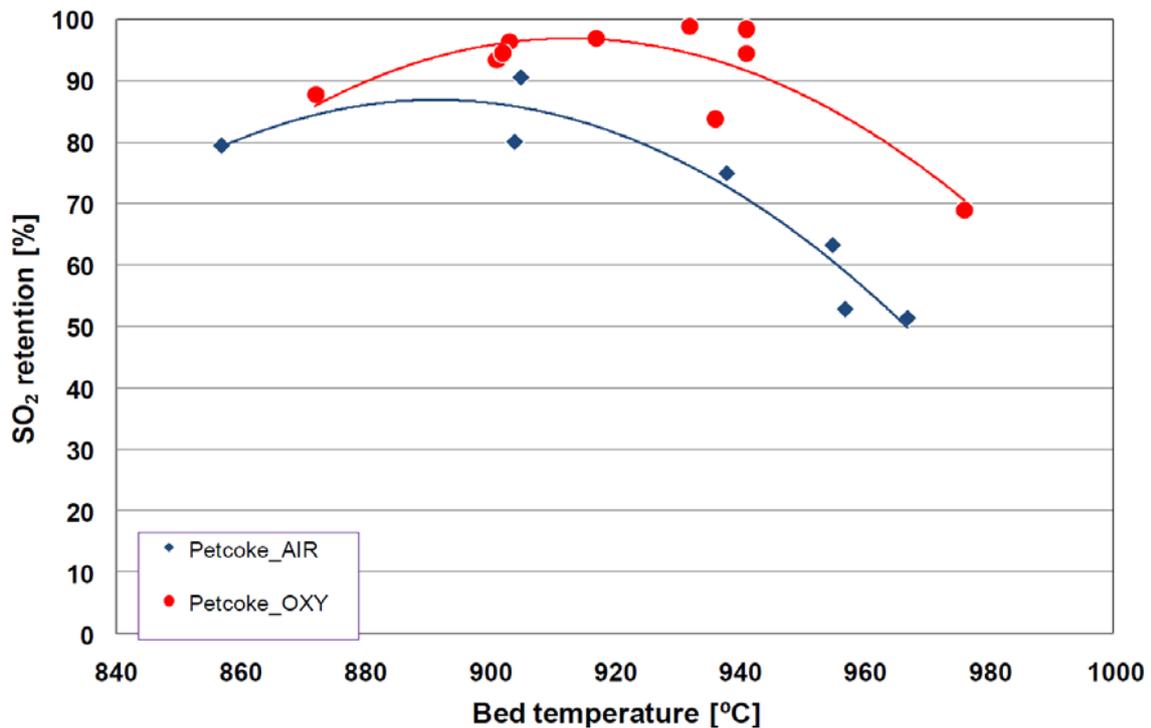


Abbildung 30 SO₂ Einbindung als Funktion der Betttemperatur im Falle einer Luft- und Oxyfuel Verbrennung von Petrolkoks [Hotta, 2011]

Durch eine erhöhte Konzentration an SO₂ im Rauchgas entsteht das Problem der Korrosion. Dies wurde in einer experimentellen Versuchskampagne an einer 0.8 MW_{th} beobachtet [Tan, 2012].

2.4.3 ÜBERTRAGENE WÄRME IM OXYFUEL FALL

2.4.3.1 Rezirkulationsrate

Die Variation der Rezirkulationsrate bietet die Möglichkeit, den Sauerstoffgehalt in der Anströmung zu variieren. Durch die geringeren Mengen an Oxidationsgas für eine hohe Sauerstoffkonzentration in der Anströmung, kann die Dimensionierung der Brennkammer entsprechend kleiner gewählt werden. Gleichzeitig steigt jedoch die adiabate Verbrennungstemperatur in der Brennkammer. Um die Temperatur in der Brennkammer auf einem konstanten Niveau zu halten, muss dementsprechend mehr Wärme aus der Brennkammer abgeführt werden.

In Abbildung 31 wird der Wärmeübertrag des Bettmaterials in Abhängigkeit des Sauerstoffgehaltes in der Anströmung dargestellt. Der Wärmeübertrag wird in Relation zur eingebrachten Brennstoffwärmeleistung angegeben und ist daher dimensionslos. 10 % der Brennstoffwärmeleistung wurden als Wärmeverluste angenommen. Dies entspricht in etwa den Ergebnissen an der 100 kW_{th} Versuchsanlage. Weiters wurde ein stöchiometrisches Verbrennungsverhältnis der Brennkammer mit $\lambda_{\text{Brennkammer}}=1.2$ und die Verbrennungstemperatur in der Brennkammer mit 850 °C angenommen.

In der zweiten Kurve in Abbildung 31 wird der Riserdurchmesser in Funktion des Sauerstoffgehaltes in der Anströmung dargestellt. Dabei wurde die Riseraustrittsgeschwindigkeit mit 7 m/s konstant angenommen. Die Angaben des relativen Riserquerschnittes wurden in Bezug auf eine Auslegung bei einer Luftfeuerung auf die vorher erwähnten Betriebsdaten bezogen. Ein Wärmeaustausch an der

Reaktorwand ist in der Simulation nicht enthalten, jedoch sind die Ergebnisse mit Bolea [2012] vergleichbar.

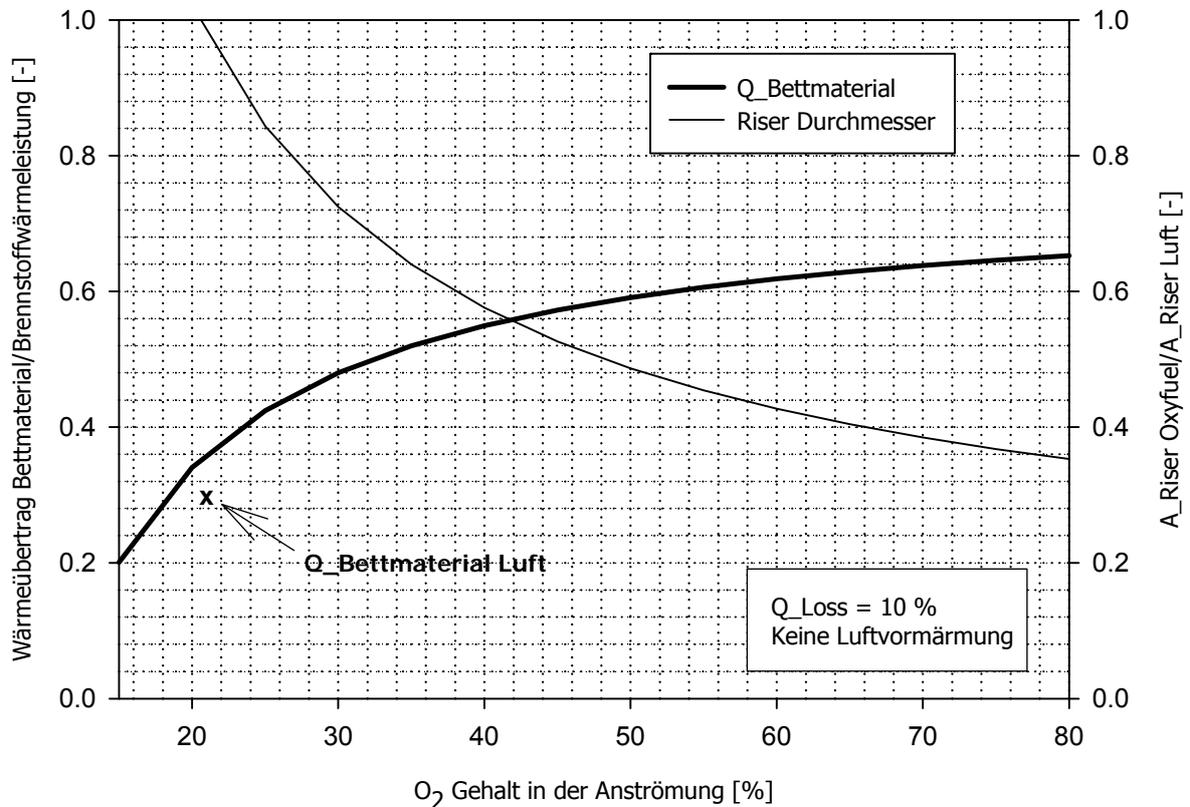


Abbildung 31 Wärmeübertrag des Bettmaterials und Riser Durchmesser in Abhängigkeit des O₂ Gehaltes in der Anströmung

Man erkennt deutlich, dass der Riserquerschnitt bei einer höheren Sauerstoffkonzentration in der Anströmung entsprechend kleiner gewählt werden kann. Ab einer Sauerstoffkonzentration in der Anströmung von über 45 % kann beispielsweise der Riserquerschnitt im Vergleich zu einer Luftverbrennung halbiert werden.

Hinsichtlich des Wärmeübertrages aus dem Bettmaterial ist zu erkennen, dass eine hohe Sauerstoffkonzentration in der Anströmung zu einem hohen Wärmeübertrag des Bettmaterials führt. Bezogen auf die Brennstoffwärmeleistung ergibt dies für einen 20 %igen Sauerstoffgehalt in der Anströmung einen Wert von 0.35. Hingegen bei einem Sauerstoffgehalt von 50 % bereits einen Wert von 0.58.

Verglichen mit einer Verbrennung mit nicht vorgewärmter Luft, da die Riser Eintrittstemperatur im Oxyfuel Fall 300 C° entspricht, muss selbst bei einem 21 % igen Sauerstoffgehalt in der Anströmung mehr Wärme aus dem Bettmaterial abgeführt werden.

Der Feststoffumlauf, bezogen auf den Riserquerschnitt, wird in Gleichung (2.37) angegeben. Für eine gegebene Riseraustrittsgeschwindigkeit U_{aus} (Gleichung 2.38) und einem gegebenem Verhältnis aus übertragener Wärme (Gleichung 2.39) aus dem Bettmaterials und der Brennstoffwärmeleistung, ergibt sich ein erforderlicher minimaler Feststoffumlauf (2.36).

$G_{s_min} = \frac{U_{aus} * Q_{Bettmaterial}}{(h_{Bett_aus} - h_{Bett_in}) * \dot{V}_{Gas_aus}}$	(2.36)
$U_{aus} = \frac{\dot{V}_{Gas_aus}}{A}$	(2.37)
$Q_{Bettmaterial} = \dot{m}_{Bettmaterial} * (h_{Bett_aus} - h_{Bett_in})$	(2.38)
$G_s = \frac{\dot{m}_{Bettmaterial}}{A}$	(2.39)

Der minimale Feststoffumlauf in Abhängigkeit der Sauerstoffkonzentration in der Anströmung ist in Abbildung 32 dargestellt. Dafür wurden verschiedene Temperaturen des gekühlten Bettmaterials gewählt.

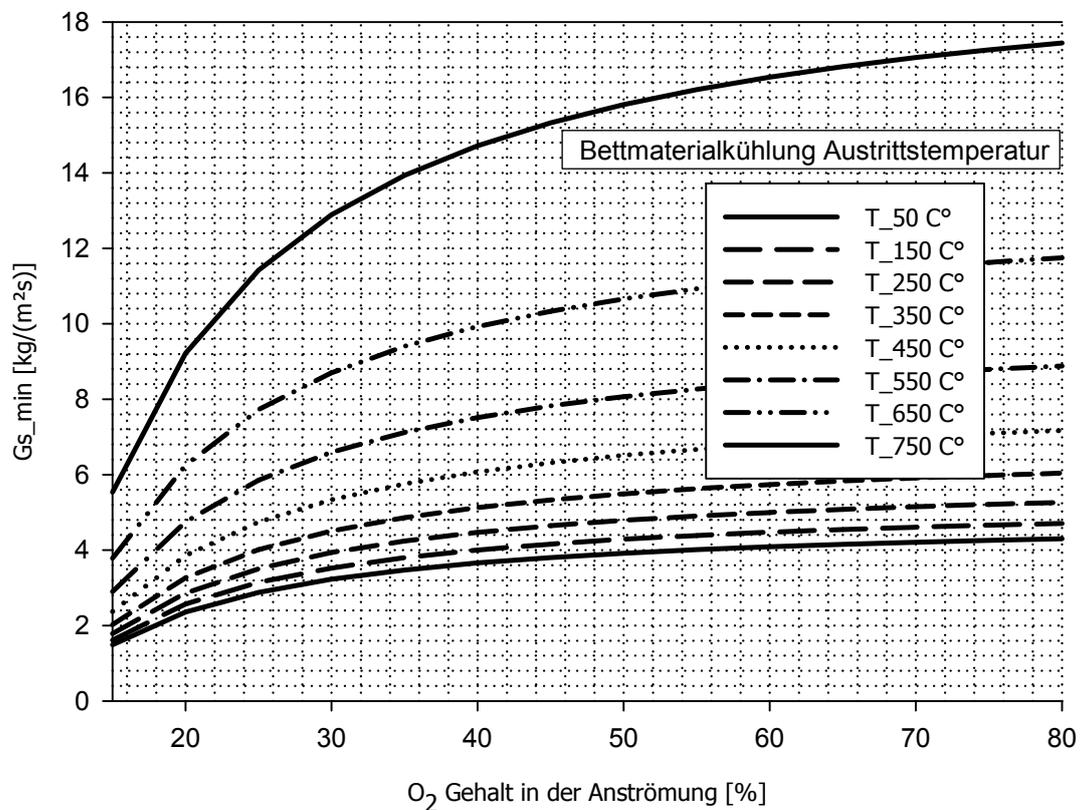


Abbildung 32 Theoretischer minimaler Feststoffumlauf (Gs) (Annahme des vollständigen Umlaufs über die Bettmaterialkühlung) in Abhängigkeit des Sauerstoffgehaltes in der Anströmung

Für die abgebildete Variation wurden die Betriebsdaten aus Abbildung 31 beibehalten. Es ist zu erkennen, dass mit höherer Sauerstoffkonzentration in der Anströmung ein dementsprechend höherer minimaler Feststoffumlauf erreicht werden muss. Dieser Einfluss nimmt jedoch mit zunehmendem Sauerstoffgehalt in der Anströmung und höherem Wärmeübertrag aus dem Bettmaterial ab.

2.4.3.2 Rezirkulationstemperatur

Der Einfluss der Rezirkulationstemperatur auf die übertragene Wärme im Bettmaterial ist in Abbildung 33 dargestellt.

Es ist zu erkennen, dass bei steigender Temperatur der Rauchgasrezirkulation mehr Wärme aus dem Bettmaterial entzogen werden muss, um eine konstante Riseraustrittstemperatur zu erreichen. Umgekehrt sinkt dadurch die übertragene Wärme des Rauchgases.

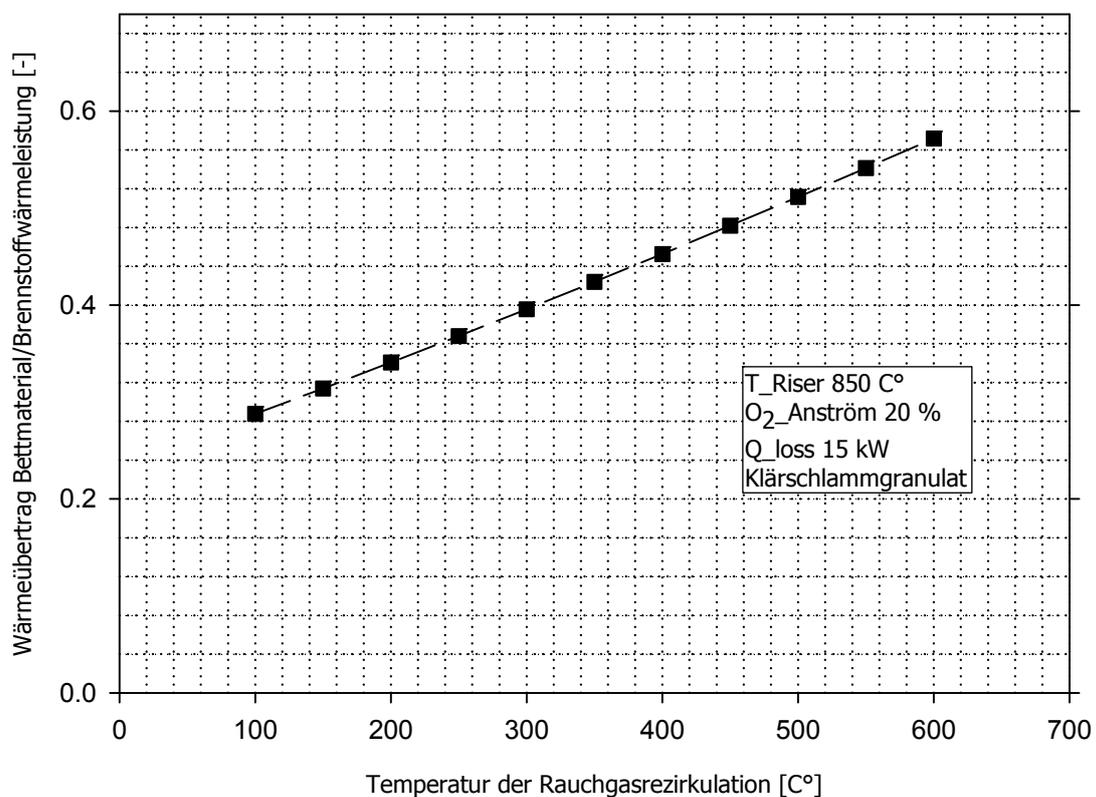


Abbildung 33 Übertragene Wärme aus Rauchgas und Bettmaterial in Abhängigkeit der Rauchgasrezirkulationstemperatur

Für den speziellen Fall einer Monoverbrennung von Klärschlamm gilt es auch bei eintretendem hohem Wassergehalt im Klärschlamm die Temperatur im Verbrennungsraum möglichst gleich zu halten. Bei der Verbrennung im Oxyfuel Prozess wird durch ein Anheben der Rezirkulationstemperatur ermöglicht, dass auch Klärschlamm mit höherem Wassergehalt bei gleichbleibender Temperatur im Riser und gleichbleibendem Sauerstoffgehalt in der Anströmung verbrannt werden kann.

3 Versuchsaufbau

3.1 REAKTORDESIGN

Bei der beschriebenen Versuchsanlage handelt es sich um eine zirkulierende Wirbelschicht die für die Oxyfuel Verbrennung mit einer Leistung von 100 kW_{therm} konstruiert wurde. Eine detaillierte Beschreibung aller Auslegungsparameter und der Konstruktion der Anlage werden von Höltl [2010] dargestellt.

Zusammenfassend sind in Tabelle 6 die wichtigsten Design-Parameter der Oxyfuel Versuchsanlage aufgelistet. Aufgrund von Höhenbeschränkungen im Technikum wurde der Riser mit 5 m Länge begrenzt. Der Durchmesser des Risers beträgt 0.15 m.

Tabelle 6 Design-Parameter der Oxyfuel Versuchsanlage für die Verbrennung von polnischer Steinkohle

Parameter	Symbol	Einheit	Wert
Thermische Leistung	P _{therm}	[kW]	100
Bettmaterial	-	-	Quarzsand
Schüttdichte Bettmaterial	ρ _b	[kg/m ³]	1500
Höhe Wirbelschicht	l	[m]	5
Querschnitt Wirbelschicht	A	[m ²]	0.0177
Austrittsgeschwindigkeit	U _{aus}	[m/s]	7
Betriebstemperatur	T _{riser}	[C°]	950

3.1.1.1 Bettmaterial

Bei der Auslegung der Betriebsparameter für eine Oxyfuel Verbrennung von Klärschlamm wurde darauf wertgelegt, aus Kostengründen die Umbaumaßnahmen so gering wie möglich zu halten.

Sowohl für den Betrieb mit Steinkohle als auch für den Betrieb mit Klärschlamm eignet sich Quarzsand als inertes Bettmaterial sehr gut. Um eine schnell fluidisierte Wirbelschicht zu erzeugen, musste aufgrund des gewählten Bettmaterials (siehe Tabelle 7) die Gasgeschwindigkeit zwischen 3 und 10 m/s [Grace, 1997] betragen.

Tabelle 7 Daten Bettmaterial

Parameter	Symbol	Einheit	Wert
Bettmaterial	-	-	Quarzsand
Masse Bettmaterial	Masse BM	[kg]	20
Dichte Bettmaterial	ρ_p	[kg/m ³]	2650
Schüttdichte Bettmaterial	ρ_b	[kg/m ³]	1500
mittlerer Siebdurchmesser	d_p	[μ m]	154
Oberflächen/Volumenbezogener Durchmesser	d_{sv}	[μ m]	134
Formfaktor	ψ	[-]	0.95
Betthöhe am Lockerungspunkt	H_L	[m]	0.76
Druckabfall in der Wirbelschicht	Δ_p	[mbar]	111

Da sich die Elementarzusammensetzung von Klärschlamm deutlich von der von polnischer Steinkohle unterscheidet, mussten demnach die Betriebsparameter auf den neuen Brennstoff angepasst werden.

3.1.1.2 Brennstoffe

Im Zuge der Versuchskampagne wurden zwei verschiedene Klärschlämme untersucht. Um eine möglichst allgemeine Aussage über das Verhalten von Klärschlamm im Falle einer Oxyfuel Verbrennung treffen zu können, wurde einerseits Klärschlammgranulat und andererseits Klärschlampellets verwendet. Beide Klärschlämme weisen in Bezug auf die Ergebnisse der Elementaranalyse ähnliche Werte auf. Wie aus Tabelle 8 ersichtlich haben sowohl Klärschlammgranulat als auch Klärschlampellets einen geringen Wassergehalt von rund 10 Mass. % und zusätzlich ist der Aschegehalt von 30-35 % als sehr hoch anzusiedeln. Der Schwefelanteil ist beim industriellen Klärschlamm um etwa 45 % höher. Der größte Unterschied bei den eingesetzten Klärschlämmen ist jedoch die Partikelgröße-, form und -dichte. Diese Faktoren wirkten sich im Zuge der Versuche auf den zu verwendenden Restsauerstoffgehalt (wie in Kapitel 4.2.5.1 beschrieben) deutlich aus.

Tabelle 8 Vergleich der Brennstoffanalyse der eingesetzten Klärschlämme mit polnischer Steinkohle

	Einheit	Polnische Steinkohle	Klärschlamm A (Klärschlammgranulat)	Klärschlamm B (Klärschlamm pellets)
Wassergehalt	[Mass. %]	10	11	9
Aschegehalt (Wf)	[Mass. %]	7	39	36
Kohlenstoffgehalt (Waf)	[Mass. %]	83	58	60
Wasserstoffgehalt (Waf)	[Mass. %]	4	7	7
Stickstoffgehalt (Waf)	[Mass. %]	1	8	7
Schwefelgehalt (Waf)	[Mass. %]	0.48	1	1
Heizwert H _u	[kJ/kg]	27027	11539	12883

Um auch die Verbrennung von Dickschlamm mit einem dementsprechend höheren Wassergehalt zu simulieren, wurde Wasser zu der Brennstoffeinbringung zugemengt (Kapitel 3.3.1).

Die Schwermetallanalyse des Dickschlammes, der bei der thermischen Verwertung am Gelände Simmeringer Haide verwendet wird, ist in Tabelle 9 dargestellt. Der hohe Eisenanteil im Klärschlamm (26-40 g/kg) führt zu einer rötlichen Färbung der Klärschlamm asche.

Tabelle 9 Schwermetallanalyse Dickschlamm

	Datum	Einheiten	Nachweisgrenze	Min	Mittel	Max
	TS	%		25.2	32.5	36.2
Antimon	Sb	mg/kgTS	0.3	1.83	2.82	4.20
Arsen	As	mg/kgTS	0.6	0.70	1.18	1.70
Aluminium	Al	mg/kgTS	15	6.38	8.54	10.90
Barium	Ba	mg/kgTS	3	191	262	303
Blei	Pb	mg/kgTS	30	38.6	58	85
Cadmium	Cd	mg/kgTS	0.04	0.1	1.0	1.6
Chrom	Cr	mg/kgTS	3	27	35	50
Kobalt	Co	mg/kgTS	3	1.80	2.89	4.30
Kupfer	Cu	mg/kgTS	3	172	210	252

Mangan	Mn	mg/kgTS	3	84	115	151
Nickel	Ni	mg/kgTS	20	19.6	26	33
Phosphor	P	mg/kgTS	15	14.7	19.1	22.5
Quecksilber	Hg	mg/kgTS	0.9	0.5	0.7	1.1
Silber	Ag	mg/kgTS	3	4.2	5.5	7
Eisen	Fe	mg/kgTS	3	26	34	40
Zink	Zn	mg/kgTS	3	488	723	922
Zinn	Sn	mg/kgTS	6	15	21	29

3.1.1.3 Betriebsdaten der Oxyfuel Wirbelschicht für die Verbrennung von Klärschlamm

In Tabelle 10 sind zusammenfassend die wichtigsten Parameter für eine Betriebsführung mit Klärschlamm aufgelistet. Zum Vergleich dienen die Auslegungsparameter für den Betrieb mit polnischer Steinkohle. Man erkennt deutlich, dass ein hoher Wassergehalt im Brennstoff sowohl zu einem hohen Massenstrom in der Brennstoffeinbringung führt. Gleichzeitig wird dadurch auch der Wasserdampf im Abgas erhöht und dies führt zu erhöhten Gasaustrittsgeschwindigkeiten bei gleicher thermischer Leistung.

Tabelle 10 Zusammenfassung der Betriebsdaten

Brennstoff	[-]	polnische Steinkohle	Klärschlamm A	Dickschlamm
Wassergehalt	[Mass. %]	9.9	11	70
unterer Heizwert	[MJ/kg]	27	12	3.5
thermische Leistung	[kW]	100	88.7	60
Brennstoffmassenstrom	[kg/h]	13.3	26.7	62
Betriebstemperatur	[°C]	950	850	850
$\lambda_{\text{Brennkammer}}$	[-]	1.2	1.2	1.2
O ₂ -Anströmung	[Vol. %]	20	20	50
Gasaustrittsgeschwindigkeit	[m/s]	7	7	7

Aufgrund des hohen Ascheanteils wurde die Betriebsführung auf 850 °C herabgesetzt. Dies soll das Risiko von Anpackungen minimieren und gleichzeitig noch einen vollständigen Ausbrand ermöglichen.

3.2 KALTMODELL

Zur Beschreibung der fluiddynamischen Eigenschaften wurde ein Kaltmodell der 100 kW_{th} OxyFuel-Versuchsanlage dimensioniert und gebaut. Insbesondere die Konstruktion der Bettmaterialkühlung, die hier mittels Kühlschnecke ausgeführt wurde, konnte somit erprobt werden, das Druckprofil mit anderen zirkulierenden Wirbelschichten verglichen und Methoden zur Umlaufmessung bestimmt werden.

3.2.1 AUSLEGUNG DES KALTMODELLS NACH [GLICKSMAN, 1993]

Anhand der Scalingbeziehungen für zirkulierende Wirbelschichten nach [Glicksman, 1993] wurde ein Kaltmodell der 100 kW_{th} Oxyfuel Heianlage erstellt. Kaltmodelle sind in erster Linie eine kostengünstige Variante, um erste Berechnungsgrundlagen der Heianlage überprüfen zu können. Aus Gründen der Wirtschaftlichkeit wird meist Luft unter atmosphärischen Bedingungen als Fluidisierungsmedium verwendet. Um den Feststofftransport auch beobachten zu können, wird meist ein durchsichtiges Material, wie Glas oder Kunststoff, zur Konstruktion verwendet.

Die Auslegung des Kaltmodells wird im Detail von [Hörtl, 2010] beschrieben. Die wichtigsten Parameter zur Dimensionierung des Kaltmodells im Vergleich zur Heianlage werden in Tabelle 11 dargestellt.

Tabelle 11 Dimensionierung des Kaltmodells

Parameter	Reaktor heiß	Reaktor kalt	Einheit
η_G	$3 \cdot 10^{-5}$	$1.71 \cdot 10^{-5}$	[Pas]
ρ_G	$6.6 \cdot 10^{-1}$	1,22	[kg/m ³]
U	6,73	4,5	[m/s]
ρ_P	2650	8800	[kg/m ³]
d_p	154	55	[μm]
ψ	0,95	1	[-]
D	0,15	0,05	[m]

Bei der Konstruktion des Kaltmodells wurde darauf geachtet, dass der Unterschied der dimensionslosen Kennzahlen aus Tabelle 12 zwischen Kaltmodell und der Heianlage mglichst gering gehalten wird, um mglichst den Scaling-Kriterien zu entsprechen. Obwohl der berechnete Faktor zwischen heiem und kaltem Betrieb mglichst eins betragen sollte, so wurde aus wirtschaftlichen Grnden durch die Verwendung von Luft bei atmosphrischen Bedingungen als Fluidisierungsluft ein Unterschied in Kauf genommen. Unter diesen Randbedingungen schien die Verwendung von Bronze Partikel mit einer mittleren Korngre von 55 μm und einer Dichte von 8800 $[\text{kg}/\text{m}^3]$ am geeignetesten. Dies fhrt unter Verwendung der oben genannten Scalingbeziehungen zu einem Verkleinerungsmastab von 1:3.

Tabelle 12 Berechnung der dimensionslosen Kennzahlen

Kennzahlen	Reaktor hei	Reaktor kalt	$R_{\text{hei}} : R_{\text{kalt}}$
Re	21,93	17,66	1,24
Ar	65,78	59,92	1,10
Fr	29980,61	37531,28	0,80
Dichteverhltnis	4018,18	7213,11	0,56
D/d_p	974,03	909,09	1,07

Inwieweit sich der Unterschied der dimensionslosen Kennzahlen auf das Fluidisierungsregime auswirkt, wird in Abbildung 34 gezeigt. Dabei ist zu erkennen, dass sowohl Heianlage (als Kreis dargestellt) als auch Kaltmodell (als Dreieck dargestellt) sich im gleichen Regime, nmlich im Bereich der stark expandierten Wirbelschicht, befinden.

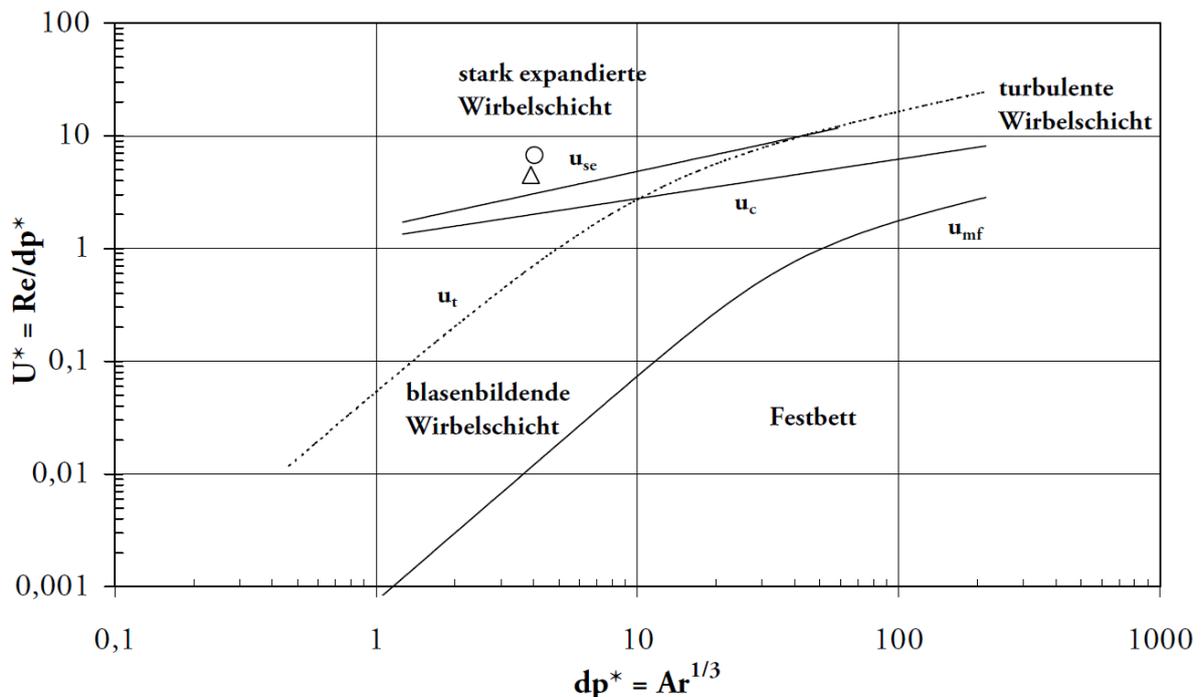


Abbildung 34 Grace-Diagramm [Grace, 1997] mit Betriebspunkten der Heianlage \circ und des Kaltmodells Δ [Hltl, 2010]

3.2.2 KALTMODELL-AUSFÜHRUNG UND INSTRUMENTIERUNG

Das Oxyfuel Kaltmodell enthält die wichtigsten Komponenten der Heianlage. Dabei wurde sowohl der Reaktor, eine Partikelabscheidung mittels Zyklon, die Bettmaterialkhlung mittels Khlschnecke und Primr- wie Sekundrfluidisierung ausgefhrt. Die Abgasnachbehandlung mittels Nachbrennkammer und Abgaswrmetauscher ist nicht im Kaltmodell enthalten, da dies die fluiddynamischen Eigenschaften der Wirbelschicht nicht beeinflusst. Eine Partikelabscheidung nach dem Zyklonaustritt erfolgt beim Kaltmodell mittels Gewebefilter. Abbildung 35 zeigt auf der linken Seite das fertig gestellte Kaltmodell mit Bettmaterialinventar und auf der rechten Seite die Konstruktionszeichnung im Aufriss der Anlage.

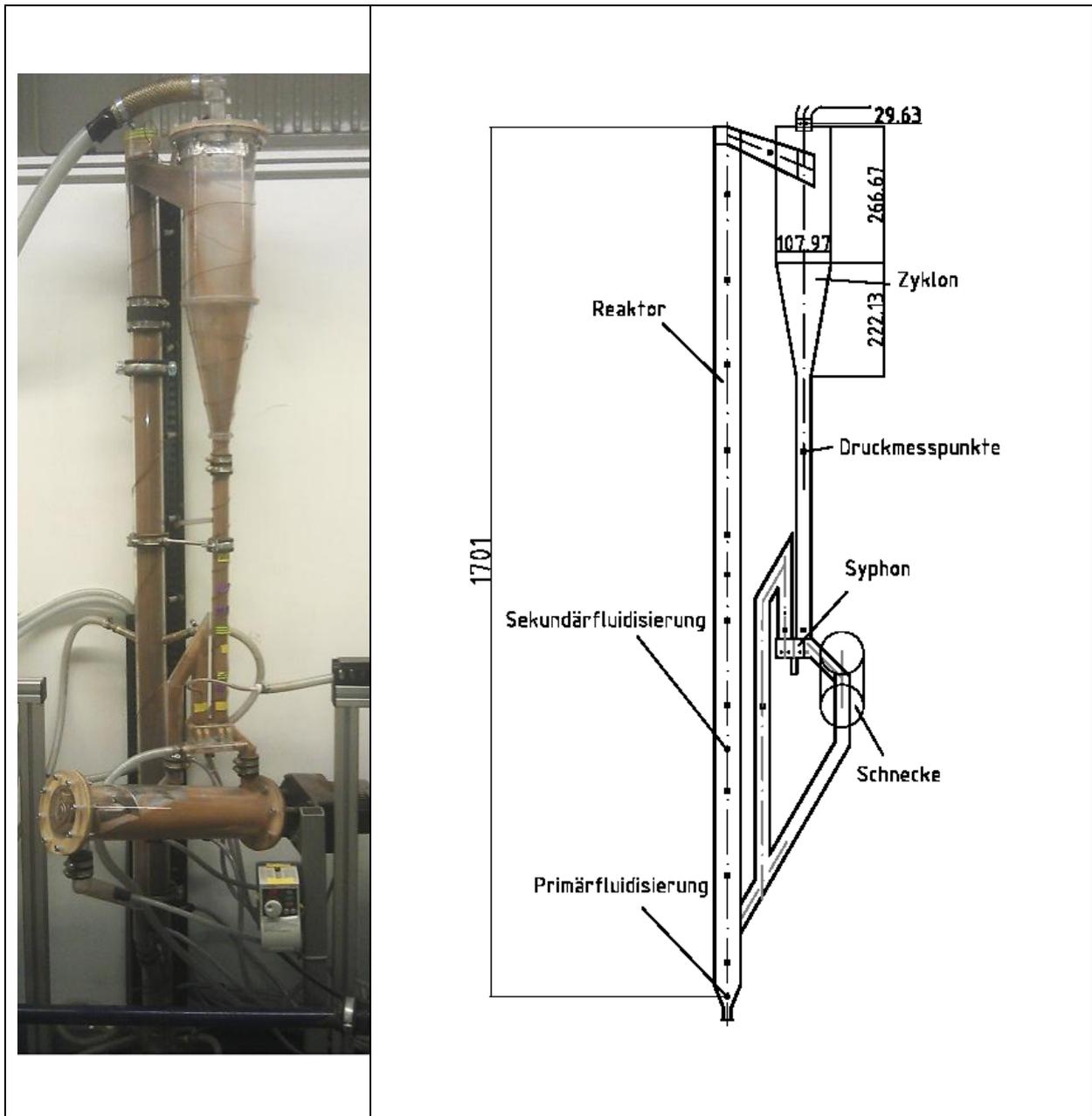


Abbildung 35 Kaltmodell der 100 kW_{th} Oxyfuel Versuchsanlage

Die Volumenstrommessungen bzw. die Volumenstromeinstellungen erfolgen mittels sechs Rotameter, nämlich jeweils eines für die Primär- und Sekundärfluidisierung und zwei pro Siphon (Fluidisierung und Stützfluidisierung).

Die Fluidisierungsluft wird mittels Verdichter auf einen Vordruck von 6 bar gebracht. Ein hoher Vordruck soll Einflüsse von Druckschwankungen in der Wirbelschicht auf den eingebrachten Volumenstrom vermeiden. Folgende Volumenströme können eingestellt werden:

- Primärfluidisierung: 5-50 Nm³/h
- Sekundärfluidisierung: 2.9-29 Nm³/h
- Syphonfluidisierung: 0.2-2 Nm³/h
- Stützfluidisierung Syphon: 0.2-2 Nm³/h

Die Messung des Druckes an den beschriebenen Stellen erfolgt über Schläuche, die an einen Druckmesskoffer angeschlossen werden. Es können bis zu 24 Absolutdruckmessungen bzw. Differenzdruckmessungen gleichzeitig aufgenommen werden. 14 Messdosen arbeiten im Bereich von null bis 100 mbar, sechs im Bereich von null bis 250 mbar und vier mit null bis 500 mbar. An der Anschlussstelle am Modell werden die Schläuche mit einem Filter abgedichtet, bzw. mit Glaswolle am Schlauchanfang gegen Partikeleintrag geschützt. Die Aufzeichnung der Messungen erfolgte mit Hilfe des Programms LabView. Es wurde ein Messwert pro Sekunde, sowohl für die visuelle Darstellung als auch zur Speicherung aufgezeichnet.

3.3 100 kW_{TH} OXYFUEL VERSUCHSANLAGE

Bei dem eingesetzten Reaktortypen handelt es sich um eine zirkulierende Wirbelschicht, welche im industriellen Maßstab typischer Weise ab einer thermischen Leistung von 50 MW_{th} eingesetzt wird. Die Auslegung der thermischen Leistung der Versuchsanlage wurde auf 100 kW_{th} gesetzt, was einer typischen Größe einer aussagekräftigen Versuchsanlage entspricht [Hofbauer, 2002]. Abbildung 36 zeigt die wichtigsten Komponenten der Oxyfuel-Versuchsanlage. In diesem Reaktortyp wird das Bettmaterial (Quarzsand) mittels einer Rauchgas- und einer Reinsauerstoffmischung am Reaktorboden fluidisiert. Dadurch soll eine gute Gas-Feststoffmischung gewährleistet werden und ermöglicht somit eine homogene Verteilung des Brennstoffes innerhalb des Reaktors. Einen Überblick über die Anordnung der Anlagenkomponenten gibt Abbildung 36.

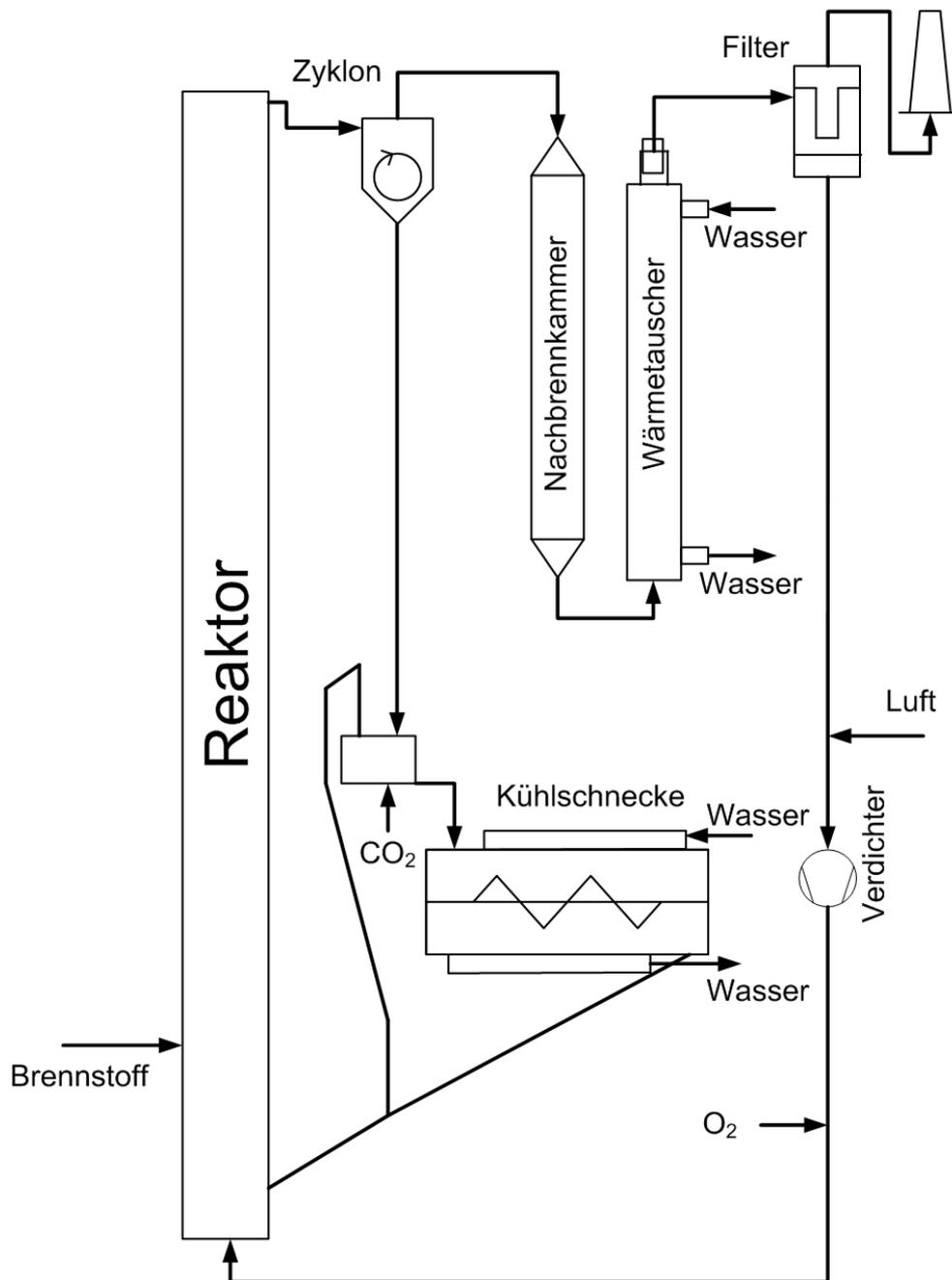


Abbildung 36 Design der 100 kW_{th} Oxyfuel Versuchsanlage

Die Partikel, die durch den Reaktor ausgetragen werden, gelangen in einen Heißgaszyklon, welcher einen hohen Grad an Gas-/Feststoff Abscheidung ermöglicht. Das Rauchgas wird daraufhin in die Nachbrennkammer geleitet, während die Feststoffe in den Reaktor rückgeführt werden. Die Auslegung des Zyklons wurde aufgrund der hohen Feststoffbeladung, die in einer zirkulierenden Wirbelschicht auftritt, nach den Richtlinien von Hugi [1998] ausgeführt. Nach der Abscheidung gelangen die Partikel in einen Siphon, welcher mit reinem CO₂ fluidisiert wird.

Es besteht die Möglichkeit, den rückzuführenden Feststoff abzukühlen, bevor er in den Reaktor zurückgelangt. Um aber eine genau einstellbare Kühlleistung zu gewährleisten, wurde eine Kühlschnecke verwendet, die das Bettmaterial von 900°C auf etwa 600°C abkühlen kann. Die Kühlleistung lässt sich über die Schneckendrehzahl einstellen, wobei der nicht von der Schnecke

geförderte Teil des Bettmaterialstromes ungekühlt zurück in den Wirbelschichtreaktor gelangt. Die Kühlung der Schnecke erfolgt mit Kühlwasser.

Das Gas, das im Zyklon abgetrennt wird, gelangt im Anschluss an den Zyklon über eine Nachbrennkammer, die bei einer unvollständigen Verbrennung ein sogenanntes Abgas-Polishing durchführt. Über Düsen kann dort nochmals Luft oder Sauerstoff eingebracht werden.

Jedenfalls wird in dieser Nachbrennkammer die Verweilzeit der Abgase verlängert, um einen möglichst vollständigen Ausbrand zu gewährleisten.

Um das Abgas abzukühlen, ist im Anschluss an die Nachbrennkammer, ein regelbarer Rauchrohrwärmetauscher eingebaut. Über einen Dorn, der an der oberen Seite bewegt werden kann, ist es möglich, die Abgase gezielt durch die Innenrohre zu leiten und damit die Ausgangstemperatur der Abgase einzustellen.

Mit diesem Wärmetauscher kann die gesamte Bandbreite der geplanten Versuche sowohl von den Temperaturen als auch von den Taupunkten abgedeckt werden. Der Wärmetauscher kühlt den Abgasstrom, je nach Taupunkt des Gases, auf etwa 170-220°C ab. Diese Temperaturen ermöglichen es, im Anschluss das Abgas von Feinstaub zu befreien. Dies geschieht in einem Schlauchfilter, der für eine maximale Rauchgaseintrittstemperatur von 250 C° ausgelegt ist.

Das abgekühlte und von Feinstaub befreite Abgas gelangt über einen Kamin ins Freie oder kann über einen Verdichter rezirkuliert werden. Der rezirkulierte Anteil wird mit einem Reinsauerstoffstrom vermischt und bildet erneut das Fluidisierungsgas.

Als weitere Möglichkeit der Fluidisierung kann Luft oder sauerstoffangereicherte Luft für einen Anfahr- oder Versuchsbetrieb verwendet werden.

Für die Erfassung der Messdaten und zur Steuerung der Versuchsanlage wurde eine sogenannte speicherprogrammierbare Steuerung (kurz SPS) verwendet, welche für die Messdatenvisualisierung an eine Labview-Einheit gekoppelt ist.

Abbildung 37 zeigt die Oxyfuel Versuchsanlage ohne Isolierung.



Abbildung 38 100 kW_{th} Oxyfuel Versuchsanlage

Um die Anlage zusätzlich für die Oxyfuel-Verbrennung mit Klärschlamm zu betreiben, mussten folgende Anlagenkomponenten neu installiert bzw. geändert werden:

- Brennstoffbeschickung
- Rauchgaszirkulationsgebläse
- Gasanalyse in der Anströmung
- Kühlturmschneckenumbau

3.3.1 BRENNSTOFFBESCHICKUNG

Klärschlamm hat im Vergleich zu anderen Brennstoffen eine sehr große Bandbreite an Wassergehalten. Bei den Versuchen wurden getrocknetes Klärschlammgranulat bzw. Klärschlammzellulose verwendet. Um dennoch die Simulation von nassen Klärschlamm zu ermöglichen, wurde die bestehende Versuchsanlage um eine Brennstoffzuführeinrichtung mit Wassereinbringung erweitert. In Abbildung 39 wird das zusätzlich eingebrachte Wasser in Abhängigkeit des Brennstoffmassenstromes für eine gegebene thermische Leistung aufgetragen.

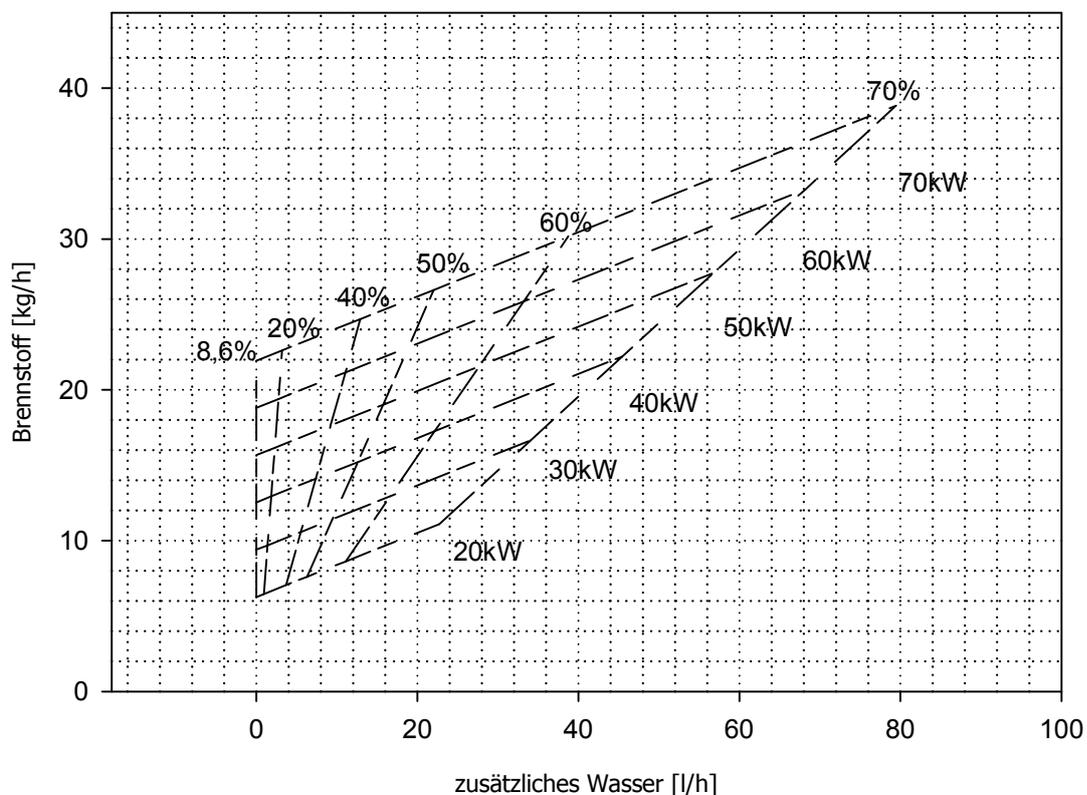


Abbildung 39 Zusätzlich eingebrachtes Wasser in Abhängigkeit des Brennstoffmassenstromes für eine gegebene thermische Leistung

Als Ausgangspunkt wird vorgetrocknetes Klärschlammgranulat mit einem Wassergehalt von 8.6 Gew. % eingebracht. Da sich Klärschlamm in dieser Form als riselfähig erweist, wurde eine Förderschnecke zur Beschickung eingebaut. Die Brennstoffzuführungseinrichtung kann sowohl für die Beschickung von Klärschlamm, als auch für die Beschickung von holzartiger Biomasse und sonstigen pelletierten Brennstoffen eingesetzt werden. Zur Lagerung des Brennstoffes wurde ein gasdichter Brennstoffbunker errichtet.

3.3.2 RAUCHGASREZIRKULATIONSGEBLÄSE

Aus Oxyfuel Verbrennungsversuchen mit polnischer Steinkohle als Brennstoff zeigte sich, dass die Fluidisierungsmenge den begrenzenden Leistungsfaktor darstellte. Die maximale Fluidisierungsmenge wurde durch die Leistung der alten Verdichtereinheit (Turbolader/Roots-Gebläse) begrenzt. Ein neues Verdichtersystem, welches einerseits eine Rauchgasverdichtung von mindestens 300 mbar, einen Volumenstrom von mindestens 100 Nm³/h und die Möglichkeit, heißes Gas zu verdichten, bietet wurde daher installiert. Anstelle des Turbolader/Roots-Gebläses wurde nun ein zweistufiger Radialverdichter der Fa. Sonic Typ 250 (Leistung 18,5 kW) installiert. Die spezielle „Heißgasausführung“ des Gebläses lässt eine Temperatur von bis zu 200 °C am Verdichtereingang zu. Damit lässt sich auch heißes rezirkuliertes Rauchgas als Fluidisierungsgas verwenden, welches für einen Oxyfuel Betrieb benötigt wird.

Zusätzlich bietet das System die Möglichkeit sowohl Umgebungsluft als auch rezirkuliertes Rauchgas oder Mischungen aus beiden als Fluidisierungsmedium einzusetzen.

In Abbildung 40 ist einerseits die Verdichterkennlinie (geförderter Volumenstrom in Abhängigkeit des Druckverlustes) des alten Verdichters im Vergleich zum neuen Verdichter in der Anlage aufgezeichnet. Da die Primärfluidisierung sowohl über kleine als auch über große Düsen eingebracht werden kann, kann der benötigte Düsendruckverlust auch für verschiedene Fluidisierungsgeschwindigkeiten erreicht werden. Im Vergleich zur Leistung des alten Verdichters lässt sich eine deutliche Steigerung erkennen, so dass die thermische Leistung der Anlage erheblich gesteigert werden konnte, da der Verdichter nun nicht mehr den limitierenden Faktor darstellt.

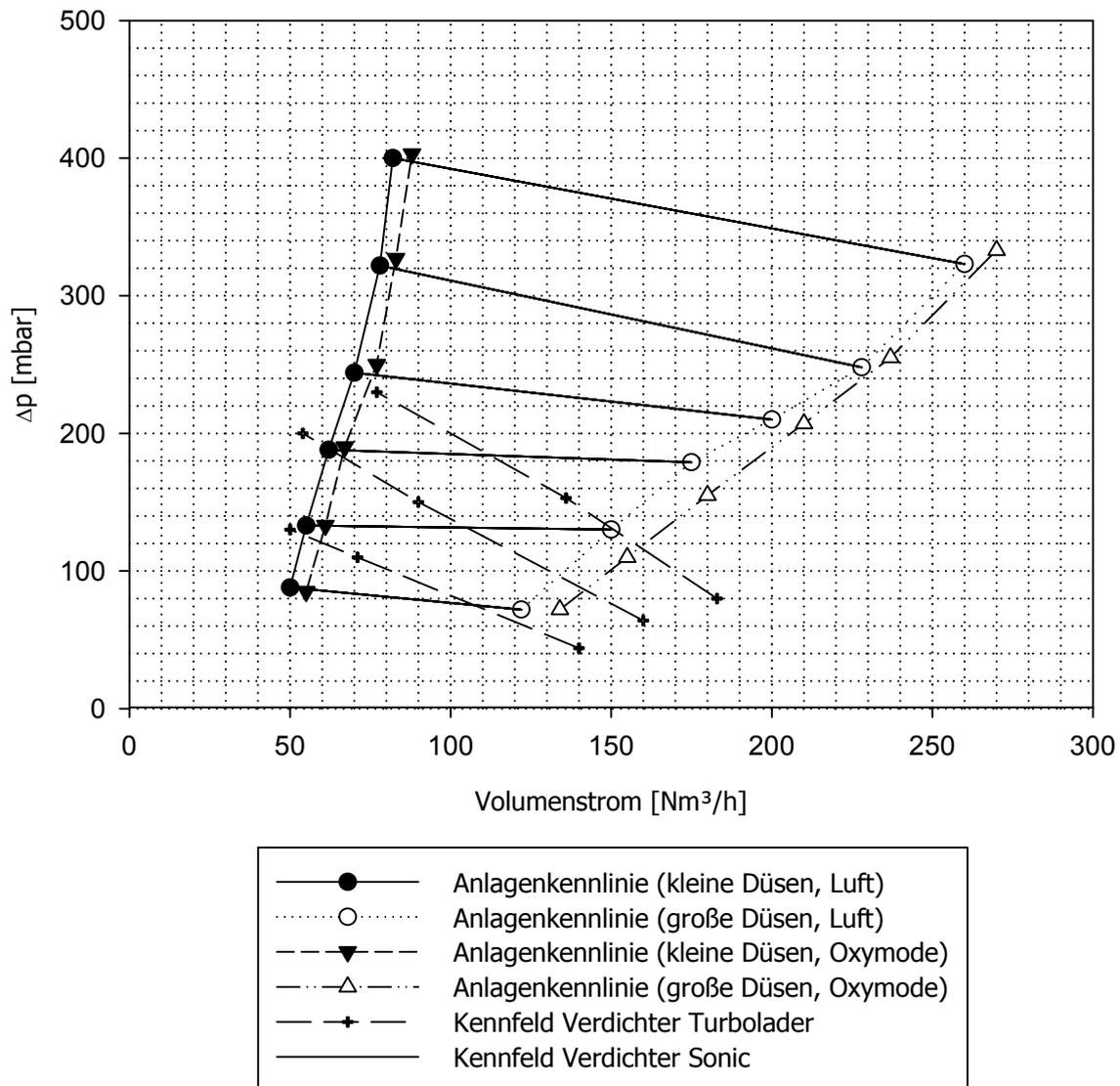


Abbildung 40 Vergleich zwischen der Kennlinie des alten Verdichtersystems und der neuen Verdichtereinheit

Gleichzeitig konnte mit Versuchen mittels Druckluft das Druckverlustverhalten der einzelnen Komponenten bestimmt werden (Abbildung 41).

Als neue limitierende Faktoren wurden die Nadelventile in der Anströmung ausgemacht. Die Verringerung des Durchflussquerschnittes in diesen Komponenten verursacht einen Druckverlust von über 400 mbar bei 150 Nm³/h. Unter diesen Voraussetzungen konnte das Verdichtersystem aus Turbolader und Roots-Gebläse die geforderte Fluidisierungsmenge nicht bereitstellen, und somit war die thermische Leistung vor Umbau der Anlage mit 45 kW begrenzt.

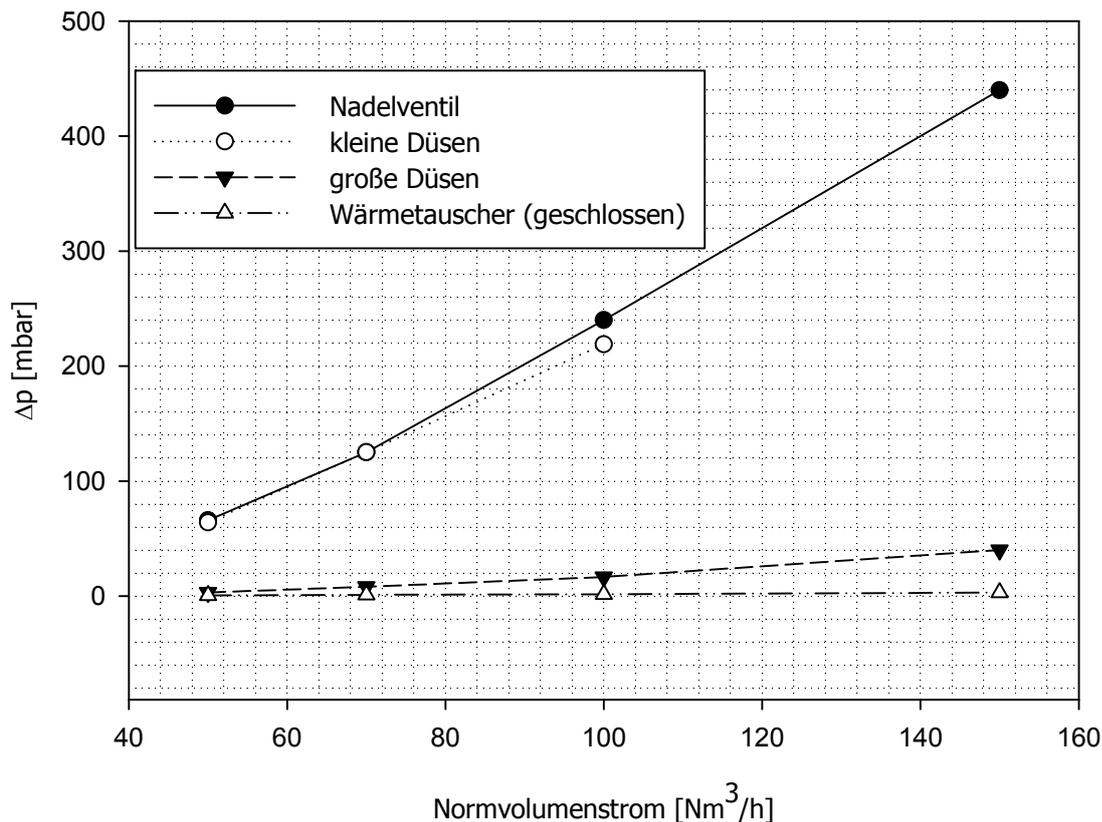


Abbildung 41 Druckverlust einzelner Anlagenkomponenten

Der Austausch der Nadelventile durch Kugelhähne verbesserte die Anlagenkennlinie in Bezug auf den Druckverlust und erweiterte erneut den Arbeitsbereich der Wirbelschichtanlage.

3.3.3 GASANALYSE IN DER ANSTRÖMUNG

Als wichtigen Faktor sowohl zur Bilanzierung der Massenströme als auch als Sicherheitseinrichtung gilt es, den Sauerstoffgehalt in der Anströmung zu messen.

Im Zuge der Neugestaltung der Anströmungsverrohrung konnten weitere Messanschlüsse geschaffen werden. Somit ist es jetzt möglich mit einem mobilen 3-Komponenten Gasmessgerät der Firma Rosemount-Emerson, den Sauerstoffgehalt (Paramagnetischer Sensor, Messbereich 0-100 %), den Kohlendioxidgehalt (IR, Messbereich 0-100 %) sowie die Menge an Kohlenmonoxid im trockenen Gas (IR, Messbereich 0-20 %) in der Anströmung zu bestimmen. Die hohe Feuchtigkeit im Oxyfuel Fall muss zur Bestimmung des wahren Sauerstoffgehalts jedoch noch berücksichtigt werden.

3.3.4 KÜHLSCHNECKENUMBAU

Um Wärme aus dem Bettmaterial abzuführen, wird ein eigener Bettmaterialkühler eingesetzt. Dabei wird heißes Bettmaterial aus dem Siphon abgeführt und in einer Kühlschnecke abgekühlt. Die Kühlschnecke fördert dabei das abgekühlte Bettmaterial zurück in den Riser.

Abbildung 42 beschreibt die benötigte Fördermenge für den eingesetzten Quarzsand, um eine bestimmte Menge an Wärme zu übertragen. Man erkennt, dass der Wärmeübergang der

Kühlschnecke eine entscheidende Rolle spielt und deshalb eine maximale Drehzahl nicht überschritten werden sollte.

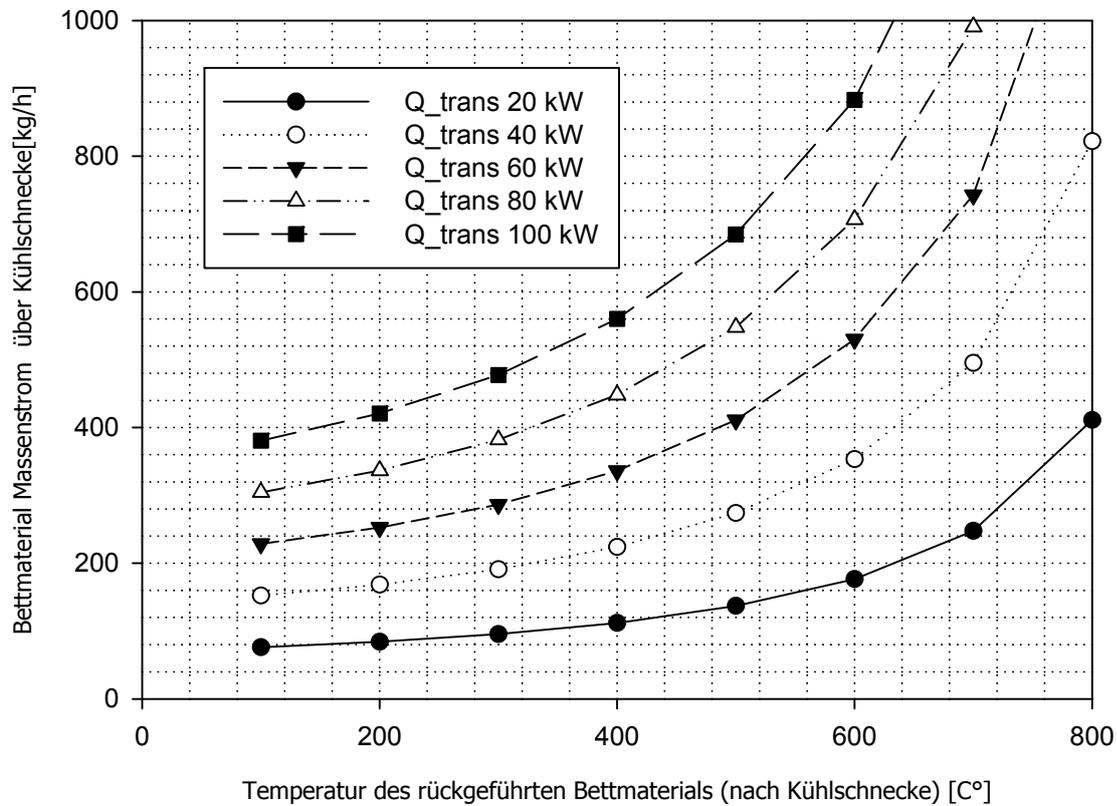


Abbildung 42 Benötigte Fördermenge der Kühlschnecke

Vor dem Umbau betrug die Fördermenge der Kühlschnecke jedoch lediglich 30 kg/h weswegen die Förderleistung entsprechend erhöht werden musste.

Dabei wurde der Antrieb der Kühlschnecke gewechselt. Der 0.75 kW E-Motor mit Stirngetriebe wurde durch einen 4.5 kW E-Motor mit Getriebe ersetzt. Dadurch kann eine Förderleistung von bis zu 480 kg/h erreicht werden.

3.3.5 BETRIEBSMITTEL

3.3.5.1 Gasversorgung

Um die bei den Versuchen nötigen Gase, Sauerstoff, Kohlendioxid und Stickstoff, in die Anlage dosiert einzubringen, wurden drei Gasregelstrecken verwendet die jeweils mit automatischer Druckreduzierung, Volumenstromregelung und Volumenstromaufzeichnung ausgestattet sind. Die Versorgung mit Reinsauerstoff und Kohlendioxid erfolgte mittels Flüssigtanks und Verdampferinheit. Der für die Sicherheitseinrichtung benötigte Stickstoff wurde mit einem Gasflaschenbündel bereitgestellt. Die Zusammensetzung der verwendeten Gase sind in

Tabelle 13 dargestellt.

Tabelle 13 Zusammensetzung Gase

	Sauerstoff	Kohlendioxid	Stickstoff	Methan
Reinheit	>99.5 Vol. %	>99.9 Vol. %	>99.5 Vol. %	>99.5 Vol. %
Verunreinigungen				
H ₂ O	≤ 67 ppm	-	-	≤ 10 ppm
CO ₂	≤ 300 ppm	-	-	≤ 500 ppm
CO	≤ 5 ppm	-	-	-
N ₂	-	-	-	≤ 500 ppm
O ₂	-	-	-	≤ 100 ppm

4 Ergebnisse

4.1 KALTMODELL

Erste Versuche am beschriebenen Kaltmodell zur Untersuchung des Betriebsverhaltens der Heianlage wurden bereits von [Woess, 2009] und [Guio, 2010] durchgefhrt. Die Adaption der Siphonanordnung konnte kostengnstig durchgefhrt werden. Weiters wurde darin die Umlauftrate am Kaltmodell mittels einer optischen Methode bestimmt. Variationen von Primr- und Sekundrfluidisierung, Siphon- und Sttzfluidisierung fr verschiedene Bettmaterialinventare wurden dabei ebenfalls ausgefhrt.

Die Ergebnisse zeigten, dass das Reaktordesign fr verschiedene Fluidisierungen stabile Betriebszustnde zulassen. Eine hhere Primrfluidisierung ohne Sekundrfluidisierung erhht den spezifischen Feststoffumlauf. Weiters erhht sich der spezifische Feststoffumlauf durch ein Erhhen des gesamten Bettmaterialinventars. Fr eine gegebene Primrfluidisierung wurde sowohl die minimale als auch die maximale Siphonfluidisierung bestimmt.

In weiterfhrenden Untersuchungen von [Dietrich, 2012] wurden verschiedene Methoden der Umlaufmessung miteinander verglichen, um Rckschlsse auf das Verhalten der Heianlage ziehen zu knnen.

4.1.1 DRUCKPROFIL

In Abbildung 43 ist das Druckprofil fr einen Standardbetriebsfall von 18 Nm³/h Primrfluidisierung und einem gesamten Bettmaterialinventar von 2.2 kg zu erkennen. Dabei ist ein homogener Druckverlauf ber die ganze Hhe des Risers zu erkennen, welcher typisch fr eine schnelle, stark expandierte Wirbelschicht ist [Hofbauer, 2002].

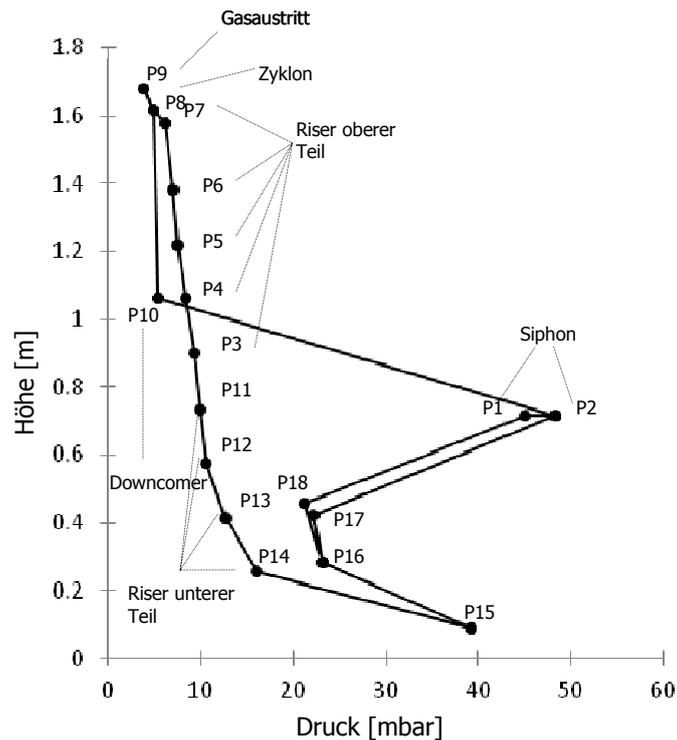


Abbildung 43 Druckprofil des Kaltmodells für eine Primärfluidisierung von 18 Nm³/h, Bettmaterial gesamt 2.2 kg [Guio, 2010]

Durch die direkte Proportionalität zwischen dem Druckverlust und der Festbettporosität lassen sich zwei Zonen erkennen. Im unteren Teil des Reaktors befindet sich eine dichte Zone und im oberen Teil eine dünne Zone. Dabei hat die Primärfluidisierung den Haupteinfluss auf die Verteilung der beiden Zonen.

4.1.2 UMLAUFMESSUNGEN

Die Bestimmung des minimalen Umlaufs, um die nötige Wärme aus dem Bettmaterial abzuführen, ist vor allem im Oxyfuel Fall bei der Verbrennung mit einem Oxidationsgas mit hohem Sauerstoffgehalt besonders wichtig. Die Berechnung des minimalen Umlaufs für die 100 kW_{th} Oxyfuel Versuchsanlage wurde bereits in Kapitel 2.4.3 erläutert und die Werte dargestellt.

Für die Arbeiten am Kaltmodell gilt es, Methoden zur Messung des Feststoffumlaufes einerseits zu evaluieren und auf ihre Anwendbarkeit in der Heißeanlage zu prüfen und andererseits auch ihre Genauigkeit durch einen Vergleich untereinander zu überprüfen. Da im Gegensatz zu einem Fließbettkühler die Oxyfuel Versuchsanlage zur Kühlung des Bettmaterials eine kalibrierbare Kühlturbine besitzt, bieten sich Möglichkeiten, den Umlauf mit ihrer Hilfe zu bestimmen.

4.1.2.1 Methoden zur Bestimmung des Feststoffumlaufes

Folgende Methoden zur Bestimmung des Feststoffumlaufes konnten am Kaltmodell getestet werden. Dabei dient Abbildung 44 zur grafischen Darstellung der vier Methoden.

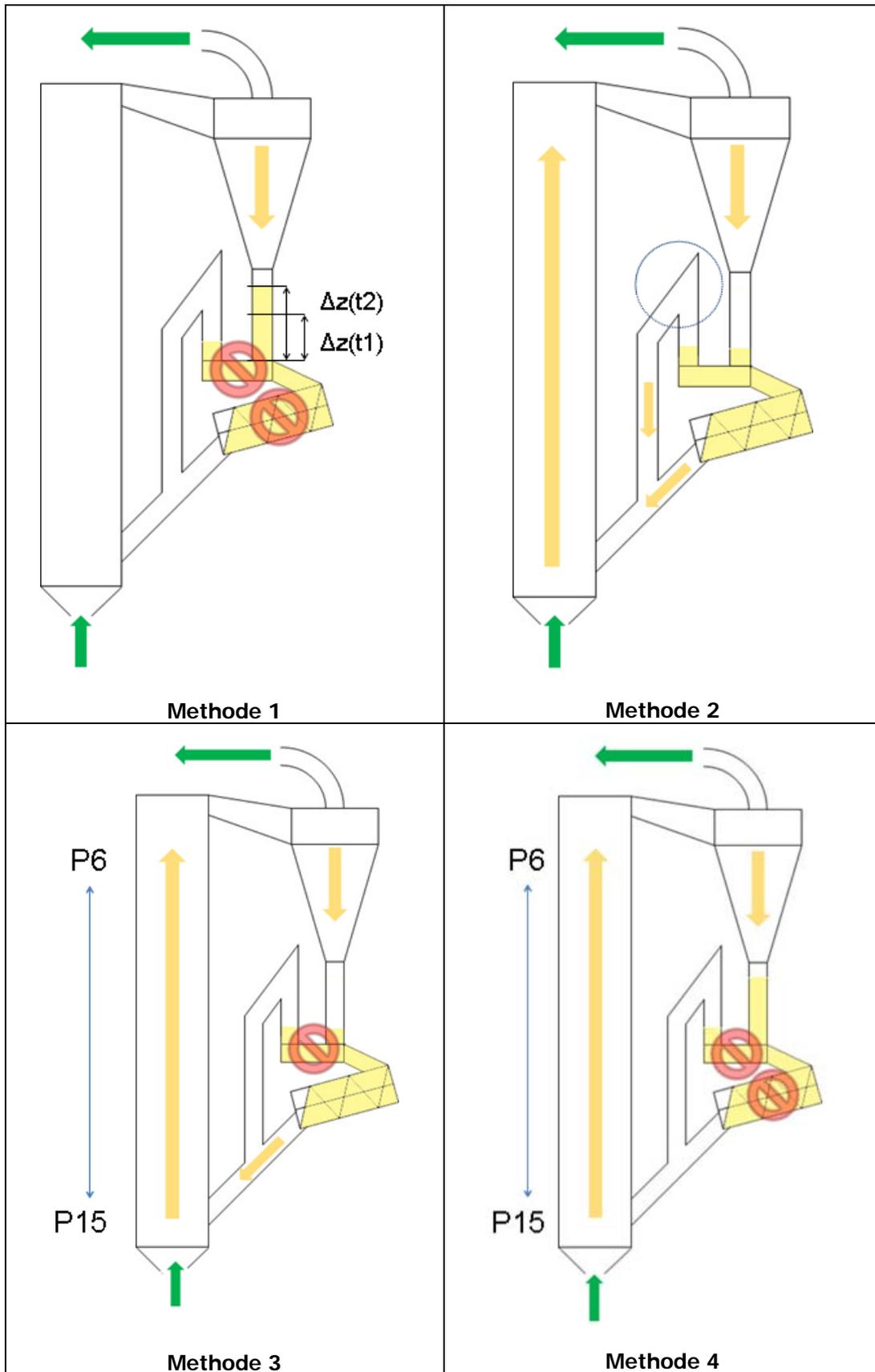


Abbildung 44 Grafische Darstellung der vier Methoden zur Umlaufmessung am Kaltmodell [Dietrich, 2012]

Methode 1:

Während des Betriebs einer bestimmten Fluidisierung wird die Siphonfluidisierung abrupt abgeschaltet. Dabei entsteht eine Akkumulation des Bettmaterials im Downcomer. Der Feststoffumlauf wird dabei über die Schüttdichte, den Querschnitt des Downcomers und die Änderung der Betthöhe im Downcomer über die Zeit, bestimmt (Gleichung (4.1)).

$\dot{m}_{Bett} = \frac{\Delta z}{\Delta t} * \rho_b * A_{downcomer}$	(4.1)
---	-------

Methode 2:

Zur Bestimmung des Feststoffumlaufes mittels Methode 2 wird sowohl der Siphon als auch die Kühltrommel in Betrieb genommen. Dabei wird die Frequenz der Kühltrommel immer weiter erhöht, bis der gesamte Feststoff nur noch über die Kühltrommel und nicht mehr über den Siphon transportiert wird. Wird kein Bettmaterial mehr über den Siphon transportiert, so gibt die Frequenz der Kühltrommel Auskunft über den Feststoffumlauf für die gegebene Fluidisierung über Gleichung (4.2).

$\dot{m}_{Bett} = \dot{m}_{Kühltrommel}$	(4.2)
--	-------

Methode 3:

Bei dieser Methode wird die Druckdifferenz über den gesamten Riser für den Betrieb mit Siphon ohne den Betrieb der Kühltrommel aufgezeichnet. Die Fluidisierung wird dabei konstant gehalten und der Siphon abgeschaltet. Ein Einschalten der Kühltrommel bewirkt, dass die Bettmaterialrückführung über die Kühltrommel und nicht über den Siphon geschieht. Dabei wird die Frequenz der Kühltrommel dahingehend angepasst, dass der gleiche Druckverlust im Riser wie im Falle einer Bettmaterialrückführung über den Siphon erreicht wird. Sobald der gewünschte Druckverlust erreicht wird, gibt die Fördermenge der Kühltrommel den Feststoffumlauf für eine gegebene Fluidisierung an.

Methode 4:

Für diese Methode ist der Verlauf des Druckprofils im Riser von entscheidender Bedeutung. Ein Standardbetriebsfall, bei dem die Kühltrommel abgedreht ist und das gesamte Bettmaterial über den Siphon rückgeführt wird, wird bestimmt. Dabei wird der Druckverlust über den gesamten Riser (P15-P6) wieder aufgezeichnet und danach der Siphon abrupt abgeschaltet. Die Änderung des Druckverlustes soll über Gleichung (4.3) Auskunft über den Feststoffumlauf geben.

$\dot{m}_{Bett} = f(\Delta p_{Riser})$	(4.3)
--	-------

Wichtig dabei ist, dass die zeitliche Aufzeichnung des Druckverlustes auch genau dem wirklichen Verlauf des Druckverlustes entspricht. Das Volumen der Stutzen, die zur Druckmessung führen hat sich dabei als entscheidender Faktor herausgestellt. Je größer dieses ist, desto mehr Zeitverzögerung entsteht, bis der Druck in der Druckmessung auch dem tatsächlichen Druck im Riser entspricht [Dietrich, 2012].

4.1.2.2 Vergleich der vier Methoden

In Abbildung 45 ist der spezifische Feststoffumlauf in Abhängigkeit der Lehrrohrgeschwindigkeit aufgetragen. Dabei wurden alle vier Methoden und auch der Durchschnitt der Methoden 1-3 abgebildet. Man erkennt deutlich die gute Übereinstimmung der Methoden 1-3. Methode 4 jedoch weicht deutlich vom Ergebnis der anderen Methoden ab. Dies ist durch die Zeitverzögerung zu erklären, der bei der Messung mit dieser Methode entsteht. Ein Entwicklungsbedarf, speziell in Bezug auf die Dynamik der Druckmessdosen für eine Anwendung von Methode 4 ist noch nötig.

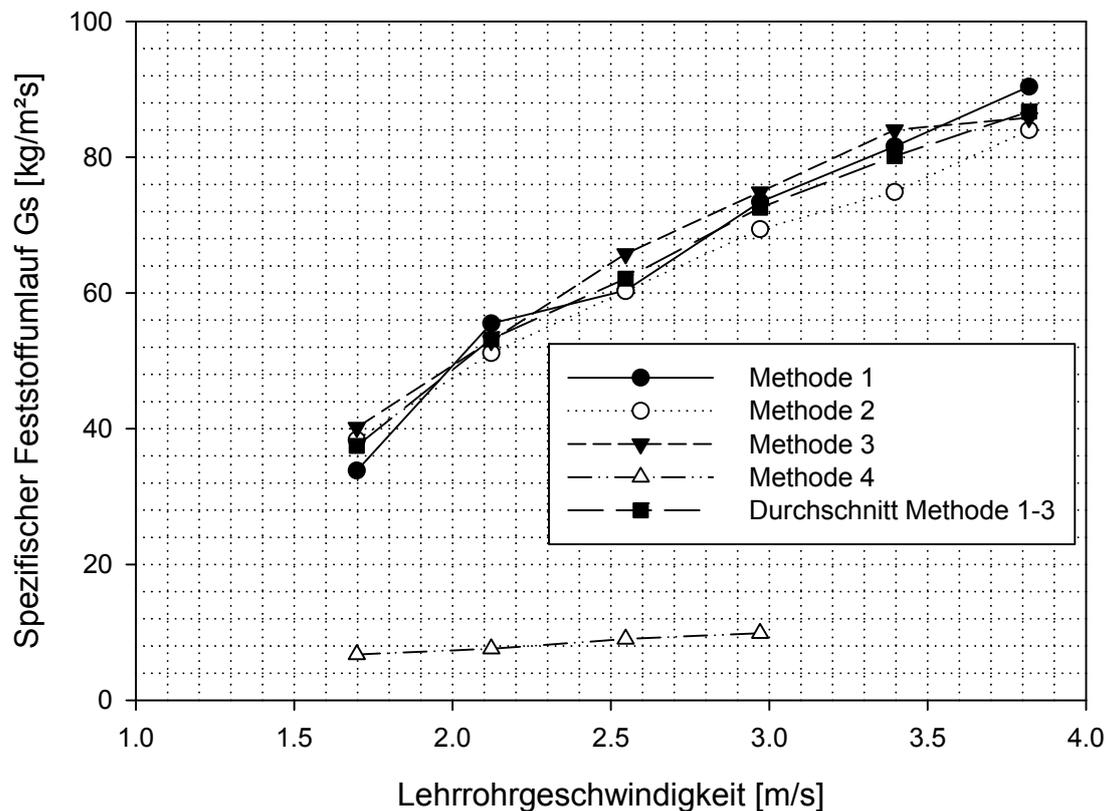


Abbildung 45 Vergleich der vier Methoden zur Umlaufbestimmung [Dietrich, 2012]

Als weitere Methode zur Bestimmung des Umlaufes wurden die gemessenen Werte der vier Methoden mit dem Druckunterschied im Siphon verglichen. Dabei zeigt Abbildung 46 den spezifischen Feststoffumlauf für alle gemessenen Methoden in Abhängigkeit der Druckdifferenz im Siphon. Dabei lässt sich für das untersuchte Betriebsfeld eine Linearität für den Durchschnitt der Methoden 1-3 erkennen. Dieser Bezug zwischen dem Feststoffumlauf und der Druckdifferenz im Siphon ist konform mit den Ergebnissen von [Pröll, 2011] und [Kaiser, 2003].

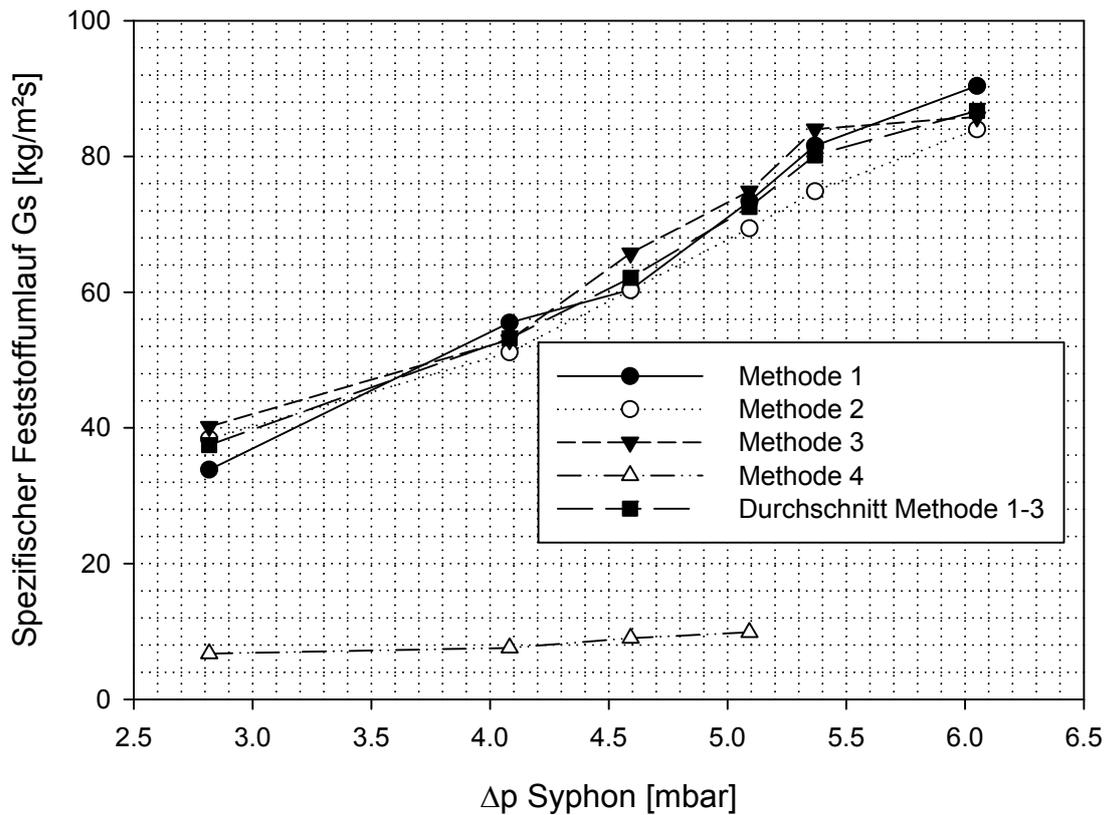


Abbildung 46 Spezifischer Feststoffumlauf in Abhängigkeit des Druckunterschiedes im Siphon [Dietrich, 2012]

Für die Umlaufmessung an der Heißenlage ist abschließend zu bemerken, dass sich sowohl Methode 3 als auch Methode 4 eignen würde. Bei Methode 4 ist jedoch darauf zu achten, eine möglichst zeitnahe Messung des Drucks zu verwenden, um keine verfälschten Messergebnisse zu erhalten. Für eine online-Messung des Umlaufes liefert die Druckdifferenz des Siphons eine klare Abhängigkeit mit dem spezifischen Feststoffumlauf. Jedoch müsste diese Methode erst mit einer der anderen Methoden (Kühlschnecke) vorab kalibriert werden und auf die Änderungen bezüglich Temperatur und Siphonfluidisierung eingegangen werden.

4.2 DIE 100 kW_{TH} OXYFUEL VERSUCHSANLAGE

4.2.1 MESSPROGRAMM

Die im Zuge dieser Arbeit erfassten Betriebspunkte sind inklusive der wichtigsten Betriebsdaten in Tabelle 14 aufgelistet. Grundsätzlich sind die Versuche in Kaltversuche, Luft-, sauerstoffangereicherte und Oxyfuel Verbrennung zu unterteilen. Für die Kaltversuche galt es die Anlage erstmals unter Vollast in Betrieb zu nehmen und Probleme bei der Fluidisierung zu beheben. Sämtliche Betriebspunkte für die Luftverbrennung von Klärschlamm galten einerseits einer korrekten Inbetriebnahme der Anlage, andererseits auch als Referenzmessungen zu den anderen Verbrennungsprozessen. Der sauerstoffangereicherte Betrieb kann sozusagen als Zwischenschritt zum Oxyfuel Betrieb angesehen werden, um auch sicherheitstechnisch einen korrekten Eintrag von reinem Sauerstoff zu erreichen. Sämtliche Ergebnisse von Abgaszusammensetzungen, Temperaturverlauf und Verbrennungsverhalten im sauerstoffangereicherten Betrieb, wurden von Wöss [2012] im Detail ausgearbeitet. Schließlich wurde im Messprogramm der Oxyfuel Betriebspunkte auf die Variation des Restsauerstoffgehaltes, der thermischen Leistung und des Sauerstoffgehaltes in der Anströmung wertgelegt.

Tabelle 14 Zusammenfassung der Betriebspunkte

Kurzbezeichnung Betriebspunkte	Art des Versuches	Leistung [kW]	Brennstoff	Sauerstoff- gehalt in Anströmung [Vol. %]	Variation
Lastpunkt 1	Oxyfuel	44	Klärschlamm A	30	RestO ₂
Lastpunkt 2	Oxyfuel	44	Klärschlamm A	29	RestO ₂
Lastpunkt 3	Oxyfuel	45	Klärschlamm A	36	RestO ₂
Lastpunkt 4	Oxyfuel	42	Klärschlamm A	37	RestO ₂
A1	Anfahr	35	Brenner	21	Leistung
VS1	Kaltversuch	-	-	21	-
LM1	Kaltversuch	-	-	21	-
BM0	Kaltversuch	-	-	21	-
BM15	Kaltversuch	-	-	21	-
BM20	Kaltversuch	-	-	21	-
CR	Kaltversuch	-	-	21	-
KÜ	Kaltversuch	-	-	21	-

V1	Luft	80	Klärschlamm A	21	Leistung
OP1	Luft	52	Klärschlamm A	21	Leistung
OP2	Anreicherung	50	Klärschlamm A	25	RestO ₂
OP3	Anreicherung	49	Klärschlamm A	27	RestO ₂
OP1_P	Luft	52	Klärschlamm A	21	RestO ₂
OP4	Luft	64	Klärschlamm A	21	RestO ₂
OP5	Anreicherung	62	Klärschlamm A	25	AnstO ₂
A3	Luft	35	Brenner	21	Leistung
OP4_P	Luft	64	Klärschlamm A	21	RestO ₂
OP6	Anreicherung	61	Klärschlamm A	27	AnstO ₂
V2	Luft	100	Klärschlamm B	21	Leistung
BP3	Luft	87	Klärschlamm B	21	RestO ₂
BP3*	Luft	87	Klärschlamm B	21	RestO ₂
Trans2	Oxyfuel	58	Klärschlamm B	24	AnstO ₂
BP4_1	Oxyfuel	58	Klärschlamm B	20	AnstO ₂
BP4_2	Oxyfuel	58	Klärschlamm B	22.6	RestO ₂
BP4_3	Oxyfuel	58	Klärschlamm B	24	AnstO ₂ /RestO ₂
TransBP5_1	Oxyfuel	58	Klärschlamm B	24	AnstO ₂ /RestO ₂
TransBP5_2	Oxyfuel	58	Klärschlamm B	28	AnstO ₂ /RestO ₂
BP5	Oxyfuel	58	Klärschlamm B	30	AnstO ₂ /RestO ₂

4.2.2 TYPISCHE PLOTS WÄHREND DES VERSUCHSBETRIEBES

4.2.2.1 Der Anfahrprozess

Der Anfahrprozess wurde im Rahmen dieser Arbeit maßgeblich verändert. Während der ursprüngliche Anfahrprozess ständig im Oxyfuel Betrieb durchgeführt wurde, so wird durch die neue Konstruktion der Fluidisierung, ein Anfahren im Luftbetrieb ermöglicht. Dies bietet vor allem aus sicherheitstechnischen Gründen große Vorteile, da der Einsatz der Rauchgasrezirkulation und somit der Anreicherung erst ab einem stationären Betrieb erfolgt. Als Startbrenner wird ein 35 kW Reinsauerstoffbrenner verwendet, der in einer eigenen Brennerkammer eingebaut ist. Um die Temperatur in der Brennkammer regulieren zu können, wird sie mit Luft gekühlt. Ab einer Temperatur von 400 °C wird trockener Klärschlamm in den Brennraum eingebracht und entzündet sich. Gleichzeitig wird der Kohlenmonoxidgehalt im Abgas überprüft, um einen vollständigen Ausbrand zu

sichern. In Abbildung 47 ist der Temperaturverlauf für einen typischen Anfahrprozess aufgetragen. Ein stationärer Zustand kann demnach in ungefähr zwei Stunden erreicht werden. Mit einer zeitlichen Verzögerung steigt auch die Temperatur in der Nachbrennkammer. Ab einer Temperatur von ungefähr 750 °C im Reaktor, wird der Startbrenner abgeschaltet. Da die Nachbrennkammer durch ihre Baugröße einen hohen Wärmeverlust aufweist, ist ein Temperaturanstieg erst nach einem längeren Betrieb zu erkennen.

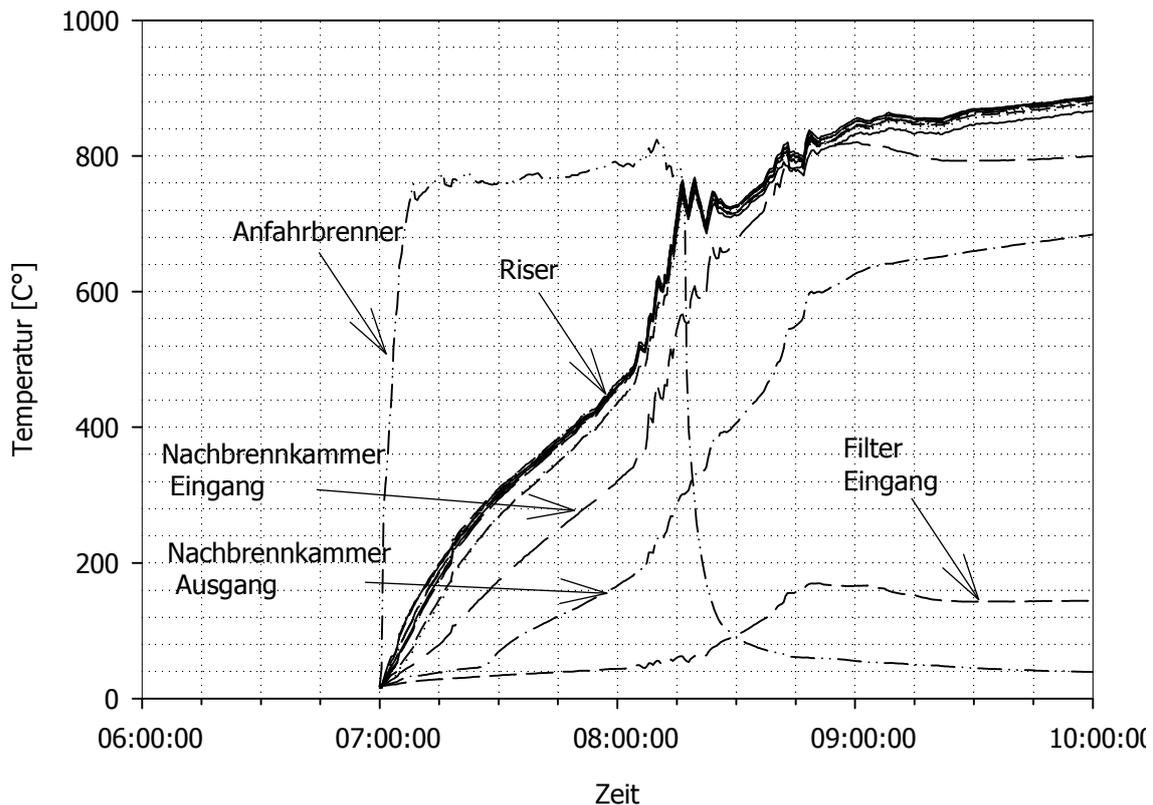


Abbildung 47 Temperaturverlauf während des Anfahrprozesses

4.2.2.2 Abgaszusammensetzungen im Übergang von Luft auf Oxyfuel Betrieb

Um das Umschalten von einem Luftbetrieb auf einen Oxyfuel Betrieb möglichst sicher zu gestalten, hat es sich bewährt, als Zwischenschritt einen sauerstoffangereicherten Betrieb durchzuführen. Ist der errechnete Reinsauerstoff in die Fluidisierung eingetragen, welcher für einen überstöchiometrischen Betrieb nötig ist, so kann der Verdichter auf die Ansaugung von Rauchgasrezirkulation statt Umgebungsluft umgeschaltet werden. Die Konzentration an CO₂ im trockenen Rauchgas liegt während des Betriebes mit Luft unter 10 Vol. %. Sobald die Ansaugung des Rauchgases statt der Umgebungsluft eingetreten ist, ist ein deutlicher Anstieg in der Konzentration an CO₂ im Rauchgas (etwa 90 Vol. %) zu erkennen. In Abbildung 48 ist der Verlauf der gemessenen Gaskonzentrationen (CO₂, O₂, CO, NO_x) während des Übergangs von Luft auf Oxyfuel Betrieb dargestellt. Eine optimale Verbrennung mit niedrigem Restsauerstoffgehalt wird erst bei Erreichen eines stationären Oxyfuel Betriebspunktes eingestellt. Weiters ist zu erkennen, dass der Verlauf der NO_x Messung stark vom Restsauerstoffgehalt abhängt.

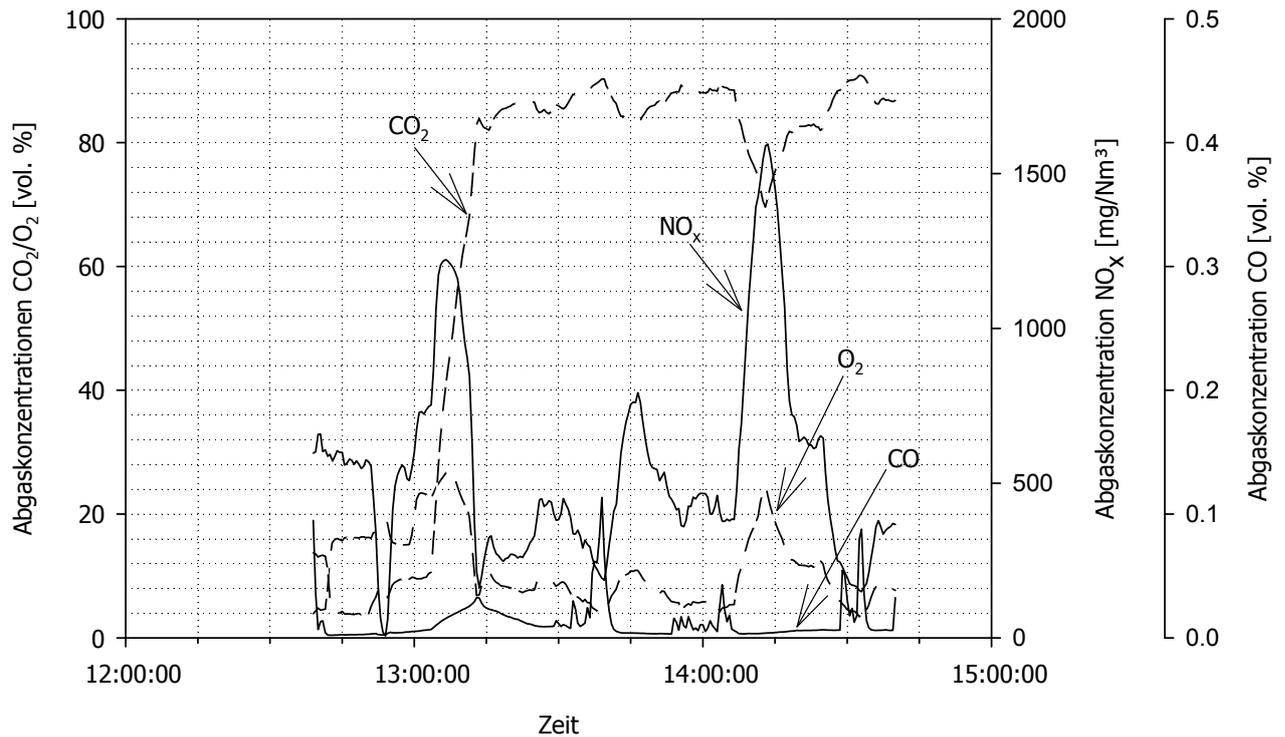


Abbildung 48 Ergebnisse der Abgasmessungen im Übergang zum Oxyfuel Betrieb

4.2.3 FLUIDDYNAMISCHE ANALYSE

4.2.3.1 Druckprofil im Betriebspunkt

In Abbildung 49 ist das Druckprofil für einen Standardbetriebsfall einer Luftverbrennung von Klärschlamm bei 850 °C dargestellt. Dabei wurden 25 kg Bettmaterial in den Reaktor eingebracht. Wie auch bei den Ergebnissen am Kaltmodell [Dietrich, 2012] ist ein homogener Druckverlauf über die ganze Höhe des Risers zu erkennen.

Weiters ist zu erkennen, dass offensichtlich der Füllstand im Downcomer über die höchste Messstelle hinaufreicht. Die Druckdifferenz für beide Messstellen an der Bettmaterialrückführung und des Kühlschneckenausgangs ist gleich der Druckdifferenz am Eintrag des rückgeführten Bettmaterials in den Reaktor. Leichte Unterschiede in der Druckdifferenz gibt es für kurze Aufzeichnungen, in denen das Bettmaterial vom Reaktor in die Bettmaterialrückführung wieder zurückgestoßen wird.

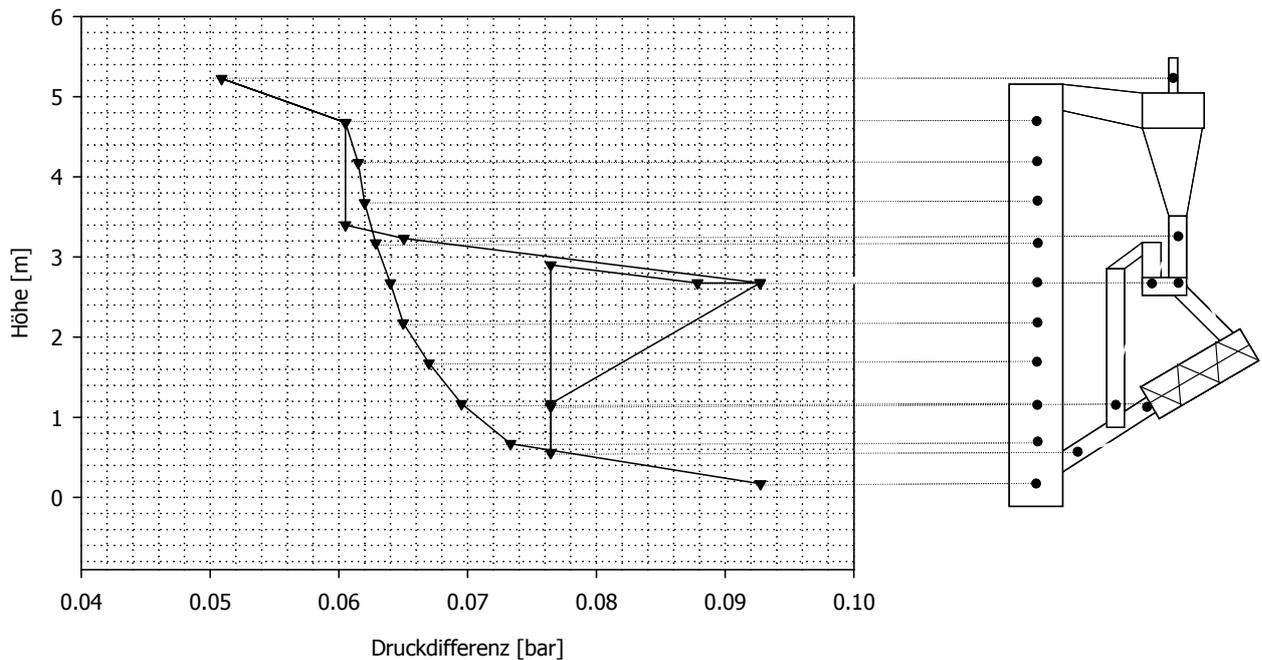


Abbildung 49 Druckprofil der 100 kW_{th} Versuchsanlage

4.2.3.2 Umlaufmessungen

Um die Umlaufmessungen anhand der Kaltmodellversuche zu validieren wurden ebenfalls Umlaufmessungen an der Heianlage durchgefhrt. Die Bestimmung des Feststoffumlaufes wurde mittels Methode 4 aus Kapitel 4.1.2.1 durchgefhrt. Die Vergleichbarkeit der Messergebnisse zwischen Kaltmodell und Heianlage ist nur bedingt mglich, da die Umlaufmessung an der Versuchsanlage im kalten Zustand durchgefhrt wurde. Jedoch ist im untersuchten Bereich eine Linearitt zwischen der Riser-Austrittsgeschwindigkeit und dem Feststoffumlauf zu erkennen. Fr ein hheres Bettmaterialinventar sind die gemessenen Feststoffumlufe ebenfalls hher. Diese Messergebnisse entsprechen den Schlussfolgerungen der Umlaufmessungen am Kaltmodell von [Guio, 2010].

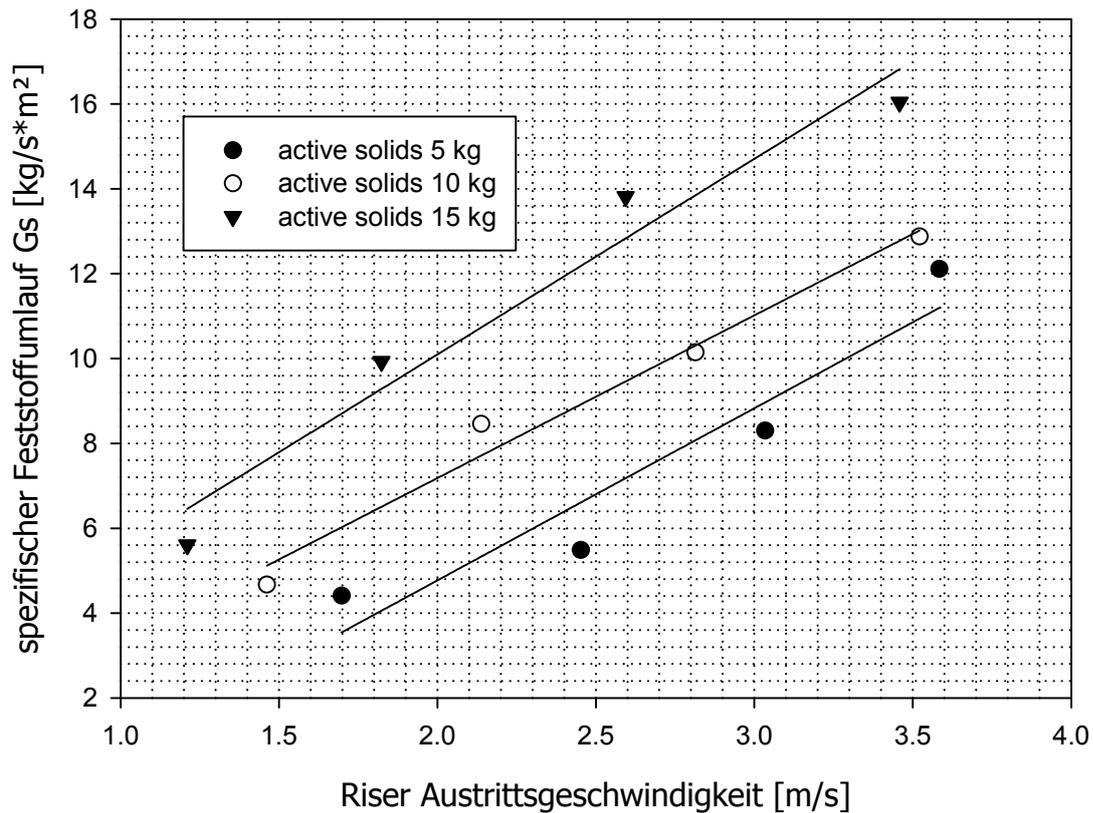


Abbildung 50 Umlaufmessung der 100 kW_{th} Versuchsanlage im Kaltbetrieb

4.2.4 TEMPERATURPROFIL

Um die Temperaturverteilung im Riser bewerten zu können, sind 20 Temperaturmessstellen entlang des Risers angebracht. Für die ausgewählten Fälle einer Luftverbrennung und einer Oxyfuel Verbrennung in Abbildung 51 ist eine gesamte Temperaturdifferenz von unter 25 °C zu erkennen. Die homogene Temperaturverteilung, die sowohl bei der Luftverbrennung als auch bei der Oxyfuel Verbrennung auftritt, lässt darauf schließen, dass keine Hot Spots gebildet wurden. Die niedrigste Temperatur ist jene im Riserboden, da an dieser Stelle das kalte Fluidisierungsgas eintritt. Im Vergleich zu einer Luftverbrennung ist das Temperaturprofil einer Oxyfuel Verbrennung sehr ähnlich. Allerdings zeigt sich im Oxyfuel-Betrieb eine stärker ausgeprägte Temperaturerhöhung in der Mitte des Risers.

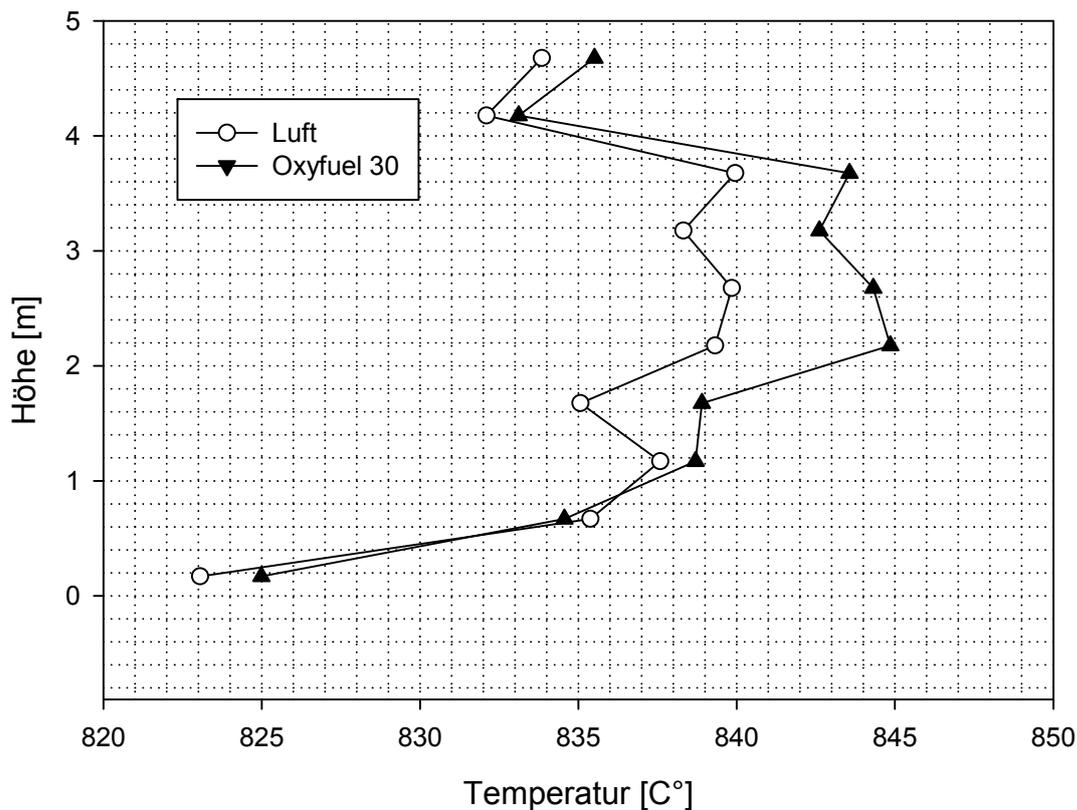


Abbildung 51 Temperaturprofil für eine Luftverbrennung und eine Oxyfuel Verbrennung

4.2.5 QUALITÄT DER VERBRENNUNG

4.2.5.1 CO-Gehalt im Abgas

Um den Einfluss des Restsauerstoffgehaltes auf die Kohlenmonoxid Emissionen bewerten zu können wurde ein Standardbetriebsfall festgelegt und dabei der Restsauerstoffgehalt variiert. Für den Fall der Luftverbrennung wurde die Primärluft bei gleicher thermischer Leistung erhöht. Im Fall der Oxyfuel Verbrennung wurde der Sauerstoffeintrag erhöht und die Fluidisierungsbedingungen annähernd gleich gelassen. Dadurch stellt sich zwar auch ein anderer Sauerstoffgehalt in der Anströmung ein, jedoch ist dieser Unterschied im Vergleich zum gesamten Sauerstoffeintrag vernachlässigbar.

Abbildung 52 zeigt den Vergleich der Verbrennung von Klärschlammgranulat und Klärschlamm Pellets. Dabei wurde ebenfalls der Kohlenmonoxidgehalt im Abgas in Abhängigkeit des Sauerstoffrestgehaltes aufgetragen.

Man erkennt, dass bei Klärschlamm A deutlich höhere Kohlenmonoxidwerte auftreten als bei Klärschlamm B. (Pellets) Ein möglicher Grund dafür könnten ausgetragene Klärschlammgranulatpartikel sein, die nach der Nachbrennkammer in einem Ablassstutzen liegen bleiben. Das führt außerdem dazu, dass die höchsten CO₂-Reinheit im Abgas mit Klärschlamm pellets erreicht wurde.

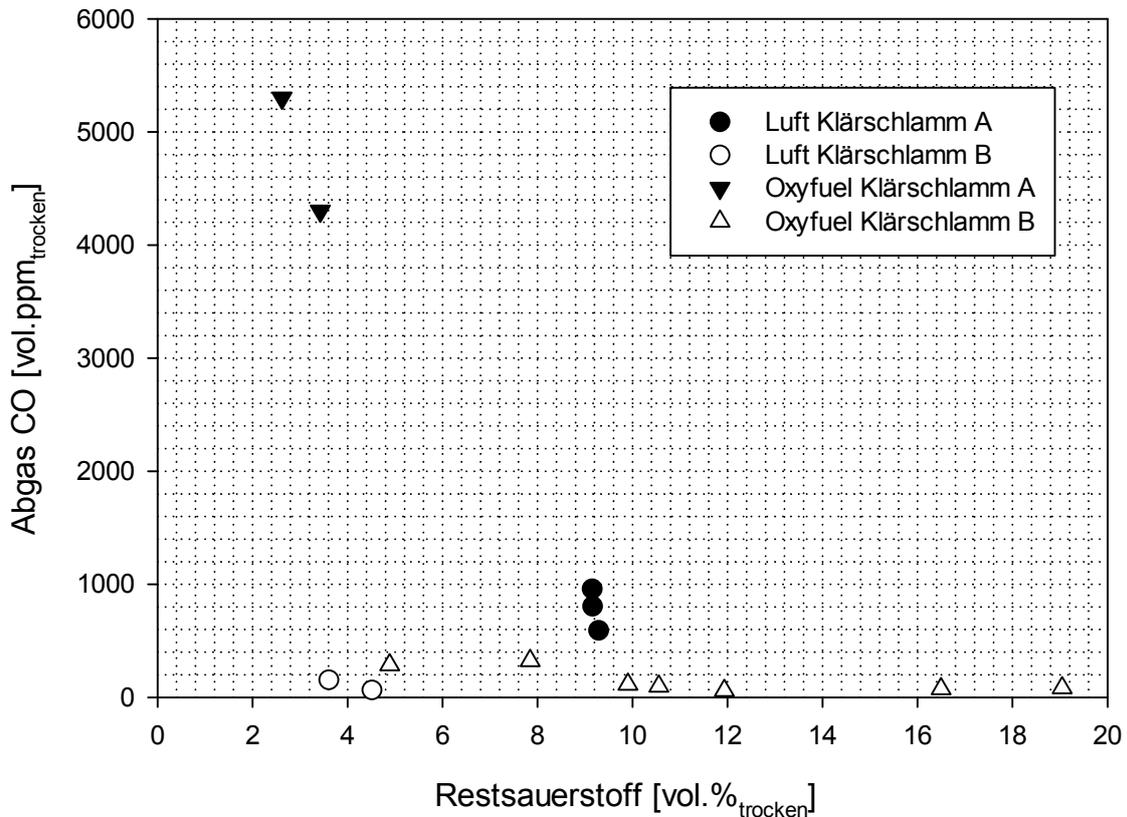


Abbildung 52 Kohlenmonoxid in Abhängigkeit des Restsauerstoffgehaltes im Abgas für verschiedene Klärschlämme

Abbildung 53 zeigt den Anteil an Kohlenmonoxid im Abgas in Abhängigkeit des Restsauerstoffgehaltes. Es handelt sich dabei um Klärschlamm pellets (Klärschlamm B). Dieser wurde sowohl für den Fall einer Luftverbrennung, als auch für den Oxyfuel Fall aufgetragen. Man erkennt, dass ein höherer Sauerstoffüberschuss zu einem geringeren Kohlenmonoxid-Aufkommen führt. Jedoch liegt bei einer Luftverbrennung bei einem Sauerstoffüberschuss von 5 % der Kohlenmonoxid Wert unter 60 ppm und beim Oxyfuel Fall schon bei annähernd 300 ppm. Obwohl die Rezirkulation des Restsauerstoffes das stochiometrische Verbrenungsverhältnis in der Brennkammer erhöht, so ist der hohe Restsauerstoffgehalt im Oxyfuel Fall durch den geringeren Abgasvolumenstrom und damit höheren Konzentrationen im Vergleich zu einer Luftverbrennung zu erklären.



Abbildung 53 Kohlenmonoxid in Abhängigkeit des Restsauerstoffgehaltes im trockenen Rauchgas für Klärschlamm B

In Abbildung 54 wurde der benötigte Restsauerstoffgehalt und die CO Emissionen für das feuchte Rauchgas aufgetragen. Es ist zu erkennen, dass die Werte für einen Oxyfuel Betrieb und für einen Luftbetrieb im feuchten Rauchgas ähnlich sind. Es kann daher davon ausgegangen werden, dass der Sauerstoffpartialdruck im feuchten Rauchgas, den CO Gehalt im Rauchgas mitbestimmt. Dies ist für eine Oxyfuel Anwendung entscheidend da ein hoher Anteil an Feuchtigkeit im Rauchgas, zu einem hohen Sauerstoffrestgehalt im trockenen Rauchgas führt. Dementsprechend wirkt sich ein hoher Wassergehalt im Brennstoff, negativ auf die zu erreichende CO₂ Reinheit im Rauchgas aus.

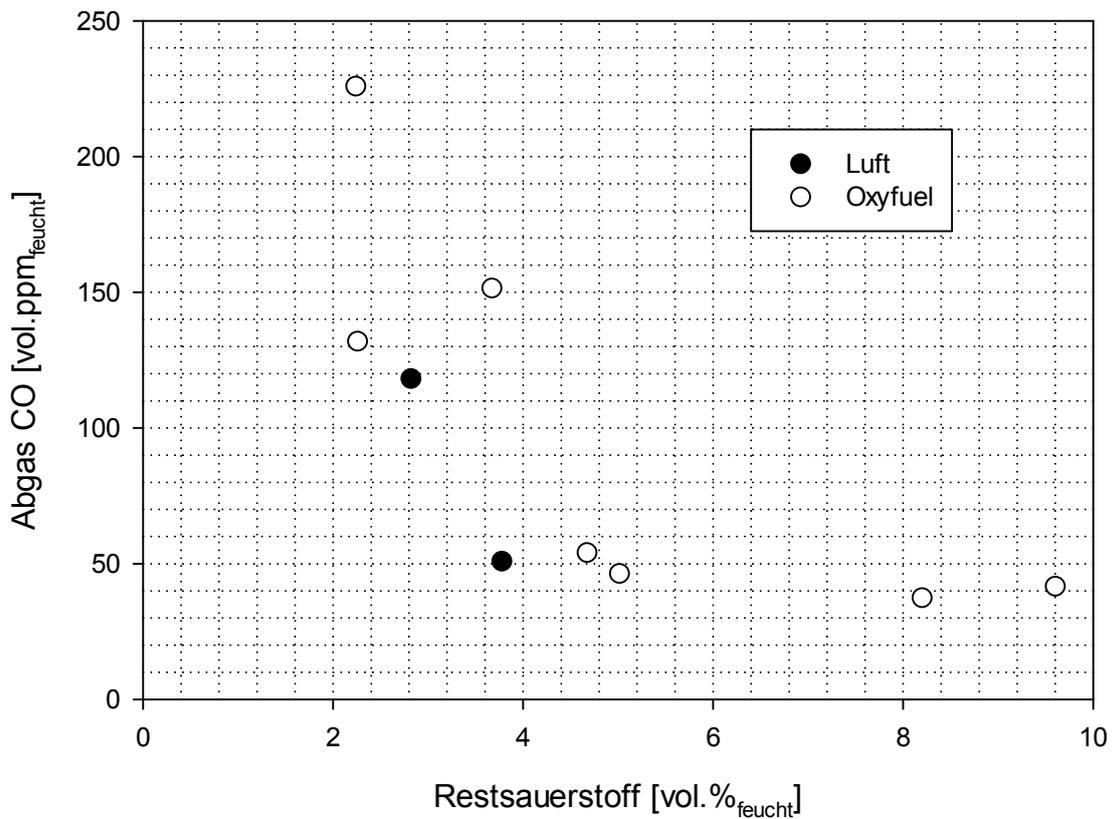


Abbildung 54 Kohlenmonoxid Emission in Abhängigkeit des Restsauerstoffes für das feuchte Rauchgas für Klärschlamm B

4.2.5.2 NO_x Emissionen

Um die NO_x Emissionen bei einer Oxyfuel Verbrennung beschreiben zu können wurde der Restsauerstoffgehalt variiert und die erhaltenen NO_x Emissionen im Abgas aufgezeichnet. Dabei wurde wieder der Eintrag an Sauerstoff erhöht und die Fluidisierungsbedingungen gleich gehalten. Dabei nimmt auch hier der Sauerstoffgehalt in der Anströmung zu. Jedoch ist dieser Faktor im Verhältnis zum stöchiometrischen Verbrennungsverhältnis zu vernachlässigen.

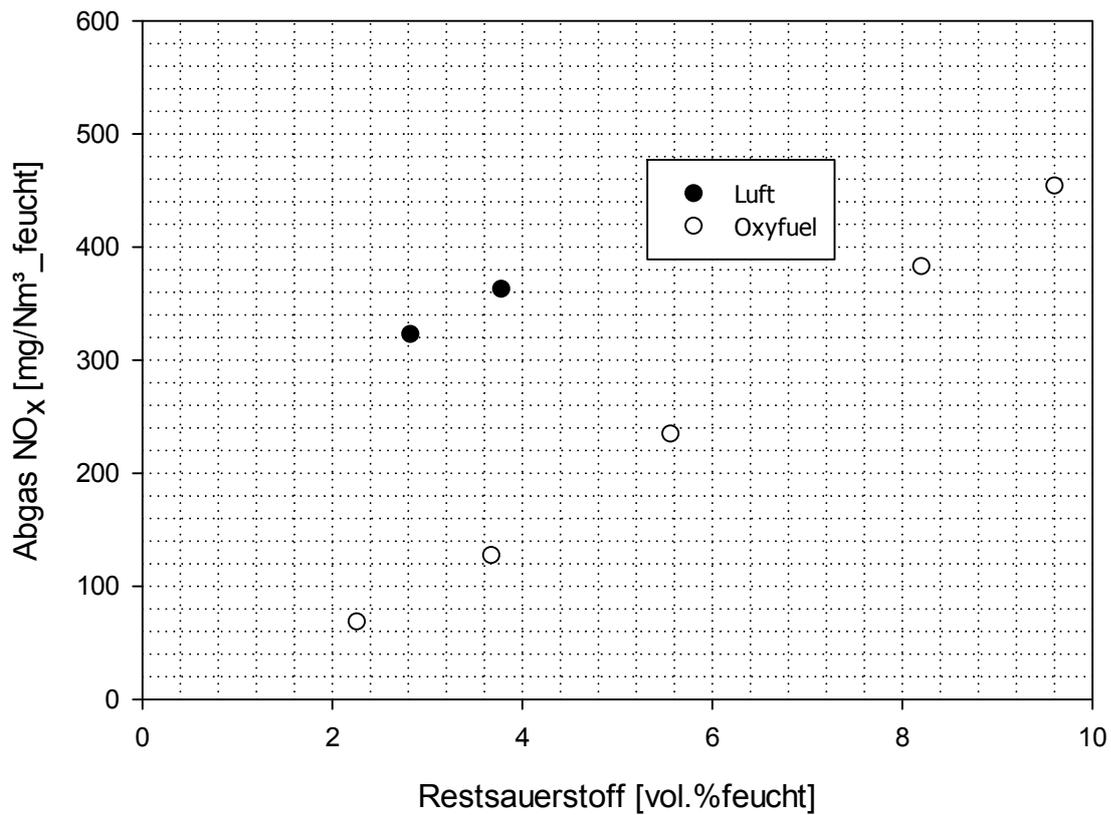


Abbildung 55 NO_x Emissionen in Abhängigkeit des Restsauerstoffgehaltes im Abgas

Abbildung 55 zeigt den Verlauf der NO_x Emissionen in Abhängigkeit des Restsauerstoffgehaltes im Abgas für Klärschlamm B (Pellets). Dabei ist zu erkennen, dass eine Erhöhung des Restsauerstoffgehaltes auch eine Erhöhung der NO_x Emissionen mit sich bringt. Für NO_x Emissionen unter 200 mg/Nm³ darf der Restsauerstoff nicht 6 % übersteigen. Auch wenn die Abgaszusammensetzung hinsichtlich einer Sequestrierung betrachtet wird, so sind zwar NO_x Emissionen weniger ein Problem, jedoch beeinflusst ein hoher Restsauerstoffgehalt auch die CO₂ Reinheit des Abgases.

4.2.5.3 CO₂ Reinheit im Abgas

Da ein entscheidender Faktor des Oxyfuel Prozesses die Reinheit an CO₂ im Abgas ist, ist es wichtig, den Einfluss des Restsauerstoffgehaltes auf die CO₂ Reinheit zu bestimmen. In Abbildung 56 wurde die Auswirkung des Restsauerstoffes auf die CO₂ Reinheit im Abgas für den Fall einer Luftverbrennung und für die Oxyfuel Verbrennung von Klärschlamm A und B aufgetragen.

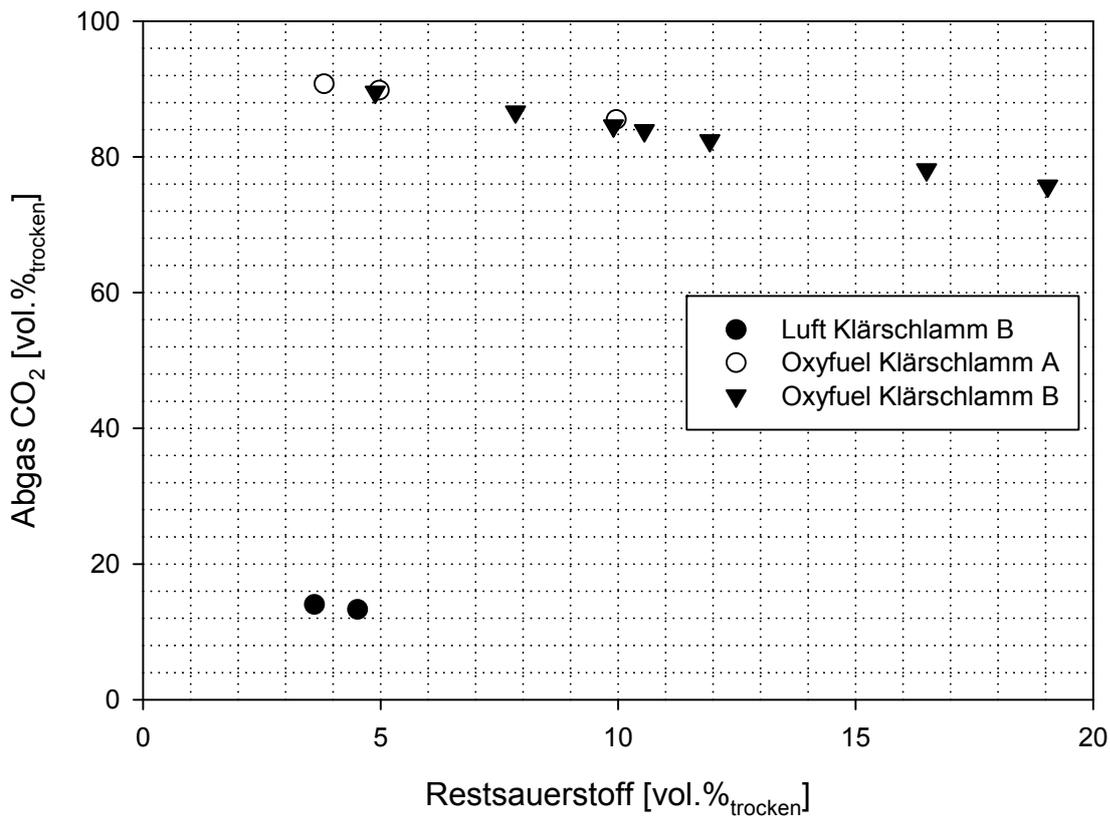


Abbildung 56 Auswirkung des Restsauerstoffes auf die CO₂ Reinheit im Abgas

Wie zu erwarten ist die CO₂ Reinheit im Abgas für den Fall einer Oxyfuel Verbrennung deutlich höher als im Luftfall. Obwohl jedoch deutlich gezeigt wurde, dass sich das Emissionsverhalten von Klärschlamm A und B deutlich unterscheidet (Abbildung 52), so ist im Trend zur CO₂ Reinheit kein großer Unterschied zu bemerken. Die Kohlenmonoxid Belastung, die bei geringem Sauerstoffüberschuss entsteht, ist zwar hinsichtlich von derzeit vorgeschriebenen Emissionsgrenzwerten entscheidend, für eine Sequestrierung könnte jedoch eine höhere CO₂ Reinheit wichtiger sein.

4.2.6 ABGASZUSAMMENSETZUNG

Für den Vergleich der Abgaszusammensetzung einer Luftverbrennung mit jener einer Oxyfuel Verbrennung wurde ein Simulationsmodell in IPSE Pro erstellt, welches durch Messwerte der durchgeführten Versuche validiert wurde. Dabei wurden einerseits die gemessenen Werte wie CO_2 , O_2 , CO , NO_x für jeden Lastpunkt in das Simulationsmodell eingetragen. Nicht gemessene Werte wie H_2O , Ar , N_2 , SO_2 wurden andererseits mithilfe eines Massen- und Energiebilanzmodells berechnet, um eine vollständige Abgaszusammensetzung zu erhalten.

4.2.6.1 Abgaszusammensetzung gesamt

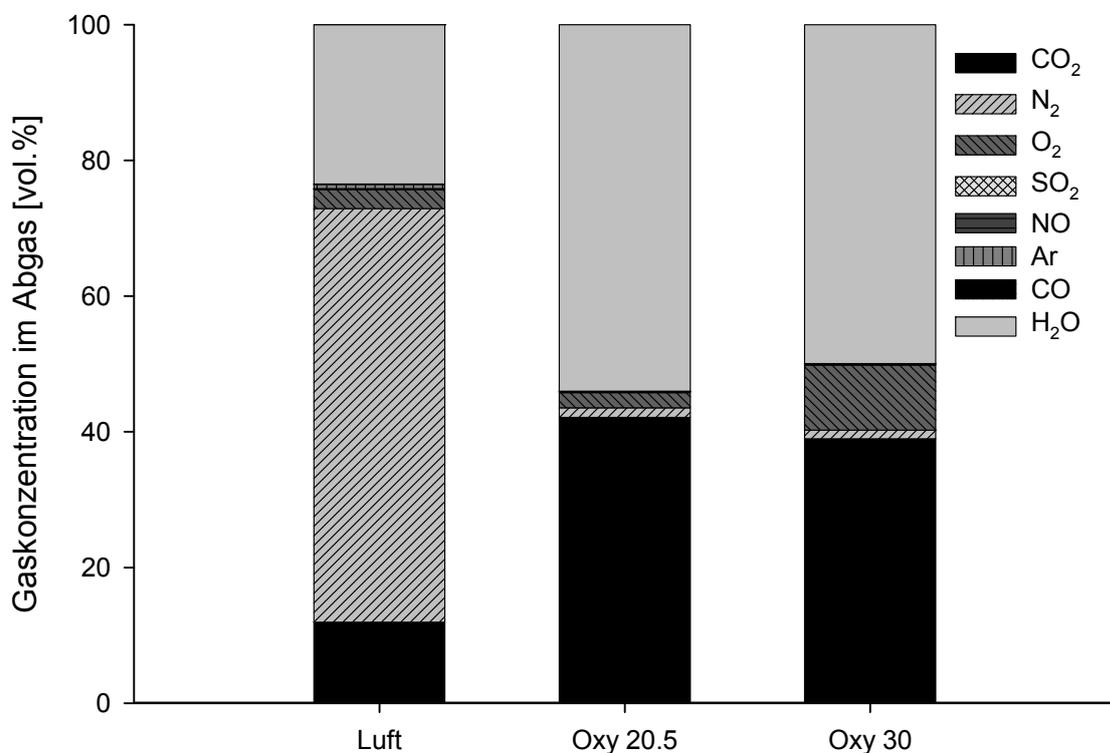


Abbildung 57 Abgaszusammensetzung von einer Luft- und Oxyfuel Verbrennung

Um die Abgaszusammensetzung, die für den Fall einer Oxyfuel Verbrennung von Klärschlamm entsteht, zu veranschaulichen, wurde sowohl eine Oxyfuel Verbrennung mit einem Sauerstoffgehalt von 20.5 % als auch mit 30 % in der Anströmung mit einer Verbrennung mit Luft verglichen. In Abbildung 57 erkennt man, dass bei einer Luftverbrennung der größte Anteil im Abgas der Luftstickstoff ist, hingegen bei einer Oxyfuel Verbrennung sind es Wasserdampf und CO_2 . Die Menge an Wasserdampf im Abgas ist in erster Linie vom Wassergehalt des Brennstoffes abhängig. In diesem Fall beträgt der Wassergehalt im Brennstoff 40 Gew. %.

Der prozentuelle Gehalt des Restsauerstoffes ist bei einer Luftverbrennung ähnlich hoch, wie bei einer Oxyfuel Verbrennung. Allerdings ist hier wiederum zu berücksichtigen, ob man sich an Kohlenmonoxid

Emissionsgrenzwerten oder an anzustrebende Konzentrationen für eine Sequestrierung orientiert. Dementsprechend könnten für eine Oxyfuel Verbrennung viel geringere Werte für den Restsauerstoffgehalt erreicht werden. Die Verbrennung mit 30 Vol. % Sauerstoffgehalt in der Anströmung wurde mit höherem Restsauerstoffgehalt als jene mit 20.5 Vol. % durchgeführt.

Beachtlich ist hingegen die Konzentration von Argon, welche bei einer Verbrennung mit Luft 0.6 Vol. % beträgt, im Oxyfuel Fall jedoch lediglich 0.02 %. Der Grund dafür ist der geringe Anteil an Argon im reinen Sauerstoff bei der Oxyfuel Verbrennung. Das Gemisch aus reinem Sauerstoff, welches mit rezirkuliertem Rauchgas in die Wirbelschicht eingetragen wird, hat eine Reinheit von 99.95 Vol. %. Eventuelle energetische Einsparungen durch eine höhere Verunreinigung des reinen Sauerstoffs werden in Kapitel 4.2.6.4 besprochen.

4.2.6.2 Abgaszusammensetzung trocken

Um die CO₂ Reinheit des Abgasstromes zu erhöhen, muss der Wasserdampf nach einer Rauchgaswäsche kondensiert werden. Dabei erhält man ein trockenes Rauchgas welches im Oxyfuel Fall eine hohe Konzentration an CO₂ besitzt.

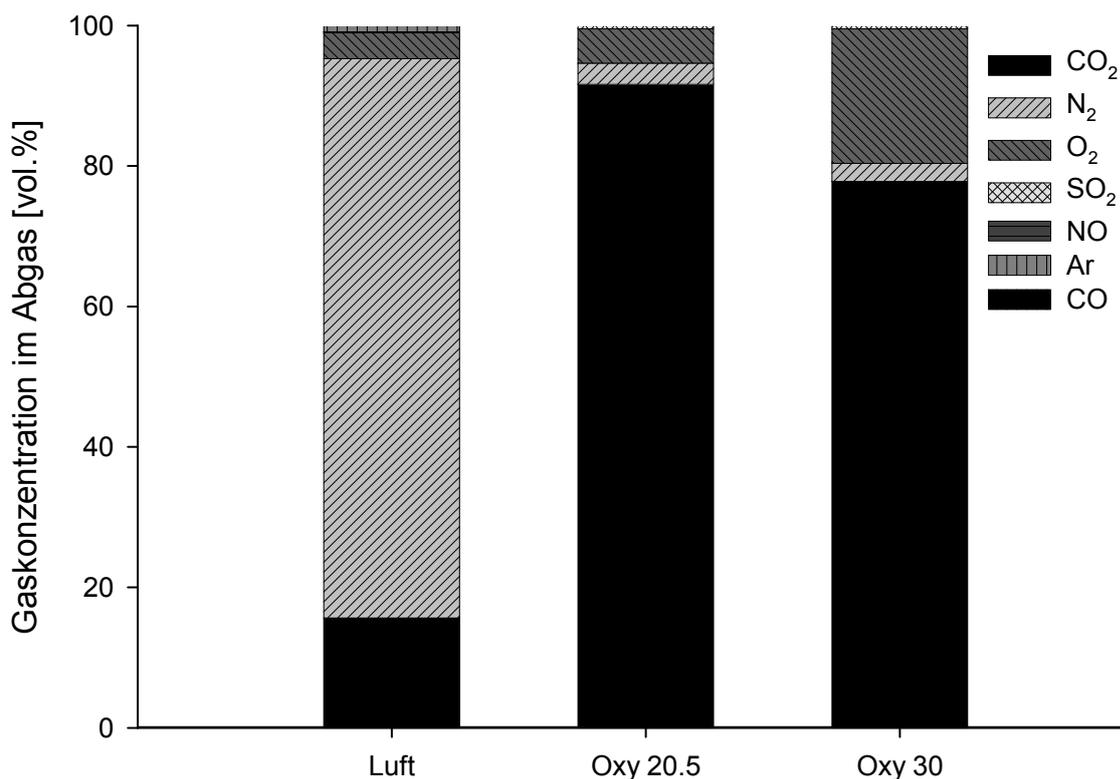


Abbildung 58 Trockene Abgaszusammensetzung einer Luft und einer Oxyfuel Verbrennung von Klärschlamm B

In Abbildung 58 erkennt man, dass die Verunreinigungen des CO₂ aus dem Abgas einer Oxyfuel Verbrennung zu einem Großteil aus Restsauerstoff bestehen. Aus diesem Grund sollte für eine

Sequestrierung der Restsauerstoffgehalt sehr niedrig gehalten werden, auch wenn dabei hohe CO Gehalte zu erwarten sind.

Ein weiterer großer Anteil der Verunreinigung des CO₂ Stromes ist der Stickstoff. Da im Oxyfuel Fall kein Luftstickstoff anfällt und in der Versuchsanlage Falschlufteintrag ausgeschlossen werden kann, handelt es sich hier um Stickstoff aus dem verwendeten Brennstoff. Für den Fall der Verbrennung von Klärschlamm mit 4 Gew. % Stickstoff, ergibt dies im Fall der Oxy 20.5 Versuche einen Wert von 3 Vol. %.

Da die Versuche an der 100 kW_{th} Anlage über atmosphärischem Druck durchgeführt wurden, ist nicht von einem Eintrag von Falschluf auszugehen. Für großtechnische Anwendungen müssten zusätzliche CO₂ Verunreinigungen durch Falschlufteintrag mit in Betracht gezogen werden.

4.2.6.3 Abgaszusammensetzung bezogen auf den Normvolumenstrom

Da sich bei einer Oxyfuel Verbrennung auch Unterschiede hinsichtlich der Rauchgasmenge ergeben, wurden diese, gemeinsam mit der jeweiligen Zusammensetzung in Abbildung 59 dargestellt. Dabei ist zu erkennen, dass der Abgasstrom (inklusive Wasserdampf) einer Oxyfuel Verbrennung weniger als die Hälfte des Abgasstromes einer Luftverbrennung ausmacht. Bei einer nassen Rezirkulation des unbehandelten Rauchgases ist es daher möglich, den Kanal für die Staubabscheidung und die Rauchgaswäsche entsprechend kleiner zu gestalten.

Da die Versuche Oxy 20.5, Oxy 30 und Luft mit dem gleichen Brennstoffeintrag berechnet wurden, ist auf die unterschiedliche Menge an CO₂ des trockenen Rauchgases hinzuweisen. Dies liegt beim Oxyfuel Fall am zusätzlichen Eintrag an CO₂ durch Fluidisierung des Siphons und erhöht somit den gesamten Austrag an CO₂ bei gleichem Brennstoffeintrag. Würde die Siphonfluidisierung mit rezirkuliertem Rauchgas durchgeführt werden, so müsste die Menge des ausgetragenen CO₂ in allen Fällen gleich sein.

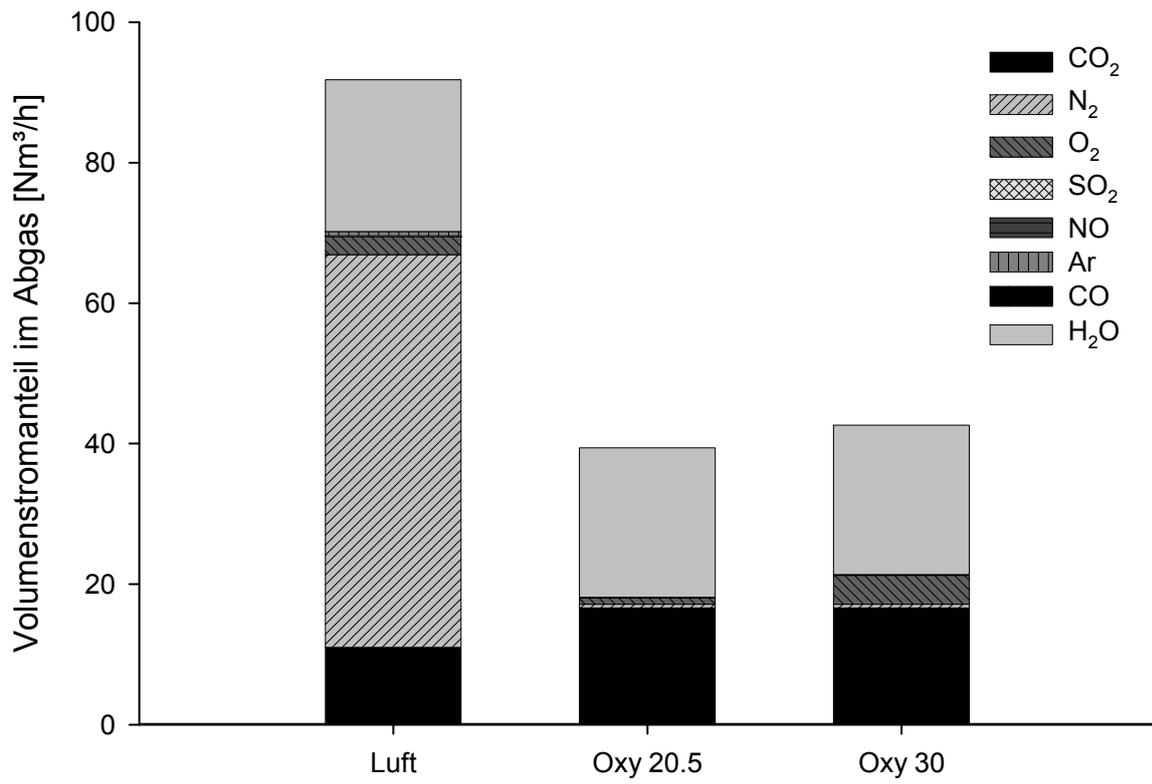


Abbildung 59 Abgaszusammensetzung einer Luft und einer Oxyfuel Verbrennung bezogen auf den feuchten Volumenstrom für Klärschlamm B

Nach Kondensation des Rauchgas reduziert sich die Rauchgasmenge im Oxyfuel Fall auf weniger als ein Drittel im Vergleich zu einer Luftverbrennung, wie in Abbildung 60 dargestellt.

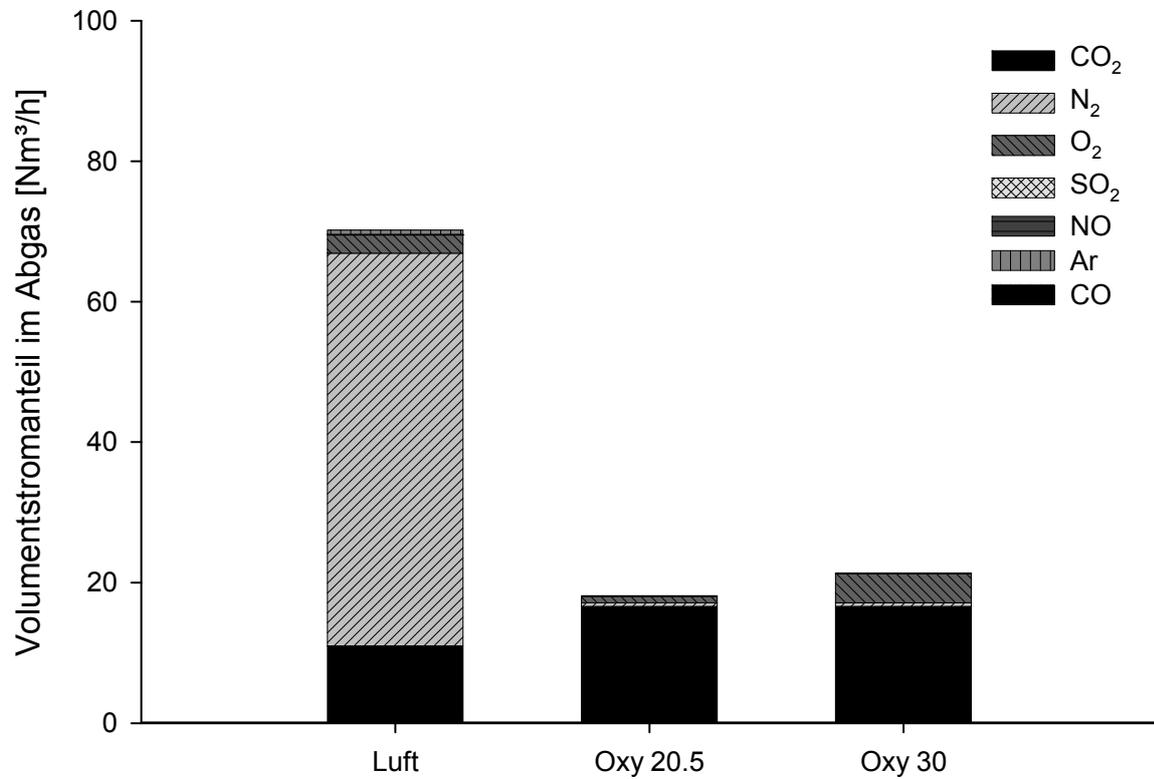


Abbildung 60 Trockene Abgaszusammensetzung einer Luft und einer Oxyfuel Verbrennung bezogen auf den trockenen Volumenstrom für Klärschlamm B

4.2.6.4 Sauerstoffreinheit

Als wichtigste Einflussgröße im Sinne einer effizienten Oxyfuel Verbrennung ist der Energieaufwand zur Bereitstellung des benötigten Sauerstoffs zu nennen. Der spezifische Energieaufwand für die Herstellung von reinem Sauerstoff hängt von der gewünschten Sauerstoffreinheit ab. Anhand der Relation zwischen Energieaufwand und Sauerstoffreinheit von [Spliethoff, 2011] und den eigenen Messergebnissen, wurde die CO₂ Reinheit im Abgas in Abhängigkeit des Restsauerstoffgehaltes für verschiedene Sauerstoffreinheiten berechnet. Die Ergebnisse sind in Abbildung 61 veranschaulicht. Es ist zu erkennen, dass für eine Absenkung der Sauerstoffreinheit von 99.95 Vol. % auf 95 Vol. % mit einer CO₂ Verunreinigung im Abgas von 4 Vol. %_{trocken} zu rechnen ist. Dies würde jedoch einer Optimierung des benötigten Restsauerstoffgehaltes von 2 Vol. %_{trocken} entsprechen. Aus diesem Grund besteht das Optimierungspotenzial, bei der Verbrennung von Klärschlamm im Oxyfuel Prozess, hinsichtlich einer möglichst hohen CO₂ Konzentration im Abgas eher bei der Minimierung des Sauerstoffrestgehaltes als hochreinen Sauerstoff mit dem rezirkulierendem Rauchgas zu vermischen. Energieeinsparungspotenzial entsteht durch die Möglichkeit, die Reinheit des eingebrachten Sauerstoffes zu senken.

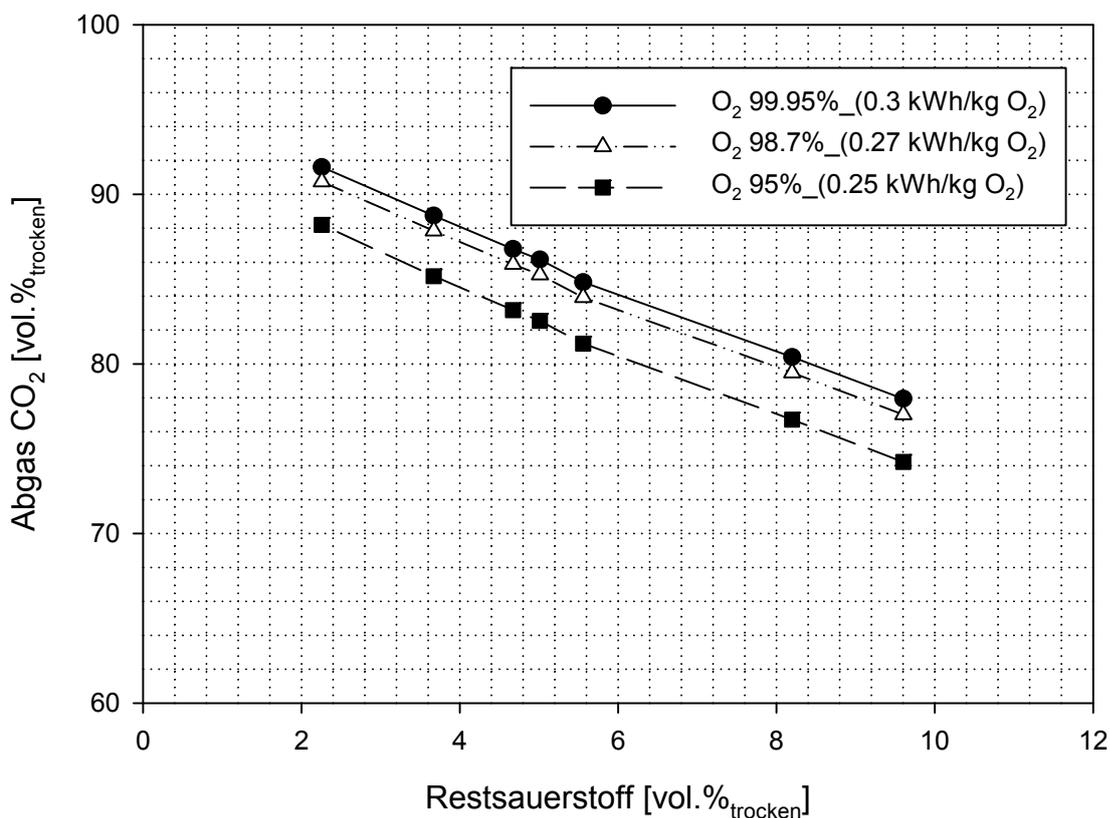


Abbildung 61 CO₂ Konzentration in Abhängigkeit des Restsauerstoffgehaltes im Abgas für verschiedene Sauerstoffreinheiten

4.2.7 PARTIKELVERTEILUNG

Es wurden Partikelproben an relevanten Stellen entnommen und analysiert. Abbildung 62 zeigt die Ergebnisse der Korngrößenbestimmung der Partikelproben, die nach dem Versuchsbetrieb entnommen wurden. Die mittlere Korngröße der Proben ist deutlich kleiner als die des unbenützten Bettmaterials. Der Hauptgrund dafür ist der Abrieb der Partikel, der sich im Laufe der Betriebszeit der Anlage einstellt.

Es wurde festgestellt, dass ein Großteil der Asche sich nicht im Bettmaterial ablagert, sondern durch den Zyklon ausgetragen wird. Die Bettmaterialmenge während eines ganzen Versuchstages blieb demnach annähernd konstant und der hohe Ascheanteil im Klärschlamm wurde in den Aschefilter ausgetragen. Auch wurde während des gesamten Versuchsbetriebes keine Bettmaterialagglomeration festgestellt.

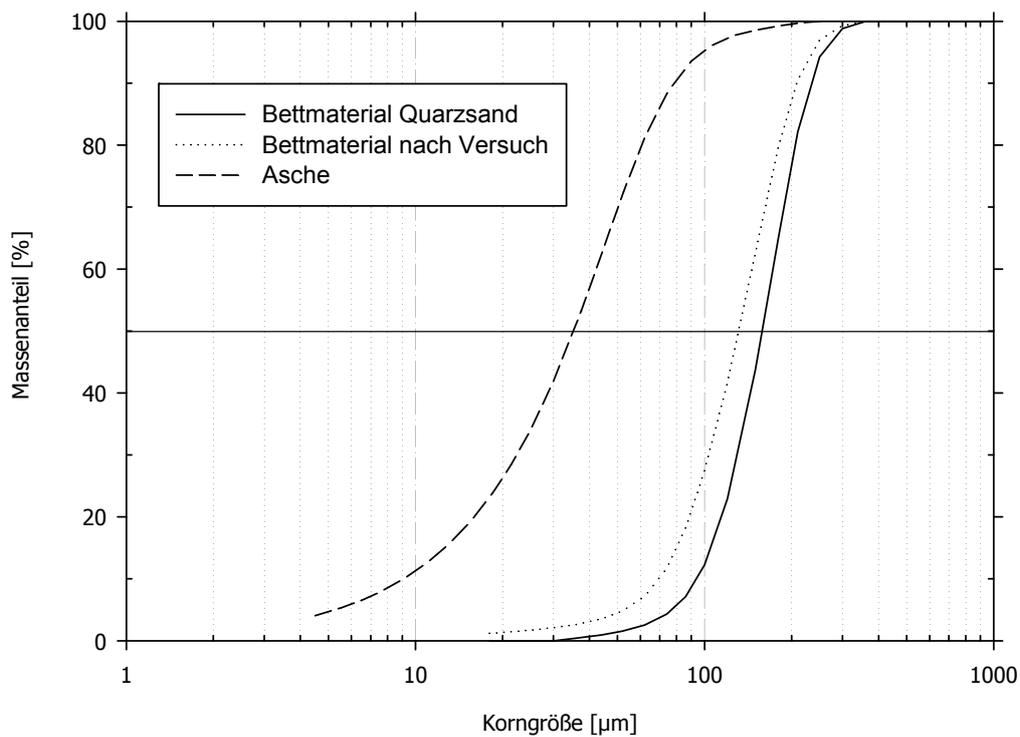


Abbildung 62 Ergebnisse der Korngrößenbestimmung unterschiedlicher Fraktionen für den OxyFuel Betrieb

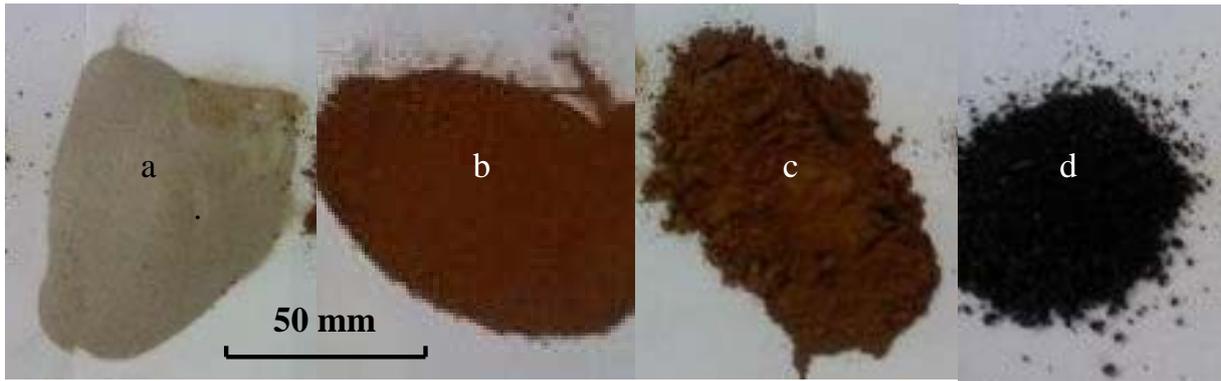


Abbildung 63 Partikelproben: a. Bettmaterial (unbenutzt), b. Bettmaterial (benutzt), c. Filterkuchen, d. Brennstoff (Klärschlammgranulat)

Abbildung 63 zeigt Aufnahmen verschiedener Feststoffproben, die nach einem Versuchstag genommen wurden. Dabei ist Feststoffprobe a das Bettmaterial (Quarzsand) vor einem Versuch und Feststoffprobe b das Bettmaterial nach einem Versuch. Die rötliche Färbung der Feststoffprobe ist auf die Anreicherung mit Klärschlammasche und den darin enthaltenen Eisengehalt zurückzuführen. Das feine Pulver aus Feststoffprobe c ist aus dem Partikelbestand der in der Filterbox abgeschieden wurde entnommen. Dies entspricht in etwa dem Feststoffanteil, der vom Zyklon nicht abgeschieden wurde. Feststoffprobe d zeigt den Brennstoff (Klärschlammgranulat), welcher in dem Brennstoffbunker gelagert wurde.

Im Zuge einer Versuchskampagne wurde das Bettmaterial nach und nach durch Klärschlammasche angereichert. Die Zunahme der Klärschlammasche im Reaktor und der Bettmaterialverlust durch Partikel, die nicht durch den Zyklon abgeschieden wurden, waren in etwa gleich. Somit musste während einer Versuchskampagne weder Bettmaterial zugeführt werden, noch wurde eine kontinuierliche Zunahme des Bettmaterials durch einen ansteigenden Druckverlust im Riser beobachtet.

5 Konzept einer 60 MW_{th} Oxyfuel ZWS zur Monoverbrennung von Klärschlamm

5.1 MOTIVATION

Die Monoverbrennung von Klärschlamm im Oxyfuel Prozess wurde unter realistischen Bedingungen in einer 100 kW_{th} zirkulierenden Wirbelschicht demonstriert. Generell ist damit die technologische Machbarkeit gezeigt worden. Speziell für die Anwendung von niederkalorischen Brennstoffen und zur Laststeigerung konnte auch die Betriebsweise mit einem Sauerstoffgehalt von bis zu 49 Vol. %_{trocken} in der Anströmung getestet werden. Zusätzlich wurden dabei wichtige Ergebnisse bezüglich der zu erwartenden Abgaskonzentrationen für verschiedene Betriebsweisen generiert.

In diesem Kapitel wird ein Konzept für eine 60 MW_{th} Oxyfuel zirkulierende Wirbelschicht vorgestellt, welche die Monoverbrennung von mechanisch getrocknetem Klärschlamm ermöglichen soll. Dafür wird ein Massen- und Energiebilanz Modell vorgestellt, welches auf den gewonnenen Erkenntnissen der Versuche an der 100 kW_{th} Anlage basiert.

Dabei wird zwischen drei verschiedenen Szenarien unterschieden. In Szenario 1 wird davon ausgegangen, dass noch keine Möglichkeit einer Nutzung des Abgastromes bereitsteht und geltende Emissionsvorschriften eingehalten werden müssen. Szenario 2 geht von einer CCS Applikation des behandelten Rauchgases aus. Die Prozessparameter und speziell das stöchiometrische Verbrennungsverhältnis müssen hierfür angepasst werden. Um die Betriebsweise hinsichtlich des CO₂ Gehaltes im Abgasstrom zu optimieren, kann eine Nachbrennkammer nachgeschaltet werden. Dies wird in Szenario 3 behandelt.

5.2 ANLAGENBESCHREIBUNG

Üblicherweise kann Klärschlamm nur mit einem sehr hohen Trocknungsgrad ohne Stützbrennstoff mit Luft verbrannt werden. Bei der untersuchten Anlage handelt es sich um eine zirkulierende Wirbelschicht mit einer thermischen Leistung von 60 MW_{th}, welche für die Monoverbrennung von Klärschlamm im Oxyfuel Prozess ausgelegt ist. Beispielhaft für eine Oxyfuel Verbrennung von niederkalorischen Brennstoffen handelt es sich hierbei um die Monoverbrennung von mechanisch getrocknetem Klärschlamm mit einem Wassergehalt von 62 Mass. % und einem Heizwert von 3500 kJ/kg. Die Brennstoffzusammensetzung entspricht jener von Klärschlamm B, welche in Kapitel 3.1.1.2 im Detail beschrieben wird und auch an der 100 kW_{th} Anlage untersucht wurde. Lediglich der Wassergehalt konnte für eine größere Anlage erhöht werden, da der relative Wärmeverlust von einer industriellen Anlage deutlich unter jenem einer Technikumsanlage liegt und somit höhere Verbrennungstemperaturen erreicht werden können. Die wichtigsten Betriebsdaten, die für die Auslegung der 60 MW_{th} Anlage verwendet wurden, sind in Tabelle 15 zusammengefasst.

Tabelle 15 Wesentliche Betriebsparameter der untersuchten Anlage

Parameter	Symbol	Wert	Einheit
Thermische Leistung	P_{therm}	60	[MW]
Brennstoff	-	Klärschlamm	[-]
Heizwert	H_u	3500	[kJ/kg]
Wassergehalt	w	0.62	[Mass. %]
Brennstoff Temperatur	T_{Brenn}	45	[°C]
Bettdruckverlust	ΔP_{Riser}	200	[mbar]
Kessel: Wasser Eingangstemperatur	T_{W1}	152	[°C]
Kessel: Wasser Eingangsdruck	P_{W1}	5	[bar]
Temperatur überhitzter Dampf	T_{W13}	510	[°C]
Druck überhitzter Dampf	P_{W13}	95	[bar]
Umgebung			
Umgebungstemperatur	T_{amb}	20.0	[°C]
Umgebungsdruck	P_{amb}	1.0	[bar]
Relative Luftfeuchtigkeit	φ_{amb}	60.0	[%]

Der nachgeschaltete Dampfprozess beinhaltet am Eingang Speisewasser mit einem Druck von 5 barg. Am Ausgang wird überhitzter Dampf mit einer Temperatur von 510 °C und einem Druck von 95 bar abs. zur Stromerzeugung in einer Turbine bereitgestellt.

5.3 BESCHREIBUNG DES 60 MWTH OXYFUEL ZWS MODELLS

Um die auftretenden Stoffströme der untersuchten Anlage bestimmen zu können, wurde ein Modell in IPSEpro [SimTech, 2001] erstellt. Das Modell beruht ausschließlich auf Massen- und Energiebilanzen und berücksichtigt somit keine fluiddynamischen Phänomene. In das Modell wurden die Brennstoffzufuhr, die Wirbelschichtfeuerung, die Dampferzeugung und eine Nachbehandlung des Rauchgases inkludiert. Auf die Abbildung der Rauchgasreinigung wurde verzichtet. Auch der Eintrag an Falschluff wurde in diesem Modell nicht berücksichtigt, da dieser nur schwer zu quantifizieren ist und sich im Verlauf der Zeit stark ändert. Generell sollte bei der Errichtung einer Oxyfuel Anlage auf einen möglichst geringen Falschluffeintrag geachtet werden, um eine möglichst energieeffiziente Rauchgasnachbehandlung zu ermöglichen. Eine Zusammenfassung der wichtigsten Parameter, die in diesem Modell gesetzt wurden, sind in Tabelle 16 aufgelistet.

Die Reaktortemperatur wurde auf 850 °C gesetzt, was einerseits eine vollständige Verbrennung garantieren und andererseits auch Anpackungen aufgrund von zu hohen Temperaturen vermeiden soll. Die Gasaustrittsgeschwindigkeit wurde mit 7 m/s festgelegt, um genügend Feststofftransport in der zirkulierenden Wirbelschicht zu ermöglichen ohne dabei einen zu hohen Partikelabrieb zu riskieren. Wichtig für die Bettmaterialkühlung ist der Anteil an rückgeführtem Bettmaterial über den Wärmetauscher. Um jedoch keinen Gasschlupf durch den Siphon zu riskieren, wurde höchstens 30 % des Bettmaterials über den Wärmetauscher in die Brennkammer rückgeführt.

Ein Fließbild der 60 MW_{th} Anlage ist in Abbildung 64 dargestellt. Auf der Rauchgasseite wurden die Wärmetauscher in drei Stufen geteilt. Dabei sollte der Economiser eine minimale Gasaustrittstemperatur von 200 °C garantieren um Korrosionen zu vermeiden. Die minimale Temperaturdifferenz des Verdampfers zwischen Gasaustritt und Dampfaustritt wurde mit 25 °C festgelegt. Der überhitzte Dampf gelangt von der Dampftrommel in den HD Rauchgaswärmetauscher und danach in den Wärmetauscher der Bettmaterialkühlung. Zur Auslegung beider HD Wärmetauscher wurde darauf geachtet, dass die Wärmeentnahme beider Wärmetauscher im Vollastbetrieb in etwa gleich ist.

Für die Sauerstoffbereitstellung wird mit dem Ausgang einer cryogenen Luftzerlegung gerechnet. Die Werte des spezifischen Energieverbrauches im Verhältnis zur Sauerstoffreinheit aus Abbildung 22 wurden berücksichtigt. Für einen spezifischen Energieverbrauch von 0.27 kWh/kg O₂ ergibt sich eine Sauerstoffreinheit von 98.7 Vol. % [Spliethoff, 2011].

Um für eine CCS Anwendung ein Rauchgas mit einem möglichst hohen CO₂ Anteil zur Verfügung zu stellen, muss das feuchte Rauchgas noch kondensiert werden. Bei einer Kondensation des Rauchgases bis zu einer Temperatur von 20 °C lässt sich der Wassergehalt im Rauchgas bis unter 2 Vol. % reduzieren.

Tabelle 16 Zusammenfassung der Parameter

Parameter	Symbol	Wert	Einheit
Thermische Leistung	P _{therm}	60	[MW]
Reaktor Temperatur	T _{Riser}	850	[°C]
Umlauf	G _s	25	[kg/(m ² s)]
Relativer Wärmeverlust	Q _{loss_rel}	1	[%]
Gasaustrittsgeschwindigkeit	U _{exit}	7	[m/s]
Rückgeführtes Bettmaterial über WT	$\dot{m}_{WT}/\dot{m}_{tota}$	30	[%]
Wärmetauscher			
ECO min. Gasaustrittstemperatur	T _{exh_ECO}	200	[°C]
ECO gasseitiger Druckverlust	ΔP _{exh_ECO}	0	[mbar]
VD min. Temperaturdifferenz	ΔT _{exh_VD}	25	[°C]
VD gasseitiger Druckverlust	ΔP _{exh_VD}	0	[mbar]
HD gasseitiger Druckverlust	ΔP _{exh_HD}	0	[mbar]
HD dampfseitiger Druckverlust	ΔP _{W11_HD}	5	[bar]
Rezirkulationsgebläse			
Isentroper Wirkungsgrad	η _{s_rezi}	60	[%]
Mechanischer Wirkungsgrad	η _{m_rezi}	99	[%]
Sauerstoffreinheit			
O ₂ Gehalt	O _{2_feed}	98.7	[Vol. %]
Argon Gehalt	Ar _{feed}	1.3	[Vol. %]
Temperatur Kondensator	T _{Kond_exh}	20	[°C]

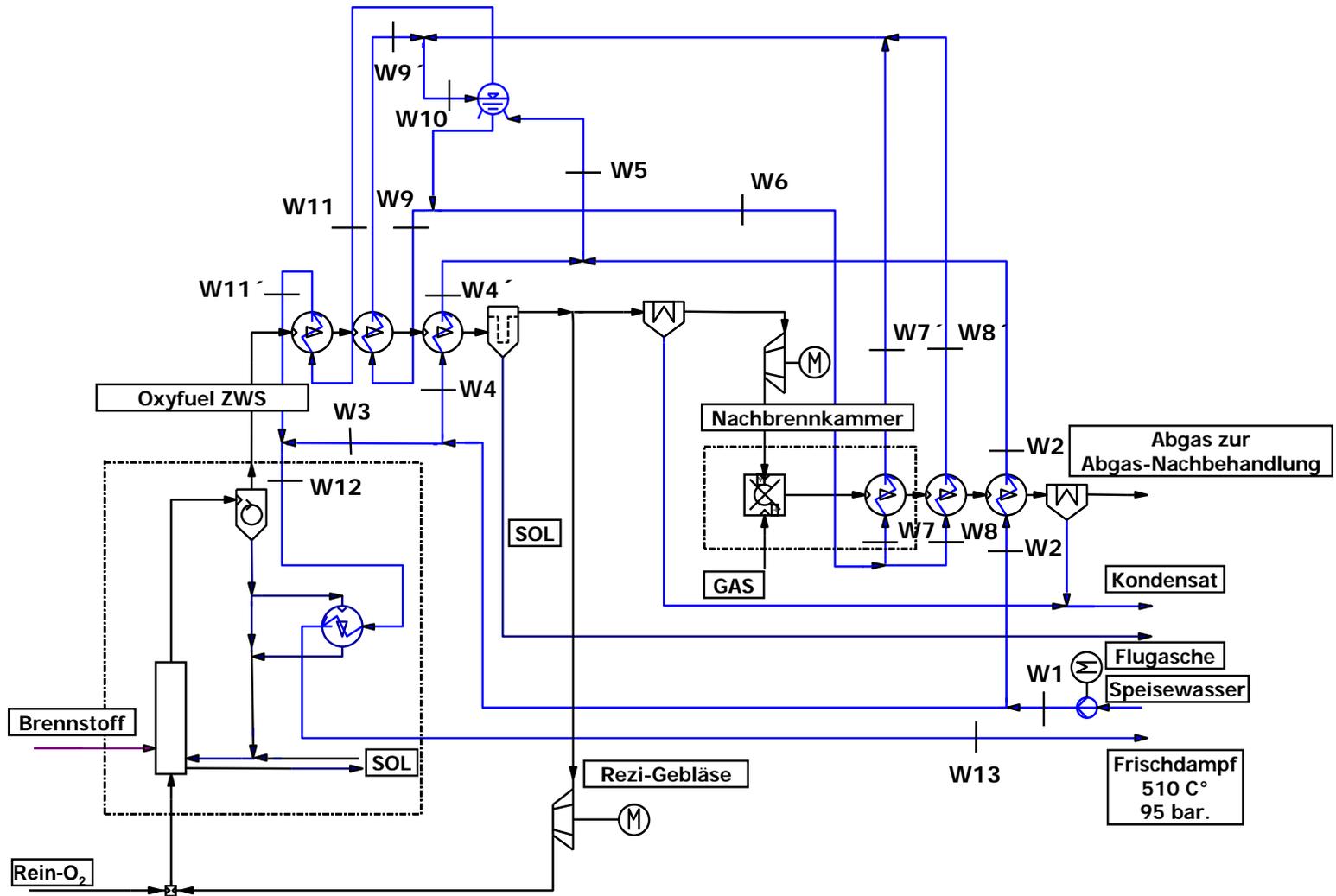


Abbildung 64 Fließbild der 60 MW_{th} Oxyfuel ZWS

5.4 SZENARIO 1-OHNE CCS ANWENDUNG

Generell wird in Szenario 1 davon ausgegangen, dass eine Monoverbrennung des feuchten Klärschlammes im Oxyfuel Betrieb, das heißt ohne Frischlufteintrag erfolgt. Es wird jedoch damit gerechnet, dass die Infrastruktur für eine weiterführende CCS Anwendung noch nicht zur Verfügung steht und deshalb die örtlichen Emissionsgesetze eingehalten werden müssen. Aus diesem Grunde wurde der Restsauerstoffgehalt im feuchten Rauchgas auf 5 Vol. % festgelegt. Die dabei erreichten Emissionswerte beziehen sich auf die Messung der Versuche an der 100 kW_{th} Anlage (Abbildung 53). Dabei konnte für die Verbrennung von Klärschlamm B ein Kohlenmonoxidgehalt von unter 50 Vol. ppm im feuchten Rauchgas erreicht werden. Eine Zusammenfassung der wichtigsten berechneten Prozessparameter ist in Tabelle 17 enthalten.

Dabei wurde der Kesselwirkungsgrad η_b als das Verhältnis aus der dem Dampf zugeführten Wärmemenge und der thermischen Leistung des Brennstoffes gemäß Gleichung 5.1 gebildet.

$\eta_b = \frac{\dot{m}_{Dampf} \cdot (h_{Dampf} - h_{Wasser})}{P_{therm}}$	(5.1)
---	-------

Zur Berechnung des thermischen Wirkungsgrades wird die aufzuwendende elektrische Energie abgezogen (Gleichung 5.2).

$\eta_{th} = \frac{\dot{m}_{Dampf} \cdot (h_{Dampf} - h_{Wasser}) - \sum P_{aux}}{P_{therm}}$	(5.2)
---	-------

Für eine thermische Brennstoffleistung von 60 MW_{th} ergibt sich somit ein Kesselwirkungsgrad von 92 %. Für die Berechnung des thermischen Wirkungsgrades wurde für die Produktion des Reinsauerstoffes ein spezifischer Energieaufwand von 0.27 kWh/kg O₂ verwendet.

Tabelle 17 Zusammenfassung der wichtigsten Betriebsparameter von Szenario 1

Parameter	Symbol	Wert	Einheit
Thermische Leistung	P_{therm}	60	[MW]
Sauerstoffgehalt der Anströmung	$O_2_{\text{Anström}}$	33	[Vol. %]
Reaktor Temperatur	T_{Riser}	850	[C°]
Restsauerstoffgehalt im Abgas	O_2_{exh}	5	[Vol. %]
Kohlenmonoxid im Abgas	CO_{exh}	50	[Vol. ppm]
Stöch.Verbr. Brennkammer	λ_{Brenn}	1.4	[-]
Stöch.Verbr. Prozess	λ_{Prozess}	1.24	[-]
Riser-Querschnitt	A_{Riser}	19	[m ²]
Brennstoff Massenstrom	m_{fuel}	62	[t/h]
Rezirkulationsrate	ω	0.4	[-]
O ₂ Massenstrom	m_{O_2}	29	[t/h]
CO ₂ im Abgas Massenstrom	$m_{\text{exh_CO}_2}$	28.09	[t/h]
Ascheaustrag	m_{ash}	7.00	[t/h]
Abgaszusammensetzung			
CO ₂ Gehalt	CO_2_{exh}	18.45	[Vol. %]
O ₂ Gehalt	O_2_{exh}	5.00	[Vol. %]
N ₂ Gehalt	N_2_{exh}	0.96	[Vol. %]
H ₂ O Gehalt	H_2O_{exh}	75.04	[Vol. %]
CO Gehalt	CO_{exh}	50	[Vol. ppm]
NO _x Gehalt	NO_x_{exh}	37	[Vol. ppm]
Dampfparameter			
Temperatur	T_{HD}	510	[C°]
Druck	P_{HD}	95	[bar]
Massenstrom	m_{HD}	72	[t/h]
Elektrischer Energieaufwand			
Sauerstoffherstellung spez. Ener.		0.27	[kWh/kgO ₂]
Sauerstoffherstellung	Pe_{O_2}	7.9	[MW]
Heißgasgebläse	Pe_{rezi}	820	[kW]
Sonstige		286	[kW]
Gesamt		9.0	[MW]
Wirkungsgrad			
Kesselwirkungsgrad	η_b	92.0	[%]
Thermischer Wirkungsgrad	η_{th}	77.0	[%]

5.5 SZENARIO 2-MIT CCS ANWENDUNG

In Szenario 2 wurde von einer Verwendung des Rauchgases in einer CCS Anwendung ausgegangen. Dafür muss zusätzliche Energie für die Kondensation des Wasserdampfes im Rauchgas aufgewendet werden, um die CO₂ Konzentration bis zu einem Gehalt von 82 Vol. % im Rauchgas anzuheben. Eine Möglichkeit der Energieeinsparung, sowohl in der Sauerstoffherstellung als auch für eine spätere Nachbehandlung des Rauchgases, bietet ein geringerer Sauerstoffüberschuss, der jedoch höhere Emissionswerte mit sich zieht. Diese Energieeinsparung wirkt sich positiv auf den thermischen Wirkungsgrad (Tabelle 18) aus, sofern die Rauchgasnachbehandlung und eine Komprimierung nicht als zusätzlicher Aufwand eingerechnet werden.

Tabelle 18 Zusammenfassung der wichtigsten Betriebsparameter von Szenario 2

Parameter	Symbol	Wert	Einheit
Thermische Leistung	P_{therm}	60	[MW]
Sauerstoffgehalt der Anströmung	$O_2_{\text{Anström}}$	33	[Vol. %]
Reaktor Temperatur	T_{Riser}	850	[C°]
Restsauerstoffgehalt im Abgas	O_2_{exh}	2	[Vol. %]
Kohlenmonoxid im Abgas	CO_{exh}	200	[Vol.ppm]
Stöch.Verbr. Brennkammer	λ_{Brenn}	1.14	[-]
Stöch.Verbr. Prozess	λ_{Prozess}	1.09	[-]
Riser-Querschnitt	A_{Riser}	17.83	[m ²]
Brennstoff Massenstrom	m_{fuel}	62	[t/h]
Rezirkulationsrate	ω	0.34	[-]
O ₂ Massenstrom	m_{O_2}	26	[t/h]
CO ₂ im Abgas Massenstrom	$m_{\text{exh_CO}_2}$	28.07	[t/h]
Kondensatwasser	m_{kond}	40.30	[t/h]
Ascheaustrag	m_{ash}	7	[t/h]
Abgaszusammensetzung			
CO ₂ Gehalt	CO_2_{exh}	82.40	[Vol. %]
O ₂ Gehalt	O_2_{exh}	8.66	[Vol. %]
N ₂ Gehalt	N_2_{exh}	4.28	[Vol. %]
H ₂ O Gehalt	H_2O_{exh}	2.27	[Vol. %]
CO Gehalt	CO_{exh}	866.40	[Vol. ppm]
NO _x Gehalt	NO_x_{exh}	145.99	[Vol. ppm]
Dampfparameter			
Temperatur	T_{HD}	510	[C°]
Druck	P_{HD}	95	[bar]
Massenstrom	m_{HD}	72	[t/h]

Elektrischer Energieaufwand			
Sauerstoffherstellung spez. Ener.		0.27	[kWh/kgO ₂]
Sauerstoffherstellung	PeI_O ₂	6.9	[MW]
Heißgasgebläse	PeI_rezi	653	[kW]
Sonstige		285	[kW]
Gesamt		7.9	[MW]
Wirkungsgrad			
Kesselwirkungsgrad	η _b	91.6	[%]
Thermischer Wirkungsgrad	η _{th}	78.4	[%]

5.6 SZENARIO 3-MIT CCS ANWENDUNG UND ZUSÄTZLICHER NACHBRENNKAMMER

Wie in den Versuchen der 100 kW_{th} Anlage ist der hohe Wassergehalt im Brennstoff auch für einen hohen Dampfgehalt im Abgas und deswegen auch für einen hohen Sauerstoffgehalt im trockenen Rauchgas verantwortlich. Dadurch ergeben sich im Vergleich zu einer Oxyfuel Verbrennung mit Kohle geringere CO₂ Konzentrationen im Abgas.

In Szenario 3 ist eine Nachbrennkammer integriert, die das trockene Rauchgas aus dem Oxyfuel Prozess als Oxidationsgas für Erdgas verwendet. Nach einer weiteren Kondensation des Rauchgases steht ein CO₂ Strom mit einer Reinheit von über 89 Vol. %, wie in Tabelle 19 dargestellt, für eine CCS Anwendung zur Verfügung. Die dadurch erreichte CO₂ Reinheit bei der Verbrennung mit nassem Klärschlamm ist mit der CO₂ Reinheit bei der Oxyfuel Verbrennung von Kohle vergleichbar.

Tabelle 19 Zusammenfassung der wichtigsten Betriebsparameter von Szenario 3

Parameter	Symbol	Wert	Einheit
Thermische Leistung	P _{therm}	60	[MW]
Brennstoff	-	Klärschlamm	[-]
Thermische Leistung	P _{therm}	25.2	[MW]
Brennstoff	-	Erdgas	[-]
Reaktor Temperatur	T _{Riser}	850	[C°]
Abgaszusammensetzung			
CO ₂ Gehalt	CO _{2_exh}	88.89	[Vol. %]
O ₂ Gehalt	O _{2_exh}	2.54	[Vol. %]
N ₂ Gehalt	N _{2_exh}	3.92	[Vol. %]
H ₂ O Gehalt	H ₂ O_exh	2.26	[Vol. %]
CO Gehalt	CO_exh	1	[Vol. ppm]
NO _x Gehalt	NO _{x_exh}	166	[Vol. ppm]

Dampfparameter			
Temperatur	T_{HD}	510	[C°]
Druck	P_{HD}	95	[bar]
Massenstrom	m_{HD}	102	[t/h]
Elektrischer Energieaufwand			
Sauerstoffherstellung spez. Ener.		0.27	[kWh/kgO ₂]
Sauerstoffherstellung	$P_{el_O_2}$	8.5	[MW]
Heißgasgebläse	P_{el_rezi}	862	[kW]
Sonstige		729	[kW]
Gesamt		10.1	[MW]
Wirkungsgrad			
Kesselwirkungsgrad	η_b	92.1	[%]
Thermischer Wirkungsgrad	η_{th}	80.3	[%]

Die Nachbehandlung des Rauchgases kann in einer Brennkammer mit verschiedenen Brennstoffen erfolgen. Vorteilhaft für eine möglichst hohe CO₂ Konzentration am Ausgang wäre hierfür ein Brennstoff mit einem möglichst niedrigen Wassergehalt, der einen dementsprechend geringen Sauerstoffüberschuss im trockenen Rauchgas benötigt. Ein weiteres Konzept zur Nachbehandlung des Rauchgases aus der Wirbelschicht wäre die Verwendung in einer Gasturbine. Dafür müsste jedoch ebenfalls gasförmiger oder flüssiger Brennstoff zugeführt werden.

Schlussdiskussion dieser Doktorarbeit

Die Oxyfuel Verbrennung von alternativen Brennstoffen bietet die Möglichkeit, einen konzentrierten CO₂ Abgasstrom für eine Sequestrierung (Carbon Capture and Storage) bereitzustellen. Stammt der CO₂ Strom aus erneuerbaren Quellen, so kann dies zu netto CO₂ Senken führen. Die Wahl der Sauerstoffkonzentration in der Anströmung ist ein zusätzlicher Freiheitsgrad, der, im Gegensatz zu einer Verbrennung mit Luft, höhere Brennstoffleistungen bezogen auf den Bettquerschnitt erlaubt. Durch Sauerstoffanreicherung im Verbrennungsgas entstehen höhere adiabate Verbrennungstemperaturen, welche speziell für die Verbrennung von niederkalorischen Brennstoffen zu Stützbrennstoffeinsparung führen.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Oxyfuel Verbrennung von Klärschlamm in einer zirkulierenden Wirbelschicht demonstriert. Zu diesem Zweck diente eine 100 kW_{th} Versuchsanlage, welche speziell für die Verbrennung von alternativen Brennstoffen nachgerüstet wurde. Um aussagekräftige Methoden zur Feststoffumlaufmessung anwenden zu können wurden fluiddynamische Untersuchungen an einem Kaltmodell durchgeführt. Bei den Versuchen an der Heißeanlage stellte sich heraus, dass die Monoverbrennung von Klärschlamm mithilfe einer Oxyfuel Verbrennung möglich ist. Dabei entsteht ein Rauchgas, welches eine maximale Kohlendioxidkonzentration von 92 Vol. %_{trocken} erreicht. Die Erhöhung des Wassergehaltes im Brennstoff führt bei gleichem benötigten Restsauerstoffgehalt im feuchten Rauchgas zu niedrigeren CO₂ Konzentration im trockenen Rauchgas. Die geänderte Verbrennungsumgebung wirkt sich nicht negativ auf den Ascheschmelzpunkt aus. Temperaturen über 900 °C konnten ohne ein Sintern des Bettmaterials durchgeführt werden. NO_x-Emissionen waren im Vergleich zu einer Luftfeuerung geringer, da offensichtlich ohne Luftstickstoff im Oxyfuel Betrieb eine thermische NO_x Bildung verhindert wurde. Die gemessene Kohlenmonoxidkonzentration war im direkten Vergleich im Oxyfuel Betrieb höher. Vergleicht man jedoch bei gleichem Sauerstoffgehalt im feuchten Rauchgas die Kohlenmonoxid Emissionen der Verbrennung mit Luft mit einer Oxyfuel Verbrennung, so sind in etwa gleiche Werte erreicht worden. Der sauerstoffangereicherte Betrieb mit einer Sauerstoffkonzentration von über 30 Vol. %_{feucht} im Verbrennungsgas konnte ohne nennenswerte Probleme durchgeführt werden. Ein homogener Temperaturverlauf entlang des Risers deutete auf eine gute Durchmischung des Reinsauerstoffes hin. Anhand der Versuchsergebnisse wurde ein validiertes Modell der Versuchsanlage erstellt. Dies erlaubte im Anschluss die Auslegung einer 60 MW_{th} zirkulierenden Wirbelschicht zur Monoverbrennung von Klärschlamm.

Dabei wurde der Betriebsfall für eine Oxyfuel Verbrennung ohne und mit CCS Anwendung untersucht. Um einen Ausblick bezüglich effizienter CO₂ Abscheidung zu bieten, wurde ein Konzept erarbeitet, welches speziell für die Oxyfuel Verbrennung von Brennstoffen mit hohem Wassergehalt einen hoch konzentrierten CO₂ Abgasstrom bereitstellt. Eine Verringerung des Sauerstoffüberschusses bringt Effizienzsteigerungen sowohl in der Reinsauerstoffbereitstellung als auch in der Rauchgasnachbehandlung.

Der wesentliche Beitrag dieser Arbeit zum derzeitigen Stand des Wissens ist:

- Optimierte Prozessführung einer Oxyfuel Verbrennung
 - erfolgreicher Betrieb ohne Falschlufteintrag
 - geringer Restsauerstoffgehalt im Abgas
 - geringe Emissionen (Kohlenmonoxid, NO_x) im Abgas
- Oxyfuel Verbrennung von Klärschlamm in einer zirkulierenden Wirbelschicht
 - Monverbrennung von Klärschlamm
 - Sauerstoffangereicherter Betrieb
- Validiertes Simulationsmodell einer bestehenden 100 kW_{th} Oxyfuel Versuchsanlage
 - Bestimmung aller nicht gemessenen Größen eines Versuchsbetriebes
 - Parametervariationen zur prädikativen Simulation der Versuchsanlage
- Konzept einer 60 MW_{th} zirkulierenden Wirbelschicht im Oxyfuel Betrieb als thermische Klärschlammverwertungsanlage unter Berücksichtigung verschiedener Szenarien

Nächste Schritte

- Anwendung der Oxyfuel Technologie auf weitere Brennstoffe (holzartige Biomasse, Müll...)
- Demonstration der Stützstoffeinsparung durch Sauerstoffanreicherung an industriellen Anlagen
- Demonstration der Oxyfuel Technologie an einer industriellen Anlage

Anhang

Prozessdaten BP 3 Luft

Betriebsdaten Gesamtanlage

BWL Wirbelschicht [kW]	87
O2 Gehalt Anströmung [vol%]	21
O2 Eintrag [Nm ³ /h]	0
Wassergehalt Klärschlamm [mass.%]	42
O2 Gehalt Abgas [vol.%]	3
Rezirkulationsrate [-]	0

Fluidisierungsgas

	Sauerstoff	rezirkuliertes Rauchgas	gesamt
Absolutdruck [bara]	2.00	1.10	1.10
Temperatur [°C]	10.00	70.00	32.76
Normvol.strom [Nm ³ /h]	0.00	102.83	102.83
Betr.vol.strom [m ³ /h]	0.00	118.49	105.63
massenstrom [kg/h]	0.00	132.62	132.62
Exergiefluss [kW]	0.00	1.08	0.97
Sauerstoffanteil [vol.%]	99.95	2.82	20.84

Abgas

	Rauchgas
Absolutdruck [bara]	1.00
Temperatur [°C]	30.01
Normvol.strom [Nm ³ /h]	140.05
Betr.vol.strom [m ³ /h]	157.95
Gasmassenstrom [kg/h]	173.54
Exergiefluss [kW]	4.40

Umgebungsbedingungen

Seehöhe [m]	111
Temperatur [°C]	5
Luftdruck [mbar]	1
Rel. Luftfeuchte [%]	60

Brennstoffe

Brennstoffe	Klärschlamm trocken	Wasser	feuchter Klärschlamm
Absolutdruck [bara]	1.20	1.10	1.10
Temperatur [°C]	45.66	15.00	25.86
unt. Heizwert gesamt [kJ/kg]	12883.60	-	7309.95
Gesamtmassenstrom [kg/h]	27.12	15.50	42.62
Exergiefluss [kW]	112.60	0.01	112.61
Wassergehalt [Gew.%]	9.23	100.00	42.24
Asche [Gew.% feucht]	32.68	0.00	20.79

Apparate

Riser

Druckverlust Gas [mbar]	35	Therm. Leistg. [kW]	86.54
Lambda_Brennkammer [-]	1.21	rel. Wärmeverlust [%]	17.33
Lambda_Prozess [-]	1.21	Wärmeverlust [kW]	15.00
Leerrohr-Querschnitt [m ²]	0.0177	Exergieverlust [kW]	54.54
Gasaustrittsgeschw. [m/s]	9.00	Betttemperatur [°C]	855.68

Heißgasgebläse

absoluter Druck am Eingang [bara]	1.00
absoluter Druck am Ausgang [bara]	1.10
Druckanstieg [mbar]	107.58
Temperatur Eingang [C°]	30.01
Temperatur Ausgang [C°]	70.00
Temperaturanstieg [C°]	40.0

Wärmetauscher

Stromführung	Gegenstrom
Dp heiße Seite [mbar]	32.02
Dp kalte Seite [mbar]	200.00
k.A-Wert [kW/°C]	0.12
Übertragene Wärme [kW]	50.46
Exergieverlust [kW]	32.53

Prozessdaten BP 3 Luft

Zusammensetzungen Gasströme

Luft und Abgas	Sauerstoff	Fluidisierungsgas	Fluidisierungsgas wf.	Rauchgas	Rauchgas wasserfrei
Ar [vol%]	0.05	0.00	0.93	0.68	0.89
C2H4 [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
C2H6 [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
C3H8 [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
CH4 [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
CO [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.01	0.02
CO2 [vol%]	0.00	0.04	0.04	11.93	15.64
H2 [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
H2O [vol%]	0.00	0.52	0.00	23.70	0.00
H2S [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
HCl [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
HCN [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
N2 [vol%]	0.00	77.67	78.08	60.75	79.62
N2O [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
NH3 [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
NO [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.03	0.04
O2 [vol%]	99.95	20.84	20.95	2.82	3.69
SO2 [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.07	0.10

Organische Zusammensetzungen Brennstoffe (waf)

Brennstoffe	Klärschlamm
Wassergehalt [Gew%]	0.42
TS	
Aschegehalt [Gew%]	36.00
C [Gew%]	36.33
H [Gew%]	3.75
O [Gew%]	19.07
N [Gew%]	4.24
S [Gew%]	0.61
Cl [Gew%]	0.00
Heizwert HU [kJ/kg]	7309.95

Prozessdaten BP 4

Betriebsdaten Gesamtanlage

BWL Wirbelschicht [kW]	57
O2 Gehalt Anströmung [vol%]	21
O2 Eintrag [Nm ³ /h]	13
Wassergehalt Klärschlamm [mass.%]	42
O2 Gehalt Abgas [vol.%]	2
Rezirkulationsrate [-]	1

Fluidisierungsgas

	Sauerstoff	rezirkuliertes Rauchgas	gesamt
Absolutdruck [bara]	2.00	1.13	1.13
Temperatur [°C]	10.00	130.80	63.00
Normvol.strom [Nm ³ /h]	13.23	57.56	70.79
Betr.vol.strom [m ³ /h]	6.95	76.48	78.28
massenstrom [kg/h]	18.89	75.77	94.66
Exergiefluss [kW]	1.13	7.88	7.53
Sauerstoffanteil [vol.%]	99.95	2.26	20.52

Abgas

	Rauchgas	<i>Umgebungsbedingungen</i>	
Absolutdruck [bara]	1.00		
Temperatur [°C]	73.58		
Normvol.strom [Nm ³ /h]	39.42	Seehöhe [m]	111
Betr.vol.strom [m ³ /h]	50.85	Temperatur [°C]	20
Gasmassenstrom [kg/h]	51.90	Luftdruck [mbar]	1
Exergiefluss [kW]	5.04	Rel. Luftfeuchte [%]	60

Brennstoff

<i>Brennstoffe</i>	Klärschlamm trocken	Wasser	feuchter Klärschlamm
Absolutdruck [bara]	1.20	1.10	1.10
Temperatur [°C]	45.66	15.00	26.05
unt. Heizwert gesamt [kJ/kg]	12883.60	-	7401.10
Gesamtmassenstrom [kg/h]	17.95	10.00	27.95
Exergiefluss [kW]	74.55	0.01	74.54
Wassergehalt [Gew.%]	9.23	100.00	41.70
Asche [Gew.% feucht]	32.68	0.00	20.99

Apparate

Riser

Druckverlust Gas [mbar]	24	Therm. Leistg. [kW]	57.47
Lambda_Brennkammer [-]	1.18	rel. Wärmeverlust [%]	26.45
Lambda_Prozess [-]	1.07	Wärmeverlust [kW]	15.20
Leerrohr-Querschnitt [m ²]	0.0177	Exergieverlust [kW]	39.95
Gasaustrittsgeschw. [m/s]	5.88	Betttemperatur [°C]	841.81

Heißgasgebläse

absoluter Druck am Eingang [bara]	1.00	Temperaturanstieg [C°]	57.2
absoluter Druck am Ausgang [bara]	1.13	Betriebsvolumenstrom [m ³ /h]	74.24
Druckanstieg [mbar]	130.48	Normvolumenstrom [Nm ³ /h]	57.56
Temperatur Eingang [C°]	73.58		
Temperatur Ausgang [C°]	130.80		

Wärmetauscher

Stromführung	Gegenstrom
Dp heiße Seite [mbar]	32.02
Dp kalte Seite [mbar]	200.00
k.A-Wert [kW/°C]	0.08
Übertragene Wärme [kW]	36.37
Exergieverlust [kW]	23.65

Prozessdaten BP 4

Zusammensetzungen Gasströme

Luft und Abgas	Sauerstoff	Fluidisierungsgas	Fluidisierungsgas wf.	Rauchgas	Rauchgas wasserfrei
Ar [vol%]	0.05	0.00	0.04	0.02	0.04
C2H4 [vol%]	0.00	0.000	0.00	0.00	0.00
C2H6 [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
C3H8 [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
CH4 [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
CO [vol%]	0.00	0.01	0.02	0.01	0.03
CO2 [vol%]	0.00	34.25	61.07	42.12	91.59
H2 [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
H2O [vol%]	0.00	43.91	0.00	54.01	0.00
H2S [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
HCl [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
HCN [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
N2 [vol%]	0.00	1.14	2.03	1.40	3.04
N2O [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
NH3 [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
NO [vol%]	0.00	0.01	0.01	0.01	0.01
O2 [vol%]	99.95	20.52	36.58	2.26	4.91
SO2 [vol%]	0.00	0.14	0.26	0.18	0.38

Organische Zusammensetzungen Brennstoffe (waf)

Brennstoffe	Klärschlamm
Wassergehalt [Gew%]	0.42
TS	
Aschegehalt [Gew%]	36.00
C [Gew%]	36.33
H [Gew%]	3.75
O [Gew%]	19.07
N [Gew%]	4.24
S [Gew%]	0.61
Cl [Gew%]	0.00
Heizwert HU [kJ/kg]	7401.10

Prozessdaten 60 MW Oxyfuel ZWS

wichtigsten Betriebsdaten Gesamtanlage

BWL Wirbelschicht [MW]	60
O2 Gehalt Anströmung [vol%]	35
O2 Eintrag [Nm ³ /h]	22058
Wassergehalt Klärschlamm [mass.%]	62
CO2 Konzentration Abgas [vol.%trocken]	89
Rezirkulationsrate [-]	0

Fluidisierungsgas

	Sauerstoff	rezirkuliertes Rauchgas	gesamt
Absolutdruck [bara]	2	1	1
Temperatur [°C]	10	236	176
Normvol.strom [Nm ³ /h]	22058	50182	72240
Betr.vol.strom [m ³ /h]	11584	75792	96274
Massenstrom [kg/h]	31592	53632	85224
Exergie [kW]	1867	6736	6965
Sauerstoffanteil [vol.%]	99	7	35

Abgas

Umgebungsbedingungen

	Rauchgas		
Absolutdruck [bara]	1		
Temperatur [°C]	200		
Normvol.strom [Nm ³ /h]	79259	Seehöhe [m]	111
Betr.vol.strom [m ³ /h]	135172	Temperatur [°C]	20
Gasmassenstrom [kg/h]	84708	Luftdruck [mbar]	1
Exergie [kW]	9662	Rel. Luftfeuchte [%]	60

Abgas vor Nachverbrennung

	Rauchgas
Absolutdruck [bara]	1
Temperatur [°C]	20
Normvol.strom [Nm ³ /h]	18948
Betr.vol.strom [m ³ /h]	19909
Gasmassenstrom [kg/h]	36012
Exergie [kW]	3747

Brennstoff

Brennstoffe	Klärschlamm trocken	Wasser	feuchter Klärschlamm
Absolutdruck [bara]	1	1	1
Temperatur [°C]	45	20	45
unt. Heizwert gesamt [kJ/kg]	3500	-	3500
Gesamtmassenstrom [kg/h]	61714	46388	61714
Exergie [kW]	99794	23	99794
Wassergehalt [Gew.%]	62	100	62
Asche [Gew.% feucht]	14	0	14

Apparate

Riser

Druckverlust Gas [mbar]	200	Therm. Leist. [kW]	60000
Lambda_Brennkammer [-]	2	rel. Wärmeverlust [%]	1
Lambda_Prozess [-]	1	Wärmeverlust [kW]	600
Leerrohr-Querschnitt [m ²]	20	Exergieverlust [kW]	48117
Gasaustrittsgeschw. [m/s]	7	Betttemperatur [°C]	850
Spezifischer Umlauf	25		

Prozessdaten 60 MW Oxyfuel ZWS

wichtigsten Betriebsdaten Gesamtanlage

BWL Wirbelschicht [MW]	60
O2 Gehalt Anströmung [vol%]	35
O2 Eintrag [Nm ³ /h]	22058
Wassergehalt Klärschlamm [mass.%]	62
CO2 Konzentration Abgas [vol.%trocken]	89
Rezirkulationsrate [-]	0

Fluidisierungsgas

	Sauerstoff	rezirkuliertes Rauchgas	gesamt
Absolutdruck [bara]	2	1	1
Temperatur [°C]	10	236	176
Normvol.strom [Nm ³ /h]	22058	50182	72240
Betr.vol.strom [m ³ /h]	11584	75792	96274
Massenstrom [kg/h]	31592	53632	85224
Exergie [kW]	1867	6736	6965
Sauerstoffanteil [vol.%]	99	7	35

Abgas

Umgebungsbedingungen

	Rauchgas		
Absolutdruck [bara]	1		
Temperatur [°C]	200		
Normvol.strom [Nm ³ /h]	79259	Seehöhe [m]	111
Betr.vol.strom [m ³ /h]	135172	Temperatur [°C]	20
Gasmassenstrom [kg/h]	84708	Luftdruck [mbar]	1
Exergie [kW]	9662	Rel. Luftfeuchte [%]	60

Abgas vor Nachverbrennung

	Rauchgas
Absolutdruck [bara]	1
Temperatur [°C]	20
Normvol.strom [Nm ³ /h]	18948
Betr.vol.strom [m ³ /h]	19909
Gasmassenstrom [kg/h]	36012
Exergie [kW]	3747

Brennstoff

Brennstoffe	Klärschlamm trocken	Wasser	feuchter Klärschlamm
Absolutdruck [bara]	1	1	1
Temperatur [°C]	45	20	45
unt. Heizwert gesamt [kJ/kg]	3500	-	3500
Gesamtmassenstrom [kg/h]	61714	46388	61714
Exergie [kW]	99794	23	99794
Wassergehalt [Gew.%]	62	100	62
Asche [Gew.% feucht]	14	0	14

Apparate

Riser

Druckverlust Gas [mbar]	200	Therm. Leist. [kW]	60000
Lambda_Brennkammer [-]	2	rel. Wärmeverlust [%]	1
Lambda_Prozess [-]	1	Wärmeverlust [kW]	600
Leerrohr-Querschnitt [m ²]	20	Exergieverlust [kW]	48117
Gasaustrittsgeschw. [m/s]	7	Betttemperatur [°C]	850
Spezifischer umlauf	25		

Prozessdaten 60 MW Oxyfuel ZWS			
Heißgasgebläse			

absoluter Druck am Eingang [bara]	1.03	Temperaturanstieg [C°]	35.8
absoluter Druck am Ausgang [bara]	1.25	Betriebsvolumenstrom [m³/h]	85583
Druckanstieg [mbar]	220.86	Normvolumenstrom [Nm³/h]	50182
Temperatur Eingang [C°]	200.00	Isentroper Wirkungsgrad	60.00
Temperatur Ausgang [C°]	235.80	Mechanischer Wirkungsgrad	99.00

Nachbrennkammer

Druckverlust Gas [bar]	9	Therm. Leist. [MW]	25.20
Lambda_Brennkammer [-]	1.10	Rel. Wärmeverlust [%]	1.00
Exergieverlust [kW]	8164.30	Wärmeverlust [kW]	251.95

Wärmetauscher vor NBK

	HD	VD	ECO
Stromführung	Gegenstrom	Gegenstrom	Gegenstrom
Dp heiße Seite [bar]	0.00	0.00	0.00
Dp kalte Seite [bar]	4.50	1.00	0.00
k'A-Wert [kW/°C]	27	183.35	120
Übertragene Wärme [kW]	11076	23979.50	8781
Exergie[kW]	2240	2998.65	783

Wärmetauscher nach NBK

	HD	VD	ECO
Stromführung	Gegenstrom	Gegenstrom	Gegenstrom
Dp heiße Seite [bar]	0	0	0
Dp kalte Seite [bar]	1	1	0
k'A-Wert [kW/°C]	12	51	57
Übertragene Wärme [kW]	11798	9655	1729
Exergie [kW]	3788	1726	57

Wasser bzw. Dampf Ströme

	W1	W2	W2´	W3
Absolutdruck [bara]	5	110	110	110
Temperatur [°C]	152	154	318	154
Massenstrom [kg/h]	102154	7822	7822	4557
Betr.vol.strom [m³/h]	112	9	12	5
Dampfgehalt [%]	0	0	0	0
Exergie [kW]	2601	226	943	132

	W4	W4´	W5	W6
Absolutdruck [bara]	110	110	110	108
Temperatur [°C]	154	233	241	317
Massenstrom [kg/h]	89775	89775	97597	2747610
Betr.vol.strom [m³/h]	98	108	119	4070
Dampfgehalt [%]	0	0	0	0
Exergie [kW]	2593	5757	6660	327844

	W7	W7´	W8	W8´
Absolutdruck [bara]	108	107	108	107
Temperatur [°C]	317	316	317	316
Massenstrom [kg/h]	1450190	1450190	713509	713509
Betr.vol.strom [m³/h]	2148	3237	1057	1593
Dampfgehalt [%]	0	0	0	0
Exergie [kW]	173036	184880	85136	90963

	W9	W9´	W10	W11
Absolutdruck [bara]	108	107	107	104
Temperatur [°C]	317	316	316	314
Massenstrom [kg/h]	583911	583911	2747610	97597
Betr.vol.strom [m³/h]	865	1303	6133	1676
Dampfgehalt [%]	0	0	0	1
Exergie [kW]	69672	74441	350285	28665

	W11´	W12	W13
Absolutdruck [bara]	100	100	95
Temperatur [°C]	409	375	510
Massenstrom [kg/h]	97597	102154	102154
Betr.vol.strom [m³/h]	2660	2522	3606
Dampfgehalt [%]	1	1	1
Exergie [kW]	34342	34220	40485

Prozessdaten 60 MW Oxyfuel ZWS

Zusammensetzungen Gasströme

	Sauerstoff	Fluidisierungs gas	Fluidisierungs gas wf.	Rauchgas feucht
Ar [vol%]	1.30	0.00	1.32	0.36
C2H4 [vol%]	0.00	0.000	0.00	0.00
C2H6 [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00
C3H8 [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00
CH4 [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00
CO [vol%]	0.00	0.00	0.01	0.01
CO2 [vol%]	0.00	12.54	25.60	18.05
H2 [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00
H2O [vol%]	0.00	51.01	0.00	73.44
H2S [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00
HCl [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00
HCN [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00
N2 [vol%]	0.00	0.65	1.33	0.94
N2O [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00
NH3 [vol%]	0.00	0.00	0.00	0.00
NO [vol%]	0.00	0.00	0.01	0.00
O2 [vol%]	98.70	35.00	71.45	7.00
SO2 [vol%]	0.00	0.14	0.29	0.20

	Rauchgas vor NBK	Rauchgas nach NBK	Rauchgas nach Kondensator
Ar [vol%]	1.33	1.19	1.51
C2H4 [vol%]	0.00	0.00	0.00
C2H6 [vol%]	0.00	0.00	0.00
C3H8 [vol%]	0.00	0.00	0.00
CH4 [vol%]	0.00	0.00	0.00
CO [vol%]	0.02	0.00	0.00
CO2 [vol%]	66.41	69.97	88.89
H2 [vol%]	0.00	0.00	0.00
H2O [vol%]	2.27	23.07	2.26
H2S [vol%]	0.00	0.00	0.00
HCl [vol%]	0.00	0.00	0.00
HCN [vol%]	0.00	0.00	0.00
N2 [vol%]	3.45	3.08	3.92
N2O [vol%]	0.00	0.00	0.00
NH3 [vol%]	0.00	0.00	0.00
NO [vol%]	0.01	0.01	0.02
O2 [vol%]	25.75	2.00	2.54
SO2 [vol%]	0.75	0.67	0.86

Bezeichnungen und Symbole

Organisationen

FFG: ForschungsförderungsGesellschaft

IEA: International Energy Agency

IPCC: International Panel on Climate Change

UMBWA: Umweltbundesamt

Chemische Zeichen

Ar: Argon

CH₄: Methan

CO: Kohlenmonoxid

CO₂: Kohlendioxid

H₂O: Wasser

N₂: Stickstoff

N₂O: Lachgas

NO_x: Stickoxide

O₂: Sauerstoff

SO_x: Schwefeloxide

Abkürzungen

BECCS: BioEnergy with Carbon Capture and Storage

BM: Bettmaterial

C: Kohlenstoff [kg/kg Brennstoff]

CCS: Carbon Capture and Storage

CLC: Chemical Looping Combustion

EOR: Enhanced Oil Recovery

IGCC: Integrated Gasification Combined Cycle

SOFC: Solid Oxide Fuel Cell

WEO: World Energy Outlook

wf: Wasserfrei

waf: Wasser Aschefrei

Symbole

Symbol	Erklärung	Einheit
A	Fläche	[m ²]
Ar	Archimedeszahl	[-]
A _{Riser}	Querschnitt Reaktor	[m ²]
A _{Downcomer}	Querschnitt Downcomer	[m ²]
C _w	Widerstandsbeiwert	[-]
D	Durchmesser	[m]
d _p	Siebdurchmesser	[μm]
d _p [*]	Partikeleigenschaften Ar ^{1/3}	[-]
d _s	Oberflächenvolumenbezogener Durchmesser	[μm]
d _{sv}	Oberflächen/Volumen bezogener Durchmesser eines Partikels	[μm]
d _v	Volumenbezogener Durchmesser	[μm]
d _i	Durchmesser einer Gewichtsfraction	[μm]
Fr	Froud Zahl	[-]
G _s	Spezifischer Feststoffumlauf	[kg/m ² s]
G _{smin}	Minimaler spezifischer Umlauf	[kg/m ² s]
g	Beschleunigung (Erd-)	[m/s ²]
H	Betthöhe	[m]
h	Höhe	[m]
h	Enthalpie	[kJ/mol]

H_u	unterer Heizwert	[kJ/kg]
k	Carman-Kozeny Konstante	[-]
L	Länge	[m]
\dot{M}	Massenstrom	[kg/s]
M	Masse	[kg]
\bar{M}	mittlere Molare Masse	[g/mol]
$\dot{m}_{\text{Bettmaterial}}$	Massenstrom des gekühlten Bettmaterials	[kg/s]
m_i	Gewichtsfraction der i ten Klasse	[%]
\dot{m}_{Brennk}	Massenstrom nach der Brennkammer	[kg/s]
\dot{m}_{rezi}	Massenstrom des rezirkulierenden Anteils	[kg/s]
$\dot{m}_{\text{O}_2, \text{fluid}}$	Eintrag von Sauerstoff in die Brennkammer	[kg/s]
$\dot{m}_{\text{O}_2, \text{rein}}$	Massenstrom der Reinsauerstoffeinbringung	[kg/s]
$\dot{m}_{\text{O}_2, \text{rezi}}$	Massenstrom des Sauerstoffanteils im rezirkuliertem Rauchgas	[kg/s]
$\dot{m}_{\text{O}_2, \text{Brennkammer}}$	Massenstrom des Sauerstoffanteils am Ausgang der Brennkammer	[kg/s]
$\dot{m}_{\text{O}_2, \text{min}}$	Minimal erforderlicher Sauerstoff	[kg/s]
O_2, rest	Restsauerstoff im Abgas	[vol.%]
P_{therm}	Thermische Leistung	[kW]
$Q_{\text{Bettmaterial}}$	Wärmeübertrag des Bettmaterials	[kW]

R:	spezifische (individuelle) Gaskonstante	[J/kg K]
Re	Reynoldszahl	[-]
s	spezifische Entropie	[kJ/kg.K]
S _v	Partikeloberfläche	[μm ²]
U _c	Beginn der zirkulierenden Wirbelschicht	[m/s]
U _L	Lockerungsgeschwindigkeit	[m/s]
U _{mf}	minimale Fluidisierungsgeschwindigkeit	[m/s]
U _t	Schwebegeschwindigkeit	[m/s]
U _{se}	minimale Transport Geschwindigkeit	[m/s]
V _B	Bettvolumen	[m ³]
V _P	Volumen eines Partikels	[μm ³]
w _t	spezifische technische Arbeit	[kJ/kg]
x _i	Stoffmengenanteil der Komponente i	[-]
ρ _B	Dichte Bettmaterial	[kg/m ³]
ρ _G	Dichte Gas	[kg/m ³]
ρ _P	Dichte Partikel	[kg/m ³]
ω	Rezirkulationsrate	[-]
ε	Porosität	[-]
ψ	Formfaktor	[-]
λ	Stocheometrisches Verbrennungsverhältnis	[-]
λ _{Brennkammer}	Stöchiometrische Verbrennungsverhältnis der	[-]

	Brennkammer	
λ_{Prozess}	Stöchiometrische Verbrennungsverhältnis des Prozesses	[-]
ΔP	Druckdifferenz	[N/m ²]
ΔZ	Höhendifferenz	[m]

Einheiten

°C: Grad Celsius

a: Jahr

cm: Zentimeter

CO_{2eq}: CO₂ Äquivalent, Treibhauseffekt umgerechnet auf CO₂

Gt: Milliarden (Giga) Tonnen

GW: Milliarden (Giga) Watt

GWh: Milliarden (Giga) Wattstunden

J: Joule (=1 Ws)

Jhdt.: Jahrhundert

kg: Kilogramm

kg/h: Kilogramm pro Stunde

km: Kilometer

km²: Quadratkilometer

kW: Kilowatt

kWh: Kilowattstunde

m: Meter

m²: Quadratmeter

mbar: Millibar

MJ: Megajoule

MJ/kg: Megajoule pro Kilogramm

mm: Millimeter

mol: Mol (Einheit der Stoffmenge)

Mt: Millionen Tonnen

Mtoe: Millionen Tonnen Öläquivalent

MW_{th}: Megawatt thermisch

Nm³: Normkubikmeter

Nm³/h: Normkubikmeter pro Stunde

Pa: Pascal
ppb: parts per billion
s: Sekunde
W: Watt
 μm : Mikrometer

Literaturverzeichnis

- [Abad, 2011] Abad A., García-Labiano F., Diego L., Gayán P., Adánez J., "CO₂ Capture Activities in ICB-CSIC: Chemical-Looping Combustion and Oxy-fuel", 63rd IEA-FBC Meeting, 2011
- [Abw. Rtl, 2008] Bundesministerium für Land- und Forstwirtschaft, Umwelt und Wasserwirtschaft, „ Kommunale Abwasserrichtlinie der EU-91/271/EWG“, Bericht 2008
- [Ahn, 2011] Ahn J., Okerlund R., Fry A., Eddings E., „Sulfur trioxide formation during oxy-coal combustion“, International Journal of Greenhouse Gas Control, Volume 5, Supplement 1, Pages 127-135, July 2011
- [Alvarez, 2011] Alvarez I., Munoz F., Lupion M., Otero P., Hotta A., Kuivalainen R., Alvarez J., "CIUDEN CFB boiler technological development", 2nd IEA Oxyfuel Combustion Conference , 2011
- [Andersson, 2006] Andersson K., Johnsson F., "Process evaluation of an 865 MW_e lignite fired O₂/CO₂ power plant", Energy Conversion and Management 47, 18-19, 3487-3498, 2006
- [Baehr, 2000] Baehr H.D., „Thermodynamik-Grundlagen und technische Anwendungen“, 10 Auflage, Springer, 2000
- [Baker, 2002] Baker R. W., „Future Directions of Membrane Gas Separation Technology“, Membrane Technology, Issue 138, Pages 5-10, 2002
- [Basu, 2000] Basu P., Cheng L., "An analysis of loop seal operations in a CFB", Trans IChemE, 78 A. 991-997, 2000
- [Baukal, 1998] C. E. Baukal, „Oxygen enhanced Combustion“, air products, 1998
- [BAWP, 2011] Bundesministerium für Land- und Forstwirtschaft, Umwelt und Wasserwirtschaft, „Bundes-Abfallwirtschaftsplan 2011“, Band 1
- [Becher, 2010] Becher V., Bohn J., Goanta A., Spliethoff H., "A combustion concept for Oxyfuel processes with low recirculation rate – Experimental validation", Combustion and Flame, 2010
- [Bever, 1994] Bever J. „Perspektiven der Klärschlamm Entsorgung“, R. Oldenbourg Verlag GmbH München, 1994
- [Bolland, 2006] Bolland, O. "Fundamental Thermodynamic Approach for Analysing Gas Separation Energy", GHGT 8, 2006
- [Bolea, 2012] Bolea I., Romeo L.M., Pallarés D., "The role of external heat exchangers in oxy-fuel circulating fluidized bed", Applied Energy, Journal, 2011
- [Carbo, 2011] Carbo M. C., Smit R., van der Drift B., Jansen D., „Bio Energy with CCS (BECCS) Large potential for BIOSNG at low CO₂ avoidance cost“, Energy Procedia, Volume 4, Pages 2950-2954, 2011
- [Castle, 2002] Castle W.F., "Air separation and liquefaction: recent developments and prospects for the beginning of the new millennium", International Journal of Refrigeration, 2002
- [Chang, 2010] Chang Y., Chen C., Chen Y., Wu, "High-efficiency combustion of natural gas with 21-30 air", Fuel, 89(9):2455-2462, 2010
- [Chin, 2008] S. Chin, J. Jurng, J. Lee, J. Hur, „Oxygen-enrichment air for co-incineration of organic sludges with municipal solid waste: A pilot plant experiment“, Waste Management, 28(12):2684-2689, 2008
- [Czakiert, 2009] Czakiert T., Nowak W., „Preliminary experience with a small Pilot-scale Oxyfuel-CFB Facility“, IEA-FBC Meeting, Poland, 2009
- [Czakiert, 2011] Czakiert T., "Work in Progress at a small Pilot-Scale Oxyfuel-CFB Facility", 63rd IEA-FBC Meeting, 2011
- [Davison, 2007] Davison J., „Performance and costs of power plants with capture and storage of CO₂“, Energy, 32 (7), pages 1163-1176, 2007
- [Dietrich, 2012] Dietrich F., „ Comparison of four different methods for measuring the solids circulation rate in circulating fluidized beds“, 2012
- [Duan, 2011] Duan L., Zhao C., Zhou W., Qu C., Chen X., "Effects of operation parameters on NO emission in an oxy-fired CFB combustor", Fuel Processing Technology, Volume 92, Issue 3, March 2011

- [Duan, 2011, 2] Duan L., Zhao C., Zhou W., Qu C., Chen X., "O₂/CO₂ coal combustion characteristics in a 50 kW_{th} circulating fluidized bed", International Journal of Greenhouse Gas Control, Volume 5, Issue 4, July 2011, Pages 770-776
- [Eldrainy, 1996] Eldrainy Y. A., Ali-M. F. M., Omar W. Z. W., Hizman M. F. A. M. Jaafar M. N. M., „Combustion performance evaluation of air staging of palm oil blends“, Environmental Science and Technology, 46(4):2445-2450, 1996
- [Fan, 2011] Fan Z., Seltzer A., Hack H., „Oxyfuel Power Generation with Closed-Loop to Reach Zero Emission“, 10th Annual Conference on Carbon Capture and Sequestration, 2011
- [Fornberg, 1988] Fornberg B., "Steady viscous flow past a sphere at high Reynolds numbers", J. Fluid Mech., Vol. 190, 471-489, 1988
- [Geldart, 1973] Geldart D., „Types of gas fluidization“, Powder Technology, 7(5):285-292, 1973
- [Glicksman, 1993] Glicksman L.R., Hyre M., Woloshun K., „Simplified scaling relationships for fluidized beds“, Powder Technology, 77, S. 177-199, 1993
- [Göttlicher, 1997] Göttlicher G., Pruschek R., „Comparison of CO₂ removal systems for fossil-fuelled power plant processes“, Energy Conversion, 1997
- [Grace, 1990] Grace J.R., „High-Velocity Fluidized Bed Reactors“, Chemical Engineering Science, Vol. 45, No. 8, pp. 1953-1966, 1990
- [Grace, 1997] Grace J.R., A.A. Avidan, Knowlton T.M., „Circulating Fluidized Beds“, Knowlton T.M., 1997
- [Guio, 2010] Guio C., Tondl G., Hörtl W., Pröll T., Hofbauer H., „Cold flow model study of an oxyfuel combustion pilot plant“, 19th International Congress of Chemical and Process Engineering CHISA, 2010
- [Higginbotham, 2011] Higginbotham P., Withe V., Fogash K., Guvelioglu G., "Oxygen supply for oxyfuel CO₂ capture", International Journal of Greenhouse Gas Control, Pages 194-203, 2011
- [Hofbauer, 2002] H.Hofbauer, „Wirbelschichttechnik“, 2002
- [Hohenwarter, 2009] Hohenwarter U., „The BIOX Plant – a 100 kW CFB test plant for oxyfuel combustion Design – Erection – 100 hour tests“, Fourth International Conference on Clean Coal Technologies, Dresden, May 2009
- [Hotta, 2011] Hotta A., Kuivalainen R., Eriksson T., Sacristan A., Jubitero J., Ballesteros J., Lupion M., Cortes V., "Development and Demonstration of Oxy-Fuel CFB Technology", Industrial Fluidization, South Africa, December 2011
- [Hörtl, 2009] Hörtl W., Pröll T., Rohovec J., Kronberger B., Hofbauer H., „Oxyfuel combustion of alternative fuels in a circulating fluidized bed combustor – design of a 100kW test unit, ECM4, Vienne, 2009
- [Hörtl, 2010] Hörtl W. "Oxyfuel-Verbrennung in einer zirkulierenden Wirbelschicht: Auslegung, Konstruktion und Inbetriebnahme einer 100 kW_{th} Versuchsanlage", Dissertation, 2010
- [Hugi, 1998] Hugi E., Reh L., "Design of Cyclones with high solids entrance loads", Chemical engineering Technology, 21:716-719, 1998
- [IEA, 2005] IEA, „ Carbon Dioxide Capture and Storage“, IPCC Special Report, International Energy Agency [IEA], Paris, France, 2005
- [IEA, 2008] IEA, „ Energy Technology Perspective“, International Energy Agency (IEA), Paris, France, 2008
- [IEA, 2008, 2] IEA, „Energy technology Analysis-CO₂ Capture and Storage“, Paris, France, 2008
- [IEA, 2010] IEA, „World Energy Outlook 2010“, International Energy Agency (IEA), Paris, France, 2010
- [IEA, 2011] IEAGHG, „Effects of Impurities on Geological Storage of CO₂“, June, 2011
- [IEA, 2011] IEA, „ Combining Bioenergy with CCS“, International Energy Agency (IEA), Paris, France, 2011
- [IPCC, 1990] IPCC, „The IPCC Impacts Assessment“, IPCC First Assessment Report (FAR), 1990
- [IPCC, 2000] IPCC, „Special Report on Emission Scenarios“, Special Report (SRES), 2000
- [IPCC, 2001] IPCC, „Synthesis Report“, Third Assessment Report: Climate Change (TAR), 2001
- [IPCC, 2007] IPCC, "Climate Change", Synthesis Report, 2007

- [Jia, 2009] Jia L., Tan Y., Anthony E.J., "Emissions of SO₂ and NO_x during Oxy-Fuel CFB Combustion Tests in a Mini-Circulating Fluidized Bed Combustion Reactor", *Energy Fuels*, Pages 910-915, Sept. 2009
- [Jia, 2011] Jia L., Tan Y., McCalden D., Wu Y., He I., Symonds R., Anthony E.J., "Commissioning of a 0.8 MW_{th} CFBC for oxy-fuel combustion", *International Journal of Greenhouse Gas Control*, Nov. 2011
- [Jia, 2011, 02] Jia L., "Oxyfuel CFBC combustion tests with a 0.8 MW_{th} unit", 63rd IEA-FBC Meeting, 2011
- [Kaiser, 2003] Kaiser S., Löffler G., Vosch K., Hofbauer H., "Hydrodynamics of a dual fluidized bed gasifier." Part II, *Chemical Engineering Science* 58 p. 4218, 2003
- [Kaltschmitt_2009] Kaltschmitt M., Hartmann H., Hofbauer H., "Energie aus Biomasse", Springer Verlage, 2 Auflage, 2009
- [Kather, 2006] Kather A., C. Hermsdorf, M. Klostermann, "Auswirkungen des Oxyfuel-Prozesses auf die Auslegung und den Betrieb des Dampferzeugers und der Rauchgasreinigungsanlagen
- [Kather, 2007] Kather A., Hermsdorf C., Klostermann M., "Der kohlebefeuerte Oxyfuel-Prozess. VGB PowerTech 4, 84-91, 2007
- [Kather, 2011] Kather A., Kownatzki S., "Assessment of different parameters affecting the CO₂ purity from coal fired oxyfuel process", *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 2011
- [Kraxner, 2002] Kraxner F., Nilsson S., Obersteiner M., "Negative emissions from BioEnergy use, carbon capture and sequestration (BECS)-the case of biomass production by sustainable forest management from semi-natural temperate forest", *Biomass and Bioenergy*, Volume 24, Issue 4-5, Pages 285-296, 2003
- [Kuivalainen, 2010] Kuivalainen R., Eriksson T., Hotta A., "Development and Demonstration of Oxy-fuel CFB technology", 35th International Technical Conference on Clean Coal & Fuel Systems, Florida, June 2010
- [Lacava, 1999] P. T. Lacava, A. P. Pimenta, A. G. Gurgel Veras, Carvalho Jr., "Theoretical analysis of aqueous residues incineration with oxygen enrichment flames », *Internation Communications in Heat and Mass Transfers* », 26(7) :1029-1040, 1999
- [Leckner, 2003] Leckner B., Amand L.-E., Lücke K., Werther J., "Gaseous emissions from co-combustion of sewage sludge and coal/wood in a fluidized bed", *Fuel*, Volume 83, Issues 4-5, Pages 477-486, 2004
- [Levenspiel, 1999] Levenspiel, Octave, "Chemical Reaction Engineering", John Wiley & Sons, 1999
- [Libra, 2011] Libra J., Ro K., Kammann C., Funke A., Berge N., Neubauer Y., Titirici M., Fühner C., Bens O., Kern J., Emmerich K., "Hydrothermal carbonization of biomass residuals: a comparative review of the chemistry, processes and applications of wet and dry pyrolysis", *Biofuels*, 89-124, 2011
- [Lindner, 2001] Lindner E., Hoinkis J., "Chemie für Ingenieure", Wiley-VCH, 2001
- [Lupion, 2011] Lupion M., Diego R., Loubeau L., Navarette B., "CIUDEN CCS Project: Status of the CO₂ capture technology development plant in power generation", *Energy Procedia*, Volume 4, 2011
- [Mieske, 2008] Mieske K., Kather A, "Experimentelle Untersuchung der Schadstoffentstehung bei der Verbrennung im Oxyfuel-Prozess", 40. Kraftwerkstechnische Kolloquium, 14.-15.10.2008, Dresden
- [Norman, 2009] Normann F., Andersson K., Leckner B., Johnsson F., 2009, "Emission control of nitrogen oxides in the oxy-fuel process", *Progress in Energy and Combustion Science*, volume 35
- [Ogada, 1995] Ogada T., Werther J., "Combustion characteristics of wet sludge in a fluidized bed, release and combustion of the volatiles", *Fuel*, 75:617-626, 1995
- [Oseen, 1911] Oseen C.W., "Über die Stokes'sche Formel und über eine verwandte Aufgabe in der Hydrodynamik", In: *Arkiv foer Matematik, Astronomi och Fysik*, Vol. 6, Nr.29, 1911
- [Penthor, 2009] Penthor S., "Untersuchung zur Erweiterung des Betriebsbereiches einer stationären Wirbelschichtfeuerung für niedrigkalorische Brennstoffe", Diplomarbeit, 2009

- [Penthor, 2011] Penthor S., Kronberger B., Pröll T., Huschka H., Baumgartinger J., Hösl A., Locher E., Hofbauer H., „ Optimization of a 16 MW_{th} bubbling fluidized bed combustor for low calorific fuels“, INFUB, 2011
- [Penthor, 2012] Penthor S., Höltl W., Baumgartinger J., Pröll T., Hofbauer H., „Sewage sludge combustion in a 16 MW_{th} Bubbling Fluidized Bed using Oxygen enriched air“, 21st International Conference on Fluidized Bed Combustion, Naples, 2012
- [Posch, 2011] Posch S., Haider M., „Optimization of CO₂ compression and purification units (CO₂CPU) for CCS power plants“, Fuel, 2011
- [Pröll, 2006] Pröll T., Bolhàr-Nordenkampf M., Strauss T., Hofbauer H., „Description of local heat release in an industrial scale bubbling bed waste incinerator“, Proceedings of the 19th Int. Conf. on Fluidized Bed Combustion, 2006
- [Pröll, 2008] Pröll T., Bolhar-Nordenkampf J., Kolbitsch P., Hofbauer H., „Comprehensive modeling tool for chemical looping based processes.“ In Proceedings of the 9th international Conference on Circulating Fluidized Beds, pages 771-776, Hamburg, Germany, 2008.
- [Pröll, 2011] Pröll T., Kolbitsch P., Bolhàr-Nordenkampf J., Hofbauer H., „Chemical Looping pilot plant results using a Nickel-Based oxygen carrier“, Oil&Gas Science and Technology-Rev.IFP Energies nouvelles, Vol.66, No.2 pages 173-180, 2011
- [Pröll, 2011, 2] Pröll T., „ Innovative Fuel Conversion with CO₂ Capture using Dual Fluidized Bed Systems“, Habilitationsschrift, 2011
- [Rathnam, 2008] Rathnam R.K., Elliott L., Wall T., Liu Y., Moghtaderi B., „Differences in reactivity of pulverized coal in air (O₂/N₂) and oxy-fuel (O₂/CO₂) conditions“, Journal, Fuel Processing Technology, Volume 90, Issue 6, Pages 797-802, June 2009
- [Reed, 1997] R. J. Reed, „North American Combustion Handbook“, 3rd edition Vol. II Part 13. North American Manufacturing Company, Cleveland, OH, 1997
- [Renz, 2005] Renz U., Kneer R., Abel D., Niehius R., „Entwicklung eines CO₂ emissionsfreien Kohleverbrennungs-prozesses zur Stromerzeugung“, Verbundvorhaben der RWTH Aachen OXY-COAL-AC. CCS Tagung, Jülich, 2005
- [Ricci, 2012] Ricci O., „Providing adequate economic incentives for bioenergies with CO₂ capture and geological storage“, Energy Policy, Volume 44, Pages 362-373, 2012
- [Romeo, 2011] Romeo L., Diez L., Guedea I., Bolea I., Lupianez C., Gonzalesz A., Pallarés J., Teruel E., „Design and operation assessment of an oxyfuel fluidized bed combustor“, Experimental Thermal and Fluid Scienc, Volume 35, Pages 477-484, April 2011
- [Romeo, 2011, 2] Romeo L., Diez L., Guedea I., Bolea I., Lupianez C., Lisbona P., Lara Y., Martinez., „Oxyfuel combustion in BFB. experiences and simulations“, 63rd IEA-FBC Meeting, 2011
- [Sänger, 2000] M. Sängler, J. Werther, „Möglichkeiten der Lastvariation bei der Klärschlammverbrennung in Wirbelschichten durch Rauchgasrezirkulation und Sauerstoffanreicherung“, VDI Ber. Nr. 1535, VDI-Verlag, Düsseldorf, S. 139-148, 2000
- [Scala, 2009] Scala F., Salatino P., „Limestone Attrition under Simulation Oxyfiring Fluidized-Bed Combustion conditions, Chemical Engineering and Technology, Volume 32, Issue 3, pages 380-385, 2009
- [Scala, 2010] Scal F., Chirone R., „Combustion of Single Coal Char Particles und Fluidized Bed Oxyfiring Conditions“, Industrial & Engineering Chemistry Research, 49 (21), pages 11029-11036
- [Scala, 2010, 2] Scala F., Chirone R., „Fluidized bed combustion of single coal char particles at high CO₂ concentration“, Chemical Engineering Journal, Volume 165, Issue 3, Pages 902-906, Dec. 2010
- [Scharf_1995] Scharf S., „Analysenbericht Klärschlamm“, Umweltbundesamt, 1995
- [Scheffknecht, 2011] Scheffknecht G., Al-Makhadmeh L., Schnell U., Maier J., „Oxy-fuel coal combustion- A review of the current state-of-the-art, Greenhouse Gas Control, Journal, 2011
- [Schlichting, 2006] Schlichting H., Gersten K., „Grenzschicht-Theorie“, Springer Verlag, 2006
- [Silvestre, 2009] Silvestre L. S., Nsakala N., Darling S. L., „Alstom Oxyfuel CFB boilers: a promising option for CO₂ capture“, Energy Procedia, Volume 1, Issue, Feb. 2009

- [Simpson, A.P.] Simpson A.P, Simon A.J., Second law comparison of oxyfuel combustion and post-combustion carbon dioxide separation", Energy Conversion Management, 48(11), Pages 3034-3045, 2007
- [SimTech, 2001] SimTech Simulation Technology, „IPSEpro User Manual“, 2001
- [Spliethoff, 2011] Spliethoff H., „Oxy-Fuel Combustion Technology for Power Generation“, 9th European Conference on Industrial Furnaces and Boilers, Estoril, April, 2011
- [Stadler, 2011] Stadler H., Beggel F., Habermehl M., Persigehl B., Kneer R., Modigell M., Jeschke P., „Oxyfuel coal combustion by efficient integration of oxygen transport membranes“, International Journal of Greenhouse Gas Control, Volume 5, Issue 1, Pages 7-15, 2011
- [Stammach, 1987] Stammach M. R., „Untersuchungen zur Pyrolyse von Klärschlamm in der Wirbelschicht“, Dissertation, Eidgenössische technische Hochschule Zürich, 1987
- [Stewart, 2010] Stewart M. C., Manovic V., Athony E.J., Macchi A., „Enhancement of indirect sulphation of limestone by steam addition“, Environment Science Technology, 44(22), 8781-6, Nov. 2010
- [Stewart, 2011] Stewart M. C., Symonds R.T., Manovic V., Lu D. Y., Macchi A., Anthony E. J., „The Effects of steam on the sulfation of limestone and NO_x formation in an air- and Oxy-fired pilot-scale CFB combustor“, Fuel Journal, January 2011
- [Stiegel, 2007] Stiegel G. J., Clayton S., „Gasification Technologies Project“ Portfolio. DOE/NETL, 2007
- [Stokes, 1856] Stokes G.G., „On the effect of the internal friction of fluids on the motion of pendulums“, Trans. Cambr. Phil. Soc., Vol. 9, Part II, 8-106 oder Collected Papers III, 55, 1856
- [Strömberg, 2009] Strömberg L., Lindgren G., Jacoby J., Giering R., Anheden M., Burchhardt U., Altmann H., Kluger F., Stamatiopoulos G., „ Update on Vattenfall´s 30 MW_{th} Oxyfuel Pilot Plant in Schwarze Pumpe“ , Energy Procedia, Volume 1, Seite 581-589, 2009
- [Tan, 2012] Tan Y., Jia L., Wu Y., Anthony E.J., „Experiences and results on a 0.8 MW_{th} oxy-fuel operation pilot-scale circulating fluidized bed“, Applied Energy, Volume 92, Pages 343-347, Apr. 2012
- [Thomé, 1998] Thomé-Kozmiensky J.K., „Klärschlamm Entsorgung“, Neuruppin: TK Verl. Thomé-Kozmiensky, 1998
- [Toftegaard, 2010] Toftegaard M. B., Brix J., Jensen P. A., Glarborg P., Jensen A. D., „Oxyfuel combustion of solid fuels“, Progress in Energy and Combustion Science“, Volume 36, Issue 5, Pages 581-625, 2010
- [Tondl, 2011] Tondl G., Penthor S., Wöß D., Pröll T., Hörtl W., Rohovec J., Hofbauer H., „Oxyfuel combustion of alternative fuels based on results from a circulating fluidized bed pilot rig“, 2nd Oxyfuel Combustion Conference, Australia 2011
- [UmwBA, 2001] Mitverbrennung von Klärschlamm in kalorischen Kraftwerken, BE-194, Wien Nov. 2001
- [Varonen, 2011] Varonen M., „4 MW oxy-CFB combustion tests“, 63rd IEA-FBC Meeting, 2011
- [Vergragt, 2010] Vergragt P. J., Markusson N., Karlsson H., „Carbon capture and storage, bio-energy with carbon capture and storage, and the escape from the fossil-fuel lock-in“, Global Environmental Change, Volume 21, Issue 2, Pages 282-292, 2011
- [Vesilind, 1996] Vesilind P. A., Ramsey T. B., „Effect of drying temperature on the fuel value of wastewater sludge“, Waste Management & Research, 189-196, 14, 1996
- [Wall, 2011] Wall T., Stanger R., Santos S., „Demonstrations of coal fired oxy-fuel technology for carbon capture and storage and issues with commercial deployment“, International Journal of Greenhouse Gas Control, Volume 5, Supplement 1, July 2011
- [Wall, 2011, 2] Wall T., Stanger R., Liu Y., „Gas cleaning challenges for coal-fired oxy-fuel technology with carbon capture and storage“, Journal Fuel, 2011
- [Wang, 2012] Wang L., Skjevraak G., Hustad J.E., Gronli M., „Sintering characteristics of sewage sludge ashes at elevated temperatures“, Fuel Processing Technology 96, 88-97, 2012
- [Werther, 2000] Werther J., Sängler M., „Emissions from Sewage Sludge Combustion in Germany-Status and Future Trends-“, Journal of Chemical Engineering of Japan, Vol. 33, No. 1, pp. 1-11, 2000

- [White_2010] White V., Torrente-Murciano L., Sturgeon D., Chadwick D., "Purification of Oxyfuel-derived CO₂", International Journal of Greenhouse Gas Control, Volume 4, Issue 2, Pages 137-142, 2010
- [Wolf, 1994] Wolf P., Urban A.I., "Thermische Klärschlammbehandlung-Planung, Technologie und Erfahrung", 13 Schriftenreihe der Fachgebiete Siedlungswirtschaft und Abfalltechnik, Kassel 1994
- [Wöss, 2009] Wöss D., „Design Consideration for an Oxyfuel CFB-Reactor“, Bachelorarbeit 2009
- [Wöss, 2012] Wöss D., „Sauerstoff statt Stützbrennstoff“, Diplomarbeit, 2012
- [Wöss, 2012, 2] Wöss D., Tondl G., Höltl W., Pröll T., Hofbauer H., „Sewage sludge treatment with oxygen enrichment and oxyfuel combustion in CFBC-new pilot plant results“, 64th IEA Fluidized Bed conversion Meeting, Neapel, Juni, 2012
- [WU, 2011] Wu Y., Wang C, Tan Y, Jia L, Anthony E.J., "Characterization of ashes from a 100 kW_{th} pilot-scale circulating fluidized bed with oxy-fuel combustion", Applied Energy, Volume 88, Issue 9, Pages 2940-2948 , Sept. 2011
- [Zanganeh, 2007] Zanganeh, K.E., Shafeen A., „A novel process integration, optimization and design approach for large-scale implementation of oxy-fired coal power plants with CO₂ capture“, International Greenhouse Gas Control, 1(1), pages 47-54, 2007

Tabellenverzeichnis

<i>Tabelle 1</i> Verschiedene Spezifikationen der CO ₂ Qualität [Toftegaard, 2010].....	18
<i>Tabelle 2</i> Überblick über gängige Einsatzgebiete der Sauerstoffanreicherung bzw. der Reinsauerstofffeuerung und deren primären Nutzen nach Reed [1997] mit Ergänzungen von Wöss [2009].....	21
<i>Tabelle 3</i> Vergleich der Brennstoffzusammensetzung verschiedener Brennstoffe [Lindner, 2001] [Libra, 2011].....	29
<i>Tabelle 4</i> Unterschiede der trockenen und der nassen Rezirkulation.....	34
<i>Tabelle 5</i> Äquivalenzdurchmesser.....	53
<i>Tabelle 6</i> Design-Parameter der Oxyfuel Versuchsanlage für die Verbrennung von polnischer Steinkohle.....	67
<i>Tabelle 7</i> Daten Wirbelschicht.....	68
<i>Tabelle 8</i> Vergleich der Brennstoffanalyse der eingesetzten Klärschlämme mit polnischer Steinkohle.....	69
<i>Tabelle 9</i> Schwermetallanalyse Dickschlamm.....	69
<i>Tabelle 10</i> Zusammenfassung der Betriebsdaten.....	70
<i>Tabelle 11</i> Dimensionierung des Kaltmodells.....	71
<i>Tabelle 12</i> Berechnung der dimensionslosen Kennzahlen.....	72
<i>Tabelle 13</i> Zusammensetzung Gase.....	83
<i>Tabelle 14</i> Zusammenfassung der Betriebspunkte.....	90
<i>Tabelle 15</i> Wichtigsten Betriebsparameter der untersuchten Anlage.....	111
<i>Tabelle 16</i> Zusammenfassung der Parameter.....	112
<i>Tabelle 17</i> Zusammenfassung der wichtigsten Betriebsparameter von Szenario 1.....	115
<i>Tabelle 18</i> Zusammenfassung der wichtigsten Betriebsparameter von Szenario 2.....	116
<i>Tabelle 19</i> Zusammenfassung der wichtigsten Betriebsparameter von Szenario 3.....	117

Abbildungsverzeichnis

<i>Abbildung 1 Gemessene Veränderungen der globalen Temperatur, Meeresspiegel und Schneedecke der Nordhalbkugel [IPCC, 2007].....</i>	<i>10</i>
<i>Abbildung 2 Globale anthropogene Treibhausgasemissionen [IPCC, 2007].....</i>	<i>11</i>
<i>Abbildung 3 Globaler Primärenergieverbrauch 1980-2035 [IEA, 2010].....</i>	<i>12</i>
<i>Abbildung 4 Überblick über die CCS Technologien [IEA, 2005].....</i>	<i>13</i>
<i>Abbildung 5 Minimaler Arbeitsaufwand einer Gasentmischung für verschiedene CO₂ Partialdrücke.....</i>	<i>15</i>
<i>Abbildung 6 CO₂ Transportkosten in US\$/tCO₂ sowohl für den Transport mit Tankschiffen, als auch für onshore und offshore pipelines [IEA, 2005].....</i>	<i>16</i>
<i>Abbildung 7 Methoden der CO₂ Lagerung in tiefen geologischen Untergrundformationen [IEA, 2005]</i>	<i>17</i>
<i>Abbildung 8 Schematische Darstellung von Sauerstoffanreicherung und Eintrag über Lanzen [Baukal, 1998].....</i>	<i>19</i>
<i>Abbildung 9 Nutzen der Oxyfuel Verbrennung in thermischen Entsorgungsanlagen.....</i>	<i>22</i>
<i>Abbildung 10 Entwicklung des Klärschlammaufkommens sowie Verwertung und Entsorgung bei kommunalen Kläranlagen ≥ 2.000 EW in den Jahren 1995, 2000 und 2006 [Abw. Rtl, 2008].....</i>	<i>27</i>
<i>Abbildung 11 Energieinhalt in Abhängigkeit des Wassergehaltes des Klärschlammes.....</i>	<i>28</i>
<i>Abbildung 12 Eigenschaften des Klärschlammes in Abhängigkeit vom Wassergehalt, sowie die eingesetzten Verfahren zur Entwässerung [UmwBA, 2001].....</i>	<i>28</i>
<i>Abbildung 13 Möglichkeiten der thermischen Behandlung bzw. Verwertung von Klärschlämmen [Werther, 2000].....</i>	<i>30</i>
<i>Abbildung 14 Wasser-, Flüchtige und Temperaturprofile eines Klärschlammpartikels nach Werther [2000] angepasst von Christa [2011].....</i>	<i>31</i>
<i>Abbildung 15 Das Oxyfuel Prinzip.....</i>	<i>33</i>
<i>Abbildung 16 Darstellung der zwei wichtigsten Varianten der Rauchgasrezirkulation und Prinzip der Oxyfuel Versuchsanlage.....</i>	<i>35</i>
<i>Abbildung 17 Wassergehalt im Abgas in Abhängigkeit des Wassergehaltes im Brennstoff.....</i>	<i>37</i>
<i>Abbildung 18 Stöchiometrisches Verbrennungsverhältniss im Oxyfuel Prozess.....</i>	<i>39</i>
<i>Abbildung 19 Zusammenhang von Rezirkulationsrate und Restsauerstoff bei gegebenem stöchiometrischen Verbrennungsverhältnis der Brennkammer.....</i>	<i>40</i>
<i>Abbildung 20 NO_x Emission in Abhängigkeit des Wassergehaltes des Brennstoffes für eine Luft und Oxyfuel Verbrennung.....</i>	<i>41</i>
<i>Abbildung 21 Spezifischer Energieaufwand zur Herstellung von rein Sauerstoff in Laufe der Zeit [W.F.Castle, 2002].....</i>	<i>45</i>
<i>Abbildung 22 Spezifischer Energieaufwand zur Herstellung von reinem Sauerstoff in Abhängigkeit der Sauerstoffreinheit [Spliethoff, 2011].....</i>	<i>45</i>
<i>Abbildung 23 Historische Entwicklung des Oxyfuel Prozesses [Wall, 2011].....</i>	<i>48</i>
<i>Abbildung 24 Widerstandsbeiwert C_w in Abhängigkeit der Reynoldszahl [Schlichting, 2006].....</i>	<i>51</i>
<i>Abbildung 25 Klassifikation der Partikel nach ihren Fluidisierungseigenschaften [Geldart, 1973].....</i>	<i>56</i>
<i>Abbildung 26 Einteilung der Feuerungssysteme nach der zunehmenden Gasgeschwindigkeit: Festbettfeuerug, Wirbelschichtfeuerug [Kaltschmitt_2009].....</i>	<i>57</i>
<i>Abbildung 27 Fluidisierungsregime nach [Grace, 1990].....</i>	<i>58</i>

<i>Abbildung 28 Feststoffverteilung in Wirbelschichten [Levenspiel, 1999].....</i>	<i>59</i>
<i>Abbildung 29 Fluidisierungsregime für Gas/Feststoffreaktor [Grace, 1990].....</i>	<i>60</i>
<i>Abbildung 30 SO₂ Umsatzrate in Funktion der Betttemperatur im Falle einer Luft- und Oxyfuel Verbrennung von Petrolkoks [Hotta, 2011].....</i>	<i>63</i>
<i>Abbildung 31 Wärmeübertrag des Bettmaterials und Riser Durchmesser in Abhängigkeit des O₂ Gehaltes in der Anströmung.....</i>	<i>64</i>
<i>Abbildung 32 Theoretischer minimaler Feststoffumlauf (Gs) (Annahme des vollständigen Umlaufs über die Bettmaterialkühlung) in Abhängigkeit des Sauerstoffgehaltes in der Anströmung.....</i>	<i>65</i>
<i>Abbildung 33 Übertragene Wärme aus Rauchgas und Bettmaterial in Abhängigkeit der Rauchgasrezirkulationstemperatur.....</i>	<i>66</i>
<i>Abbildung 34 Grace-Diagramm [Grace, 1997] mit Betriebspunkten der Heissanlage O und des Kaltmodells Δ [Hörtl, 2010].....</i>	<i>72</i>
<i>Abbildung 35 Kaltmodell der 100 kW Oxyfuel Versuchsanlage.....</i>	<i>73</i>
<i>Abbildung 36 Design der 100 kW Oxyfuel Versuchsanlage.....</i>	<i>75</i>
<i>Abbildung 37 100 kW Oxyfuel Versuchsanlage.....</i>	<i>77</i>
<i>Abbildung 38 Zusätzlich eingebrachtes Wasser in Abhängigkeit des Brennstoffmassenstromes für eine gegebene thermische Leistung.....</i>	<i>78</i>
<i>Abbildung 39 Vergleich zwischen der Kennlinie des alten Verdichtersystems und der neuen Verdichtereinheit.....</i>	<i>80</i>
<i>Abbildung 40 Druckverlust einzelner Anlagenkomponenten.....</i>	<i>81</i>
<i>Abbildung 41 Benötigte Fördermenge der Kühlturbine.....</i>	<i>82</i>
<i>Abbildung 42 Druckprofil des Kaltmodells für eine Primärfluidisierung von 18 Nm³/h, Bettmaterial gesamt 2.2 kg [Guio, 2010].....</i>	<i>85</i>
<i>Abbildung 43 Grafische Darstellung der vier Methoden zur Umlaufmessung am Kaltmodell [Dietrich, 2012].....</i>	<i>86</i>
<i>Abbildung 44 Vergleich der vier Methoden zur Umlaufbestimmung [Dietrich, 2012].....</i>	<i>88</i>
<i>Abbildung 45 Spezifischer Feststoffumlauf in Abhängigkeit des Druckunterschiedes im Siphon [Dietrich, 2012].....</i>	<i>89</i>
<i>Abbildung 46 Temperaturverlauf während des Anfahrprozesses.....</i>	<i>92</i>
<i>Abbildung 47 Ergebnisse der Abgasmessungen im Übergang zum Oxyfuel Betrieb.....</i>	<i>93</i>
<i>Abbildung 48 Druckprofil der 100 kW Versuchsanlage.....</i>	<i>94</i>
<i>Abbildung 49 Umlaufmessung der 100 kW Versuchsanlage im Kaltbetrieb.....</i>	<i>95</i>
<i>Abbildung 50 Temperaturprofil für eine Luftverbrennung und eine Oxyfuel Verbrennung.....</i>	<i>96</i>
<i>Abbildung 51 Kohlenmonoxid in Abhängigkeit des Restsauerstoffgehaltes im Abgas für verschiedene Klärschlämme.....</i>	<i>97</i>
<i>Abbildung 52 Kohlenmonoxid in Abhängigkeit des Restsauerstoffgehaltes im Abgas.....</i>	<i>98</i>
<i>Abbildung 53 Kohlenmonoxid Emission in Abhängigkeit des Restsauerstoffes für das feuchte Rauchgas</i>	<i>99</i>
<i>Abbildung 54 NO_x Emissionen in Abhängigkeit des Restsauerstoffgehaltes im Abgas.....</i>	<i>100</i>
<i>Abbildung 55 Auswirkung des Restsauerstoffes auf die CO₂ Reinheit im Abgas.....</i>	<i>101</i>
<i>Abbildung 56 Abgaszusammensetzung von einer Luft- und Oxyfuel Verbrennung.....</i>	<i>102</i>
<i>Abbildung 57 Trockene Abgaszusammensetzung einer Luft und einer Oxyfuel Verbrennung.....</i>	<i>103</i>

<i>Abbildung 58 Abgaszusammensetzung einer Luft und einer Oxyfuel Verbrennung bezogen auf den Volumenstrom.....</i>	<i>105</i>
<i>Abbildung 59 Trockene Abgaszusammensetzung einer Luft und einer Oxyfuel Verbrennung bezogen auf den Volumenstrom.....</i>	<i>106</i>
<i>Abbildung 60 CO₂ Konzentration in Abhängigkeit des Restsauerstoffgehaltes im Abgas für verschiedene Sauerstoffreinheiten.....</i>	<i>107</i>
<i>Abbildung 61 Ergebnisse der Korngrößenbestimmung aus Partikel Fraktionen im OxyFuel Betrieb....</i>	<i>108</i>
<i>Abbildung 62 Partikelproben: a. Bettmaterial (unbenutzt), b. Bettmaterial (benutzt), c. Filterkuchen, d. Brennstoff (Klärschlammgranulat).....</i>	<i>109</i>
<i>Abbildung 63 Fließbild der 60 MW_{th} Oxyfuel ZWS.....</i>	<i>113</i>