

Oxyfuel-Verbrennung – Bilanzierung und Schadstoffbildung

Dipl.-Ing. **R. Wilhelm**, TU Dresden, Dresden;
Dipl.-Ing. **S. Weigl**, TU Dresden, Dresden;
Prof. Dr.-Ing. **M. Beckmann**, TU Dresden, Dresden;

Kurzfassung

Der Oxyfuel-Prozess bietet ebenso wie andere Verbrennungsprozesse viele Möglichkeiten zur primären Schadstoffreduzierung. Dazu werden in diesem Beitrag einige Ergebnisse aus Versuchen an der 50 kW_{th} Staubfeuerungsversuchsanlage vorgestellt. Variiert werden in diesen Versuchen unter anderem die Sauerstoffkonzentration in Verbindung mit der Abgasrezirkulationsrate. Für die Beschreibung von Versuchspunkten müssen beim Oxyfuel-Prozess anders als bei konventionellen Verbrennungsprozessen neben der Luftzahl λ zusätzliche Angaben gemacht werden, weshalb hier auch auf die Bilanzierung eingegangen wird.

1. Einleitung

Das wesentliche Ziel der Oxyfuel-Verbrennung ist die Anhebung der CO₂ Emissionen im Abgas zur Erleichterung der nachfolgenden Separation. Um das CO₂-Reduktionspotential einer Oxyfuel-Feuerung gegenüber einer konventionellen Feuerung genau zu bestimmen, ist eine exakte Bilanzierung notwendig. Hierzu müssen für die Oxyfuel-Verbrennung bestimmte Bezugspunkte definiert werden. Ein wesentlicher Punkt ist dabei der Sauerstoffgehalt in der Feuerung (Brennereintritt) und am Feuerraumende. Durch den hohen Anteil an rezirkuliertem Abgas im Oxyfuel-Prozess ist eine Definition über einen Lambda-Wert nicht ohne weiteres möglich. Eine Oxyfuel-Feuerung kann, wie nachfolgend noch ausgeführt, mit sehr geringen Lambda-Werten betrieben werden. Dies wirkt sich auch auf die Schadstoffbildung von z.B. NO_x und SO₂ aus. Durch die hohe Flexibilität bei der Prozessführung, vor allem hinsichtlich der Abgasrezirkulationsrate, kann die Schadstoffbildung durch Primärmaßnahmen schon minimiert werden. Im Hinblick auf die Absenkung von Emissionsgrenzwerten (z.B. NO_x von 200 mg/m³ i.N. auf 100 mg/m³ i.N. bei Großfeuerungsanlagen >100 MW) kommt diesem Aspekt weitere Bedeutung zu.

In dem vorliegenden Beitrag wird zunächst kurz die Versuchsanlage beschrieben, danach wird vor dem Hintergrund der Festlegung von Versuchspunkten und der Abschätzung des

CO₂-Reduktionspotentials auf die Bilanzierung und abschließend auf die Versuchsergebnisse zur Schadstoffminderung (NO, SO₂) eingegangen.

2. Versuchsanlage, Kurzbeschreibung und Verfahrensschaubild

Bild 1 zeigt die Staubfeuerungsversuchsanlage, an der die Untersuchungen zum Oxyfuel-Prozess durchgeführt worden sind, Bild 2 das zugehörige Verfahrensschaubild.

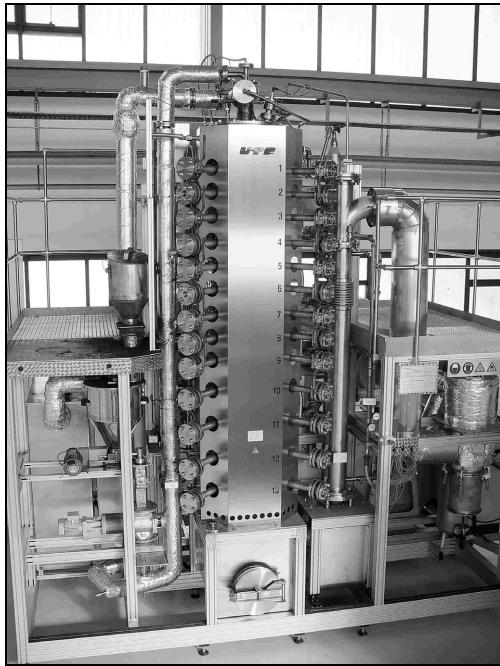


Bild 1: Staubfeuerungsversuchsanlage an der TU Dresden.

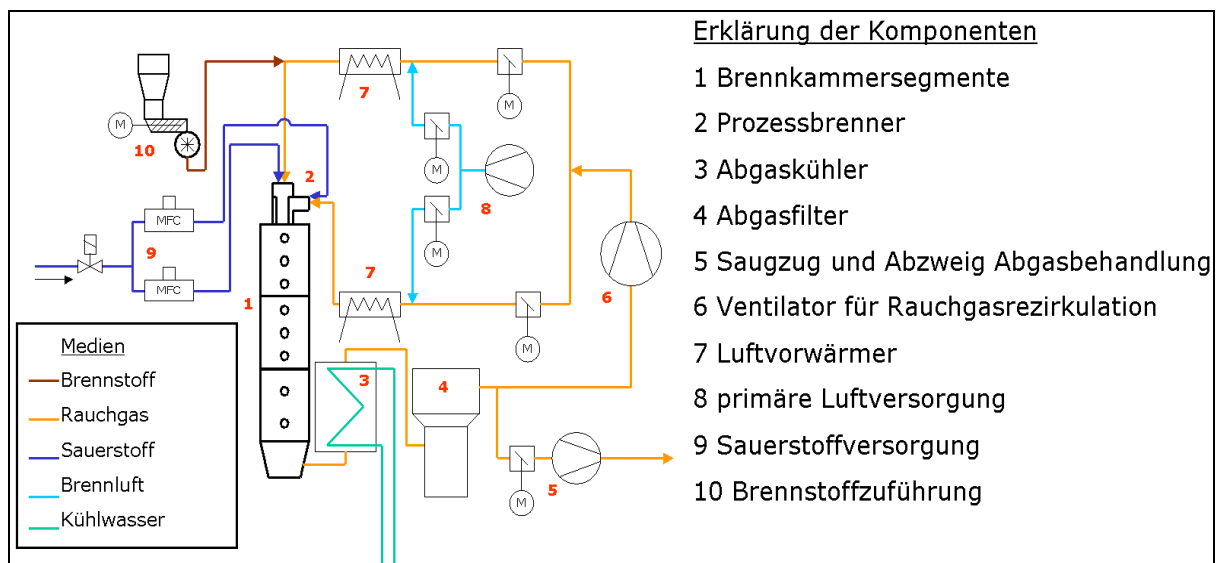


Bild 2: Verfahrensschaubild der Versuchsanlage

Mit einer thermischen Leistung von 50 kW_{therm} bietet die Anlage neben der konventionellen Betriebsweise mit Luft auch verschiedene Möglichkeiten, die Verbrennung von Kohlestaub

mit reinem Sauerstoff und rezirkuliertem Rauchgas („Oxyfuel“) zu untersuchen. Kern der Versuchsanlage ist die modular zylindrische Brennkammer mit dem zentral montierten Deckenbrenner für staubförmige Brennstoffe.

Das Abgas wird nach Verlassen der Brennkammer auf etwa 200 °C abgekühlt und gefiltert. Mit einem Ventilator wird das Abgas anteilig rezirkuliert. Der primäre Abgasstrom dient zur Förderung des Brennstoffs. Der Sauerstoff wird direkt am Brenner in den sekundären Abgasstrom zugegeben und somit dem Prozess zugeführt. Die Anlage ist gasdicht und kann dadurch den *idealen* Oxyfuel-Prozess abbilden. Das bedeutet, dass im trocknen Abgas Kohlendioxidkonzentration weit über 95 Vol.-% gemessen werden können. Durch eine definierte Zugabe von *Falschluff* kann ein *realer* Oxyfuel-Prozess untersucht werden.

Am Brennkammerende wird die Abgaszusammensetzung mittels konventioneller Abgasmesstechnik auf Infrarotbasis gemessen. Dazu wird permanent ein Teilstrom abgesaugt, getrocknet und analysiert.

3. Modell der einfachen Bilanzierung des Oxyfuel-Prozesses

Im folgendem wird ein vereinfachtes Bilanzmodell für den *idealen* Oxyfuel-Prozess dargestellt, was es ermöglicht, mit einfachen Bilanzgleichungen die wesentlichen Stoffströme (siehe Bild 3) zu bestimmen.

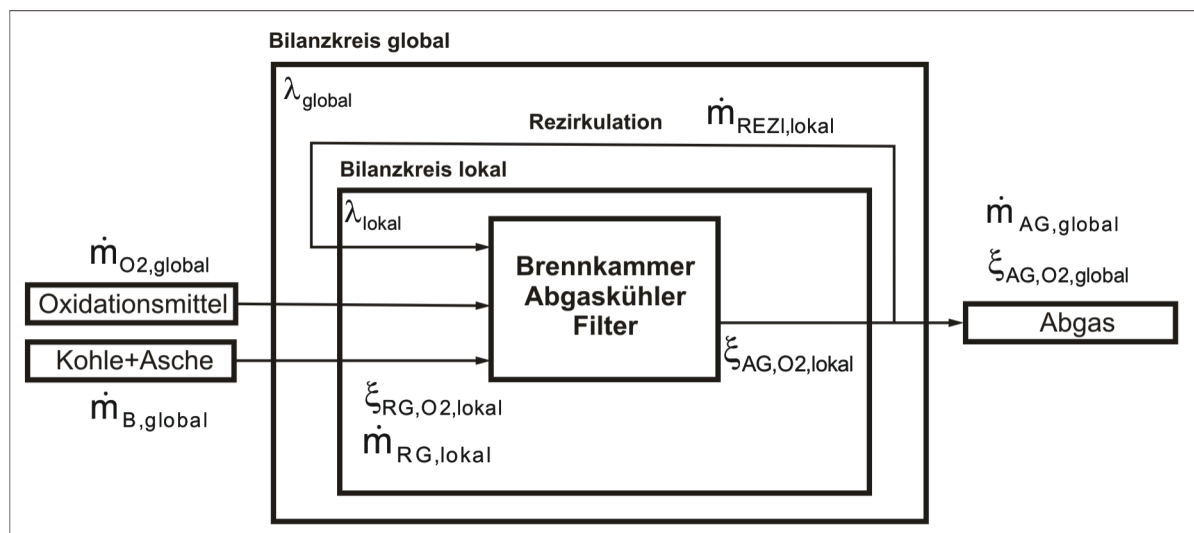


Bild 3: Bilanzkreis um eine Oxyfuel-Feuerung

Der stöchiometrisch notwendige Sauerstoff zum vollständigen Umsatz des Brennstoffs ist direkt abhängig von der Brennstoffzusammensetzung und des Brennstoffmassenstromes. Dieser Wert kann in einer vereinfachten Verbrennungsrechnung bestimmt werden.

$$\dot{m}_{\text{O}_2, \text{stoch}} = f(\dot{m}_{\text{BR}})$$

Wenn eine Stöchiometriezahl λ [1] im Oxyfuel-Prozess genutzt werden soll, muss zwischen der globalen und der lokalen Stöchiometriezahl – die die Rezirkulation berücksichtigt - unterschieden werden.

$$\lambda_{global} = \frac{\dot{m}_{O_2,global}}{\dot{m}_{O_2,stöch}} \quad \lambda_{lokal} = \lambda_{global} + \frac{\dot{m}_{Rezi,O_2,lokal}}{\dot{m}_{O_2,stöch}}$$

Je größer der Restsauerstoffgehalt ist und je mehr Abgas rezirkuliert wird, desto unterschiedlicher sind die globale und die lokale Stöchiometriezahl. Dabei ist das λ_{global} meist kleiner als das λ_{lokal} .

Der Massenstrom Sauerstoff in der Rezirkulation

$$\dot{m}_{Rezi,O_2,lokal} = \xi_{AG,O_2,global} * \dot{m}_{Rezi,lokal}$$

ist vom globalen/lokalen Sauerstoffanteil und dem Massenstrom an rezirkuliertem Abgas abhängig.

Wesentlich für den Zustand der Verbrennung im Oxyfuel-Prozess sind der globale Sauerstoffmassenstrom und der Anteil der Rezirkulation. Diese beiden Massenströme lassen sich mit ausreichender Näherung mit den folgenden zwei Gleichungen bestimmen.

$$\dot{m}_{O_2,global} = \frac{\dot{m}_{O_2,stöch} + \xi_{AG,O_2,global} * \dot{m}_{B,global}}{(1 - \xi_{AG,O_2,global})}$$

$$\dot{m}_{Rezi,lokal} = \frac{\left(\frac{\dot{m}_{O_2,stöch} + \xi_{AG,O_2,global} * \dot{m}_{B,global}}{(1 - \xi_{AG,O_2,global})} \right) * (1 - \xi_{RG,O_2,lokal})}{(\xi_{RG,O_2,lokal} - \xi_{AG,O_2,lokal})}$$

Beide spezifischen Massenströme sind nur vom Sauerstoffanteil im Reaktionsgas (RG) $\xi_{O_2,RG;lokal}$ am Brennkammereintritt und im Abgas (AG) $\xi_{O_2,AG,global} = \xi_{O_2,AG,lokal}$ am Brennkammerende abhängig sind.

Im Bild 4 [2] ist der sich aus der Bilanzierung ergebende ideale Verlauf des Kennfelds dargestellt. Damit wird der Zusammenhang zwischen der Sauerstoffkonzentration (feucht) am Brennkammereintritt (sogenannter Oxyfuel-Punkt), der CO₂-Konzentration im trockenen Abgas und dem Restsauerstoffgehalt (trocken) am Brennkammerende beschrieben. Das Bild 5 [2] zeigt zugehörig das aus den Messwerten (ca. 28 Oxyfuel-Punkte) an der Staubfeuerungs-Versuchsanlage ermittelte Kennfeld. Es zeigt sich, dass die vereinfachte

Massenbilanz mit integrierter klassischer Verbrennungsrechnung für die grundlegende Bilanzierung einer Oxyfuel-Feuerung geeignet ist.

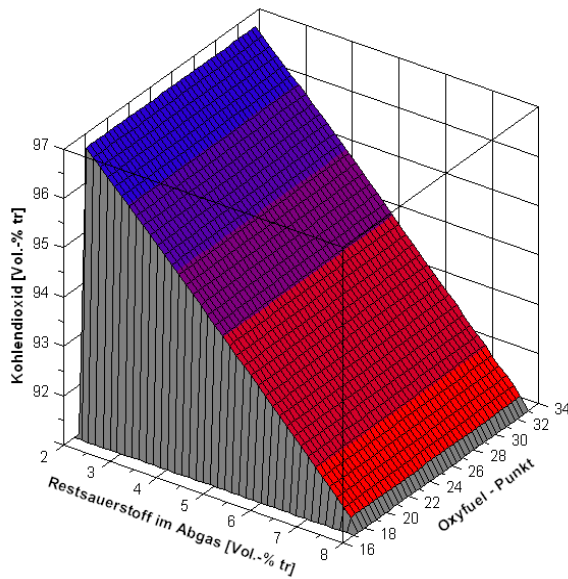


Bild 4: Ideale Kohlendioxidkonzentration im Oxyfuel-Kennfeld

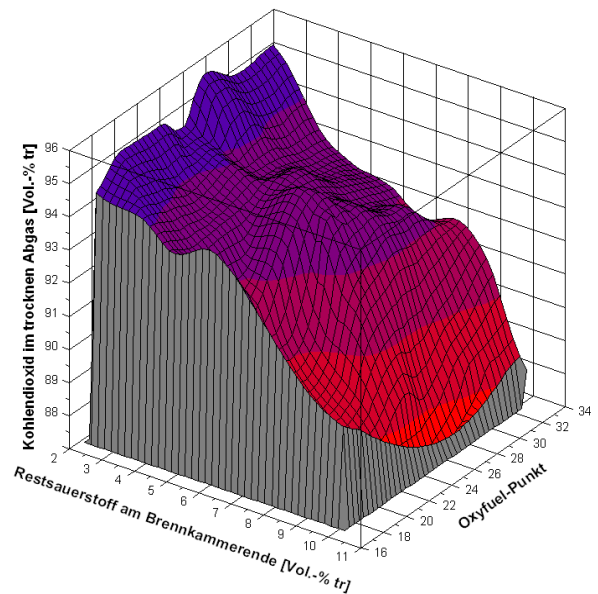


Bild 5: Gemessene Kohlendioxidkonzentration im Oxyfuel-Kennfeld

Vor diesem Hintergrund erscheint es sinnvoll Betriebspunkte des Oxyfuel-Prozesses durch Angabe der Sauerstoffkonzentration am Brennkammereintritt und am Brennkammerende zu charakterisieren. Zum Beispiel *Oxyfuel 30 mit 4 Vol.-%_{tr} Restsauerstoff* bezeichnet die Sauerstoffkonzentration von 30 Vol.-%_{feucht} am Brennkammereintritt und 4 Vol.-%_{tr} am Brennkammeraustritt.

Daraus lässt sich ableiten, dass eine Stöchiometriezahl mit der Definition *verfügbare Menge an Sauerstoff im Verhältnis zu stöchiometrisch notwendigem Sauerstoff* für den Oxyfuel-Prozess keine Aussage zur Qualität der Verbrennung in der Flamme liefert. Ein Zustandspunkt mit Lambda 1,15 kann z.B. je nach Rezirkulationsanteil unterschiedliche Sauerstoffkonzentrationen am Brennkammereintritt haben (10 Vol.-%_{feucht} oder auch 30 Vol.-%_{feucht}).

4. Experimentelle Untersuchungen zur Schadstoffbildung

Wie in den Bildern 4 und 5 schon gezeigt, sind so genannte Kennfelder [3][4] für die einzelnen Gasspezies aufgenommen worden. Dazu wurde der Sauerstoffgehalt am Brenner von 17 – 33 Vol.-%_{feucht} und der Restsauerstoffgehalt am Brennkammerende von 2 – 8 Vol.-%_{tr} variiert.

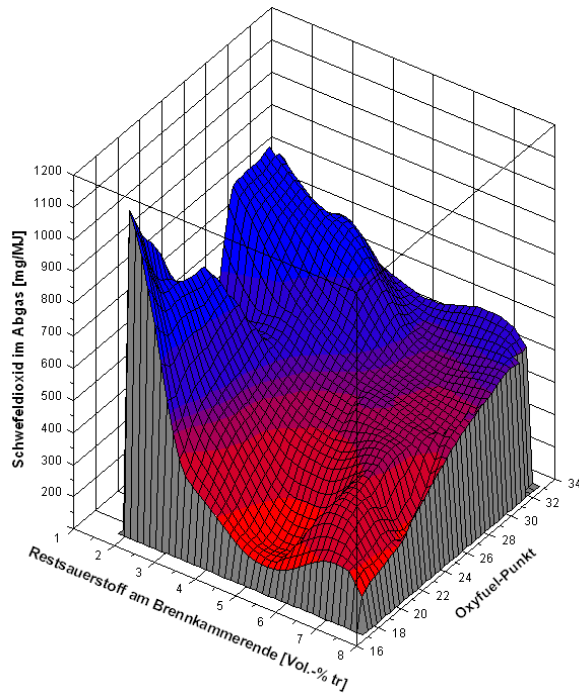


Bild 6: Schwefeldioxidkonzentration im Oxyfuel-Kennfeld

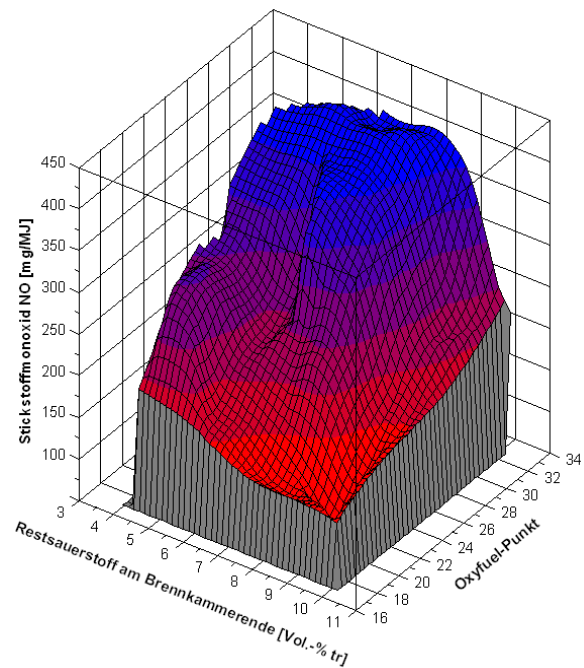


Bild 7: Stickstoffmonoxidkonzentration im Oxyfuel-Kennfeld

In Bild 6 sind die Messwerte der SO_2 -Konzentration im trockenen Abgas dargestellt. Es ist ersichtlich, dass die SO_2 -Konzentrationen im Abgas bei den Oxyfuel-Fällen mit einer niedrigen Sauerstoffkonzentration am Brennkammereintritt und mit hohem Restauerstoffgehalt am Brennkammerende am niedrigsten sind. Eine wesentliche Rolle spielt dabei die Reaktionstemperatur in der Brennkammer, die in diesen Oxyfuel-Fällen am geringsten sind. Noch eindeutiger zeigt dies das Bild 7. Die NO-Konzentration nimmt mit steigender Abgasrezirkulationsrate, also niedrigen Sauerstoffgehalten am Brennkammereintritt, deutlich ab.

5. Literatur

[1] Effenberger, Helmut: Dampferzeugung. 1. Aufl. Berlin: Springer, 1999

[2] Weigl, Sebastian: Modellierung und experimentelle Untersuchungen zum Oxyfuel-Prozess an einer 50 kW Staubfeuerungs-Versuchsanlage. Dissertation Dresden, 2009

[3] Weigl, S.; Wilhelm, R.; Hellfritsch, S.: 50 kW_{th} Oxyfuel-Staubfeuerungsversuchsanlage, 23. Deutscher Flammentag, Berlin 2007

[4] Wilhelm, R; Weigl, S.; Beckmann, M.: Vergleich einer konventionellen TBK-Feuerung mit einer Oxyfuel-TBK-Feuerung anhand von Untersuchungen zur Stickoxidbildung bzw. -reduktion an der 50 kW Staubfeuerungsversuchsanlage, 40. Kraftwerkstechnisches Kolloquium, Dresden 2008