

Technische Universität München  
Lehrstuhl für Energiesysteme

**Simulation und Bewertung zukünftiger  
IGCC-Kraftwerkskonzepte mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung**

Christian A. Kunze

Vollständiger Abdruck der von der Fakultät für Maschinenwesen der  
Technischen Universität München zur Erlangung des akademischen Grades eines

**Doktor-Ingenieurs**

genehmigten Dissertation.

Vorsitzender: Univ.-Prof. Dr.-Ing. T. Sattelmayer

Prüfer der Dissertation: 1. Univ.-Prof. Dr.-Ing. habil. H. Spliethoff  
2. Univ.-Prof. Dr.-Ing. H. Klein

Die Dissertation wurde am 05.03.2012 bei der Technischen Universität München  
eingereicht und durch die Fakultät für Maschinenwesen am 13.07.2012 angenommen.



# Danksagung

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Tätigkeit am Lehrstuhl für Energiesysteme der Technischen Universität München im Zeitraum vom November 2007 bis August 2011.

Mein herzlichster Dank gilt daher meinem Doktorvater Herrn Prof. Dr.-Ing. habil. Hartmut Spliethoff für die Möglichkeit der Promotion und die fachliche Unterstützung während der Zeit am Lehrstuhl. Vielen Dank auch für das offene Vertrauensverhältnis und die angenehme Arbeitsatmosphäre am Lehrstuhl. Herrn Prof. Dr.-Ing. Harald Klein danke ich vielmals für die Übernahme des Koreferates und Herrn Prof. Dr.-Ing. Thomas Sattelmayer für den Prüfungsvorsitz.

Weiterhin möchte ich mich herzlich bei den Projektpartnern und Kollegen des Forschungsprojektes HotVeGas bedanken, für die konstruktiven Hinweise innerhalb der Projekttreffen und der Bereitstellung von Daten. Besonderer Dank gilt Herrn Dr. Karsten Riedl, für seine Unterstützung bei der Exergieanalyse und der fachlichen Diskussion. Mein großer Dank gilt auch allen Kollegen und Studenten, die diese Arbeit unterstützt haben, sowie Herrn Dr. Sudipta De für die Anregungen während seines Forschungsaufenthaltes am Lehrstuhl für Energiesysteme.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Stand der Technik</b>	<b>1</b>
1.1	Fossile Kraftwerke mit CO <sub>2</sub> -Abtrennung . . . . .	1
1.2	Energiewandlung mittels Partialoxidation . . . . .	2
1.3	IGCC-Kraftwerke . . . . .	4
1.3.1	Vergaserinsel . . . . .	4
1.3.2	Gaskonditionierung . . . . .	11
1.3.3	Gas- und Dampfturbinenteil . . . . .	19
1.4	IGCC-Kraftwerke mit Pre-Combustion CO <sub>2</sub> -Abtrennung . . . . .	26
1.5	Zukünftige Technologien für IGCC-Kraftwerke . . . . .	34
1.5.1	Sauerstoffmembranen . . . . .	34
1.5.2	Heißgasreinigung . . . . .	37
1.5.3	Carbonate Looping Prozess . . . . .	49
1.5.4	Oxyfuel-Turbinen . . . . .	51
1.5.5	Hochtemperaturbrennstoffzellen . . . . .	52
1.6	Aktuelle Projekte und Studien . . . . .	58
<b>2</b>	<b>Motivation und Aufgabenstellung</b>	<b>62</b>
<b>3</b>	<b>Methodik</b>	<b>66</b>
3.1	Vorhaben und Vorgehen . . . . .	66
3.1.1	Konzeptübersicht . . . . .	66
3.1.2	Thermodynamische Modellierung komplexer Systeme . . . . .	67
3.1.3	Analyse- und Bewertungsmethoden . . . . .	70
3.2	Modellverifizierung . . . . .	77
3.2.1	Vergaser . . . . .	77
3.2.2	Luftzerlegungsanlage . . . . .	80
3.2.3	CO-Konvertierung . . . . .	82
3.2.4	Sauergaswäsche . . . . .	83
3.2.5	Gasturbine . . . . .	86
3.2.6	SOFC Brennstoffzelle . . . . .	87
3.3	Randbedingungen der Simulationen . . . . .	89

<b>4</b>	<b>IGCC ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung</b>	<b>95</b>
4.1	Konzeptbeschreibung . . . . .	95
4.2	Energetische Bilanzierung . . . . .	96
4.3	Ökologisch - Ökonomische Analyse . . . . .	98
<b>5</b>	<b>IGCC mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung</b>	<b>105</b>
5.1	Konzeptbeschreibung . . . . .	105
5.2	Auswirkung der CO <sub>2</sub> -Abtrennung . . . . .	107
5.2.1	Energetische Auswirkung . . . . .	107
5.2.2	Ökologische und Ökonomische Auswirkung . . . . .	108
5.3	Sensitivitätsanalyse . . . . .	114
5.3.1	Parameter der Gasinsel . . . . .	114
5.3.2	Parameter der Gasverwendung . . . . .	119
5.3.3	Prozesskonfiguration . . . . .	121
5.3.4	Fazit . . . . .	124
5.4	Potentialanalyse . . . . .	125
5.5	Exergetische Verlustanalyse . . . . .	127
<b>6</b>	<b>Potential zukünftiger IGCC-Konzepte</b>	<b>133</b>
6.1	IGCC mit membranbasierter Sauerstofferzeugung . . . . .	133
6.1.1	Konzeptbeschreibung . . . . .	133
6.1.2	Konzeptanalyse IGCC-OTM . . . . .	135
6.1.3	Potentialabschätzung IGCC-OTM . . . . .	141
6.2	IGCC mit Membranreaktor . . . . .	143
6.2.1	Konzeptbeschreibung . . . . .	143
6.2.2	Konzeptanalyse IGCC-MR . . . . .	146
6.2.3	Potentialabschätzung IGCC-MR . . . . .	151
6.3	IGCC mit Carbonate Looping . . . . .	154
6.3.1	Konzeptbeschreibung . . . . .	154
6.3.2	Konzeptanalyse IGCC-CL . . . . .	156
6.3.3	Potentialabschätzung IGCC-CL . . . . .	162
6.4	IGCC mit Sauerstoffverbrennung . . . . .	165
6.4.1	Konzeptbeschreibung . . . . .	166
6.4.2	Konzeptanalyse IGCC-Oxy . . . . .	169
6.4.3	Potentialabschätzung IGCC-Oxy . . . . .	175
6.5	IGCC mit integrierter Brennstoffzelle . . . . .	179
6.5.1	Konzeptbeschreibung . . . . .	179

6.5.2	Konzeptanalyse IGCC-BZ . . . . .	181
6.5.3	Potentialabschätzung IGCC-BZ . . . . .	186
<b>7</b>	<b>Vergleich und Bewertung der Konzepte</b>	<b>191</b>
<b>8</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>202</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	





# Abbildungsverzeichnis

1	Übersicht Vergasungskapazität nach Nutzungsart . . . . .	3
2	Typische Anlagenkonfiguration eines IGCC-Kraftwerkes . . . . .	4
3	Schema der Kohlemahlung und -trocknung . . . . .	5
4	Schema der Kohleaufbereitung und -förderung . . . . .	6
5	Vereinfachte Darstellung einer kryogenen Niederdruckluftzerlegungsanlage .	7
6	Schema eines Flugstromvergasers mit Rohgaskühlungsoptionen . . . . .	9
7	Schema der Gasaufbereitung eines IGCC-Kraftwerks . . . . .	14
8	Vereinfachte schematische Darstellung der MDEA-Wäsche . . . . .	17
9	Schematische Darstellung des Claus-Prozess . . . . .	18
10	Schematische Darstellung der Tailgas-Behandlung . . . . .	19
11	Schema eines GuD-Prozesses als Teil eines IGCC-Kraftwerkes . . . . .	20
12	Qualitatives Verhalten von Festigkeit und Kosten der Brenngaszuführung .	23
13	Prinzip der verschiedenen Rückkühlungsarten . . . . .	25
14	Vereinfachtes Schema eines IGCC-Kraftwerkes mit CO <sub>2</sub> -Abtrennung . . . .	26
15	Varianten der Rohgaskonvertierung . . . . .	27
16	CO <sub>2</sub> -Aufnahmevermögen verschiedener Waschmittel . . . . .	30
17	Anlagenschema der selektiven Rectisolwäsche . . . . .	30
18	Vereinfachtes Schema des OTM-Prozesses . . . . .	35
19	Schema der Flüssigascheabscheidung . . . . .	40
20	Schema des Membran-Shift-Reaktors . . . . .	42
21	Übersicht zur Membranklassifizierung . . . . .	43
22	Bradford Ansatz für einfache Gasphasenreaktion bei CO-Konvertierung . .	47
23	Arrheniusdarstellung der Gleichgewichtskonstante für die WGS-Reaktion .	48
24	Dimensionen eines Dampfkraftwerkes mit Post-Combustion CO <sub>2</sub> -Abtrennung	50
25	Schema des Carbonate Looping Prozess . . . . .	50
26	Schema der CO <sub>2</sub> -Aufbereitung . . . . .	53
27	Aufbau und Wirkungsweise der SOFC-Brennstoffzelle . . . . .	53
28	Ermittlung des Wirkungsgradpotentials der Brennstoffzelle . . . . .	55
29	Vergleich verfügbarer SOFC-Bauarten . . . . .	57
30	Überblick zu realisierten und gegenwärtig geplanten IGCC-Kraftwerken . .	59
31	Schema der betrachteten Kraftwerkskonzepte . . . . .	66

32	Schema des thermodynamischen Modells der Gaserzeugung und -reinigung	69
33	Schema der Exergieberechnung	74
34	Methode zur Bestimmung der Stromgestehungskosten	76
35	Modell des Flugstromvergasers mit Wasserquench	79
36	Modell der Niederdruckluftzerlegungsanlage	81
37	Modell der CO-Konvertierung	82
38	Verifizierung der CO-Konvertierung	83
39	Modell der selektiven Methanolwäsche	84
40	Vergleich des Strombedarfs bei ausgewählten Drücken	86
41	Anlagenkonfiguration des IGCC-Konzepts ohne CO <sub>2</sub> -Abtrennung	95
42	Energiebilanz IGCC-Konzept ohne CO <sub>2</sub> -Abtrennung	97
43	Einordnung der spezifischen CO <sub>2</sub> -Emissionen des IGCC-Konzepts	99
44	Zusammensetzung der ermittelten Stromgestehungskosten beim IGCC ohne CO <sub>2</sub> -Abtrennung	102
45	Einfluss ausgewählter Parameter auf die Stromgestehungskosten des IGCC ohne CO <sub>2</sub> -Abtrennung	103
46	Sensitivitätsanalyse ausgewählter Parameter auf Stromgestehungskosten des IGCC ohne CO <sub>2</sub> -Abtrennung	104
47	Konfiguration des IGCC mit CO <sub>2</sub> -Abtrennung (Basisfall)	105
48	Energiebilanz IGCC-Konzept mit CO <sub>2</sub> -Abtrennung	107
49	Einordnung der spezifischen CO <sub>2</sub> -Emissionen des IGCC-Konzepts mit CO <sub>2</sub> -Abtrennung	109
50	Zusammensetzung der ermittelten Stromgestehungskosten beim IGCC mit CO <sub>2</sub> -Abtrennung	111
51	Einfluss ausgewählter Parameter auf die Stromgestehungskosten des IGCC mit CO <sub>2</sub> -Abtrennung	112
52	Sensitivitätsanalyse ausgewählter Parameter auf Stromgestehungskosten des IGCC mit CO <sub>2</sub> -Abtrennung	113
53	Einfluss des Einsatzstoffes auf den IGCC-Anlagenwirkungsgrad	115
54	Einfluss des CO <sub>2</sub> -Abtrennungsgrades auf den IGCC-Anlagenwirkungsgrad	118
55	Einfluss der TET (ISO) auf den IGCC-Anlagenwirkungsgrad	120
56	Einfluss des Kondensatordrucks auf den IGCC-Anlagenwirkungsgrad	121
57	Vergleich der Spurenstoffkonzentration im CO <sub>2</sub> -Strom	124
58	Potentialanalyse des konventionellen IGCC mit CO <sub>2</sub> -Abtrennung	125
59	Optimierungspotential des konventionellen IGCC mit CO <sub>2</sub> -Abtrennung	127
60	Exergieflussdiagramm des IGCC-Basisfall	128

61	Exergetische Verlustanalyse der IGCC-Teilsysteme . . . . .	129
62	Exergetische Verlustanalyse der wesentlichen IGCC-Einzelsysteme . . . . .	130
63	Ranking der Einzelsysteme nach Dissipationsbetrag zu Gesamtverlusten . . . . .	132
64	Übersicht zu den ausgewählten OTM-Konzepten . . . . .	135
65	Einfluss der OTM-Integration auf den IGCC-Nettowirkungsgrad . . . . .	136
66	Sensitivitätsanalyse des OTM-Moduls . . . . .	137
67	Potentialanalyse des IGCC mit OTM-Prozess . . . . .	141
68	Schema der mittelfristigen Anlagenkonfiguration des MR-I-Konzepts . . . . .	145
69	Schema der langfristigen Anlagenkonfiguration des MR-II-Konzepts . . . . .	146
70	Energiebilanz des MR-I-Konzepts . . . . .	147
71	Einfluss TET und Kondensatordruck auf Anlagenwirkungsgrad . . . . .	148
72	Einfluss der Druckdifferenz über Membran und Gasturbine auf den Anlagenwirkungsgrad . . . . .	149
73	Einfluss Retentatdruck auf CO <sub>2</sub> -Kondensation und Verdichtung . . . . .	150
74	Potentialanalyse des MR-Konzepts . . . . .	151
75	Schema der mittelfristigen Anlagenkonfiguration des CL-I-Konzepts . . . . .	154
76	Schema der langfristigen Anlagenkonfiguration des CL-II-Konzepts . . . . .	156
77	Energiebilanz des CL-I-Konzepts . . . . .	157
78	Einfluss der GUD-Parameter auf den Anlagenwirkungsgrad . . . . .	159
79	Einfluss der CO <sub>2</sub> -Abtrennung auf den Anlagenwirkungsgrad (a) und OTM (b) . . . . .	161
80	Einfluss der Gasturbinenparameter auf angrenzende Systeme . . . . .	161
81	Potentialanalyse des IGCC-CL-Konzepts . . . . .	163
82	Schema der mittelfristigen Anlagenkonfiguration des Oxy-I-Konzepts . . . . .	167
83	Detailschema des Gas- und Dampfkreislaufes des Oxy-Konzepts . . . . .	168
84	Schema der langfristigen Anlagenkonfiguration des Oxy-II-Konzepts . . . . .	169
85	Energiebilanz des Oxy-I-Konzepts . . . . .	169
86	Einfluss der Gasturbinenparameter (TET und Druck) auf Anlagenwirkungsgrad . . . . .	172
87	Einfluss des Kondensatordrucks auf Anlagenwirkungsgrad (a) und CO <sub>2</sub> -Aufbereitung (b). . . . .	173
88	Verhalten des Kondensatordrucks (a) und des Kondensat pH-Werts (b) bei der Rauchgaskondensation (eigene Berechnung) . . . . .	174
89	Potentialanalyse des Oxy-Konzepts . . . . .	175
90	Schema der mittelfristigen Anlagenkonfiguration des BZ-I-Konzepts . . . . .	180
91	Schema der langfristigen Anlagenkonfiguration des BZ-II-Konzepts . . . . .	181

92	Energiebilanz des BZ-I-Konzepts . . . . .	182
93	Einfluss der Stromdichte auf Wirkungsgrad (a) und Zellspannung (b) . . .	183
94	Einfluss des Betriebsdrucks auf BZ-Wirkungsgrad (a) und Zellspannung (b)	185
95	Einfluss des Brennstoffumsatzes und der Zellspannung auf den Anlagenwir- kungsgrad . . . . .	186
96	Potentialanalyse des IGCC-BZ-Konzepts . . . . .	187
97	Mittelfristiges Wirkungsgradpotential der ausgewählten Konzepte . . . . .	192
98	Langfristiges Wirkungsgradpotential der ausgewählten Konzepte . . . . .	194
99	Übersicht zu den erzielbaren spezifischen CO <sub>2</sub> -Emissionen . . . . .	196

## Tabellenverzeichnis

1	Hauptreaktionen bei der Flugstromvergasung . . . . .	10
2	Spurenstoffen im Rohgas und deren Auswirkungen . . . . .	12
3	Charakterisierung ausgewählter Aminwäschen . . . . .	15
4	Vergleich der Eigenschaften von Synthesegas und Erdgas . . . . .	21
5	Charakterisierung ausgewählter physikalischer Wäschen . . . . .	28
6	Auswirkung der CO <sub>2</sub> Abtrennung auf Brenngaseigenschaften . . . . .	32
7	CO <sub>2</sub> Qualitäten verschiedener Transport und Speicherprojekte . . . . .	33
8	Übersicht zum Stand der Warm- und Heißgasreinigung . . . . .	38
9	Übersicht zum Stand der Membranreaktorforschung . . . . .	45
10	Experimentell ermittelte Reaktionsparameter für die Wassergasshift Reaktion bei hohen Temperaturen . . . . .	48
11	Vergleich ausgewählter Studien von Steinkohle IGCC Kraftwerken . . . . .	58
12	Verifizierung des Vergasermodells . . . . .	80
13	Verifizierung der Massebilanz der selektiven Sauer gaswäsche . . . . .	84
14	Vergleich des SOFC-Modells mit der Literatur . . . . .	89
15	Zusammensetzung der Luft . . . . .	90
16	Charakterisierung ausgewählter Einsatzstoffe . . . . .	91
17	Randbedingungen im Gas- und Dampfturbinenteil . . . . .	92
18	Übersicht der konzeptspezifischen Simulationsannahmen . . . . .	93
19	Anforderungen an die CO <sub>2</sub> -Reinheit . . . . .	94
20	Ökonomische Randbedingungen für die Wirtschaftlichkeitsanalyse . . . . .	94
21	Investitionskostenermittlung und -verteilung IGCC ohne CO <sub>2</sub> -Abtrennung	100
22	Abschätzung aktueller Investitionskosten für Steinkohlekraftwerke . . . . .	100
23	Übersicht zur Investitionskostenermittlung und -verteilung . . . . .	109
24	Einfluss der OTM-Integration auf die Stoffströme der Gasturbine . . . . .	140
25	Analyse des Gasturbinenarbeitsmediums (Werte aus Epsilon) . . . . .	171
26	Simulationsergebnisse der zukünftigen IGCC-Konzepte . . . . .	191
27	Qualitative Aspekte der zukünftigen IGCC-Konzepte . . . . .	198



# Abkürzungsverzeichnis

AHDE	Abhitzedampferzeugung
Apr/th	Abtrennungsrate (prakt./theoret.)
BF	Basisfall
BRD	Bundesrepublik Deutschland
BZ	Brennstoffzelle
C/GtL	Coal/Gas to Liquid
CL	Carbonate Looping
COP	Coefficient of Performance
CCS	Carbon Capture & Storage
DEA	Diethanolamin
DIPA	Di-Isopropanolamin
DKW	Dampfkraftwerk
DOE	Department of Energy
ECO	Economizer
EOR	Enhanced Oil Recovery
FAA	Flüssiggascheabscheidung
GUD	Gas- und Dampf
GT	Gasturbine
GWh	Gigawattstunden
HD	Hochdruck
HGR	Heißgasreinigung
IGCC	Integrated Gasification Combined Cycle
i.B.	im Betriebszustand
ISO	International Organization for Standardization
k.A.	keine Angabe
KGA	Kühlgrenzabstand
KW	Kühlwasser
LZA	Luftzerlegung

Ma.-%	Masseprozent
MDEA	Methyldiethanolamin
MEA	Monoethanolamin
MR	Membranreaktor
Mol-%	Molprozent
Mrd.	Milliarden
MWh	Megawattstunden
MWel/th	Megawatt elektrisch/thermisch
ND	Niederdruck
NETL	Natioonal Energy Technology Laboratory
O&M	Operation & Maintainance
OTM	Oxygen Transfer Membrane
ppmv/w	parts per million volume/weight
pMem	Partialdruckgefälle über Membran
pKond	Kondensatordruck
RoGa	Rohgas
SdT	Stand der Technik
SOFC	Solid Oxide Fuel Cell
TET	Turbineneintrittstemperatur
Vol.-%	Volumenprozent
WACC	Weighted average costs of capital
WGR	Warmgasreinigung
WGS	Wassergas-Shift Reaktion
WÜ	Wärmeübertrager
WTA	Wirbelschichttrocknung



# Symbolverzeichnis

Ho	Brennwert
Hu	Heizwert
a	Jahr
°C	Grad Celsius
F	Faraday Konstante
j	Fluss durch Membran
K	Kelvin
k	Permeanz
$\kappa$	Gewichtungsfaktor (Exergie)
$\lambda$	Lambda
$\lambda$	Dissipationsgrad (Exergie)
n	Elektrische Ladung
px	Partialdruck x
P	Druck
$\pi$	Druckverhältnis GT
$\rho$	Dichte
$\eta$	dynamische Viskosität
$\epsilon$	Dissipationsbeitrag (Exergie)
$\sigma$	Leitfähigkeit
$\eta$	Wirkungsgrad
T	Temperatur
R	Retentat
R	ideale Gaskonstante



## Kurzfassung

Trotz des Wandels in der Energieversorgung werden fossile Energieträger auch weiterhin notwendig sein, um den weltweit steigenden Energiebedarf zu decken. Die vorliegende Arbeit untersucht daher zukünftige IGCC-Kraftwerke, welche  $\text{CO}_2$  möglichst vollständig abtrennen und zugleich effizient Strom erzeugen. Ausgangspunkt der Betrachtungen bildet das klassische IGCC nach Stand der Technik. Dieses kann bereits hohe Nettowirkungsgrade von gut 50% erreichen. Allerdings führen die  $\text{CO}_2$ -Emissionen von 672 g/kWh zu einem Anstieg der Stromgestehungskosten auf rund 81 €/MWh. Durch Abtrennung von  $\text{CO}_2$  können die Emissionen auf etwa 88 g/kWh reduziert werden, was aber einen deutlichen Rückgang des Wirkungsgrades um 11,4 %-Punkte verursacht. Dies führt zu hohen Break-even  $\text{CO}_2$ -Zertifikatspreise im Bereich von 32 € je Tonne.

Maßgeblich werden die genannten Verluste im IGCC durch die vier Teilsysteme Gasturbine, Quenchvergaser, CO-Konvertierung und Luftzerlegung verursacht. Ein Vergleich mit dem idealen Vergleichsprozess konnte hier nur begrenztes Optimierungspotential aufzeigen. Aus diesem Grund werden fünf zukünftige IGCC-Kraftwerkskonzepte vorgeschlagen und deren Potential sowohl mittel- wie auch langfristig bewertet. Die ausgewählten Kraftwerkskonzepte umfassen ein IGCC mit Sauerstoffmembran (OTM) sowie eines mit Membran-Shift-Reaktor (MR). Zudem wird ein IGCC mit  $\text{CO}_2$ -Abtrennung aus dem Abgas mittels Carbonate Looping Prozess (CL) sowie ein Konzept nach dem Oxy-fuel Prinzip (Oxy) betrachtet. Abschließend wird im BZ-Konzept noch die Kombination aus IGCC und Hochtemperaturbrennstoffzelle untersucht.

Mittelfristig zeigen dabei IGCC-Kraftwerke mit vollständig integrierter OTM-basierter Luftzerlegung (2,5 %-Punkte) sowie Konzepte mit Membran-Shift-Reaktor (2,9 %-Punkte) das höchste Wirkungsgradpotential. Die Varianten mit Post-Combustion Capture und Oxyfuel Ansatz zeigten hingegen kein aussichtsreiches, mittelfristiges Potential. Das mit Abstand höchste Potential bietet die Kombination aus IGCC-Prozesses und Brennstoffzelle (5,1 %-Punkte). Zudem konnte bei den zukünftigen Konzepten die  $\text{CO}_2$ -Restemission um bis zu 90% gegenüber dem klassischen IGCC mit  $\text{CO}_2$ -Abtrennung gesenkt werden.

Hinsichtlich des langfristig erzielbaren Wirkungsgradpotentials erreichen sowohl das IGCC mit Membran-Shift-Reaktor (MR) als auch das Konzept mit nachgelagerter  $\text{CO}_2$ -Abtrennung via Carbonate Looping Prozess (CL) hohe Nettowirkungsgrade um 47,7%. Dieser Wert ist aber stark von den jeweiligen zentralen Teilsystemen und deren Simulationsannahmen abhängig. Zudem sollte das CL-Konzept aufgrund des hohen Integra-

tionsgrads weniger flexibel im Betrieb sein und aus diesem Grund auch eine tendenziell geringere Verfügbarkeit aufweisen. Das Membranreaktor-Konzept (MR) bietet hingegen eine effiziente Möglichkeit zur gekoppelten Erzeugung von Strom und Wasserstoff. Das Oxyfuel-Konzept zeigt nur langfristig aussichtsreiches Wirkungsgradpotential von 46,2%. Dieses ist vornehmlich mit der Integration des OTM-Prozesses und der Steigerung der Gasturbinenparameter verbunden. Das höchste Wirkungsgradpotential zeigt auch langfristig die Kombination aus IGCC und SOFC. Besonders vorteilhaft sind der Druckbetrieb sowie die externe Kühlung der SOFC. In Kombination mit weiteren Optimierungsschritten sind so langfristig Wirkungsgrade von 61,1% erreichbar. Allerdings erfordern alle langfristigen Konzepte noch beträchtlichen Entwicklungsaufwand um die hier getroffenen Randbedingungen auch wirklich zu realisieren.

## Abstract

The transformation of the energy sector towards a more sustainable and environmental friendly structure still relies on fossil fuels. Therefore future IGCC plants are investigated, which combine efficient power production with CO<sub>2</sub> capture. The basis of this work is a conventional IGCC plants, which is already able to reach 50% efficiency today. However, the resulting CO<sub>2</sub> emissions of 672 g per kWh will increase the cost of electricity to approximately 81 € per MWh. Through implementation of a capture process those emissions can be reduced to 88 g/kWh. Unfortunately, this causes a significant efficiency drop of 11.4 %-points, which leads to breakeven CO<sub>2</sub> emission prices in the range of 32 € per ton. The majority of the losses in the system are caused by the gas turbine, quench gasifier, CO conversion and air separation unit. All of them are mature technology with limited potential for further optimization.

For this reason five future IGCC power plant concepts are suggested and evaluated for their mid and long term potential. For the mid term, concepts with integrated OTM based air separation as well as plants with a membrane enhanced shift conversion showed the highest efficiency potential of 2.5 and 2.9 %-points, respectively. The concepts with post-combustion capture and oxyfuel approach showed only very limited potential. However, the by far highest potential showed the combination of IGCC and high temperature fuel cell (5.1 %-points). Moreover, the future concepts enabled very low remaining CO<sub>2</sub> emissions, up to 90% below the conventional IGCC with CO<sub>2</sub> capture.

Regarding the long term potential, both, the membrane reactor concept as well as the carbonate looping concept showed high efficiency potential of up to 47.7%. However, the potential is highly dependent on the assumed performance of the new technology. Furthermore, the high degree of integration in the CL concept should reduce the plant flexibility and might also effect the availability. In contrary, the MR concept provides the possibility to simultaneously produce hydrogen and electricity. In the long term, the oxyfuel concept showed also a promising efficiency potential of 46.2%. Unfortunately, most of the potential is related to integration of the OTM process and the development of the gas turbine. Furthermore, the different working fluid in the turbine and the oxygen combustion requires substantial modifications of the gas turbine. Once again, the highest efficiency potential is achieved by the integration of the SOFC into the IGCC process. Especially, the pressurized operation of the fuel cell as well as external cooling have very positive effects on plant efficiency. In this way a long term efficiency potential of 61.1% seems realistic. However, all proposed IGCC concepts require substantial research efforts.



# 1 Stand der Technik

## 1.1 Fossile Kraftwerke mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung

Der Anstieg der CO<sub>2</sub>-Konzentration in der Atmosphäre wird als der wesentlichste Faktor für die anthropogene Beeinflussung des Klimas angesehen [IPCC 2005]. Daher gibt es weltweit Bestrebungen, den CO<sub>2</sub>-Ausstoß, insbesondere bei fossilen Kraftwerken, zu reduzieren. Da auch mittelfristig fossile Energieträger für die Stromerzeugung [BP 2011, IPCC 2007] erforderlich sind, werden Carbon Capture and Storage (CCS) Konzepte, welche das CO<sub>2</sub> aus dem Kraftwerksprozess abtrennen und unterirdisch dauerhaft speichern, erforscht. Verfolgt werden dabei bislang drei grundsätzliche Abtrennungskonzepte. Das sogenannte Post-Combustion Konzept basiert auf konventioneller Kraftwerkstechnik und trennt das CO<sub>2</sub> mittels Waschverfahren aus dem verdünnten Rauchgas ab. Der Oxy-fuel Ansatz umgeht die Verdünnung des Abgases mit Stickstoff durch die Umsetzung des Brennstoffes mit reinem Sauerstoff. Das Kohlendioxid kann dabei durch Kondensation des Wassers direkt aus dem Abgas gewonnen werden. Neben den Verbrennungskonzepten wird noch ein auf Vergasung basierender Kraftwerksprozess verfolgt. So wird bei der Integrated Gasification Combined Cycle (IGCC) Technologie der Brennstoff zunächst in ein Rohgas überführt, welches nach der Reinigung in einem Gas- und Dampfturbinenprozess effizient verbrannt werden kann. Bereits während der Aufbereitung des Rohgases wird das CO<sub>2</sub> in konzentrierter Form mittels physikalischer Wäschen abgetrennt. Da dies vor der Verbrennung des Gases geschieht, wird dieser Ansatz als Pre-Combustion CO<sub>2</sub>-Abtrennung bezeichnet.

Bislang konnte sich noch keine der drei CCS-Strategien durchsetzen, da alle ihre spezifischen Vor- und Nachteile haben und der Schritt von kleineren Pilotanlagen hin zu industriellen Demonstrationsanlagen noch nicht vollzogen ist. Aufgrund der angedachten signifikanten Rolle der CO<sub>2</sub>-Abtrennung zur Umsetzung der Emissionsminderungsziele gibt es weltweit umfangreiche staatliche Förderprogramme und Absichtserklärungen, welche auf die Realisierung kommerzieller Anlagen bis 2020 abzielen. Die teilweise beträchtlichen finanziellen Förderungen sollen dabei die deutlich höheren Investitionskosten, die abtrennungsbedingte verminderte Effizienz sowie die geringere Verfügbarkeit der „first of its kind“ Anlagen kompensieren. Auf die weiteren Herausforderungen, wie dem Aufbau einer CO<sub>2</sub>-Speicher und Transportinfrastruktur, der gesellschaftlichen Akzeptanz sowie Rechtssicherheit soll an dieser Stelle nur hingewiesen werden. Diese Unwägbarkeiten, in

Verbindung mit den abtrennungsbedingt signifikant steigenden Stromgestehungskosten, verzögert die Umsetzung von Kraftwerken mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung maßgeblich.

Da auch mittelfristig fossile Energieträger als unverzichtbar gelten [IPCC 2005], ist die technologische Weiterentwicklung der einzelnen Konzepte, sowohl unter thermodynamischen wie auch ökonomischen Gesichtspunkten, zwingend erforderlich für die zukünftige klimafreundliche Energieversorgung. Dabei soll der Fokus der vorliegenden Arbeit auf den vergasungsbasierten IGCC-Kraftwerken liegen, da diese aufgrund des Gas- und Dampfkreislaufs ein höheres theoretisches Wirkungsgradpotential aufweisen als Dampfkraftwerke. Außerdem zeigen diese Kraftwerke eine hohe Brennstoffflexibilität sowie ein besseres dynamisches Verhalten. Die vorgeschaltete Synthesegaserzeugung ermöglicht zudem die Produktion von Wasserstoff oder Syntheseprodukten, was eine effiziente Form der Energiespeicherung in Zeiten geringer Stromnachfrage darstellt.

## 1.2 Energiewandlung mittels Partialoxidation

Das Prinzip von Kraftwerken mit integrierter Vergasung findet bereits 1950 Erwähnung [Gumz 1950]. Dabei kann die Technologie der Vergasung selbst, also die Überführung fester Brennstoffe in brennbares Gas, bis in die Mitte des 19. Jahrhunderts zurück verfolgt werden [Higman et al. 2008]. Der Haupteinsatzbereich der Vergasungstechnologie liegt nach wie vor in der stofflichen Nutzung. Aufgrund der erzielbaren vielseitigen Produktpalette ist die Technologie in der Petro- und Synthesechemie langjährig bewährt und führte zum Aufbau einer wachsenden Anlagenkapazität (Abbildung 1).

Im Zuge der Ölkrise und dem damit verbundenen starken Ölpreisanstieg wurden zunehmend alternative Treibstoffquellen interessant und erforscht. Dies führte zu einem verstärkten Ausbau der Vergasungskapazitäten. Eine besondere Rolle spielt dabei die Firma Sasol, welche aufgrund der Isolation Südafrikas frühzeitig Coal-to-Liquid (CtL) Anlagen mit rund 14 GWth Leistung aufgebaut hatte und damit zwischenzeitlich mehr als die Hälfte der weltweiten Vergasungskapazität besaß. In neuerer Zeit kommt es verstärkt zum Bau von Gas-to-Liquid (GtL) Anlagen in den erdgasproduzierenden Ländern wie Katar, wo erst kürzlich eine 10 GWth Anlage (Pearl) in Betrieb genommen wurde. Im Bereich der Chemieprodukte kann insbesondere ab der Jahrtausendwende ein starker Zubau nachgewiesen werden, der vor allem auf China zurückzuführen ist und überwiegend auf die Ammoniakherstellung abzielt [DOE 2010].

Der Anteil der Stromerzeugung ist dagegen bislang noch vergleichsweise gering, weist aber hohe Zuwachsraten auf. Die energetische Nutzung beginnt im großtechnischen Stil in den 90iger Jahren mit der Inbetriebnahme der vier großen Demonstrationsanlagen:



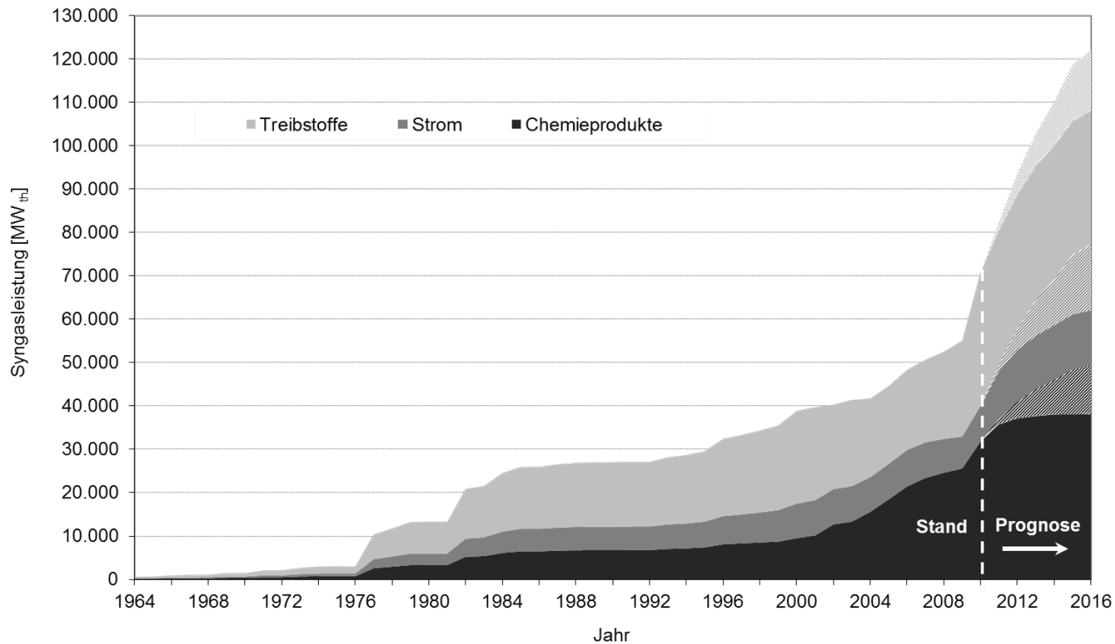


Abbildung 1: Übersicht Vergasungskapazität nach Nutzungart (eigene Darstellung nach [DOE 2010])

Wilhelm Alexander IGCC (1992), Polk Power Station IGCC Tampa (1996), Wabash River (1995), ELCOGAS Puertollano (1998). Dabei wurde aufgrund der Kombination von Vergasung und dem klassischen Gas- und Dampfturbinen Kraftwerk der englische Begriff IGCC (Integrated Gasification Combined Cycle) geprägt. Die Anlagen weisen inzwischen bis zu 20 Jahre an Betriebserfahrungen auf und zeichnen sich durch vergleichsweise hohe Wirkungsgrade, Brennstoffflexibilität sowie geringe Emissionen aus. Dennoch konnte sich die Technologie aufgrund der höheren Kosten und tendenziell geringeren Verfügbarkeit nicht gegen konventionelle Dampfkraftwerke durchsetzen. Eine Renaissance erfuhr die IGCC-Technologie in den letzten Jahren vor dem Hintergrund der weltweiten Klimadiskussionen mit den einhergehenden CO<sub>2</sub>-Reduktionsbestrebungen. Die Möglichkeit, bei der IGCC-Technologie das Kohlendioxid vor der Verbrennung aus einem vergleichsweise kleinen Brenngasmassenstrom abzutrennen, impliziert eine effektivere Abscheidung gegenüber der Abtrennung aus dem stark verdünnten Abgas der konventionellen Dampfkraftwerke. Zudem hat sich die dafür notwendige Technologie bereits im Bereich der Petrochemie langjährig bewährt. Im Folgenden soll nun zunächst auf die Struktur und Wirkungsweise eines IGCC-Kraftwerkes sowohl mit als auch ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung eingegangen werden. Darüber hinaus werden im Kapitel 1.5 aussichtsreiche zukünftige Technologien vorgestellt

und ein Überblick über bisherige Studien und aktuelle Projekte (Kapitel 1.6) gegeben.

### 1.3 IGCC-Kraftwerke

Eine IGCC Anlage ist im Wesentlichen eine Kombination aus einem Gas- und Dampfkraftwerk (GUD) sowie einem Vergasungsteil. In letzterem Teilsystem wird das für den GUD-Teil notwendige Brenngas aus festen oder flüssigen Brennstoffen erzeugt. Da das Rohgas eine Reihe von Verunreinigungen enthält, ist eine umfangreiche Gasreinigung notwendig, um die Anforderungen an das Brenngas zu erfüllen. Entsprechend kann ein drittes Teilsystem, die Gasreinigung, definiert werden. Aufgrund der Vielzahl von einsetzbaren Technologien kann an dieser Stelle nur eine Auswahl berücksichtigt werden, die für die gewählten Kraftwerkskonzepte relevant sind. Weiterhin wird nur die autotherme Flugstromvergasung mittels Sauerstoff und pneumatischer Kohlezuführung betrachtet. Der notwendige Sauerstoff wird dabei über eine kryogene Luftzerlegung erzeugt. Demnach lässt sich ein typisches Anlagenschema gemäß Abbildung 2 bilden. Die Wirkungsweise der einzelnen Teilsysteme und deren Zusammenhänge werden im Folgenden detailliert diskutiert.

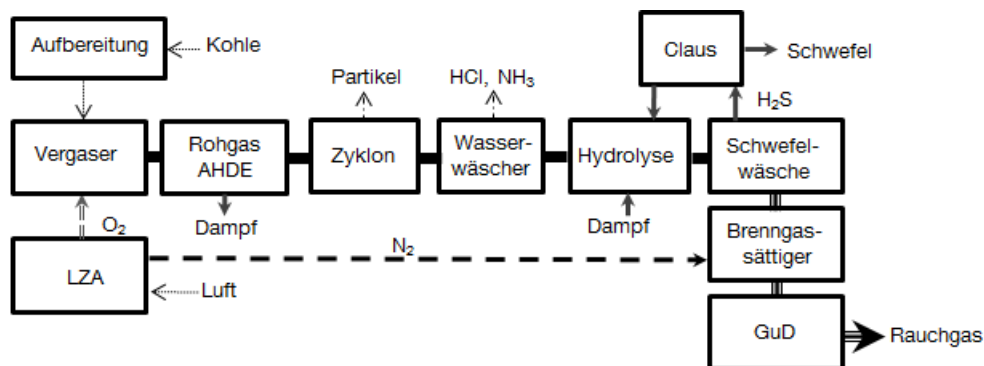


Abbildung 2: Typische Anlagenkonfiguration eines IGCC-Kraftwerkes

#### 1.3.1 Vergaserinsel

Das Teilsystem Vergasungsinsel umfasst neben dem Vergaser selbst, im Wesentlichen Nebensysteme zur Einsatzstoffaufbereitung, zur Bereitstellung von Sauerstoff und Transportgas sowie zur Rohgaskühlung. Bei der verwendeten Flugstromvergasung werden hinsichtlich Aufbereitung des Einsatzstoffes die höchsten Ansprüche gestellt. So ist dieser bis auf eine Körngröße im Bereich von 50 bis 100  $\mu\text{m}$  aufzumahlen [Higman et al. 2008]. Realisiert wird dies je nach Einsatzstoff mit Walzen- oder Schüsselmühlen [Higman et al. 2008]. Der

Energiebedarf richtet sich nach der Härte der Kohle beim Mahlen (Hardgrove Index), sowie der Mahlgüte (Feinheit). Darüber hinaus ist in der Regel eine Trocknung notwendig. Bei Steinkohle wird dazu Heißgas aus einer Synthese- oder Erdgasverbrennung genutzt, welches in den Mahlraum eingeblasen wird (Abbildung 3). Die Kohlepartikel werden dann bei entsprechender Feinheit mit dem Heißgas ausgetragen und im Zyklon abgetrennt. Das etwa 300°C heiße Trocknungsgas wird anschließend teilweise im Kreislauf gefahren. Die Restfeuchte der Steinkohle liegt dabei in der Größenordnung von 2 Ma.-% [Lösche 2009].

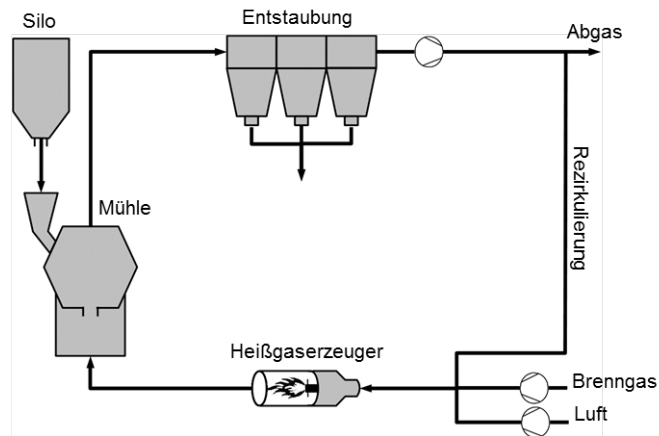


Abbildung 3: Schema der Kohlemahlung und -trocknung (eigene Darstellung nach [Lösche 2009])

Die aufbereitete Kohle wird in Druckschleusensystemen auf rund 5 bar über Vergaserdruckniveau verdichtet. Eingesetzt wird dazu Hochdruckgas, etwa Stickstoff oder Kohlendioxid. Bei der Berechnung der erforderlichen Gasmenge ist zu beachten, dass die Behälter nicht vollkommen gefüllt sind, Volumen zwischen den Partikeln bleibt und die Kohle porös ist (Porenvolumen). Als Abschätzung kann eine Schüttdichte von  $650 \text{ kg/m}^3$  sowie eine Reindichte von  $1550$  und  $1450 \text{ kg/m}^3$  für Stein- bzw. Braunkohle angenommen werden [Korobov 2004], [Higman et al. 2008]. Nach der Druckerhöhung muss ein weiterer Gassstrom bereitgestellt werden, um die Kohle mit einer Dichte von  $300$  bis  $450 \text{ kg/m}^3$  (i.B) pneumatisch zum Brenner zu fördern [Schingnitz 2008]. Eingesetzt werden können dafür alle kondensatfreie Gase mit einem Sauerstoffgehalt von unter 2 Vol.-%, vornehmlich aber Stickstoff aus der Luftzerlegung oder Kohlendioxid. Die pneumatische Förderung ist durch die Druckschleusen mit einem hohen apparativen Aufwand verbunden und auf Drücke von maximal 50 bar limitiert. Allerdings ist das Druckniveau für IGCC-Anlagen ausreichend und die trockene Zuführung material- und brennerschonend [Higman et al. 2008].

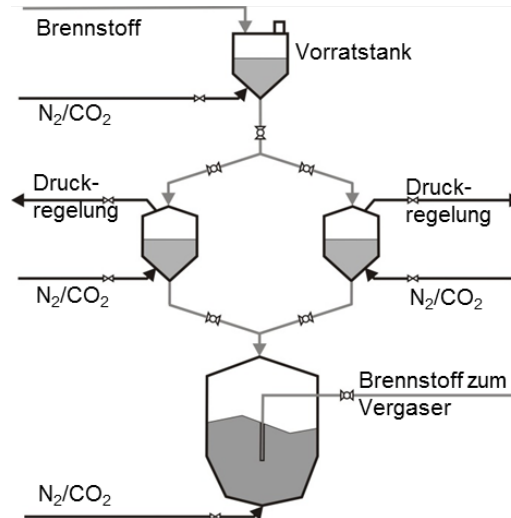


Abbildung 4: Schema der Kohleaufbereitung und -förderung (eigene Darstellung nach [Lösche 2009, Schingnitz et al. 2005])

Alternativ zum beschriebenen trockenen System existieren auch nasse Kohleaufbereitungsverfahren. Dabei wird die Kohle mit Wasser in Stabmühlen zerkleinert und dann als so genanntes Slurry mit einem Feststoffgehalt um 60 bis 70% zum Vergaser gepumpt. Dies ermöglicht eine signifikante Einsparung von Verdichtungsaufwand und Anlagenequipment. Allerdings bedingt die erosive und korrosive Natur des Slurry, hochwertigen Stahl und Beschichtungen entlang des Slurry-Pfades und führt zu einer deutlichen Reduzierung der Brennerlebenszeit [Tampa Electric 2002, Higman et al. 2008]. Außerdem ist der hohe Wasseranteil zumeist unnötiger Ballast, was den Kaltgaswirkungsgrad des Vergasers deutlich reduziert. Der Kaltgaswirkungsgrad ist das wesentliche Qualitätsmerkmal des Vergasers und gibt an, wieviel Brennstoffenergie sich chemisch gebunden im Rohgas wiederfindet. Da mittels Slurry aber höchste Drücke möglich sind, eignet sich die nasse Zuführung gut für Syntheseanwendungen.

Der für die Vergasung notwendige Sauerstoff wird in kryogenen Luftzerlegungsanlagen gemäß dem vereinfachten Anlagenschema in Abbildung 5 erzeugt. Dazu wird Luft auf rund 6 bar verdichtet und von Wasserdampf und  $\text{CO}_2$  mittels Molekularsieben (Silikagel) befreit. Anschließend wird die getrocknete Luft mittels Plattenwärmetauscher in der so genannten Cold Box gegen die austretenden Produktströme gekühlt. Da die Grädigkeiten hier nur wenige Grad [Springmann 1974] betragen und die Isolierung ausgereift ist, kann die Kälte (insbesondere die Verdampfungsenthalpie) der Produkte fast vollständig zurückgewonnen werden. Die vorgekühlte Luft wird nun entspannt, was gemäß dem Joule Thompson Effekt zu einer weiteren Abkühlung führt. Das Luftgemisch wird nun zunächst

in der Hochdruckkolonne getrennt. Im Sumpf reichert sich der Sauerstoff an, während sich am Kopf eine stickstoffreiche Fraktion bildet. Dieser wird in einem Kondensator, welcher gleichzeitig als Verdampfer der Niederdrucksäule fungiert, verflüssigt und dient in beiden Säulen als Rücklauf. Die sauerstoffreiche Fraktion wird in der Niederdruckkolonne weiter in reinen Sauerstoff (Sumpf der Kolonne) sowie Stickstoff mit geringerer Reinheit (Kopf der Kolonne) aufgetrennt [Hausen et al. 1985, Ogriseck 2006]. Die geforderte Reinheit des Sauerstoffs begründet dabei in Abhängigkeit des Druckniveaus der Niederdrucksäule den Druck in der Hochdrucksäule und damit den Verdichterenddruck. Die gasförmigen Produkte können nun nach der Cold Box via Kompressoren oder vor der Cold Box mittels Pumpen (interne Kompression) auf den erforderlichen Druck gebracht werden. Im letzten Fall steht der Einsparung des Verdichtungsaufwandes der Produkte allerdings ein erhöhter Aufwand im Luftverdichter gegenüber. Grund dafür ist die mit der Druckerhöhung verbundene höhere Verdampfungstemperatur, wodurch im Wärmetauscher weniger niedrige Lufttemperaturen erzielt werden können. Daher erfolgt die Druckerhöhung der Produkte bis 70 bar eher mit Verdichtern [Higman et al. 2008].

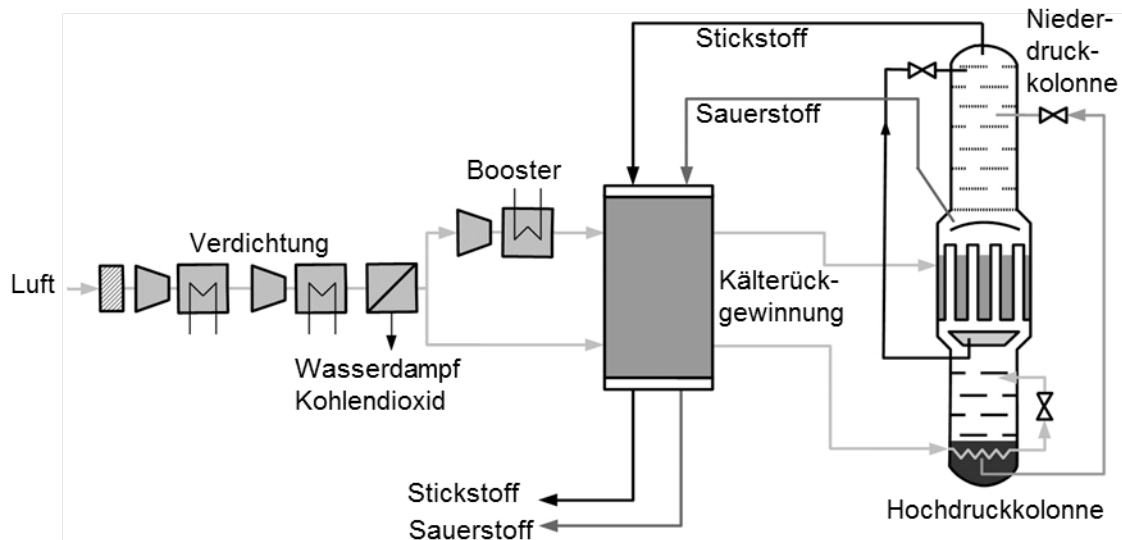


Abbildung 5: Vereinfachte Darstellung einer kryogenen Niederdruckluftzerlegungsanlage (eigene Darstellung nach [Higman et al. 2008])

Hauptinflussfaktoren auf den Energiebedarf der Luftzerlegungsanlage stellen die Sauerstoffreinheit sowie die Systemintegration dar. Für die luftseitige Integration wird die Luft aus der Gasturbine entnommen. Entsprechend muss der Kolonnendruck angepasst werden. Typische Größenordnungen sind 12 bis 17 bar. Diese Integration verringert den

Eigenbedarf der Sauerstofferzeugung, erhöht aber die Systemkomplexität und vermindert, wie in den IGCC Demonstrationsanlagen belegt [Spliethoff 2010], die Verfügbarkeit des Kraftwerkes. Mit steigender Sauerstoffreinheit steigt der Energiebedarf der Anlage aufgrund des erhöhten Trennaufwandes überproportional an. Daher wird in der Regel eine Reinheit von 95 bis 98% genutzt. Nach unten begrenzt wird die Reinheit einerseits durch den Stickstoffeintrag in das Rohgas, welche durch die Gasreinigung geschleust werden muss. Andererseits, bewirkt eine zu hohe Absenkung der Sauerstoffreinheit auch eine geringere Reinheit des verbleibenden Stickstoffstroms. Die LZA ist aber in den meisten Fällen stickstoffseitig integriert, was bedeutet, dass dem Brenngas Stickstoff zur Verdünnung beigemischt wird. Dies bedingt aber, dass zur Vermeidung von Selbstentzündung der Sauerstoffgehalt unter 2 Vol.-% gehalten werden muss. Entfällt dieser Aspekt ist laut Hersteller ein weiteres Energieeinsparpotential von 25% vorhanden [Beysel 2009].

Der Sauerstoff dient im Vergaser zur partiellen Oxidation des Brennstoffes. Auf diese Weise wird, über die Oxidationsreaktionen, die notwendige Wärme für die endothermen Vergasungsreaktionen im Prozess selbst bereitgestellt. Da Flugstromvergaser oberhalb der Ascheschmelztemperatur betrieben werden, ist die notwendige Ascheschmelzenthalpie ebenfalls durch die Oxidationsreaktionen zu decken. Dadurch ist zwar der Oxidationsmittelbedarf vergleichsweise hoch, der Prozess liefert dafür aber ein teerfreies Rohgas mit geringem Methangehalt. Dies ist insofern wichtig, als dass Methan als Kohlenstoffträger in der Gasreinigung nicht erfasst und daher zu erhöhter CO<sub>2</sub>-Emission führen würde. Neben den beiden Hauptströmen müssen dem Vergaser Sekundärbrennstoff, Spülgas und gegebenenfalls Dampf zugeführt werden. Im Falle von Braunkohle oder Kohle-Slurry kann letzteres entfallen, da der Brennstoff ausreichend Wasser in das System einträgt. Der Sekundärbrennstoff, in der Regel Erd- oder Synthesegas, dient der Flammenstabilisierung und ist notwendig für An- und Abfahrvorgänge. Der Brenner selbst kann sich sowohl am Kopf des Vergaser befinden als auch am Boden. Eine schematische Darstellung eines Flugstromvergasers inklusive verschiedener Rohgaskühlungsoptionen ist in Abbildung 6 dargestellt.

In der Vergasungszone werden durch die Umsetzung des Brennstoffs Temperaturen von 1200 bis 1600°C erreicht. Daher wird dieser Bereich entweder mit Feuerfestmaterial ausgekleidet oder gekühlt. Die Ausmauerung ist deutlich kostengünstiger muss aber im Bereich von 2 bis 3 Jahren [Tampa Electric 2002, Higman et al. 2008] komplett ausgetauscht werden. Für die kostenintensiveren, wassergekühlten Membranwände werden hingegen Lebensdauern von 25 Jahren erwartet [Chhoa 2005]. Die hohen Temperaturen bewirken ein Schmelzen der Asche. Es bildet sich daher eine Schlackeschicht an der Verga-

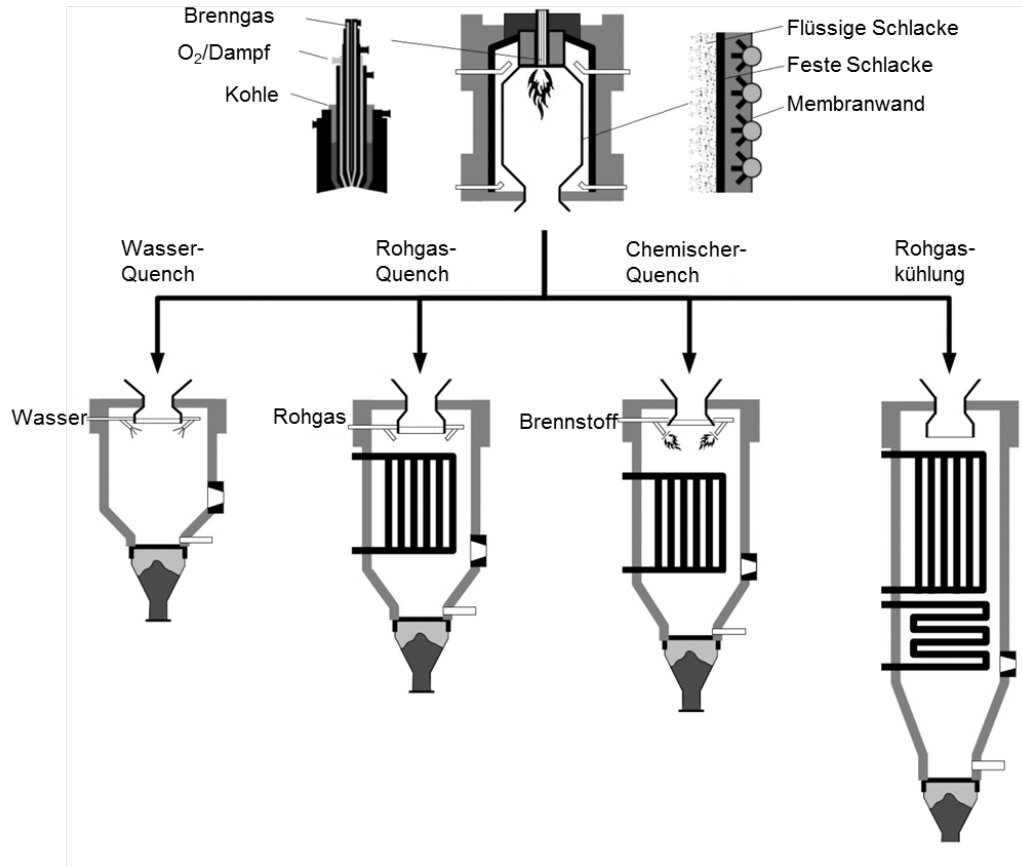


Abbildung 6: Schema eines Flugstromvergaseres mit Rohgaskühlungsoptionen (eigene Darstellung nach [Schingnitz et al. 2005, Schingnitz et al. 2005b])

serwand, welche bei Kühlung von außen erstarrt und damit eine Schutzschicht bildet. Die hochkorrosive flüssige Schlacke fließt auf dieser Schutzschicht ab und wird aus dem Vergaser ausgelesen. Da bei sinkender Temperatur die starre Schlackeschicht wächst, erhöht sich unweigerlich der Druckverlust. Die Temperatur im Vergaser wird daher wesentlich durch das Schmelzverhalten der Brennstoffrückstände beeinflusst. Dieses Schmelzverhalten wird wiederum durch das System  $SiO_2 - Al_2O_3 - CaO - FeO$  bestimmt und variiert je nach Kohlesorte. Dabei erhöhen Silizium und Aluminium die Schmelztemperatur, während Eisen sowie Kalzium diese absenken [Higman et al. 2008]. Damit die Schlacke kontrolliert abfließt und dennoch die Schutzschicht stabil bleibt, muss also das Oxidationsmittel entsprechend dem Druckverlust am Vergaseraustritt geregelt werden. Die ausgelesene und erstarrte Schlacke hat dabei einen Großteil der Schadstoffe des Brennstoffs in ihrer glasigen Struktur eingeschlossen. Insbesondere schwerflüchtige Komponenten wie Cobalt, Chrom, Nickel, Mangan, Vanadium werden im Vergasungsprozess überwiegend in die Schlacke eingebunden [Thompson et al. 2002, Harris et al. 2010]. Aufgrund der siche-

ren Einbindung sind die Eluatwerte der Schlacke sehr gut, weshalb diese ein Wertprodukt darstellt und als Baumaterial sowie zur Landschaftsverfüllung genutzt und verkauft werden kann [Ratafia-Brownl et al. 2002, DOE 2000].

Der Vergaserdruck orientiert sich bei stromerzeugenden Konzepten am Druckverhältnis der Gasturbine und wird daher unter Einbezug gewisser Druckverluste in der Gasreinigung in der Regel zwischen 25 und 50 bar liegen. Daher besteht die Außenhaut aus einem drucktragenden Stahlmantel. In der Reaktionszone selbst, reagieren die genannten Medien analog der Hauptgleichungen 1 – 15 (Tabelle 1).

Tabelle 1: Hauptreaktionen bei der Flugstromvergasung [Higman et al. 2008]

Bezeichnung	Reaktionen	$\Delta H_{R,0}$ [kJ/mol]
Hauptreaktionen		
Bouduard Reaktion	$C + CO_2 \leftrightarrow 2CO$	+ 160,9
Heterogene Wassergasreaktion	$C + H_2O \leftrightarrow CO + H_2$	+ 118,4
Heterogene Methanisierung	$C + 2H_2 \leftrightarrow CH_4$	- 87,4
Homogene Wassergasreaktion	$CO + H_2O \leftrightarrow CO_2 + H_2$	- 41,2
Homogene Methanisierung	$CO + 3H_2 \leftrightarrow CH_4 + H_2O$	- 205,8
Nebenreaktionen		
Verbrennungsreaktion	$C + 0,5O_2 \leftrightarrow CO$	- 111,0
Verbrennungsreaktion	$CO + 0,5O_2 \leftrightarrow CO_2$	- 283,0
Verbrennungsreaktion	$H_2 + 0,5O_2 \leftrightarrow H_2O$	- 242,0
Schwefelwasserstoff	$H_2 + 0,5S_2 \leftrightarrow H_2S$	- 20,7
Kohlenoxidsulfid	$CO + 0,5S \leftrightarrow COS$	- 32,0
Ammoniak	$N_2 + 3H_2 \leftrightarrow 2NH_3$	- 92,0
Blausäure	$N_2 + H_2O + 2CO \leftrightarrow 2HCN + 1,5O_2$	+ 733,0
Chlorwasserstoff	$CL_2 + H_2 \leftrightarrow 2HCL$	- 92,0

Ziel des Vergasungsprozesses ist es möglichst viel chemisch gebundene Energie des Brennstoffs in das Rohgas zu überführen. Entsprechend wird als Gütekriterium des Prozesses der Kaltgaswirkungsgrad angesehen, welcher die Effizienz dieser Überführung ausdrückt. Je nach Einsatzstoff sind für Flugstromvergaser mit pneumatischem Eintrag Werte im Bereich von 80 bis 83% üblich. Da das Gas aber mit sehr hoher Temperatur aus der Vergasungszone austritt und die folgende Gasreinigung niedrige Prozesstemperaturen erfordert, gilt es die fühlbare Enthalpie des Rohgas möglichst effektiv zu nutzen. Unterschieden wird hier im Wesentlichen zwischen der Abhitzedampfgewinnung und der Quench-Anordnung (Abbildung 6). Die energetisch deutlich effizientere Variante ist die Kühlung des Rohgases in Verbindung mit der Produktion von Hoch- und Mitteldruckdampf. Auf diese Weise können rund 14% der chemischen Energie der Kohle gewon-



nen werden [Chhoa 2005]. Allerdings erfordert die erosive und korrosive Umgebung die Verwendung beständiger und teurer Stähle. Zur Vermeidung von Fouling<sup>1</sup> kann kaltes entstaubtes Rohgas rezirkuliert werden, um die mitgeführte Schlacke unter ihren Erweichungspunkt abzukühlen. Allerdings ist die minimale Abkühlungstemperatur durch die zu vermeidende Kondensation von Ammoniumchlorid auf den Temperaturbereich um 250°C festgelegt [Higman et al. 2008]. Im Falle des Wasserquenches kann die Rohgasenthalpie hingegen vollständig zur Aufsättigung mit Wasserdampf genutzt werden. Darüber hinaus wird teilweise die Schmelzenthalpie durch das Erstarren der Schlacke zurückgewonnen und kondensierbare sowie wasserlösliche Komponenten abgetrennt. Da keine Wärmeübertragerflächen benötigt werden, sind die baulichen Abmaße eines Quenchvergaser deutlich kleiner und die Anlagenkosten entsprechend geringer. Zudem ermöglicht der Quench einen weiteren Freiheitsgrad und damit einen flexibleren und robusteren Vergaserbetrieb. Da aber die Wärme auf einem niedrigen Temperaturniveau um 200°C zurückgewonnen wird, führt dieses Design gegenüber der Abhitzedampfgewinnung bei IGCC-Kraftwerken zu einem Wirkungsgradverlust im Bereich von 3 %-Punkten [Karg 2009]. Daher ist der Quenchvergaser eher für Anwendungen geeignet, wo Rohgas mit hohem Wasserdampfanteil notwendig ist, wie bei Anlagen mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung oder Synthesenanwendungen. Als vierte Variante der Rohgaskühlung kann ein chemischer Quench eingesetzt werden. Dazu wird dem heißen Rohgas weiterer Brennstoff (Kohle oder Gas) ohne Oxidationsmittel zugegeben. Die endothermen Vergasungsreaktionen bewirken eine Abkühlung des Gases und damit die energetisch vorteilhafte Umwandlung fühlbarer Wärme in chemisch gebundene Energie. Entsprechend steigt der Kaltgaswirkungsgrad an. Allerdings kann es je nach eingesetztem Brennstoff zu einer verminderten Rohgasreinheit kommen. Aufgrund der teilweise unvollständigen Umsetzung des Brennstoffs, niedrigen Temperaturen und Nachreaktionen, werden sich größere Methananteile und auch höhere Kohlenwasserstoffe (ggf. Teere) im Rohgas wiederfinden, welche einen erhöhten Aufwand in der Gaskonditionierung verursachen und zu Problemen in etwaigen Abhitzedampferzeuger führen können.

### 1.3.2 Gaskonditionierung

Das mittels Vergasung erzeugte Rohgas enthält neben den gewünschten Synthesegaskomponenten Wasserstoff und Kohlenmonoxid noch eine ganze Reihe von Stör- und Schadstoffen. Unter die erste Kategorie fallen insbesondere Inertgase wie Stickstoff, Argon sowie Kohlendioxid und Wasserdampf. Diese verdünnen zwar das Vergasungsgas, stellen aber an sich keine Gefahr für die Anlagentechnik oder die Verletzung der Emissionsgrenzwerte dar.

---

<sup>1</sup>Ablagerung und Verschmutzung

Dagegen sind Schadstoffe für die Anlagenteile oder Folgeprozesse kritisch und müssen daher entfernt werden. Welche Schadstoffe in welcher Konzentration im Rohgas auftauchen, hängt im Wesentlichen vom Einsatzstoff und dem gewählten Vergasungsverfahren ab. Dabei können aber einige Spezies auch erst entlang des Rohgasweges gebildet werden. Eine Übersicht über typische Schadstoffe bei der Flugstromvergasung und deren Auswirkungen ist in Tabelle 2 dargestellt.

Tabelle 2: Spurenstoffe im Rohgas und deren Auswirkungen [Schmalfeld (Hrsg.) 2008, Higman et al. 2008, Seume et al. 2010, Mitchell 1998]

Schadstoffgruppe	Schadstoffe	Auswirkungen	Größenordnung	Grenzwerte GT
Partikel	Asche/ Schlacke	Fouling, Korrosion		2 ppmw bzw. 100% < 10 µm
Schwefel	H <sub>2</sub> S COS	Korrosion, Kat-gift, Emission	< 1,0 Vol.-% < 0,1 Vol.-%	20 ppmv k.A.
Stickstoff	HCN NH <sub>3</sub>	NO <sub>x</sub> - Emission	100 bis 5000 ppmv	k.A.
Halogenide	HCl HF	Korrosion	40-600 ppmv	1-2,45 ppmw 1 ppmw
Alkalien	NaCl KCl	Korrosion Fouling	1-10 ppm	0,007 ppmw <sup>1</sup> 0,03 ppmw <sup>2</sup> 0,3 - 0,5 ppmw <sup>3</sup>
Metalle	AsH <sub>3</sub> Hg, Pb, Cd, V	Fouling Emission	1-10 ppmv	< 1,0 ppmw V < 0,5 ppmw
Karbynyle	Ni(CO) <sub>4</sub> Fe(CO) <sub>5</sub>	Korrosion Kat-gift	1-10 ppm	siehe Metalle

1. Bezug auf Gasturbinenabgas, 2 Bezug auf zugeführte Gesamtmenge, 3 Bezug auf Brennstoff

Da sich die Vergasung besonders für den Einsatz von minderwertigen Brennstoffen eignet, können je nach dessen Schwefelgehalt beträchtliche Mengen an Schwefelverbindungen ins Rohgas gelangen. Bei den hohen Temperaturen der Flugstromvergasung liegt der Schwefel dabei zu über 93% in Form von H<sub>2</sub>S und bis zu 7% als COS [Higman et al. 2008] vor<sup>2</sup>. Während der gesamte Schwefelgehalt in der Gasphase aus dem Brennstoff stammt, ist dies bei Stickstoffverbindungen nicht zwingend der Fall, da sowohl bei der pneumatischen Förderung als auch mit dem Sauerstoffstrom molekularer Stickstoff eingetragen

<sup>2</sup>Bei der Niedertemperaturvergasung können auch größere Mengen an CS<sub>2</sub> und Merkaptanen auftreten

wird. Wenngleich der Reaktionsmechanismus noch nicht eindeutig geklärt ist, so geht man davon aus, dass die Stickstoffverbindungen im Produktgas vornehmlich auf den Brennstoff zurückzuführen sind und analog des NO-Mechanismus entstehen. Aufgrund des Fehlens von Sauerstoff formt sich allerdings nur HCN und  $\text{NH}_3$  [Higman et al. 2008]. Die Halogenverbindungen bilden sich aus den stark flüchtigen Chlorbestandteilen des Brennstoffs. Sie sind sehr reaktiv und bilden Ammoniumchlorid und mit dem vorhandenen Alkien des Brennstoffs Alkaliechloride [Higman et al. 2008]. Beide Spezies können bei der Rohgaskühlung auskondensieren und zu Korrosion und Fouling führen.

Ähnliche Flüchtigkeiten weisen die mit dem Brennstoff eingetragenen Metalle auf. Im Falle von Quecksilber konnte nachgewiesen werden, dass nur rund 10% der eingebrachten Menge in der Schlacke eingebunden wird [Tampa Electric 2002]. Die Metalle können dabei in elementarer Form oder als Metallkarbonyle vorliegen. Letztere bilden sich erst im Rohgaspfad bei Temperaturen unter  $400^\circ\text{C}$  und in Gegenwart eines hohen CO-Partialdrucks [Higman et al. 2008]. Die genannten Metallverbindungen sind neben emissionsrechtlichen Aspekten für die Gasturbine von großer Bedeutung.

Die Konfiguration der Gasreinigung in IGCC-Kraftwerken richtet sich daher nach den bestehenden Emissionsgrenzwerten sowie den Anforderungen der Gasturbine. Letztere sind dabei wesentlich weniger konkret als die gesetzlich fixierten Grenzwerte der Kraftwerksemissionen. Dies hängt neben den unterschiedlichen Turbinentypen und Standorten auch mit der Bezugsbasis zusammen und kann am Beispiel der Alkalien verdeutlicht werden. So finden sich in der Literatur Angaben mit Bezug auf den Brennstoff, die insgesamt zugeführte Menge oder das Gasturbinenabgas. Die Brennstoffanforderungen liegen dabei rund zwei Größenordnungen über der Abgaskonzentration da die Verbrennungsluft für eine entsprechende Verdünnung sorgt. Insgesamt sind die Reinheitsanforderungen für Alkalien aber sehr hoch, was durch deren Schlüsselfunktion bei der Hochtemperaturkorrosion begründet ist. So bilden Alkalien im Zusammenspiel mit Schwefel Alkalisulfat, was in kondensierter Form hoch korrosiv wirkt [Seume et al. 2010]. Dies betrifft nicht nur metallische Komponenten sondern auch die keramischen Temperaturschutzschichten. Diese vornehmlich aus Yttriumoxid dotiertem Zirkoniumoxid bestehenden Schichten, werden ebenfalls durch einen basischen Aufschluss in weniger stabile Zirkonate überführt. Unterstützt wird das noch durch Metalle, insbesondere Vanadiumoxid, welche Belege bilden und damit die oxidischen Schutzschichten zerstören können [Seume et al. 2010].

Entsprechend der genannten Anforderung besteht die typische Gasaufbereitung im IGCC-Kraftwerk aus einer mechanischen Partikelabtrennung sowie einer Wasser- und Schwefelwäsche. Basierend auf der Gasaufbereitungsstrecke des Elcogas IGCC in Puer-tollano kann folgendes vereinfachtes Anlagenschema abgeleitet werden [Elcogas] .

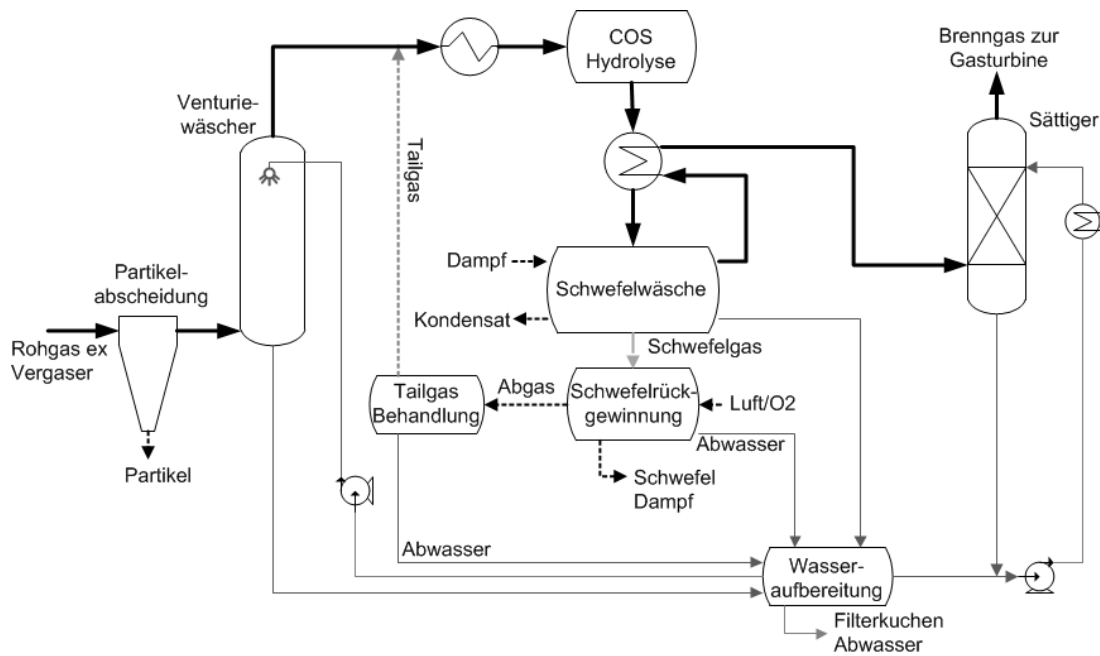


Abbildung 7: Schema der Gasaufbereitung eines IGCC-Kraftwerkes (eigene Darstellung nach [Elcogas])

Zunächst werden Schlacke und Aschepartikel mechanisch abgetrennt. Zur Abtrennung der mitgerissenen Partikel werden in der Regel Zyclone und Filter eingesetzt. Die Abscheidungsrate der Zyclone liegt für Partikel  $> 40 \mu\text{m}$  sehr hoch, verringert sich aber stark für Partikel kleiner  $10 \mu\text{m}$ , weshalb diese Anlagen nur der Grobreinigung dienen [Korobov 2004]. Bei den Filteranlagen sind auch bei kleineren Partikelgrößen von 2 bis  $5 \mu\text{m}$  deutlich höhere Abtrennungsraten von über 99,5% erzielbar [Strauß 2006]. Am gebräuchlichsten sind bei Kohlegas Kerzenfilter aus keramischen oder auch metallischen Werkstoffen. Während des Betriebes bildet sich ein Filterkuchen, der zusätzlich die Abscheidung von Kleinstpartikeln und Spurenelementen begünstigt, aber bei Erreichen eines zu hohen Druckverlustes durch Druckstöße entfernt werden muss. Die Elektrofilter, welche bei konventionellen Kraftwerken genutzt werden, arbeiten bei Temperaturen zwischen  $100$  und  $400^\circ\text{C}$ , haben sich aber bei der Brenngasreinigung unter hohen Drücken/Temperaturen nicht durchgesetzt [Korobov 2004]. Im Gegensatz zur Schlacke sind Flugasche und Filterkuchen keine Wertprodukte, sondern aufgrund ihrer hohen Belastung mit Schwermetallen (Vanadium, Nickel, Zink) und deren schlechter Einbindung zu entsorgen [Font et al. 2005].

Nach der Abtrennung der Partikel wird das Gas in der Regel in Venturiwäschern von

verbliebenen Kleinstpartikeln, vor allem aber wasserlöslichen Komponenten wie HCL, NH<sub>3</sub> und kondensierbaren Bestandteilen, befreit. Das Wasser wird überwiegend im Kreislauf gefahren und teilweise regeneriert um Akkumulation zu vermeiden. Je nach eingesetzter Kohle gelangen mehr basische oder saure Komponenten in das Wasser, weshalb der pH-Wert entsprechend geregelt werden muss. Die entstehenden Prozesswässer aus dem IGCC sind meist hoch belastet und können nicht ohne Aufbereitung freigegeben werden. Dazu werden feste Stoffe durch Absetzbecken und Filter sowie gelöste Gasbestandteile via Dampfstrippung aus dem Prozesswasser entfernt [Elcogas, Tampa Electric 2002, DOE 2000].

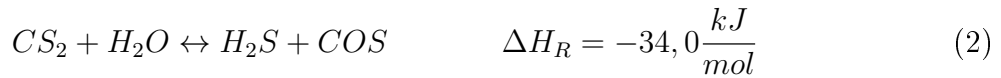
Anschließend werden die enthaltenen Schwefelbestandteile abgetrennt werden. Dies wird in großtechnischen Anlagen üblicherweise mittels Gaswäschen realisiert. Aufgrund der geringen Konzentration kommen häufig chemische Wäschen auf Basis von wässrigen Aminlösungen zum Einsatz. Die Amine fungieren dabei als schwache Base und binden die sauren Bestandteile [Supp 1990]. Nach ihrer chemischen Struktur wird zwischen primären und sekundären Aminen wie Monoethanolamin (MEA) bzw. Diethanolamin (DEA) sowie den Tertiäraminen beispielsweise Di-Isopropanolamin (DIPA) und Methyldiethanolamin (MDEA) unterschieden. Die genannten Waschmittel variieren dabei hinsichtlich ihrer Eigenschaften teilweise deutlich und sind in Tabelle 3 näher charakterisiert.

Tabelle 3: Charakterisierung ausgewählter Aminwäschen [Higman et al. 2008, Supp 1990, Kohl et al. 1997, Göttlicher 1999]

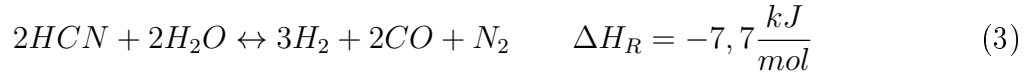
	Einheit	MEA	DEA	DIPA	MDEA
Molekulargewicht	$\frac{kg}{kmol}$	61	105	133	119
Waschmittelkonz.	Ma.-%	10-20	25-35	-	30-50
Beladung	$\frac{mol}{mol}$	0,25-0,45	0,4-0,8	-	0,8
Verdampfungsenthalpie (1atm)	$\frac{kJ}{kg}$	826	670	430	550
Reaktionsenthalpie	$\frac{kJ}{kgCO_2}$	1636	1477	1674	1209
Siedepunkt (1atm)	°C	171	-	249	247

Die primären und sekundären Amine weisen tendenziell höhere Reaktions- und Verdampfungsenthalpien auf, was deren Regenerierung erschwert. Da sie zudem korrosiv sind und degradieren, werden heutzutage vornehmlich die DIPA, als Bestandteil der Sulfinolwäsche [Higman et al. 2008], sowie die MDEA eingesetzt. Dabei weist Letztere sowohl eine geringe Reaktionsenthalpie wie auch einen niedrigen Dampfdruck (geringe Waschmittelverluste) bei akzeptabler Siedetemperatur auf [Kohl et al. 1997]. Zudem ist sie nicht

korrosiv und aufgrund eines zusätzlichen Reaktionsschrittes im Fall des  $CO_2$  sehr selektiv gegenüber  $H_2S$  [Vrachnos et al. 2004]. Allerdings entfernen, insbesondere die tertiären Aminwäschen (MDEA) das COS nur zu rund 75% . Da es die schwächere Säure ist, wird es während des Waschprozesses durch  $H_2S$  und auch  $CO_2$  verdrängt [Supp 1990]. Daher müssen die organischen Schwefelkomponenten wie COS und  $CS_2$  zunächst in einer zusätzlichen Hydrolysestufe gemäß folgender Reaktion in  $H_2S$  überführt werden.



Der Prozess besteht aus einem Katalysatorbett und wird aufgrund der Exothermie der Reaktion (Sicherstellung hoher Umsätze) bei Temperaturen von 150 bis 200°C betrieben. Die Temperatur wird nach unten durch den Wassertaupunkt begrenzt um Katalysatordegradation zu vermeiden. Die dabei eingesetzten Katalysatoren wie Aluminium- oder Titanoxid unterstützen zusätzlich die Umwandlung von HCN [Higman et al. 2008].



Der austretende Gasstrom wird weiter abgekühlt und anschließend in der Aminwäsche von Schwefel befreit. Die Wäsche besteht aus einer Absorberkolonne und der Waschmittelregenerierung. Da die MDEA unter den Vergasungsanlagen am weitesten verbreitet ist, wird diese stellvertretend im Folgenden näher betrachtet.

Wie in Abbildung 8 ersichtlich, tritt das Rohgas am Boden in die Absorberkolonne ein und wird im Gegenstrom mit dem wässrigen Waschmittel in Kontakt gebracht. Dabei reagiert das Waschmittel recht selektiv mit dem  $H_2S$  sowie Teilen des  $CO_2$  und trennt diese Bestandteile aus dem Rohgasstrom ab. Die Reaktionen führen aufgrund der Exothermie zu einem Anstieg der Waschmitteltemperatur, weshalb die Edukte vorher auf rund 30 bis 40°C abgekühlt werden. Das beladene Waschmittel wird zunächst entspannt und gibt dabei gelöste Gaskomponenten frei. Anschließend muss das Waschmittel thermisch regeneriert werden, um die chemisch gebundenen Komponenten freizusetzen. Dazu wird das Waschmittel in der Destillationskolonne durch Niederdruckdampf zum Kochen gebracht, wodurch die Bindungen gelöst und durch Dampfstrippung freigesetzt werden. Das regene-

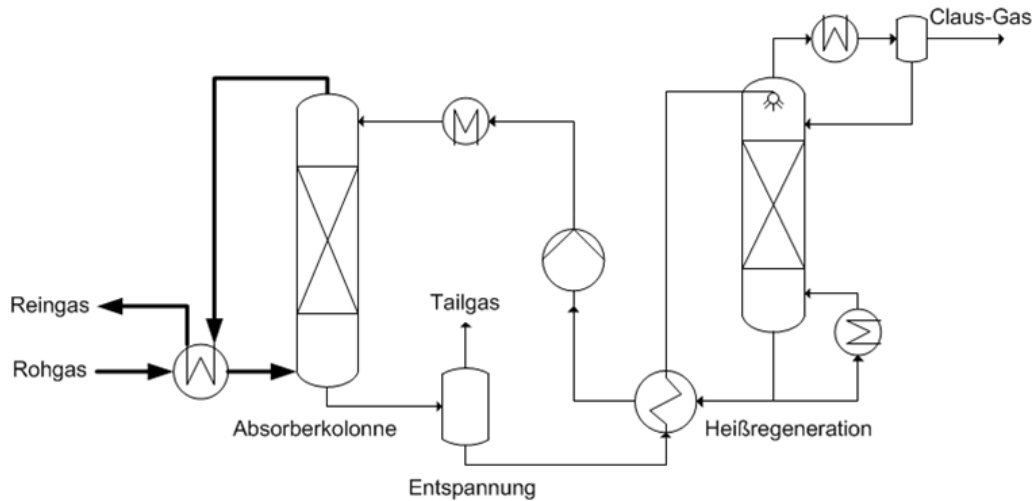


Abbildung 8: Vereinfachte schematische Darstellung der MDEA-Wäsche (eigene Darstellung nach [Higman et al. 2008, Supp 1990])

rierte Waschmittel wird zur Vorwärmung des beladenen Waschmittelstroms genutzt und anschließend durch Kühlwasser weiter auf die notwendige Absorbtemperatur abgekühlt. Da trotz Wärmerückgewinnung beträchtliche Dampfmengen in der Heißregeneration benötigt werden, kann diese durchaus 80% des Gesamtenergieaufwandes der Abtrennung ausmachen [Chakma 1997].

Das entstehende schwefelhaltige Abgas, muss nun in einem weiteren Prozess behandelt werden um den Schwefel zurück zu gewinnen. Dazu wird typischerweise der Claus- Prozess (Abbildung 9 ) eingesetzt, welcher durch ein zweistufiges Verfahren elementaren Schwefel gemäß folgender resultierender Reaktionsgleichungen erzeugt [Higman et al. 2008]:



In der ersten Stufe wird das saure Gas unterstöchiometrisch verbrannt, wobei bereits teilweise elementarer Schwefel sowie ein Gemisch aus  $H_2S$  und  $SO_2$  gebildet wird. Um hier Luft einsetzen zu können, muss die Konzentration von  $H_2S$  mindestens im Bereich von 25 bis 30 Vol.-% liegen [Higman et al. 2008]. Liegt dieser Wert, beispielsweise bei Einsatz von schwefelarmen Brennstoff und geringer Aufkonzentrierung in der Wäsche darunter, so muss die Luft mit Sauerstoff angereichert oder gänzlich auf Sauerstoff umgestiegen werden (Oxy-Claus-Prozess).

Da in der ersten thermischen Stufe nur rund 50% Umsatz realisiert werden kann, wird

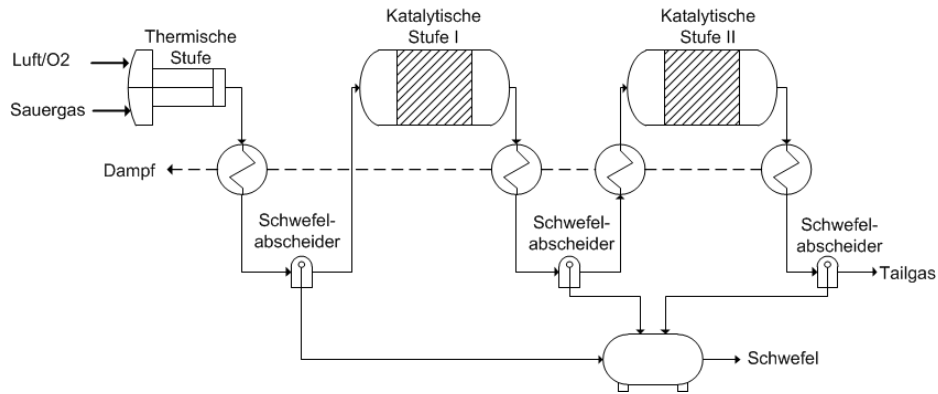


Abbildung 9: Schematische Darstellung des Claus-Prozess (eigene Darstellung nach [Higman et al. 2008, Supp 1990])

das Gemisch in der zweiten katalytischen Stufe weiter behandelt. Dazu muss das rund 1000 bis 1200°C heiße Abgas mittels Abhitzedampferzeugung auf rund 200 bis 300°C abgekühlt werden [Higman et al. 2008]. Der Schwefeldampf wird durch Kondensation zwischen den Stufen aus dem Gasstrom entfernt, was das Gleichgewicht der Reaktion zur Produktseite verschiebt. Aufgrund der niedrigen Reaktionsgeschwindigkeit bei Temperaturen unter 350°C werden Aluminiumkatalysatoren eingesetzt, welche durch zusätzliche Dotierung mit Cobalt und Molybdän den  $\text{CS}_2$  und  $\text{COS}$ -Umsatz erhöhen [Supp 1990]. Da auch bei Einsatz mehrerer katalytischer Reaktoren, aufgrund der verschiedenen Schwefelmodifikationen, keine vollständige Schwefelrückgewinnung realisiert werden kann, verbleibt ein schwefelhaltiges Abgas (Tailgas) [Supp 1990]. Dieses kann entweder durch eine katalytische Nachbehandlung bei Betriebstemperaturen unterhalb des Schwefeltaupunktes weiter gereinigt oder als Tailgases in die Sauergaswäsche recirkuliert werden. Zur Nachbehandlung kann das Sulfreen- oder der Scot-Verfahren zum Einsatz kommen (Abbildung 10).

Das Sulfreen-Verfahren nutzt katalytische Reaktoren bei Temperaturen um 130°C, wodurch der entstehende Schwefel simultan am Katalysator kondensiert und absorbiert wird [Ogriseck 2006]. Zur Regenerierung wird Heißgas genutzt. Das Restgas wird verbrannt und weist danach noch  $\text{SO}_2$ -Konzentrationen von rund 1000 ppmv auf [Supp 1990]. Beim Scot- Prozess hingegen wird das Tailgas zunächst in reduzierender Atmosphäre verbrannt und anschließend in einem Cobalt-Molybdän Katalysatorbett hydriert. Das  $\text{H}_2\text{S}$  wird in einer eigenen Aminwäsche (inkl. Regenerierung und Abwasserbehandlung) entfernt. Der Prozess ist demnach deutlich aufwändiger, aber auch flexibler und erzeugt ein Abgas mit weniger als 500 ppmv Schwefelgehalt [Higman et al. 2008].



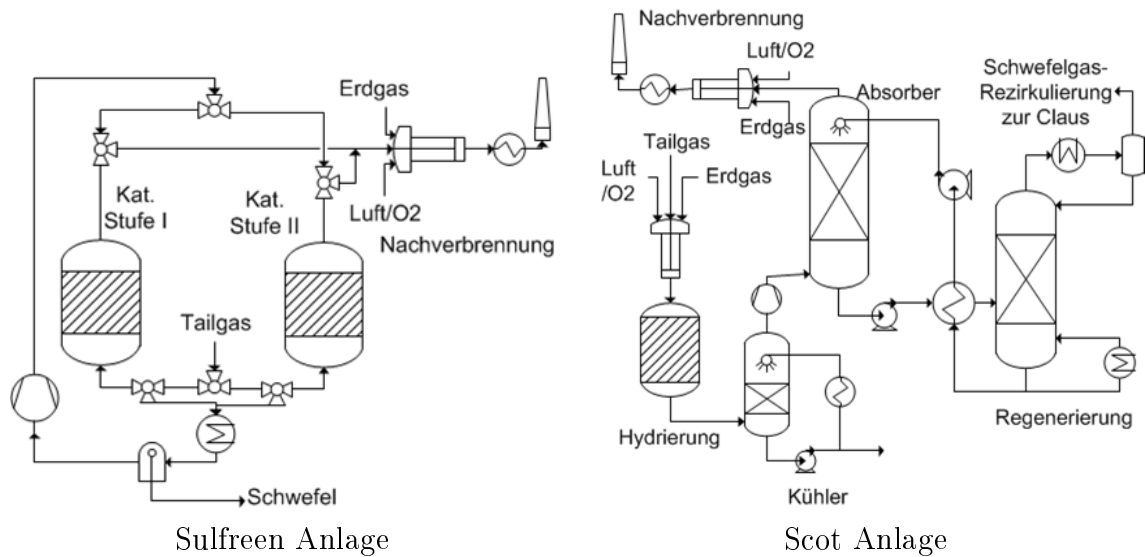


Abbildung 10: Schematische Darstellung der Tailgas-Behandlung (eigene Darstellung nach [Higman et al. 2008, Supp 1990])

Der Schwefelumsatz kann durch diese Zusatzbehandlung bei der Clausanlage mit zwei Reaktoren von 96% und 98% bzw. bei drei katalytischen Reaktoren [Supp 1990] auf über 99% gesteigert werden [Ogriseck 2006]. Die erzielbare Ausbeute hängt allerdings auch vom Grad der Nebenreaktionen ab. So bildet  $NH_3$  und  $HCN$  bei unterstöchiometrischer Umsetzung Salze, welche bei der Schwefelkondensation zu Verstopfungen führen können [Higman et al. 2008]. Eine Alternative zum Claus Prozess stellt die Möglichkeit der Schwefelsäuregewinnung dar. Diese ist in der Lage, auch Gase mit niedrigsten Schwefelkonzentrationen zu nutzen und wird beispielsweise aufgrund der lokalen Gegebenheiten im Polk Power IGCC in Tampa eingesetzt [Tampa Electric 2002]. Wegen der geringeren Relevanz wird der Prozess an dieser Stelle aber nicht weiter betrachtet.

Nach der Entschwefelung wird das Reingas, aufgrund seiner Eignung für Syntheseprozesse, auch häufig als Synthesegas oder Syngas bezeichnet. Vor der Nutzung als Brenngas muss dieses aber noch konditioniert werden um in modernen Gasturbinen verbrannt werden zu können. Daher wird das Gas erwärmt und mit Wasser gesättigt. Zusätzlich wird in vielen IGCC-Anlagen noch der Reststickstoff aus der Luftzerlegung zugemischt. Die Hintergründe dieser Verfahrensweise werden im folgenden Kapitel näher beleuchtet.

### 1.3.3 Gas- und Dampfturbinenteil

Der Gas- und Dampfturbinenteil in einem IGCC unterscheidet sich in einigen wichtigen Punkten vom klassischem Erdgas gefeuertem GUD-Kraftwerk. Der grundlegendste Unterschied ist dabei sicher das veränderte Brenngas. Außerdem bestehen noch zahlreiche

Kopplungen, sowohl zwischen der Gasturbine und der Vergasungsinsel, als auch zwischen dem Dampfkreislauf und der Gasaufbereitung. Dieser hohe Grad an Systemintegration wirkt sich im besonderen Maße auch auf die Dynamik aus, wenngleich im Folgenden vornehmlich die thermodynamischen und materialtechnischen Aspekte im Fokus stehen. Ein vereinfachtes Schema für einen typischen GUD-Prozess als Teil eines IGCC-Kraftwerkes ist in Abbildung 11 dargestellt.

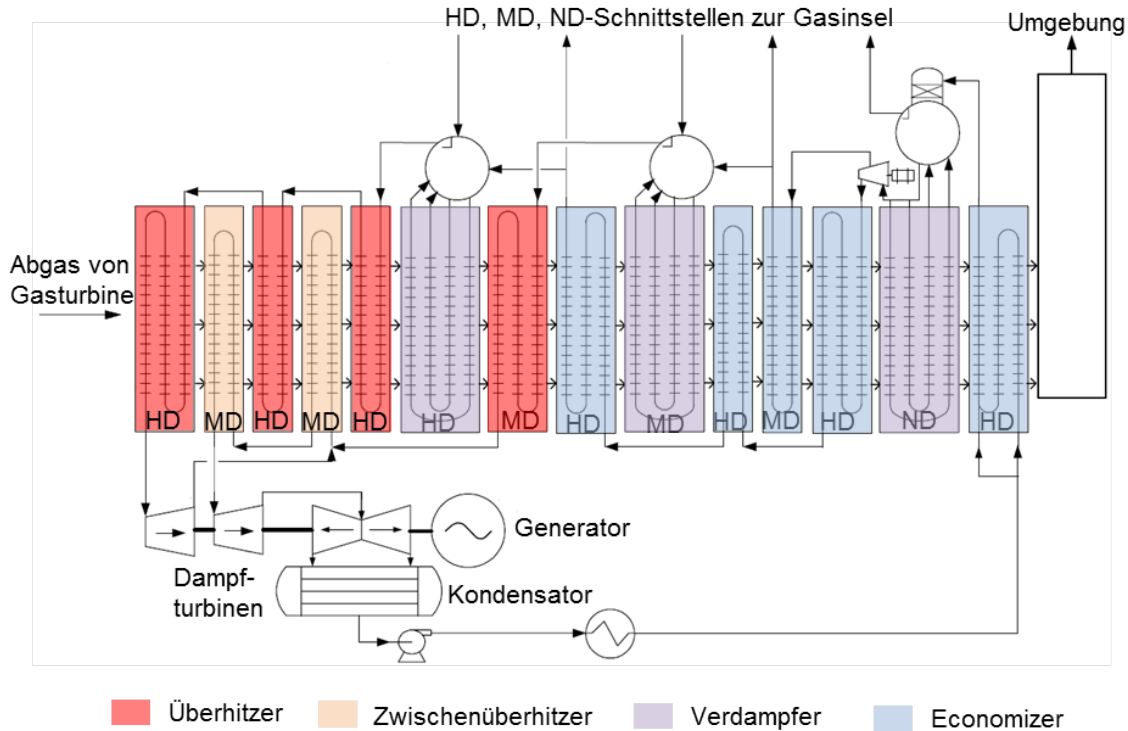


Abbildung 11: Schema eines GUD-Prozesses als Teil eines IGCC-Kraftwerkes (eigene Darstellung nach [Tampa Electric 2002])

Das Synthesegas unterscheidet sich nicht nur in der stofflichen Zusammensetzung von Erdgas, sondern auch deutlich hinsichtlich der verbrennungstechnischen Eigenschaften. Die wesentlichen Parameter in diesem Zusammenhang sind dabei der Wobbe Index, die Flammgeschwindigkeit und die veränderten Abgaseigenschaften. Der Wobbe Index stammt aus der Erdgascharakterisierung und stellt einen modifizierten volumetrischen Heizwert dar, welcher die relative Dichte des Brennstoffs berücksichtigt [Seume et al. 2010]. Der gemäß Gleichung 5 bestimmbare Wert stellt damit sicher, dass Gase mit gleichem Index den gleichen Enthalpiestrom<sup>3</sup> in die Brennkammer einbringen [Seume et al. 2010]. Da-

<sup>3</sup>bei gleichem Druckgefälle über den Brenner

durch sind Gase, deren Wobbe Index innerhalb einer Schwankungsbreite von  $\pm 10\%$  liegt, gegeneinander austauschbar [Seume et al. 2010]. Allerdings gilt es dabei eine etwaige signifikante Gasvorwärmung ( $> 200^\circ\text{C}$ ) zu beachten, um eine gleichbleibende Eindringtiefe des Gasstrahls zu gewährleisten.

$$\text{WobbeIndex } W : \frac{H_u}{\sqrt{\frac{\rho_{\text{Brenngas}}}{\rho_{\text{Luft}}}}} \quad (5)$$

Die Flammengeschwindigkeit hingegen ist ein Maß für die Stabilität der Verbrennung. Sie ist bestimmt durch die Reaktionskinetik und Transporteigenschaften des Brenngases und damit nicht nur abhängig von der Zusammensetzung des Gases sondern auch von Temperatur und Druck. Für einen stabilen Betrieb sollte die Flammengeschwindigkeit der Austrittsgeschwindigkeit des Gases entsprechen, um sowohl ein Ausblasen der Flamme als auch das Rückschlagen zu vermeiden [Seume et al. 2010]. Die veränderte Zusammensetzung des Brenngases insbesondere nach der Verdünnung führt außerdem dazu, dass das entsprechende Rauchgas eine andere Zusammensetzung und damit Wärmekapazität aufweist als bei der Erdgasverbrennung. Dies gilt es bei der Auslegung der Kühlung und der Materialwahl zu beachten. Zur Verdeutlichung der typischen Verhältnisse sind die wesentlichen Größen normiert auf den Erdgaswert in Tabelle 4 dargestellt. Dabei wird sowohl unverdünntes als auch verdünntes Synthesegase aus der Kohlevergasung betrachtet. Eine Betrachtung für wasserstoffreiches Brenngas findet sich in Kapitel 1.4.

Tabelle 4: Vergleich der Eigenschaften von Synthesegas und Erdgas (eigene Berechnung nach[DIN 51857])

Brenngas	Heizwert [MJ/m <sup>3</sup> i.N.]	Wobbezahl [MJ/m <sup>3</sup> i.N.]	Brenngas- strom [kg/s]	Cp Abgas [kJ/kgK] <sup>1</sup>
CH <sub>4</sub>			1	
H <sub>2</sub>	0,30	0,85	0,42	1,03
CO	0,35	0,26	4,90	0,96
Syngas	0,31	0,27	4,10	0,98
Syngas verd.	0,13	0,10	11,8	1,02

<sup>1</sup> Wert bei Turbineneintrittstemperatur von 1300°C

Wie in Tabelle 4 ersichtlich, weichen die verbrennungstechnischen Eigenschaften des Brenngases aus der Kohlevergasung teilweise deutlich von Erdgas ab. Aufgrund der durchweg niedrigeren Heizwerte erreicht die Wobbezahl von Synthesegas nur rund ein Drittel des Wertes für Erdgas. Daraus resultiert ein um 5 bis 10 fach höherer Brenngasmassenstrom,

welcher eine entsprechende Anpassung des Strömungsquerschnittes der Brenngaszuführung notwendig macht. Darüber hinaus ist das Brenngas deutlich reaktiver, was sich in einer höheren Flammengeschwindigkeit widerspiegelt [Seume et al. 2010]. Damit besteht für das Synthesegas eine erhöhte Rückschlagsneigung, weshalb bisher keine Vormischbrenner sondern nur Diffusionsbrenner eingesetzt wurden [Spliethoff 2010]. Da diese zur vermehrten Bildung von thermischen NO<sub>x</sub> führen, ist eine Verdünnung des Gases mit Wasser und/oder Stickstoff notwendig. Dadurch wird zwar der Brenngasmassenstrom weiter erhöht, die NO<sub>x</sub>-Emissionswerte im Abgas aber auf bis zu 10 ppmv (15% O<sub>2</sub>) gesenkt [Spliethoff 2010]. Darüber hinaus wird die Flammgeschwindigkeit mit Erdgas vergleichbarer gemacht.

Neben den gegenwärtig betriebenen IGCC-Anlagen bestehen zusätzlich langjährige Erfahrungen mit der Verbrennung von wasserstoffreichen Gasgemischen im Bereich der Petrochemie. Durch begrenzte Modifikationen ist es demnach möglich, standardisierte Gasturbinen auf das neue Brenngasgemisch umzurüsten. Wenngleich es in Demoanlagen anfänglich zu einem Brummen in der Brennkammer kam, konnte dies durch Erhöhung des Druckverlustes behoben und damit ein zuverlässiger Betrieb gewährleistet werden [Elcogas]. Der erhöhte Brenngasmassenstrom ermöglicht aber durch dessen Vorwärmung einen Ansatz zur Optimierung des Gasturbinenprozesses. Während bei dem geringen Erdgasmassenstrom vornehmlich Temperaturen um 100°C genutzt werden, sind bei IGCC-Anwendungen bereits 300 bis 350°C realisiert [Raddings et al. 2009]. Die weitere Erhöhung ist prinzipiell möglich, hat aber einen abnehmenden Zusatznutzen, da die Wärme dem Dampfkreislauf entzogen wird [Kloster 1999]. Die weitere Anhebung ist daher vor allem vorteilhaft in Kombination mit einer Warmgasreinigung, wo das Brenngas von vornherein bei erhöhter Temperatur vorliegt. Allerdings bedingt eine Erhöhung der Brenngastemperatur neben sicherheitsrelevanten auch die Berücksichtigung von wirtschaftlichen Aspekten. Mit höherer Temperatur steigt nicht nur der Volumenstrom des Brenngases und damit auch das bauliche Abmaß dessen Zuführung an, sondern es vermindert sich auch die Festigkeit der verwendeten Werkstoffe wie in Abbildung 12 ersichtlich. Dadurch müssen diese dickwandiger ausgeführt und bei Temperaturen ab 400°C auf deutlich teurere Materialien ausgewichen werden. Dies führt zu einem exponentiellem Anstieg der Kosten für Brenngaszuführung in der Gasturbine.

Der zweite grundlegende Unterschied zum reinen GUD-Kraftwerk ist das hohe Maß an Vernetzung mit dem Vergasungsteil. Dies betrifft zum einen die Kopplung des Gasturbinenverdichters mit der Luftzerlegung bei integrierter Anlagenfahrweise, als auch die Kopplung von Dampf- bzw. Wasserströmen. Die bereits beschriebene Brenngasver-

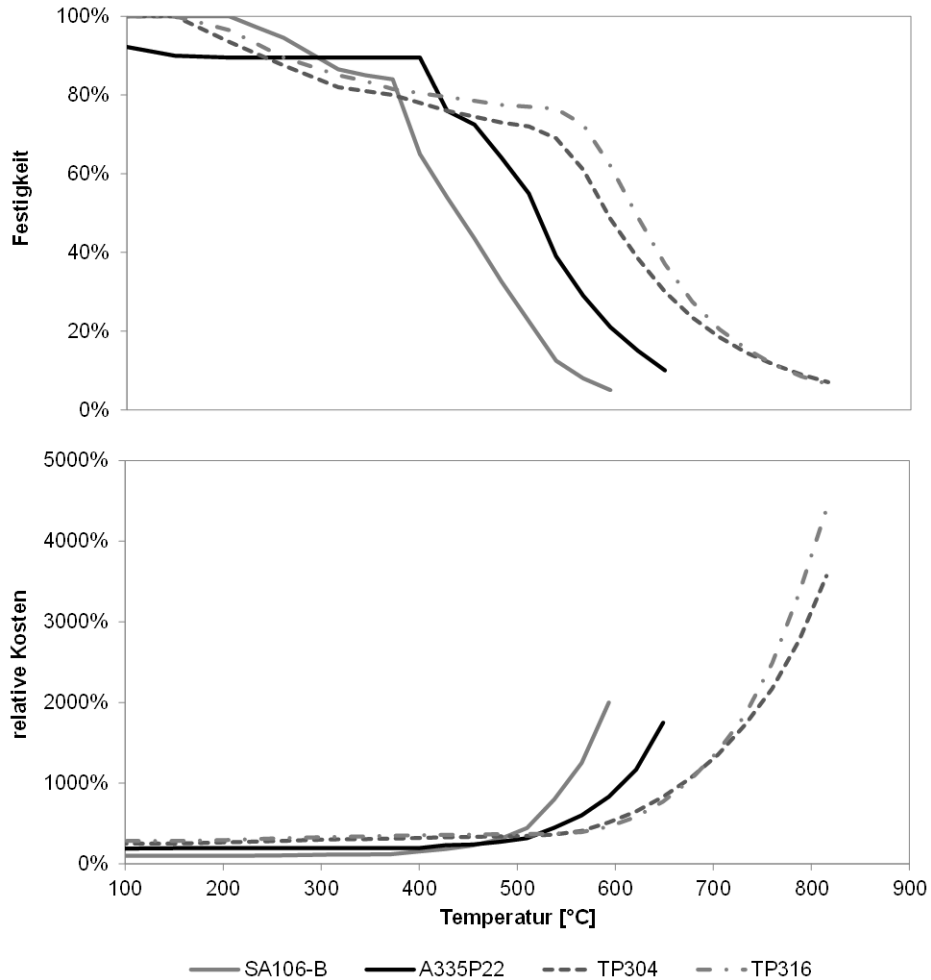


Abbildung 12: Qualitatives Verhalten von Festigkeit und Kosten der Brenngaszuführung (eigene Darstellung nach [Horazek 2008] )

dünnung mit Stickstoff aus der Luftzerlegung führt auch dazu, dass in der Turbine ein wesentlich größerer Massenstrom entspannt, als im Verdichter komprimiert wird. Dieses Ungleichgewicht kann bei Standardturbinen zu kritischen Betriebszuständen, insbesondere dem Überschreiten der Pumpgrenze des Verdichters führen [Seume et al. 2010]. Daher sind Anpassungen notwendig, welche aufgrund der geringeren Komplexität vornehmlich am Verdichter der Gasturbine vorgenommen werden. Alternativ ist aber auch die Auskopplung der in der Luftzerlegung benötigten Druckluft aus dem Verdichter möglich. Das ist nicht nur thermodynamisch vorteilhaft, sondern reduziert den Massenstrom durch die Turbine, wodurch der Einsatz von Standardturbinen auch ohne größere Modifikationen möglich ist [Seume et al. 2010]. Dies ermöglicht zudem, bei einer Unterbrechung der Synthesegaserzeugung, den Betrieb mit Erdgas aufrechtzuerhalten.

Der Austausch von Wasser- und Dampfströmen im IGCC ermöglicht zudem die effiziente Ausnutzung des verfügbaren Temperaturniveaus. In der Regel wird ein Zwei- oder Dreidruckbetrieb mit einfacher Zwischenüberhitzung realisiert, um die Abwärme bestmöglich zu nutzen. Aufgrund des vergleichsweise geringem Temperaturniveaus des Gasturbinenabgases von rund 600°C, kommt es im AHDE zu einer Pinchpunkt-Limitierung [Higman et al. 2008], was nur mittelmäßige Frischdampfparameter und damit Wirkungsgrade ermöglicht. Gemäß der Frischdampf Temperatur von rund 580°C ergeben sich typischerweise Frischdampfdrücke um 170 bar [Karg 2000]. Die Kopplung mit dem Rohgasabhitzedampferzeuger ermöglicht zwar prinzipiell höhere Frischdampftemperaturen, allerdings ist der Druck praktisch durch die korrosive sowie erosive Umgebung und dem damit verbundenem Materialverschleiß auf bislang 170 bar limitiert [Karg 2000]. Daher sind gegenwertig nur unterkritische Konzepte im Fokus mit Sattedampfgewinnung im Rohgaskühler und Überhitzung im Gasturbinenabgas [Higman et al. 2008].

Der Hochdruckdampf wird nach der Entspannung auf ein mittleres Temperaturniveau im Bereich von 40 bis 45 bar erneut überhitzt und in der Mitteldruckturbine weiter auf rund 6 bar entspannt. Der Dampf wird anschließend zusammen mit zusätzlichem Niederdruckdampf aus dem Abhitzedampferzeuger in der Niederdruckturbine bis zum Kondensatordruck entspannt. Die Turbinen befinden sich typischerweise auf einer Welle, welche über den Generator Strom erzeugt. Die Verluste sind bedingt durch den hohen Druck (Spaltverluste) und dem großen, feuchten Volumenstrom (Dampfnässe) in der Hoch- bzw. Niederdruckturbine größer als in der Mitteldruckturbine. Den größten Einzelverlust stellt dabei die verlorene kinetische Energie des Nassdampfs am Austritt der Niederdruckturbine dar [Splichthoff 2010]. Entsprechend liegen typische Wirkungsgrade moderner Dampfturbinen in der Größenordnung von 91 bis 94% [Strauß 2006]. Der Druck im Kondensator ist wesentlich für das Druckverhältnis der Niederdruckturbine und damit entscheidend für deren Leistungsabgabe. Er wird bestimmt durch die Umgebungsbedingungen und die Methode der Rückkühlung. Bei Großkraftwerken kommen drei grundsätzliche Varianten zum Einsatz: die Durchlaufkühlung mittels Fließwasser, die Nutzung der Verdampfskühlung in einem quasi geschlossenem System sowie die Luftkühlung. Die schematische Darstellung sowie die beispielhafte Berechnung des bei den gewählten Annahmen realisierbaren Kondensatordrucks sind in Abbildung 13 dargestellt.

Im ersten Fall wird ein kontinuierlich verfügbares Gewässer (Meer- oder Flusswasser) direkt oder indirekt für die Rückkühlung des Kondensators genutzt. Die Kondensatortemperatur wird hier nur durch die Grädigkeit ( $\Gamma$ ) im Kondensator und die Kühlzonenbreite, also die Wassererwärmung ( $\Delta t_{kw}$ ) zusätzlich beeinflusst. Da diese aber einmal von der

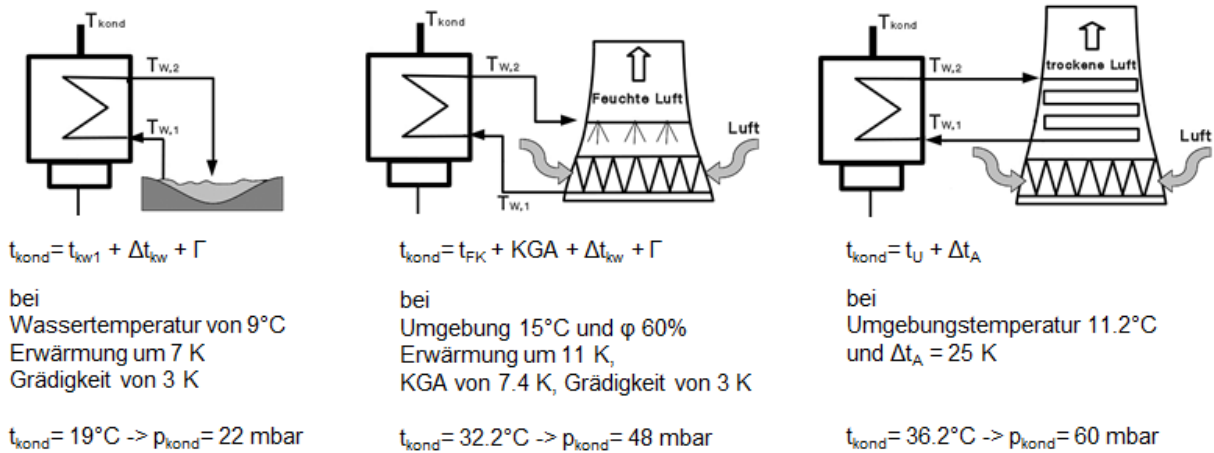


Abbildung 13: Prinzip der verschiedenen Rückkühlungsarten (eigene Darstellung nach [Spliethoff 2010])

Wärmeübertragerfläche und zum anderen von der Kühlwasserumwälzung abhängig sind, handelt es sich eher um ökonomische Größen. Typische Größenordnungen in modernen Anlagen liegen im Bereich von 2 bis 4K für die Grädigkeit [UBA 2001, Spliethoff 2010] sowie 5 bis 10K für die Aufwärmung. Damit hängt der realisierbare Kondensatordruck bei dieser Kühlmethode im Wesentlichen von der vorliegenden Wassertemperatur ( $t_{kw}$ ) ab, wodurch die mit Abstand geringsten Drücke von 20 bis 40 mbar erzeugt werden können [Roth]. Allerdings ist nicht überall ein geeignetes Gewässer vorhanden und die Wassernutzung oft mit strengen Auflagen hinsichtlich Aufwärmung verbunden, so dass in den meisten Fällen eher ein Nasskühlturm zum Einsatz kommt.

Bei dieser Methode wird der erzielbare Kondensatordruck maßgeblich durch die Umgebungsluft und die Güte des Kühlturms, dem sogenannten Kühlgrenzabstand (KGA), beeinflusst [Roth]. Dieser gibt an, wie groß die Temperaturdifferenz zwischen der realisierten Kühlwassertemperatur und der minimal möglichen Temperatur ist. Da die Kühlwirkung über die Verdunstungsenthalpie von Teilen des Wassers erfolgt, kann nur soviel Kühlleistung erzeugt werden, wie die Umgebungsluft Wasserdampf bis zur Sättigung aufnehmen kann. Die sich dabei ergebende minimal erreichbare Temperatur wird als Feuchtkugeltemperatur ( $t_{FK}$ ) oder auch Kühlgrenztemperatur bezeichnet [Schramek (Hrsg.) 2006]. Zur Gewährleistung eines wirtschaftlichen Betriebs wird in der Praxis aber ein Kühlgrenzabstand zwischen 5 und 10K in Kauf genommen, da die baulichen Abmaße bei einer 30 prozentigen Reduktion von 9 auf 6K überproportional um 60% ansteigen [Roth]. Bei Berücksichtigung der genannten ökonomischen Größen ergeben sich typische Kondensatordrücke bei Nasskühltürmen von 40 bis 60 mbar.

Sollte auch ein Nasskühlturm nicht realisiert werden können, bleibt nur der Einsatz von Trockenkühltürmen. Dabei wird das Kühlwasser durch Kühlelemente geführt, welche mit Umgebungsluft durchströmt und dabei rückgekühlt werden. Aufgrund des schlechten Wärmedurchgangs, vom Wasser zur Luft und fehlender Verdunstungskälte ist der notwendige Temperaturunterschied ( $t_{KT}$ ) zwischen Kondensator- und Umgebungstemperatur im Bereich von 25 bis 30K [UBA 2001]. Der genaue Wert ist abhängig von der Güte des Kühlturms und der Lüfteranzahl. Damit ergeben sich deutlich höhere Kondensatordrücke von typischerweise 60 bis 90 mbar.

## 1.4 IGCC-Kraftwerke mit Pre-Combustion CO<sub>2</sub>-Abtrennung

Wie in Kapitel 2.2 erläutert, wandelt ein IGCC-Kraftwerk zunächst feste Brennstoffe in Brenngas und nutzt dieses nach der Aufbereitung energetisch. Dieses Prinzip bietet nun die Möglichkeit, neben den Verunreinigungen, auch den Kohlenstoff vor der Verbrennung abzutrennen. Dazu sind gegenüber dem klassischen IGCC-Prozess einige Änderungen in der Anlagenkonfiguration notwendig. Da der Prozess aber in seiner Grundform erhalten bleibt, wird im Folgenden nur auf die notwendigen Prozessänderungen eingegangen. Die wesentlichen Modifikationen betreffen dabei die Gasreinigung, da neben Schwefelkomponenten nun auch Kohlendioxid möglichst selektiv abgetrennt werden muss. Da der überwiegende Teil des Kohlenstoffs aber in Form von Kohlenmonoxid vorliegt, muss dieses zunächst in einem weiteren Schritt, der CO-Konvertierung, in CO<sub>2</sub> überführt werden. Andernfalls würde das Kohlenmonoxid nach der Verbrennung zu CO<sub>2</sub>-Emissionen führen. In seiner typischen Konfiguration stellt sich der Prozess demnach gemäß Abbildung 14 dar.

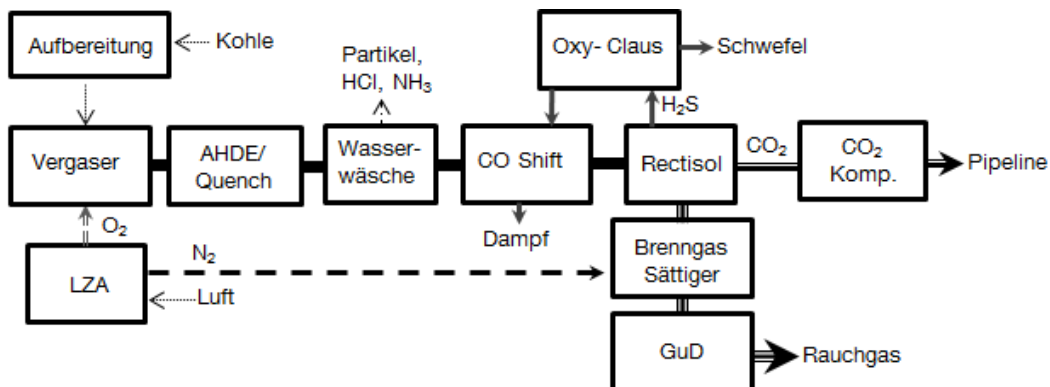


Abbildung 14: Vereinfachtes Schema eines IGCC-Kraftwerkes mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung

Analog dem konventionellen IGCC, muss das heiße Rohgas aus dem Vergaser für die



Gaskonditionierung gekühlt werden. Die Umwandlung des Kohlenmonoxid wird gemäß der homogenen Wassergasreaktion (Tabelle 1) in einer katalytisch aktiven CO-Shift Anlage realisiert. Diese kann sich entweder direkt nach dem Wasserwäscher oder nach der Entschwefelung befinden. Im ersten Fall wird der Prozess als Sour- oder Rohgasshift, im zweiten Fall als Sweet- bzw. Reingasshift bezeichnet. Der wesentliche Unterschied liegt dabei in der Schwefelverträglichkeit des eingesetzten Katalysators und den erzielbaren CO-Umsatzraten. Da das Kohlegas in der Regel größere Spuren an Schwefel aufweist und die erzielbaren Umsatzraten von 95% [Göttlicher 1999] ausreichend für CCS-Kraftwerke sind, wird in der vorliegenden Arbeit die Rohgaskonvertierung auf Basis von Kobalt- und Molybdänkatalysatoren präferiert. Diese benötigen außerdem einen geringeren Dampfbedarf im Rohgas. Die notwendige Sättigung mit Wasser kann dabei sowohl über einen Kühler-Sättiger-Kreislauf erzielt werden, als auch durch den Einsatz eines Wasserquenches zur Rohgaskühlung. Je nach Wassergehalt des Einsatzstoffes und Temperaturniveau des Quenchwassers kann dabei Zusatzdampf notwendig sein, um das geforderte molare Wasser zu Kohlenmonoxidverhältnis von 1,8 bis 2 [Göttlicher 1999] im Gas sicherzustellen. Bei Einsatz eines trockenen Quenchs oder der Rohgaskühlung wird zusätzlich über einen Kühler-Sättiger Kreislauf die Wärme nach der Konvertierung (Gaskühler-Kolonne) über einen Wasserkreislauf zur Aufsättigung (Sättiger-Kolonne) des Rohgases genutzt, um den Zusatzdampfbedarf zu senken [Ogriseck 2006]. Die Struktur der CO-Konvertierung ist in Abbildung 15 dargestellt.

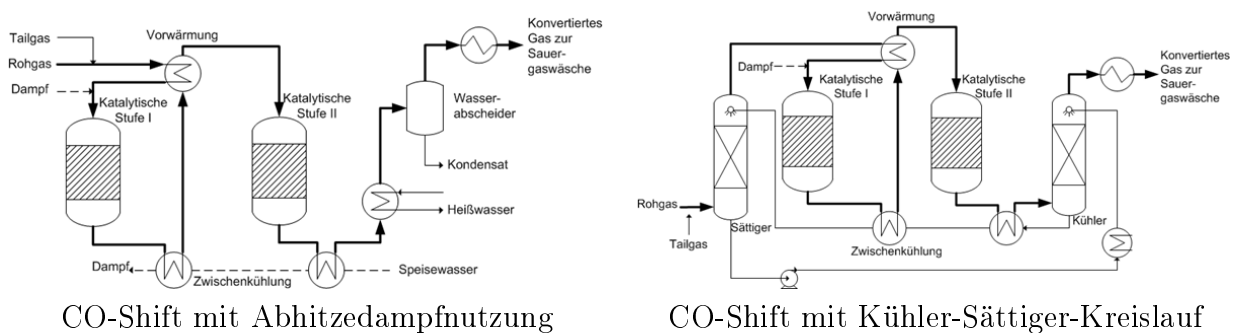


Abbildung 15: Varianten der Rohgaskonvertierung (eigene Darstellung nach [Higman et al. 2008, Ogriseck 2006])

Die Konvertierung kann isotherm oder adiabatisch mit Zwischenkühlung ausgelegt werden. Im adiabaten Fall wird der Prozess zwei- oder dreistufig ausgeführt. Die Hochtemperaturstufe ermöglicht dabei eine hohe Reaktionsgeschwindigkeit, wohingegen die folgende Niedertemperaturstufe einen ausreichend hohen Umsatz garantiert. Neben den Hauptreaktionen kommt es im Prozess zu einigen Nebenreaktionen. So finden auch Hydrolyse-

aktionen statt, welche COS und HCN in H<sub>2</sub>S bzw. NH<sub>3</sub> umwandeln [Higman et al. 2008]. Daher wird bei Einsatz einer Rohgaskonvertierung keine zusätzliche Hydrolysestufe benötigt. Andererseits kann es insbesondere bei zu geringem Wassergehalt im Rohgas zur Bildung von Kohlenstoff kommen, welcher sich auf dem Katalysatorbett ablagert und zu dessen Inaktivierung führt.

Die Reaktionswärme der Konvertierung wird in Form von Dampf zurückgewonnen. Je nach Ausführung und Temperaturniveau kann demnach Hoch-, Mittel- oder auch Niederdruckdampf erzeugt werden. Der hohe Wasserüberschuss im Gas muss nach der CO-Konvertierung auskondensiert werden, da dieser Ballast für die nachfolgende Wäsche darstellt. Das so erzeugte Warmwasser kann zur Brenngassättigung oder vermischt mit dem Kondensat selbst als Quenchwasser eingesetzt werden.

Das verbleibende Gasgemisch wird anschließend in einer Sauergaswäsche selektiv von Kohlendioxid und Schwefelverbindungen befreit. Im Gegensatz zu IGCC-Anlagen ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung kommen hier aufgrund des hohen Partialdrucks der abzutrennenden Komponente eher physikalische Waschverfahren wie Rectisol, Purisol oder Selexol zum Einsatz. Ein Vergleich der wesentlichen Eigenschaften dieser Wäschen ist in der folgenden Tabelle dargestellt.

Tabelle 5: Charakterisierung ausgewählter physikalischer Wäschen [Higman et al. 2008, Göttlicher 1999, Kohl et al. 1997, Burr]

	Einheit	Purisol	Selexol	Rectisol
Waschmittel		n-Methyl-2-Pyrrolidon	Polyethylenglykol Ether	Methanol
Temperatur	°C	15 bis 40	0 bis 40	-30 bis -70
dynamische Viskosität <sup>3</sup>	$\frac{Ns}{m^2}$	2,0*10 <sup>-3</sup> bei 15°C	8,3*10 <sup>-3</sup> bei 15°C	1,4*10 <sup>-3</sup> bei -30°C
CO <sub>2</sub> Löslichkeit <sup>3</sup>	$\frac{l}{kgW_m}$	3,47	3,52	4,03
Dampfdruck <sup>3</sup>	mbar	0,53	9,7*10 <sup>-3</sup>	166
Siedepunkt (1 atm)	°C	202	151	64
Selektivität <sup>1</sup>	H <sub>2</sub> S : CO <sub>2</sub>	1:13	1:9	1:9,5
Reinheit	ppmv/ Vol.-%	H <sub>2</sub> S: < 1 CO <sub>2</sub> : 0,1 Vol.-%	H <sub>2</sub> S: < 1 CO <sub>2</sub> : 0,5 Vol.-%	H <sub>2</sub> S: < 0,1 CO <sub>2</sub> : 5ppmv
Strombedarf <sup>4</sup>	kWh <sub>el</sub>	≈0,07	0,03 - 0,06	0,025 - 0,05 <sup>2</sup>
Wärmebedarf <sup>4</sup>	kWh <sub>th</sub>	≈0,05	0,016 - 0,024	0,025 - 0,05

1 bei Betriebsbedingungen, 2 inklusive Kompressionskälteanlage, 3 25°C, 4 je kg CO<sub>2</sub>

Während beim Purisol und Selexol Verfahren komplexere Verbindungen als Wasch-

mittel eingesetzt werden, nutzt die Rectisol Wäsche lediglich Methanol. Das damit kostengünstige und gut verfügbare Waschmittel ist zudem niedrigviskos und weist eine hohe Aufnahmefähigkeit für  $\text{CO}_2$  auf. Außerdem ist der Siedepunkt gering, was mit energetischen Vorteilen in der Waschmittelregenerierung verbunden ist. Das Waschmittel im Purisol Prozess weist hingegen einen sehr hohen Siedepunkt auf. Um die thermische Zersetzung zu vermeiden, muss der Druck in der Heißregenerierung ins Vakuum abgesenkt werden, was zu einem erhöhten mechanischen Aufwand führt. Bei der Selexol Wäsche ist besonders die hohe Viskosität auffallend, was hier wiederum zu einem erhöhten mechanischen Aufwand für die Waschmittelumwälzung führt. Zudem liegt je nach genauer Zusammensetzung des Waschmittels auch hier der Siedepunkt recht hoch. Der Dampfdruck hingegen ist bei Methanol um Größenordnungen höher als bei den anderen Wäschen. Um allzu hohe Waschmittelverluste zu vermeiden, wird dieses mittels Wasserwäschen aus dem Reingas zurückgewonnen und das entstehende Abwasser aufbereitet. Betrachtet man abschließend noch die erzielbare Reinheit der Waschprozesse fällt auf, dass für höchste Schwefelreinheiten, wie in Syntheseanlagen gefordert, die Rectisol Anlage eingesetzt werden muss, während für IGCC-Anlagen grundsätzlich alle Wäschen in Frage kommen.

Neben den spezifischen Eigenschaften der verschiedenen Waschmittel, zeigen alle Verfahren bei hohen  $\text{CO}_2$ -Partialdrücken, wie sie nach der CO-Konvertierungsstufe im Rohgas auftreten, gute Aufnahmekapazitäten. Zudem erlaubt die fehlende chemische Bindung mit den abgetrennten Komponenten eine vergleichsweise einfache Regenerierung mittels Entspannung. Das Verhalten der ausgewählten Wäschen im Vergleich zu einer chemischen Wäsche ist in Abbildung 16 dargestellt. Es ist ersichtlich, dass im Gegensatz zum chemischen Pendant allein durch Entspannung über 90% des gelösten  $\text{CO}_2$  gewonnen werden können. Dies führt zu einer deutlichen Reduzierung des Wärmebedarfs in der Heißregenerierung.

Der Aufbau physikalischer Wäschen unterscheidet sich daher im Wesentlichen durch die zweistufige Regenerierung von den bereits diskutierten chemischen Wäschen. Im Folgenden wird die Funktionsweise stellvertretend am Beispiel des Rectisol Prozesses erläutert. Dieser nutzt in den bis zu 70 Meter hohen Absorberkolonnen kaltes Methanol als Waschmittel [Koss et al. 2003]. Zunächst wird das Rohgas aber in der Vorwäsche von Wasser, Kohlenwasserstoffen und Metallen befreit, um eine Anreicherung im Waschmittelkreislauf zu vermeiden. Dazu wird das Gas mit vorbeladenen Methanol gewaschen. Das resultierende Gemisch aus Wasser, Kohlenwasserstoffen und Methanol bedarf entsprechender Aufbereitung. Zunächst werden etwaige höhere Kohlenwasserstoffe durch Extraktion entfernt. Das verbleibende Gemisch aus niederen Kohlenwasserstoffen sowie Wasser und Methanol bil-

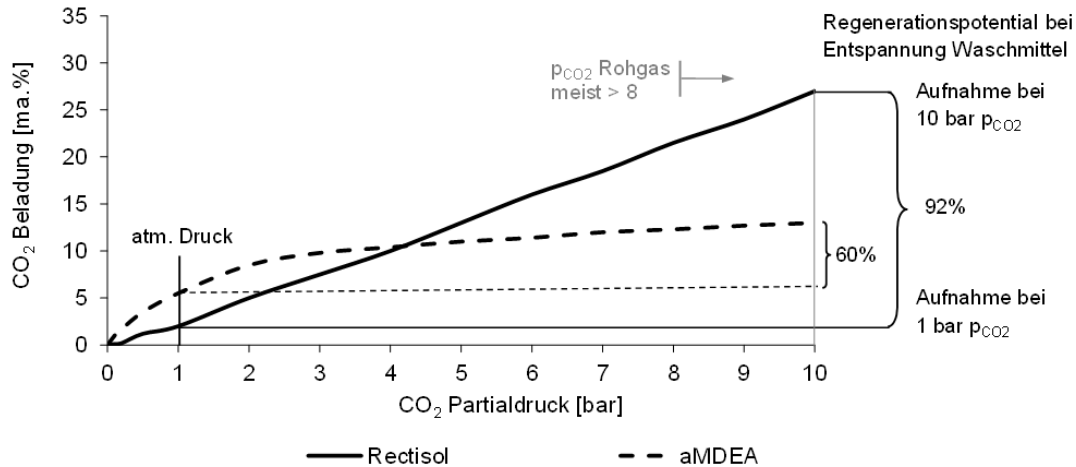


Abbildung 16: CO<sub>2</sub>-Aufnahmevermögen verschiedener Waschmittel (nach [Koss et al. 2003])

det ein Azeotrop und wird in einer Destillationskolonne aufgetrennt. Anschließend wird in einer weiteren Kolonne noch das Methanol aus dem Abwasser destilliert. Der Methanoldampf wird samt den Verunreinigungen mit geringerem Siedepunkt in die Heißregenerierung der Hauptwäsche geleitet [Supp 1990].

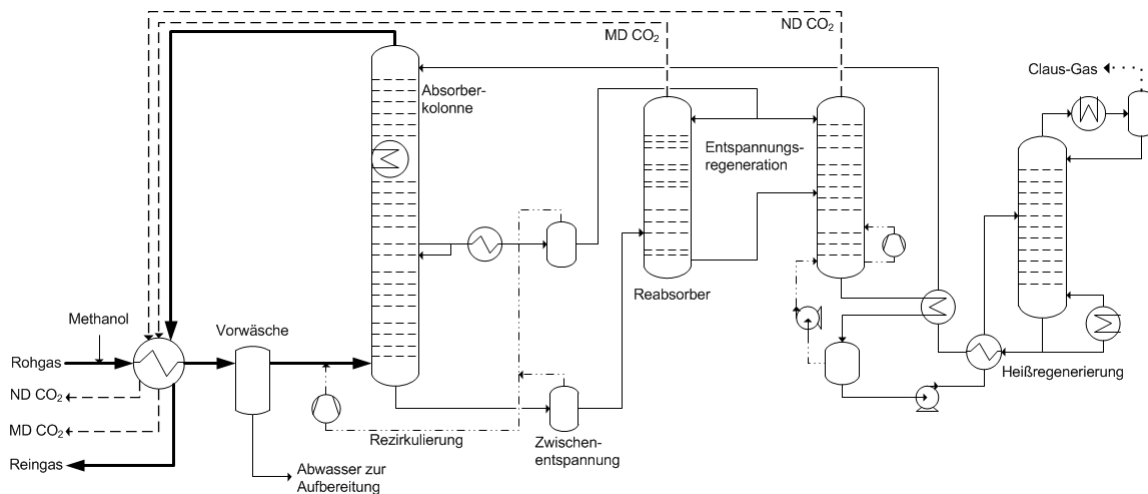


Abbildung 17: Anlagenschema der selektiven Rectisolwäsche (eigene Darstellung nach [Sammells et al. 2006, Supp 1990, Herbert 1956])

Das Rohgas tritt nun in den unteren Teil der Absorberkolonne ein und wird im Gegenstrom mit kaltem Methanol gewaschen. Dieses tritt mit rund -50 bis -70°C am Kopf der

Kolonne ein und nimmt zunächst überwiegend  $\text{CO}_2$  auf [Hochgesand 1970, Herbert 1956, Kohl et al. 1997]. Aufgrund der Absorptionswärme, erwärmt sich das Waschmittel, was die Aufnahmefähigkeit reduziert. Daher muss eine Kühlung vorgesehen werden. Die notwendige Kälte wird aufgrund des niedrigen Temperaturniveaus in der Regel durch eine Kompressionskälteanlage bereitgestellt [Ogriseck 2006]. Im unteren Drittel der Kolonne wird ein Teilstrom des Waschmittels ausgeschleust, welcher hauptsächlich  $\text{CO}_2$  gebunden hat. Der Rest wird dazu verwendet, um vor allem die Schwefelverbindungen abzutrennen. Diese besitzen eine höhere Affinität zum Waschmittel und bedürfen weniger tiefen Temperaturen. Die beiden beladenen Waschmittelströme werden dann zunächst auf ein mittleres Druckniveau entspannt. Auf diese Weise können ungewollt mit abgetrennte Gasbestandteile zurückgewonnen werden. Das verbleibende Waschmittel wird dann weiter auf 0,2 bis 7 bar entspannt, um das gebundene  $\text{CO}_2$  freizusetzen [Herbert 1956]. Dabei wird der schwefelhaltige Strom im unteren Teil und der vornehmlich mit  $\text{CO}_2$  beladene Strom im oberen Teil der Kolonne entspannt. Auf diese Weise können freigesetzte Schwefelverbindungen reabsorbiert und damit aufkonzentriert werden. Das  $\text{CO}_2$  kann auf den jeweiligen Druckniveaus, mit hoher Reinheit und niedriger Temperatur gewonnen werden [Hochgesand 1970]. Es wird daher, wie auch das Reingas, zur Kühlung des eintretenden Rohgases genutzt. Die, durch die Entspannung und Freisetzung gelöster Gase resultierende starke Abkühlung des Waschmittels, wird genutzt um die tiefsten Prozesstemperaturen zu decken [Herbert 1956]. Dadurch kann das Waschmittel vor der Heißregenerierung aufgewärmt und das regenerierte Methanol gekühlt werden. In der Heißregenerierung wird das Waschmittel bei rund  $65^\circ\text{C}$  gekocht [Herbert 1956], wodurch gebundene Gase freigesetzt werden. Im Kopfprodukt sind demnach die Schwefelkomponenten und Spurenstoffe ( $\text{NH}_3$ ) konzentriert, sowie Reste von  $\text{CO}_2$ . Um den im Restgas gebundenen Schwefel zurückzugewinnen, wird dieses wie, bereits beschrieben, in einer Claus Anlage nachbehandelt.

Das Vergasungsgas besteht nach der Sauergaswäsche fast ausschließlich aus Wasserstoff und wird vor der Nutzung im GUD-Teil mit Wasser gesättigt und mit Stickstoff verdünnt. Wie in Tabelle 4 verdeutlicht, bedingen auch hier die abweichenden Brenngaseigenschaften eine Adaption der Gasturbine. Der Wobbe Index ist für alle betrachteten Synthesegase deutlich verschieden von Erdgas. Damit ist das Gas nicht ohne weiteres in einer Erdgasmaschine einsetzbar. Durch den hohen Wasseranteil im Abgas ist zudem die thermische Belastung höher, weshalb die Turbineneintrittstemperatur typischerweise um 30 bis  $40^\circ\text{C}$  unter der von Erdgas liegt [v.Holthoon 2009]. Insbesondere die Brenngasmassenströme unterscheiden sich durch den deutlich geringeren Energieinhalt des Synthesegases im Vergleich zum Erdgas. Hier muss die Zuführung entsprechend angepasst werden.

Eine weitere wesentliche Größe ist die Flammgeschwindigkeit des Gases. Diese liegt

bei erdgasgefeuerten modernen Gasturbinen im Bereich von  $0,6 \frac{m}{s}$  (bei  $340^\circ\text{C}$  und 11 bar) [Seume et al. 2010]. Für typische Synthesegase aus IGCC-Kraftwerken wie Bugge-num oder Puertollano liegen diese Werte hingegen bereits bei rund  $0,81 \frac{m}{s}$  bzw.  $0,99 \frac{m}{s}$  [Seume et al. 2010]. Damit besteht eine höhere Rückschlaggefahr dieser Flammen in den Brenner. Wird nun noch  $\text{CO}_2$  abgetrennt, nimmt der Wasserstoffgehalt deutlich zu, was selbst bei Verdünnung die Flammgeschwindigkeit eher in den Bereich von  $2 \frac{m}{s}$  ansteigen lässt. Hier ist für eine optimale Nutzung dieser Gase ein Modifikation der Gasturbine erforderlich. Da diese Eigenschaften sehr mit der Gaszusammensetzung schwanken und diese wiederum je nach Vergasungsanlage und Einsatzstoff verschieden ist, werden gegenwärtig keine spezielle Synthesegas-Turbine, sondern vornehmlich adaptierte Erdgasmaschinen eingesetzt.

Tabelle 6: Auswirkung der  $\text{CO}_2$ -Abtrennung auf Brenngaseigenschaften (eigene Berechnung nach [DIN 51857])

Brenngas	Heizwert [MJ/m <sup>3</sup> i.N.]	Wobbezahl [MJ/m <sup>3</sup> i.N.]	Brenngas- strom [kg/s]	Cp Abgas [kJ/kgK] <sup>1</sup>
Erdgas (CH <sub>4</sub> )	1			
Syngas verd.	0,13	0,10	11,80	1,02
Syngas CCS unverd.	0,29	0,56	0,93	1,03
Syngas verd. CCS	0,16	0,17	5,40	1,06

<sup>1</sup> Wert bei Turbineneintrittstemperatur von  $1300^\circ\text{C}$

Trotz der notwendigen Zusatzsysteme ist die Möglichkeit der Nachrüstung der Pre-Combustion  $\text{CO}_2$ -Abtrennung bei bestehenden IGCC-Anlagen grundsätzlich gegeben. Bei Nachrüstung einer einstufigen Konvertierung und Adaption der vorhandenen Sauergaswäsche ist es möglich rund 65% des  $\text{CO}_2$  abzutrennen und damit die spezifischen Emissionen auf das Niveau von konventionellen GUDs abzusenken [Scholz et al. 2009, Higman 2007]. Es sind aber auch höhere Abtrennungsraten möglich, da die Sauergaswäsche auch zunächst nur als Entschwefelung ausgeführt und zu einem späteren Zeitpunkt entsprechend erweitert werden kann [Krerestecioglu et al. 2009]. Die erzielbare  $\text{CO}_2$ -Reinheit bei IGCC-Anlagen ist mit Abstand die höchste unter den drei CCS-Optionen und liegt im Bereich von 99% [Krerestecioglu et al. 2009]. Dieser Sachverhalt ist umso wichtiger, da gegenwärtig keine gesetzlichen Reinheitsanforderungen existieren. Dies führt dazu, dass in der Literatur zahlreiche Qualitäten je nach Standort, Transportart und Verwendung publiziert und verwendet werden. Eine Übersicht ausgewählter Projekte findet sich in Tabelle 7. Aus die-

ser geht hervor, dass der großtechnische Transport von CO<sub>2</sub> via Pipeline seit langem Stand der Technik ist. In Verbindung mit der verbesserten Erdölförderung (Enhanced Oil Recovery) wird das CO<sub>2</sub> auch bereits seit rund 40 Jahren im großen Stil in den USA verpresst [Spliethoff 2010]. Auch die Lagerung in alten Öl- und Gaslagerstätten kann demnach als Stand der Technik betrachtet werden.

Tabelle 7: CO<sub>2</sub> Qualitäten verschiedener Transport- und Speicherprojekte [IPCC 2005, Göttlicher 1999, Kapfer 2005, Altman et al. 2005]

Bezeichnung	Land	Daten	CO <sub>2</sub>	H <sub>2</sub> O	S	N <sub>2</sub> /Ar	O <sub>2</sub>
Sheep Mountain	USA	9,5 Mt/a 660 km	97	-	0,1	0,9	-
Cortez	USA	20 Mt/a 803 km	95	-	0,7	4,0	-
Budafa	Ungarn	33 km	81	-	0,3	1,9	-
Canyon Reef	USA	4,4 Mt/a 352 km	> 95	< 480 mg/m <sup>3</sup>	< 0,15	< 4,0	0,001
Trinity	USA	320 km	95	0,06	0,003	-	0,001
Bravo Dome	USA	7,3 Mt/a 350 km	95	0,06	0,02	4,0	-
Weyburn	Kanada	1,8 Mt/a 330 km	96	0,002	0,9	0,03	<0,005
Statoil <sup>1</sup>	Norwegen Algerien	Pipelines Aquifere	> 90	-	0,002	4,0	0,01

<sup>1</sup> Statoil betreibt Transport- und Speicherprojekte in Snohvit, Sleipner und In Salah

Auffallend an den ausgewählten CO<sub>2</sub>-Qualitäten ist insbesondere der geringe Wassergehalt. Dies ist dem Umstand geschuldet, dass sowohl CO<sub>2</sub> als auch Schwefelverbindungen in Gegenwart von Wasser korrosive Säuren bilden oder es zur Entstehung von Hydraten kommen kann [Kuckhinrichs et al. 2010]. Um das Schadensausmaß bei Leckagen zu minimieren, ist außerdem der Anteil an hochgiftigen Komponenten wie H<sub>2</sub>S, SO<sub>2</sub> und CO auf einen mittleren ppm Bereich zu begrenzen. Dadurch kann bei einem Austritt die Verdünnungswirkung der Umgebung etwaige gesundheitliche Schäden deutlich reduzieren [IEA 2004]. Der ebenfalls sehr geringe Wert für Sauerstoff ist in erster Linie auf die fehlenden Kenntnisse zum Verhalten des Sauerstoff bei EOR-Projekten zurückzuführen [Dynamis 2007]. Außerdem ist die Gesamtmenge an nichtkondensierbaren Gasbestandteilen zu limitieren, da diese maßgeblich die Dichte verringern und damit sowohl den Kompressionsaufwand erhöhen, als auch die Speicherkapazität verringern. Zudem verursachen sie einen höheren Druckverlust in der Pipeline und damit auch eine Temperaturabsenkung, welche zu Ver-

eisungen führen kann [Kuckhinrichs et al. 2010]. Langjährige Betriebserfahrungen zeigen, dass bei Einhaltung der Kriterien der Transport zuverlässig funktioniert [IPCC 2005] und die gesundheitlichen und ökonomischen Folgen bei Zwischenfällen im Vergleich zu Erdgas gering sind [Seevam et al. 2008].

Die Begrenzung der genannten Konzentrationen ist je nach CO<sub>2</sub>-Abtrennungsansatz<sup>4</sup> und -technik mit unterschiedlich hohem Zusatzaufwand verbunden. Im Fall von IGCC-Anlagen ist aufgrund der hohen Selektivität der Wäschen und niedrigen Temperaturen, das Maß an Verunreinigungen von vornherein vergleichsweise gering. Die höchste CO<sub>2</sub>-Qualität weist dabei die Rectisol Wäsche auf, welche nahezu trockenes CO<sub>2</sub> mit Reinheiten über 99% ermöglicht [Krerestecioglu et al. 2009].

## 1.5 Zukünftige Technologien für IGCC-Kraftwerke

Wie erwähnt, ist die klassische Pre-Combustion CO<sub>2</sub>-Abtrennung bei IGCC-Kraftwerken keine neuartige Erfindung, sondern nur die Kombination bereits seit Jahrzehnten eingesetzter und bewährter Technologien. Durch deren geschickte Kombination mag sich zwar noch Optimierungspotential erschließen lassen, die Systeme für sich betrachtet, erscheinen aber ausgereift und nur noch begrenzt steigerbar. Da der Fokus der vorliegenden Arbeit auf neuartigen Technologien für den zukünftigen Einsatz im IGCC-Kraftwerk liegt, sollen diese zum besseren Verständnis im folgenden Abschnitt erläutert werden.

### 1.5.1 Sauerstoffmembranen

Neben der klassischen kryogenen Luftzerlegung, wird bereits seit vielen Jahren versucht membranbasierte Verfahren zu etablieren. Dabei wird Luft über ein sauerstoffdurchlässiges Material geleitet und abgetrennt. Der abgetrennte Sauerstoff wird fortan als Permeat, die verbleibende ausgelaugte Luft als Rententat bezeichnet. Als aussichtsreich für Großanlagen gelten wegen ihrer hohen Selektivität perowskitische Membranen. Diese anorganischen Metallmischoxide wirken ab Temperaturen über 600°C als Ionenleiter [Smith et.al. 2001]. Ihre Strukturformel folgt dem Schema  $AB - O_3$ , wobei "A" stellvertretend für zwei- sowie dreiwertige Elemente wie Lanthan, Strontium, und "B" beispielsweise für die Elemente Chrom, Mangan, Eisen oder Cobalt steht. Der Transport erfolgt über Fehlstellen im Sauerstoffteilgitter des Materials und kann in folgende Einzelschritte gegliedert werden [Melin et al. 2007]:

- Transport der O<sub>2</sub>-Moleküle an die Membranoberfläche

---

<sup>4</sup>Post- oder Pre Combustion bzw. Oxyfuel



- Adsorption und Ionisierung an der Oberfläche
- Festkörper Diffusion der  $O_2$ -Anionen
- Rekombination und Desorption der  $O_2$ -Moleküle
- Abtransport von der Membranoberfläche

Die Bereitstellung der Elektronen erfolgt durch das Material selbst, weshalb kein zusätzliches elektrisches Potential angelegt werden muss. Da bei zunehmender Temperatur vor allem der Diffusionsvorgang durch die Membran transportbestimmend ist, sollte diese Schicht so dünn wie möglich sein. Die Triebkraft für die Permeation ist damit das Sauerstoffpartialdruckverhältnis. Um dieses zu erhöhen, wird die Membran typischerweise auch einer absoluten Druckdifferenz ausgesetzt sein [Melin et al. 2007]. Daher ist aus Stabilitätsgründen ein Trägermaterial wie poröses Aluminiumoxid notwendig, was sowohl über ausreichend hohe mechanische und thermische Stabilität verfügt als auch den Sauerstofftransport nicht behindert.

Bei vorhandener Triebkraft (Partialdruckdifferenz), werden bei Luft daher die Sauerstoffionen sehr selektiv geleitet und damit abgetrennt. Gegenwärtig befindet sich dieser sogenannte Oxygen Transfer Membrane (OTM) Prozess im Demonstrationsstadium. Im Fokus steht das Up-scaling des Prozesses auf eine Kapazität von 150 Tonnen Sauerstoff pro Tag [vStein et al. 2009]. Eine vereinfachte schematische Darstellung des OTM-Prozesses ist in Abbildung 18 dargestellt.

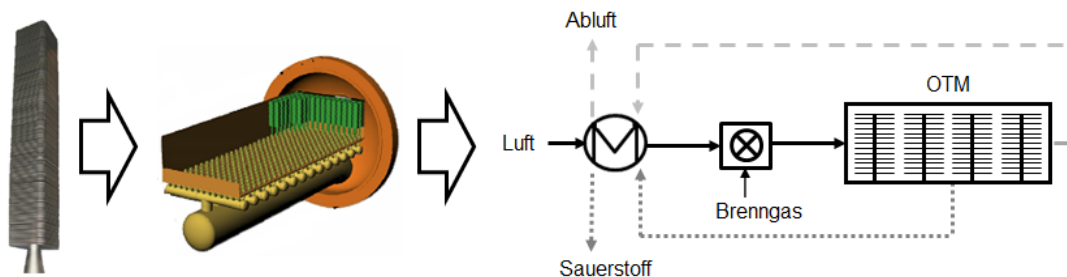


Abbildung 18: Vereinfachtes Schema des OTM-Prozesses [vStein et al. 2009, vStein et al. 2007]

Der Prozess nutzt komprimierte Luft, welche mit rund  $850^\circ C$  und zwischen 10 - 30 bar auf die Membranmodule geleitet wird. Die erzielbare Sauerstoffreinheit des Prozesses liegt aufgrund der hohen Selektivität bei über 99%. Etwaige Verunreinigungen sind dabei

vor allem auf Dichtungsprobleme zurückzuführen [Stein et al. 1999]. Um die Luft nach der Komprimierung auf die erforderliche Temperatur zu erwärmen, wird zunächst so weit wie möglich der Wärmehalt der Produkte genutzt. Erst für die finale Temperaturerhöhung wird Brenngas zugegeben und die Luft durch dessen Verbrennung direkt erhitzt. Die Hintergründe dieser Verfahrensweise sind nicht allein durch energetische Aspekte begründet, sondern auch durch das Bestreben die Sauerstoffkonzentration in der Heißluft möglichst wenig zu reduzieren. Denn die Abtrennungsleistung der Membran ist neben den Materialeigenschaften vor allem auch durch das Sauerstoffpartialdruckverhältnis zwischen Retentat- und Permeatseite<sup>5</sup> bestimmt. Der sich bei gegebenen Parametern erzielbare Sauerstoffstrom  $j$  kann mittels Gleichung 6 [Stein et al. 1999] berechnet werden:

$j_{O_2}$	Stoffstrom	$R$	Ideale Gaskonstante
$L$	Membrandicke	$p$	Partialdruck
$\sigma_i$	Ionische Leitfähigkeit	$n$	Elektrische Ladung
$F$	Faraday Konstante	$T$	Temperatur

$$j_{O_2} = \frac{\sigma_i R T}{4 L n^2 F^2} \ln \left( \frac{p'_{O_2}}{p''_{O_2}} \right) \quad (6)$$

Dabei stellt der Term  $\frac{p'_{O_2}}{p''_{O_2}}$  das Verhältnis zwischen Sauerstoffpartialdruck auf der Luftseite ( $p'$ ) und Permeatseite ( $p''$ ) dar. Da aber die Gleichung materialspezifische Größen enthält, welche in der Regel der Öffentlichkeit nicht zugänglich sind, muss die Performance über die theoretisch erzielbare Abtrennungsrate  $R_T$  abgeschätzt werden. Diese ist durch das Partialdruckverhältnis des Sauerstoffs festgelegt und kann über Gleichung 7 [Armstrong 2002] bestimmt werden:

$$R_T = 1 - \frac{(1 - X_{O_2-Luft})}{X_{O_2-Luft}} \times \left( \frac{P_{permeat}}{P_{Retentat} - P_{Permeat}} \right) \quad (7)$$

Als Betriebsbereich des OTM-Prozesses werden in der Literatur Partialdruckdifferenzen im Bereich von 5 bis 7 genannt [Armstrong 2002]. Die sich aus dem Sauerstoffanteil der Retentatseite  $X$  sowie den Absolutdrücken  $P$  vor und hinter der Membran ergebende theoretische Abtrennungsrate  $A_{th}$  wird in der realen Anlage üblicherweise nur 25% bis maximal 85% (praktische Abtrennungsrate  $A_{pr}$ ) ausgenutzt. Die realisierte Abtrennungsrate

---

<sup>5</sup>Retentat bezeichnet dabei die zurückgehaltenen Komponenten und Permeat die durch die Membran dringende Komponenten

$A_{OTM}$  ergibt sich demnach aus dem Produkt von theoretisch erzielbarer Abtrennungsrate  $A_{th}$  und deren praktischen Ausnutzung  $A_{pr}$ . Da die Ausnutzung aber im Wesentlichen eine Frage der Membranfläche ist, handelt es sich auch um eine wirtschaftliche Optimierungsfrage. Der verbleibende Sauerstoffanteil im Retentatstrom berechnet sich dann entsprechend folgender Vorschrift [Armstrong 2002]:

$$X_{O_2-Retentat} = \frac{X_{O_2-Luft} \times (1 - R)}{(1 - R X_{O_2-Luft})} \quad (8)$$

Der Partialdruckunterschied als wesentliche Triebkraft des Membranprozesses bedingt, dass eine vollständige Abtrennung der jeweiligen Komponente unter praktischen Gesichtspunkten kaum realisierbar ist. Dies wird am Beispiel des Verdünnungstickstoffs deutlich, welcher bei IGCC-Konzepten dem Brenngas zugegeben wird. Dieser sollte unter 2 Vol.-% an Sauerstoff aufweisen, um Auto-Oxidation des reaktiven Gasgemisches zu vermeiden. Dafür müssen rund 90% des Sauerstoffs aus der Umgebungluft abgetrennt werden. Um dies theoretisch zu erreichen, bedarf es, gemäß Gleichung 7, eines Partialdruckverhältnisses von 10,3. Für die praktische Realisierung, muss selbst bei einem Partialdruckunterschied von 27 mindestens 93% der theoretisch möglichen Abtrennungsrate erreicht werden. Laut Hersteller wird daher für diese Zwecke ein Teilstrom des verbleibenden  $N_2/O_2$  Gemisches nach der Hauptabtrennung in einem zweiten Membranmodul weiter behandelt, während die fühlbare Wärme des heißen komprimierten Reststroms soweit wie möglich zurückgewonnen wird [vStein 2009].

Da das Druckniveau des Prozesses im Bereich von modernen Gasturbinen liegt, besteht wie bei der kryogenen Luftzerlegung die Möglichkeit der luftseitigen Integration mit der Gasturbine. Hierbei wird die Luft aus dem Verdichter abgezogen und nach der Auslaugung der Brennkammer zugeführt. Dies soll zu einer Wirkungsgradsteigerung von 2,2% führen, bei gleichzeitiger Reduzierung der Investitionskosten der LZA um rund 35% [vStein et al. 2007]. Weiteres Potential liegt zudem im Einsatz eines "Boost"-Kompressors durch Partialdruckerhöhung und Rekuperators zur Wärmerückgewinnung [vStein et al. 2007, vStein et al. 2009].

### 1.5.2 Heißgasreinigung

Die Heißgasreinigung wurde vor allem um die Jahrtausendwende als naheliegende Weiterentwicklung der konventionellen Gasreinigung bei Umgebungstemperaturen betrachtet. Die damit verbundenen thermodynamischen Potentiale führten zu umfangreichen Forschungstätigkeiten und der Realisierung von Demoanlagen [Korens et al. 2002]. Trotzdem

konnte sich die Heißgasreinigung bis zum gegenwärtigen Zeitpunkt im industriellen Maßstab nicht durchsetzen.

Der Begriff Heißgasreinigung bezeichnet gegenwärtig Reinigungsverfahren, die oberhalb von 250°C betrieben werden, wobei in der Literatur darunter vornehmlich die trockene Gasreinigung im Temperaturbereich bis 400°C verstanden wird [Higman et al. 2008]. Die Bezeichnung Warmgasreinigung erscheint daher in diesem Zusammenhang eher angebracht. In Abgrenzung dazu, wird in der vorliegenden Arbeit der Temperaturbereich von 400 bis 1500°C betrachtet. Hintergrund ist das Bestreben, die starken Temperaturschwankungen sowie die damit verbundene verlustbehaftete und teure Wärmeverschiebung, zwischen Hochtemperaturvergasung und Gasturbinenbrennkammer, zu vermeiden. Zudem verursacht die konventionelle Gasreinigung einen beträchtlichen Druckverlust im System, was insbesondere beim CO<sub>2</sub> zu einem hohen Kompressionsaufwand führt.

Der Fokus bisheriger Bestrebungen im Bereich der Warmgasreinigung lag vornehmlich bei der trockenen Entschwefelung und Entfernung der Spurenstoffe. Dabei wurden je nach Spezies verschiedene Methoden untersucht, die im jeweiligen Temperaturbereich eine effektive Abtrennung ermöglichen. Eine Übersicht dazu findet sich in Tabelle 8.

Tabelle 8: Übersicht zum Stand der Warm- und Heißgasreinigung [Korobov 2004, Korens et al. 2002, Mitchell 1998, Smid et al. 2006]

Klasse	Spezies	Technik	T-Bereich	Reinheit
Partikel	Schlacke	Zyklon		95 - 98%
	Kohlenstoff	Filter	600 - 750°C	>99,9%
		Wanderbett	bis 900°C	99,9 %
Alkalien	Na/Ca/K mit CL/OH	Kondensation am Partikel	T < 500°C	k.A.
Schwefel	H <sub>2</sub> S	Zinkoxid	500°C	<1 ppmv
	COS	Zinktitanat	450 - 750°C	<10 ppmv
	CS <sub>2</sub>	Ceriumoxid	750 - 1000°C	<100 ppmv
Halogenide	HCl NH <sub>4</sub> Cl	Chemisorption an Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> /CaO Vermeidung <sup>1</sup>	550 - 650°C T > 240°C	1 ppm
Stickstoff	NH <sub>3</sub>	Zersetzung (Fe,Ni)	T > 700°C	-
	HCN	Oxidation (Ti, V)	T < 600°C	
Metalle	Fe,Pb,Hg,Se Karbonyle	Aktivkohle Vermeidung <sup>2</sup>	T < 250°C T > 400°C	-

<sup>1</sup> Ammoniumchlorid (NH<sub>4</sub>Cl) entsteht erst bei Temperaturen unter 250°C als fester Stoff

<sup>2</sup> Karbonyle bilden sich überwiegend erst bei Temperaturen unter 400°C

Unter den zahlreichen Ansätzen der Warmgasreinigung hat sich die Partikelabtrennung

bei hohen Temperaturen als bislang Einzige durchgesetzt. Die temperaturbeständigen Zykclone weisen bei niedrigen Partikelgrößen sinkende Abscheidungsraten auf, weshalb sie nur zur Grobreinigung geeignet sind. Da Gewebefilter nur geringe thermische Stabilität besitzen, werden für die Einhaltung der Gasturbinenanforderungen Keramik- oder Metallfilter benötigt. Diese können in Bereichen von 600 bis 750°C eingesetzt werden [Korobov 2004]. Bei höheren Temperaturen wird die Asche aber zunehmend klebrig, was insbesondere bei der Abreinigung zu Problemen führen kann. Hier bieten Wanderbettfilter, auf Basis von keramischen Füllkörpern, eine Möglichkeit höchste Abscheidungsraten zu erzielen [Smid et al. 2006].

Die trockene Entschwefelung und Feinentschwefelung befindet sich derzeit immer noch im Demonstrationsstatus. Wenngleich bereits größere Testanlagen errichtet wurden, steht eine erfolgreiche Demonstration noch aus. So wurde die Anlage in Pinon Pine nie in Betrieb genommen, wenngleich die Gründe hierfür massive Problemen mit dem Vergaser waren, die letztlich zum Abbruch des Projektes führten [Korens et al. 2002]. Auch in der IGCC-Demoanlage in Tampa wurden entsprechende anfängliche Bestrebungen letztlich nicht umgesetzt. Im Allgemeinen kommen für IGCC-Anwendungen zwei Möglichkeiten in Betracht, die insitu Entschwefelung oder die nachträgliche Entfernung des Schwefels mittels regenerierbarer Metalloxide. Ausgehend von Ergebnissen aus Versuchsanlagen kann die insitu Entschwefelung nur als Grobreinigung betrachtet werden [Korobov 2004, Korens et al. 2002]. Für die notwendige Feinreinigung werden also Sorbentien zum Einsatz kommen, welche vorzugsweise als Wirbelschicht oder Flugstrom ausgeführt werden sollten [Mitchell 1998]. Wichtig für die Eignung des Sorbens ist eine möglichst hohe Kapazität, Regenerierbarkeit und Stabilität. Wie in Tabelle 8 ersichtlich, sinkt tendenziell mit steigender Temperatur die erzielbare Reinheit im Rohgas. Außerdem werden viele Sorbentien bei höheren Temperaturen und unter reduzierender Atmosphäre instabil (Sinterung, Nebenreaktionen, Verflüchtigung) [Korobov 2004]. Trotzdem sollte eine Heißgasentschwefelung auf gasturbinentaugliche Konzentrationen im Temperaturbereich von 500 bis 1000°C realisierbar sein.

Die Abtrennung von Stickstoffverbindungen ist hingegen noch weiter von der Kommerzialisierung entfernt. Denkbar sind entweder die katalytische Zersetzung oder Oxidation zu Stickstoff. Beide Verfahren funktionieren ausschließlich bei hohen Temperaturen um 600 bis 800°C [Korobov 2004]. Zwar konnten bei beiden Prozessen unter Laborbedingungen hohe Umsätze nachgewiesen werden, welche aber in Gegenwart von Synthesegaskomponenten sowie Wasser- oder Schwefelspuren deutlich absanken [Korobov 2004]. Geht man aber von 1000 - 2000 ppmv an Ammoniak im Rohgas aus, so läge der Wert im Brenngas auch bei den genannten Reduzierung von 80 - 90% im niedrigen dreistelligen ppm Bereich.

Da in der Brennkammer zusätzlich thermisches NO<sub>x</sub> erzeugt wird, wäre eine grundsätzliche Abtrennung nach der Verbrennung möglicherweise vorteilhafter.

Die wesentlichen Bestandteile des in der vorliegenden Arbeit gewählten Heißgasreinigungsansatzes für IGCC-Kraftwerke mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung, sind die Flüssigascheabscheidung sowie der Hochtemperatur-Membranshiftreaktor. Im Folgenden werden nun der Aufbau und die Funktionsweise der beiden Systeme beschrieben.

Das Konzept der Flüssigascheabscheidung (FAA) wurde ursprünglich im Zusammenhang mit der Druckkohlenstaubeuerung entwickelt. Dort sollte das Rauchgas aus der Verbrennung gasturbinenfähig aufbereitet werden. Dazu sollten bei Temperaturen oberhalb des Ascheschmelzpunktes sowohl Aschepartikel als auch Alkalien mittels keramischer Füllkörper nahezu vollständig abgetrennt werden. Die Entschwefelung war hier nicht Gegenstand der Forschung, da dieser in Abwesenheit der Alkalien als unkritisch angesehen wurde. Der Prozess an sich besteht aus mehreren Schüttungen von keramischen, kugelförmigen Sorbentien auf Basis von Chromoxid [Müller et al. 2009]. Bei Adaption des Systems an einen Flugstromvergaser kann der Prozess gemäß Abbildung 19 auf Seite 40 dargestellt werden.

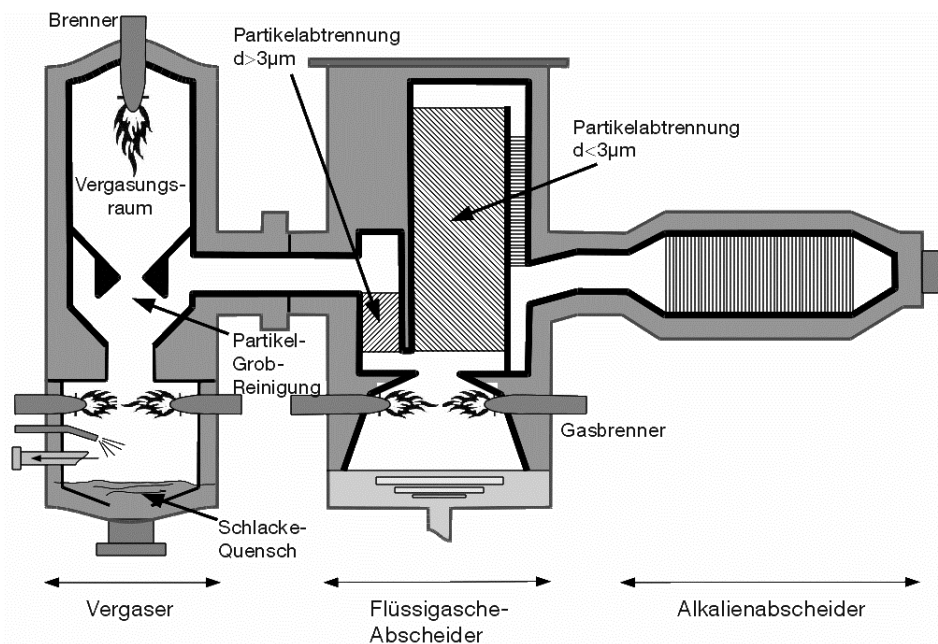


Abbildung 19: Schema der Flüssigascheabscheidung (eigene Darstellung nach [Müller et al. 2009])

Die Schüttungen dienen zunächst der Abtrennung jener Schlacketröpfchen, welche nicht

schon im Vergaser durch Trägheit und Schwerkraft abgeschieden wurden. Diese oft feineren Schlacketröpfchen werden beim Durchströmen der Kugelschüttung aufgrund ihrer Trägheit an der Keramikoberfläche abgeschieden. Bei Betriebstemperaturen oberhalb des Ascheerweichungspunktes kann die abgeschiedene Schlacke abfließen und aus dem Prozess ausgetragen werden. In Versuchsanlagen konnte mit diesem Ansatz bereits eine vollständige Abtrennung von Partikeln größer als 3  $\mu\text{m}$  nachgewiesen werden [Müller et al. 2009]. Allerdings ist die Abtrennung feinerer Tröpfchen nur unzureichend, da diese bei hohen Temperaturen zunehmend durch Thermophorese ionisiert und damit elektrisch geladen werden. Das führt, durch die verminderte Agglomeration gleich geladener Tröpfchen und Abstoßung an der Oberfläche der Füllkörper, zu geringen Abscheidungsleistungen. Dieser Effekt konnte aber in Versuchsanlagen durch Anlegen eines schwachen elektrischen Feldes soweit reduziert werden, dass gasturbinentaugliche Partikelbeladungen im Abgas erzielt werden konnten [Müller et al. 2009, Förster et al. 2005]. Gleichzeitig konnte durch den vermehrten Kontakt des Gases mit der Schlacke der Alkaliengehalt im Gas reduziert werden. Auch hier konnte das Einbindungsverhalten, durch ein zusätzliches elektrisches Feld deutlich gesteigert werden. Nutzt man dafür mit Schlacke benetzte Flächen als Kathode, beispielsweise die Vergaserwand, so werden Alkalien tief in die Schlacke gezogen. Grund dafür ist die Elektrophorese, durch welche die Kationen in den Verbindungen zur Wand bewegt werden. Die dabei entstehende Verarmung an der Oberfläche der Schlackephase führt zur vermehrten Einbindung von weiteren Alkalien aus der Gasphase um das thermodynamische Gleichgewicht zu wahren. Auf diese Weise konnte in experimentellen Untersuchungen eine Alkalieinbindung von über 90% nachgewiesen werden [Müller et al. 2009]. Prinzipiell sollten aber nicht nur Alkalien sondern alle kationischen Komponenten, demnach auch Schwermetalle, in die Schlacke eingebunden werden können. Für die Einhaltung der strengen Gasturbinengrenzwerte, ist aber eine weitere Absenkung auf unter 0,01 mg/Nm<sup>3</sup> nur durch zusätzliche Alkali-Gettermaterialien erzielbar [Escobar 2007, Escobar et al. 2008]. Hierzu wurden bislang vor allem Alumosilikate untersucht, bei denen bereits eine ausreichende Abscheidungsleistung bei 1400°C nachgewiesen wurde. Dabei scheinen die Alkalien durch Chemisorption in lokal gebildeten Schmelzen gebunden zu werden [Escobar 2007, Escobar et al. 2008]. Die Anwendung dieser, bislang nur in oxidierender Atmosphäre betrachteten Heißgasreinigung sollte grundsätzlich auch in reduzierender Atmosphäre möglich sein, wenngleich sich sowohl die Chemie der Schlacke als auch der Gasphase verändert. Anpassungen sind wohl aber bei der Korrosionsbeständigkeit der Keramiken und Gettermaterialien zu erwarten, da diese im Gegensatz zu den Vergaserwänden nicht durch eine feste Schlackeschicht geschützt, sondern ständig der aggressiven flüssigen Schlacke ausgesetzt sind.

Sollte die Umsetzung realisierbar sein, würde nach dieser Heißgasreinigungsstufe ein partikel-, alkali- und metallfreies Rohgas mit rund 1400°C zur Verfügung stehen. Dieses kann nun für die weitere Verwendung auf ein mittleres Temperaturniveau abgekühlt werden. Die Enthalpie des Gases kann dabei zur Dampfgewinnung oder bei Anlagen mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung zur Sättigung mit Wasserdampf genutzt werden. Letzteres kann dabei über einen Partialquench realisiert werden, bei dem das Temperaturniveau des Rohgases oberhalb von 500°C bleibt. Die genaue Temperatur wird durch den Folgeprozess festgelegt. Im Falle einer trockenen Entschwefelung wird das Temperaturniveau je nach den bestehenden Reinheitsanforderungen bei 500 bis 700°C liegen [Mitchell 1998]. Sollte sich direkt eine schwefelresistente CO-Konvertierung anschließen, wird vor allem das benötigte H<sub>2</sub>O zu CO-Verhältnis ausschlaggebend sein. Um einen ausreichenden Umsatz der exothermen CO-Shiftreaktion auch bei möglichst hohen Prozesstemperaturen zu erzielen, muss die CO-Konvertierung in einem wasserstoffdurchlässigen Membranreaktor durchgeführt werden (Abbildung 20).

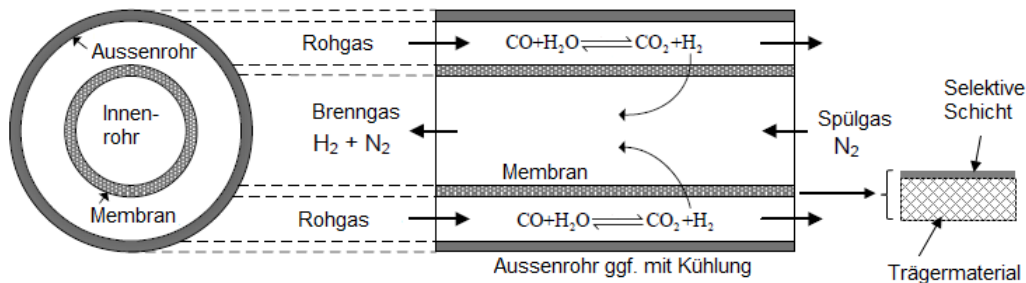


Abbildung 20: Schema des Membran-Shift-Reaktors

Dabei wird kontinuierlich Wasserstoff über die selektiv leitenden Reaktorwände aus dem Reaktionsraum abgeführt. Durch diese Verfahrensweise wird ständig Produkt entfernt, wodurch zur Wahrung des thermodynamischen Gleichgewichtes der CO-Umsatz gesteigert werden muss. Unterstützt wird die Reaktion zusätzlich durch katalytisch wirksame Komponenten auf der Oberfläche der Membran oder durch das Membranmaterial selbst [Julbe et al. 2001]. Daher ist im Gegensatz zur konventionellen CO-Konvertierung, beim Membranreaktor kein hoher Überschuss an Wasserdampf notwendig [Uemiya et al. 1991]. Unterstellt man bei optimalen Verhältnissen einen stöchiometrischen Überschuss von 10%, ergibt sich je nach Quenchmedium eine Rohgastemperatur von rund 500°C (Heißwasser) bis 900°C (MD-Sattdampf).

Neben der baulichen Ausführung (planar oder tubular), können Membranreaktoren



auch nach deren Membranmaterial und damit nach Art des zugrundeliegenden Transportmechanismus unterschieden werden. In Anbetracht des hohen Temperaturniveaus kommen für die Anwendung nur anorganische Werkstoffe in Frage, welche grundsätzlich in poröse und dichte Membranen unterschieden werden können (Abbildung 21).

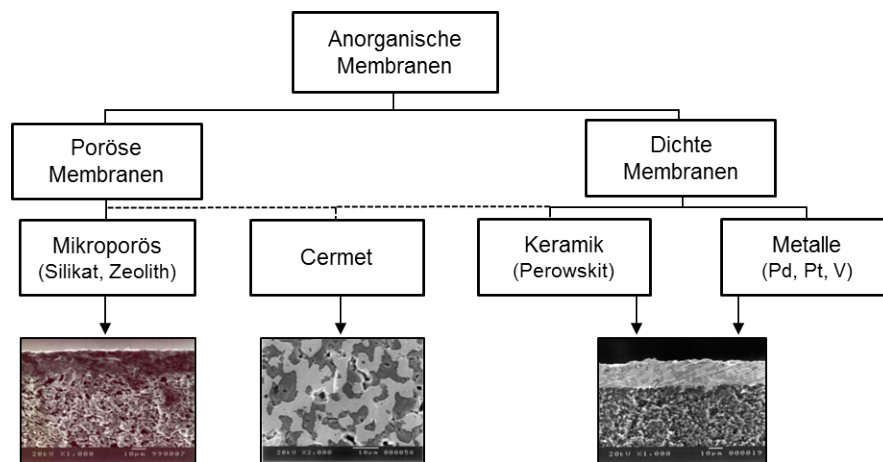


Abbildung 21: Übersicht zur Membranklassifizierung (eigene Darstellung nach [Balachandran et al. 2008])

Bei porösen Membranen basiert der Stofftransport vornehmlich auf Diffusion des Wasserstoffs durch die Poren des Materials. Sie weisen in der Regel eine sehr gute Permeabilität auf, dies allerdings zu Lasten der Selektivität [Coronas et al. 1999]. Bisher sind für den Einsatz in Membranreaktoren vornehmlich Zeolithe und Silikamembranen erforscht. Zeolithe sind aufgrund ihrer kristallinen Struktur thermisch sehr beständig [Caro et al. 2007]. Sie fungieren als Molsieb und sind außerdem selbst katalytisch wirksam [Melin et al. 2007].

Dichte Membranen bieten eine sehr gute Permeabilität und Stabilität gegenüber Schwefel [Sammells et al. 2006], weisen hingegen aber nur eine geringe hydrothermale Beständigkeit auf [Melin et al. 2007, Lu et al. 2007]. Diese lässt sich zwar durch Dotierung mit Aluminiumoxid verbessern, jedoch dürfte der Einsatzbereich in Gegenwart von Dampf eher unter 600°C liegen [Lu et al. 2007]. Dichte Membranen basieren zudem auf der unterschiedlichen Löslichkeit und Beweglichkeit der Gaskomponenten im Membranwerkstoff. Dementsprechend ist der Stofftransport sehr selektiv [Melin et al. 2007]. Allerdings ist die Permeabilität der dichten Werkstoffe vergleichsweise gering, weshalb die selektive Schicht so dünn wie möglich ausgeführt werden sollte. Als typische Größenordnungen werden hier 1 bis 25 µm genannt [Melin et al. 2007]. Um dennoch Druckdifferenzen über die Mem-

bran zu ermöglichen, wird ein metallischer oder keramischer Trägerstoff eingesetzt. Dabei sind keramische den metallischen Materialien vorzuziehen um insbesondere bei hohen Temperaturen intermetallische Diffusion zu vermeiden, was den Stofftransport vermindern würde. Bislang am häufigsten zur Wasserstoffabscheidung untersucht sind Palladiumlegierungen. Hier dissoziiert das  $H_2$ -Molekül nach der Adsorption und diffundiert in atomarer Form durch das Metallgitter. Auf der Permeatseite rekombiniert der atomare Wasserstoff und desorbiert von der Oberfläche. Durch die Sorption des Wasserstoffs dehnt sich allerdings das Gitter stark aus, was eine Versprödung des Materials bewirkt. Daher werden oft Legierungen auf Kupfer, Nickel oder Vanadium-Basis eingesetzt, was die Stabilität deutlich erhöht [Melin et al. 2007], allerdings die Permeabilität signifikant herabsetzen kann [Ciocco et al. 2007]. Gegenüber Spurenstoffen im Rohgas, insbesondere Schwefelverbindungen, bleiben sie aber sehr empfindlich und reagieren mit starkem Abfall des CO-Umsatzes. Dies ist auf die Deaktivierung der katalytischen Aktivität der Membran zurückzuführen. Daher bleibt der Stofftransport weitgehend unbeeinflusst [Ciocco et al. 2007]. Als weiterer Aspekt der Metallmembranen muss selbst bei Einsatz von Legierungen der hohe Anteil an Edelmetall hervorgehoben werden, was mit entsprechend hohen Kosten verbunden ist. Aus diesem Grund werden aktuell vanadiumbasierte Legierungen auf deren Eignung für Membranreaktoren untersucht. Für diese wurden bereits eine um den Faktor 8 höhere Permeabilität und eine Beständigkeit bis  $450^\circ C$  nachgewiesen. Zugleich würde das Material zu einer Kostenreduktion im Vergleich zu den herkömmlichen Palladiummembranen von 80% führen [Dolan et al. 2010].

Zur Klasse der dichten Membranen zählen die bereits in Zusammenhang mit der Sauerstoffgewinnung behandelten Perowskite. Wie in Abschnitt 1.5.1 erwähnt, fungieren diese bei hohen Temperaturen als Ionenleiter. Bei bestimmten Perowskiten auf Basis von Strontium oder Barium konnte aber bei hohen Temperaturen auch eine Protonenleitfähigkeit nachgewiesen werden [Sammells et al. 2006, Julbe et al. 2001], welche die Materialien auch für die Abscheidung von Wasserstoff interessant macht. Auch hier handelt es sich also um Feststoffdiffusion, was wiederum möglichst dünne Trennschichten und damit ein poröses Trägermaterial erfordert [Melin et al. 2007]. Die Protonenleitfähigkeit sinkt mit zunehmender Temperatur, weshalb die Membranen nur bei hohen Temperaturen effektiv eingesetzt werden können.

Neben den bereits behandelten reinen Membranwerkstoffen gibt es aber auch Kombinationen von Metall und Protonen leitenden Membranen. Diese sogenannten Cermets wurden insbesondere von Balachandran et.al. für die Wasserstoffabtrennung untersucht. Sie weisen im Gegensatz zu reinen Metallmembranen eine erhöhte Schwefelresistenz auf. In Laborversuchen konnte bei einer  $H_2S$ -Konzentration von 400 ppm ein stabiler Fluss nach-

gewiesen werden. Außerdem ist die Membran regenerierfähig und bei hohen Temperaturen einsetzbar [Balachandran et al. 2008].

Tabelle 9: Übersicht zum Stand der Membranreaktorforschung [Ciocco et al. 2007, Kluiters 2004, Lu et al. 2007, Balachandran et al. 2008, Melin et al. 2007]

Membran	Zeolith/SiO <sub>2</sub>	Cermet	Pd-Legierung	Perowskit
Typ	porös	dicht/porös	dicht/metal.	dicht/keram.
Temperatur	600°C	600-900°C	400-900°C	700-1000°C
Delta P	13 bar	< 2 bar	~ 5 bar	17 bar
Permeanz				
Stabilität	H <sub>2</sub> S <100ppm H <sub>2</sub> O	400 ppm H <sub>2</sub> S bei 900°C	H <sub>2</sub> Versprödg. S - Vergiftung	~100 H <sub>2</sub> S ppm H <sub>2</sub> O und H <sub>2</sub>
CO Umsatz	98% (300°C H <sub>2</sub> O/CO:1)	-	> 99% (900°C H <sub>2</sub> O/CO:1,5)	bis 90% (700°C)
Negativ	Stabilität (H <sub>2</sub> O) wenig selektiv	geringe mech. Stabilität	hohe Kosten Stabilität (H <sub>2</sub> S, H <sub>2</sub> )	Stabilität (H <sub>2</sub> O, H <sub>2</sub> ) geringer Fluss
Positiv	hoher Fluss geringe Kosten	S-Resistent hoher Fluss	hoher Fluss gute Selektivität	geringe Kosten gute Selektivität

Zur Beurteilung der verschiedenen Membranen werden neben der Zielgröße Wasserstofffluss  $j_{H_2}$  vornehmlich zwei weitere Größen in der Literatur verwendet, die Permeabilität  $k$  und die Permeanz  $k'$ . Während der Fluss  $j$  lediglich angibt, welche Menge der Komponente bei konstanten Bedingungen<sup>6</sup> pro Zeit- und Flächeneinheit (folglich Einheit:  $\frac{mol}{m^2s}$ ) durch die Membran dringt, sind die beiden Anderen eher membranspezifische Größen. So gibt die Permeabilität  $k$  an, wie gut ein Material von einer bestimmten Komponente durchdrungen werden kann. Die Größe ist demnach sowohl abhängig vom angelegten Partialdruckgefälle als auch von der Dicke der Membran und ergibt sich aus der Arrhenius Gleichung:

$$k : k_0 \exp \frac{E_a}{RT} \quad (9)$$

Dabei ist  $k_0$  ein pre-exponentieller Faktor und  $E_a$  die Aktivierungsenergie des Materials. Die Einheit der Permeabilität ist gemäß ihrer Definition  $\frac{mol}{m*s*Pa^n}$ . Der Faktor  $n$  kann je nach der Transportlimitierung einen Wert zwischen 1 (oberflächenreaktionslimitiert) und 0,5 (diffusionslimitiert) annehmen. Sollte letzteres der Fall sein, muss die Membranschicht möglichst dünn ausgeführt werden. Die Grenze liegt im Bereich von 1-5  $\mu m$ , um Löcher in der Trennschicht zu vermeiden, welche die Selektivität negativ beeinflussen würde

<sup>6</sup>Partialdruckdifferenz und Temperatur

[Melin et al. 2007]. Da dies aber im Wesentlichen eine fertigungstechnische Fragestellung ist, erfolgt die Bewertung des eigentlichen Materials oft anhand der Permeanz  $k'$ . Diese ist der Quotient aus Permeabilität und Membrandicke und gibt die Menge an Wasserstoff an, welche pro Zeit- und Flächeneinheit in Abhängigkeit des Partialdruckgefälles durch die Membran dringt. Die Einheit ergibt sich demnach zu  $\frac{mol}{m^2 \cdot s \cdot Pa^n}$ . Bei bekannter Permeanz und gegebenen Partialdruckverhältnis kann mittels der aus dem Fickschen Gesetz abgeleiteten Gleichung 10 der Wasserstofffluss errechnet werden [Kluiters 2004]:

$$j_{H_2} = k'(p_{H_2-Retentat}^n - p_{H_2-Permeat}^n) \quad (10)$$

Der Partialdruckexponent  $n$  ist bereits aus der Einheit der Permeabilität bekannt und nimmt für poröse Membranen den Wert 1 an. Im Falle der dichten Metallmembranen ergibt sich aus dem empirisch ermittelten Gesetz von Sievert ein Wert von 0,5 [Kluiters 2004]. Der vereinfachte Transportmechanismus für die protonenleitenden Perowskite hingegen, basiert auf der empirischen Wagner Gleichung und kann analog Gleichung 6 folgendermaßen ausgedrückt werden [Doong et al. 2006, Schwartz 2004]:

$$j_{O_2} = \frac{RT}{4Ln^2F^2} \frac{\sigma_{H^+} + \sigma_e}{\sigma_{H^+} + \sigma_e} \ln \left( \frac{p'_{O_2}}{p''_{O_2}} \right) \quad (11)$$

Die Berechnung der Leitfähigkeiten kann unter der Annahme, dass die Leitung der Elektronen  $\sigma_e$  deutlich schneller als die der Protonen  $\sigma_{H^+}$  ist, zu  $\sigma_{prot}$  (analog Gleichung 6) vereinfacht werden [Melin et al. 2007]. Im Gegensatz zu den Ionenleitern ist dies bei Protonenleitern nicht grundsätzlich unterstellbar. Die Verbesserung der elektrischen Leitfähigkeit dieser Materialien ist der Grund für die Untersuchung der Kompositmembranen, sprich den Cermets. Bei diesen gemischten Membranen, wird der Transport durch eine Überlagerung des metallischen und keramisch-dichten Mechanismus gewährleistet.

Wie in Tabelle 9 ersichtlich, gibt es zahlreiche Bestrebungen geeignete Materialien für Membranshiftreaktoren zu entwickeln. Neben den jeweiligen Stabilitätseinschränkungen der verschiedenen Werkstoffe, sind vor allem die Erhöhung des Flusses und die Kostensenkung im Fokus der Bestrebungen. So gibt das U.S. Department of Energy (DOE) als mittelfristiges Ziel einen Wasserstofffluss von 1,13  $\frac{mol}{m^2s}$  bei 7 bar Partialdruckdifferenz zu Kosten von 1000  $\$/m^2$  an [Dolan et al. 2010].

Für die Modellierung des gesamten Membranreaktors ist neben der Abtrennung des Wasserstoffs auch die eigentliche chemische Shiftreaktion zu beachten. Trotz ihrer Exothermie konnten in Laboranlagen bereits CO-Umsätze von über 90%, bei Temperaturen von

bis zu 900°C und bei geringem Dampfüberschuss, nachgewiesen werden [Ciocco et al. 2007, Lu et al. 2007]. Durch die kontinuierliche Störung des Gleichgewichts wird die Reaktion beständig zur Produktseite verschoben. Um dies in einem vereinfachten mathematischen Modell abzubilden, ist demnach eine experimentell validierte Reaktionskinetik notwendig. Diese sollte den betrachteten Temperaturbereich abdecken und gegebenenfalls katalytische Effekte berücksichtigen. Aufgrund des vornehmlichen Betriebs der Shiftreaktoren bei niedrigen Temperaturen, finden sich in der Literatur kaum Studien für den Bereich oberhalb von 500°C. Die umfangreichsten Untersuchungen wurden hier von Graven und Long [Graven et al. 1954] und in neuerer Zeit von Bustamante [Bustamante 2004] durchgeführt. Beide Ansätze beschreiben die nichtkatalytischen Hochtemperaturkonvertierung und basieren auf dem Bradford Ansatz für eine simple Gasphasenreaktion von 1933 [Bradford 1933]. Danach dissoziiert H<sub>2</sub> bzw. H<sub>2</sub>O durch Interaktion mit einem beliebigem Gasmolekül “M” und limitiert damit eine Kettenreaktion.

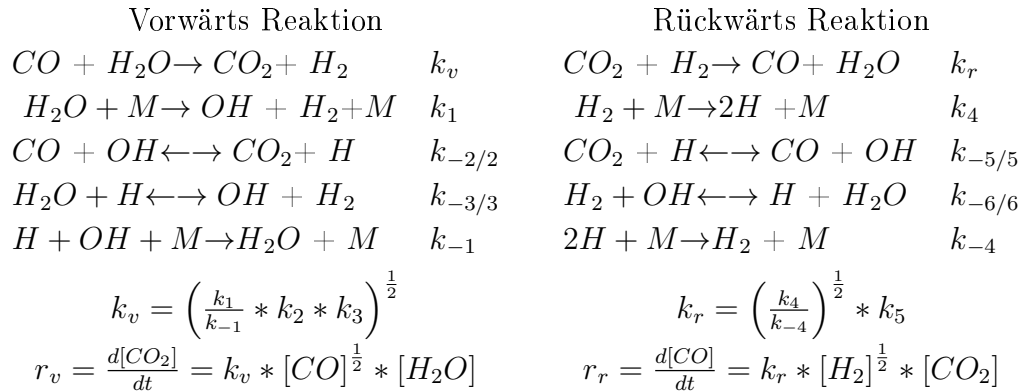


Abbildung 22: Anwendung Bradford Ansatz für einfache Gasphasenreaktion auf CO-Konvertierung [Bradford 1933, Graven et al. 1954, Bustamante 2004]

Neben den vollständigen Betrachtungen finden sich in der Literatur außerdem eine Reihe von experimentellen Ergebnissen zur Kinetik der Rückwärts-Reaktion. Allen gemeinsam ist der hohe Temperaturbereich von rund 750 bis 1250°C. Die Experimente wurden dabei mittels eines inerten Quarzreaktors durchgeführt. Bis auf die Untersuchungen von Bustamante waren die Messungen alle drucklos, wobei nachgewiesen wurde, dass der Druck nur unwesentlichen Einfluss auf die Gleichgewichtskonstante hat [Bustamante 2004]. Die in den jeweiligen Untersuchungen ermittelten Parameter  $k_0$  und  $E$  sind in Tabelle 10 zusammengefasst.

Veranschaulicht man die experimentell ermittelten Zusammenhänge grafisch, ergeben sich gemäß der Arrhenius Gleichung (9), die in Abbildung 23 dargestellten Verläufe der

Tabelle 10: Experimentell ermittelte Reaktionsparameter für die Wassergassshift Reaktion bei hohen Temperaturen

Quelle	Temperatur	Druck	$E \frac{kJ}{kmol}$	$k_0 \frac{(\frac{cm^3}{mol})^{0,5}}{s}$
Vorwärts-Reaktion: $CO + H_2O \rightarrow CO_2 + H_2$				
Graven[Graven et al. 1954]	875 - 1050	1 bar	274,5	$7,97 \cdot 10^{12}$
GRI/Bradford[Bustamante 2004]	825 - 1025	1 bar	304,6	$7,68 \cdot 10^{13}$
Hadman [Bustamante 2004]	700 - 800	1 bar	319,2	$2,22 \cdot 10^{14}$
Bustamante[Bustamante 2004]	875 - 925	16 bar	253,6	$4,82 \cdot 10^{11}$
Rückwärts-Reaktion: $CO_2 + H_2 \rightarrow CO + H_2O$				
Graven[Graven et al. 1954]	875 - 1050	1 bar	234,3	$2,9 \cdot 10^9$
Kochubei[Bustamante 2004]	750 - 1250	1 bar	326,4	$6,4 \cdot 10^{12}$
Tingey[Tingey 1966]	800 - 1050	1 bar	318,0	$1,2 \cdot 10^{13}$
Bustamante[Bustamante 2004]	875 - 925	1 bar	222,2	$1,21 \cdot 10^9$
Bustamante[Bustamante 2004]	875 - 925	16 bar	218,4	$6,65 \cdot 10^8$

Gleichgewichtskonstanten in Abhängigkeit von der Temperatur.

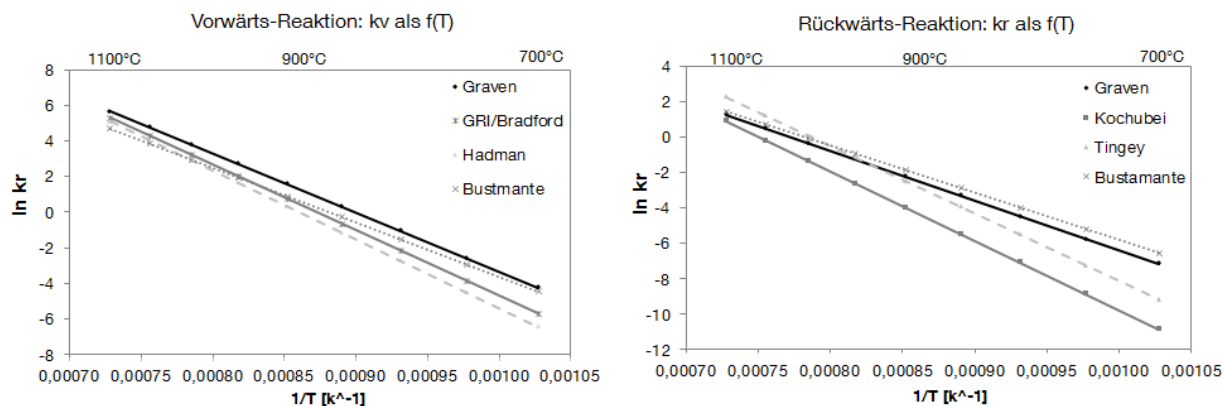


Abbildung 23: Arrheniusdarstellung der Gleichgewichtskonstante für die WGS-Reaktion [Graven et al. 1954, Bustamante 2004, Tingey 1966]

Aus dem Vergleich der kinetischen Daten zeigt sich insbesondere bei höheren Temperaturen eine zunehmende Übereinstimmung. Die steigenden Abweichungen bei sinkender Temperatur lassen vermuten, dass der Bradford Ansatz nur für höhere Temperaturen geeignet ist [Tingey 1966]. Jedoch beträgt die mittlere Abweichung von  $k$  auch bei  $900^\circ\text{C}$  bis zu 70%. Die Gründe dafür könnten möglicherweise etwaiger Sauerstoffschlupf, Kohlenstoffablagerungen oder eine zu große Verdünnung des Testgases sein [Bustamante 2004]. Eine bessere Übereinstimmung zeigt sich hingegen bei den beiden vollständigen Studi-

en von Graven [Graven et al. 1954] und Bustamante [Bustamante 2004]. Hier schwanken die Werte eher im Bereich von 25% um den Mittelwert. Neben der reinen temperaturbedingten Kinetik wurde auch der Einfluss katalytisch wirksamer Materialien untersucht. Hier konnte allein durch die Verwendung von Nickelbasislegierungen für die Reaktorwände der CO-Umsatz im Vergleich zum Quarzreaktor um zwei Größenordnungen gesteigert werden. Bei Einsatz einer Pd-Membran wurde außerdem der thermodynamische Gleichgewichtsumsatz bei hoher Temperatur deutlich überschritten [Bustamante 2004]. Es scheint daher realistisch anzunehmen, dass bei Einsatz geeigneter Werkstoffe das Konzept eines membrangestützten Hochtemperaturkonvertierungsprozess auf lange Sicht umsetzbar ist.

### 1.5.3 Carbonate Looping Prozess

Bislang wurde in der vorliegenden Arbeit vornehmlich auf den sogenannten Pre-Combustion Ansatz, also die Abtrennung des CO<sub>2</sub> vor der Verbrennung eingegangen. Wie unter Abschnitt 1.4 erwähnt, erfordert das grundlegende Änderungen in der Anlagenstruktur des IGCC-Kraftwerks. Bei der Abtrennung des CO<sub>2</sub> aus dem Abgas der Gasturbine, werden die Prozessänderungen weitestgehend außerhalb der bestehenden Strukturen vollzogen. Angedacht sind dafür vor allem chemische Wäschen. Neben diesen klassischen aminbasierten Wäschen werden aber auch solche auf Basis von Salzlösungen erforscht. Diese haben geringere Dampfdrücke, niedrigere Reaktionsenthalpien und eine größere Stabilität [Görner 2009, Schneider 2009]. Das führt tendenziell zu geringeren Waschmittelverlusten und einer energetisch verbesserten Regenerierung. Da im Rauchgas nur geringe CO<sub>2</sub>-Konzentrationen vorliegen, müssen beträchtliche Gasströme behandelt werden. Hieraus ergeben sich besondere Herausforderungen hinsichtlich der geometrischen Abmessungen der Wäsche und der gleichmäßigen Verteilung des Waschmittels. Um die genannten Faktoren einschätzen zu können, müssen die Dimensionen eines derart betriebenen CCS-Kraftwerkes bedacht werden. Daher sind diese qualitativ in Abbildung 24 dargestellt.

Es zeigt sich, dass bei einem typischen Kraftwerk in der Größenordnung von 500 MWel signifikante Mengen an Waschmittel umgewälzt werden müssen und sich der Kraftwerks-“Fußabdruck” aufgrund der CO<sub>2</sub>-Abtrennung in etwa verdreifacht. Die Kosten für die Abtrennung werden auf 30 - 50 % der Investitionskosten geschätzt [Görner 2009, Sieder 2009]. Zusätzlich geht man davon aus, dass bei klassischen Aminwäschen die abtrennungsbedingte Wirkungsgradeinbuße im Bereich von 12 -14 % Punkten [Sieder 2009], bei Salzlösungen immer noch im Bereich von 10 %-Punkten [Schneider 2009] liegt.

Neben den bereits fortgeschrittenen Ansätzen werden noch feststoffbasierte Verfahren wie das sogenannte Carbonate Looping diskutiert. Dieser bislang vornehmlich im experi-

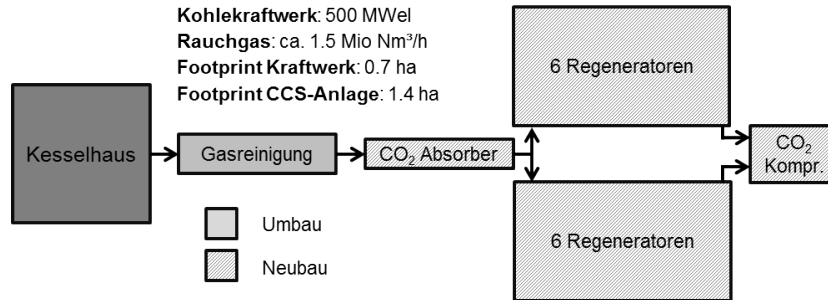


Abbildung 24: Dimensionen eines Dampfkraftwerkes mit Post-Combustion CO<sub>2</sub>-Abtrennung (eigene Darstellung nach [Görner 2009])

mentellen Status untersuchte Prozess, wurde erstmal von Shimizu et.al. [Shimizu et al. 1999] für die CO<sub>2</sub>-Abtrennung vorgeschlagen. Das System besteht im Wesentlichen aus zwei Wirbelschichtreaktoren und einem Wärmetauschersystem (Abbildung 25).

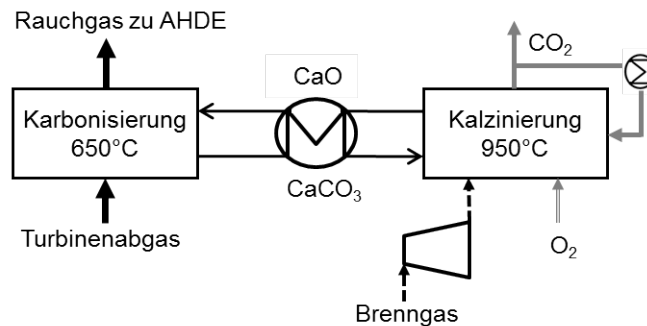


Abbildung 25: Schema des Carbonate Looping Prozess

Im ersten Reaktor wird das CO<sub>2</sub> bei rund 600°C aus dem Gasstrom entfernt. Dies wird durch die Reaktion mit Kalziumoxid zu Kalziumkarbonat ( $CO_2 + CaO \leftrightarrow CaCO_3$ ) realisiert. Entsprechend kann der erste Reaktor als Karbonisierungsreaktor bezeichnet werden. Aufgrund der starken Exothermie des Prozesses ( $H = -178 \frac{kJ}{kmol}$ ), muss der Reaktor zur Realisierung einer hohen Abtrennungsrates gekühlt werden. Im Rahmen experimenteller Untersuchungen konnten unter realistischen Atmosphären CO<sub>2</sub>-Abtrennungsrates von 90 bis 97% nachgewiesen werden [Abanades et al. 2007, Hawthorne 2010]. Das Reaktionsprodukt wird anschließend im zweiten Reaktor bei rund 900°C thermisch regeneriert. Im sogenannten Kalzinierungsreaktor wird, unter Freisetzung von CO<sub>2</sub>, das Kalziumoxid größtenteils zurückgewonnen. Zur Verringerung des Wärmebedarfs, wird das Kalziumkarbonat durch bereits regenerierte Produktströme vorgewärmt. Trotzdem ist der Wärmebedarf



durch die hohe Reaktionsenthalpie erheblich. Da auch das Temperaturniveau sehr hoch liegt, muss die Wärme direkt durch Verbrennung zusätzlichen Brennstoffs bereit gestellt werden. Damit das freigesetzte CO<sub>2</sub> nicht mit dem Luftstickstoff verdünnt wird, nutzt man als Oxidationsmittel Sauerstoff. Um die dabei entstehenden hohen Temperaturen zu vermeiden, wird als Temperaturmoderator freigesetztes kaltes CO<sub>2</sub> rezirkuliert. Nach der Kalzinierung wird der Feststoff abgetrennt und nach Wärmetausch wieder der Karbonisierung zugeführt. Da die Regenerierung nicht vollständig ist und mit fortschreitenden Zyklen auch die Aufnahmekapazität des Materials durch Sinterung abnimmt, muss das Kalziumoxid teilweise durch Neues substituiert werden. Bei Einsatz im konventionellen Dampfkraftwerk liegt die Reinheit des durch den Carbonate Looping Prozess abgetrennten CO<sub>2</sub>-Stroms typischerweise im Bereich von 90% [Hawthorne 2009] und ist damit nicht ohne Aufbereitung für den Pipelinetransport geeignet. Neben Störgasen wie Stickstoff, Argon, Restsauerstoff und Wasserdampf können sich auch Spuren von Schwefelkomponenten im CO<sub>2</sub> wiederfinden. Daher ist für die weitere Verwendung eine Aufbereitung inklusive Trocknung und gegebenenfalls Entschwefelung notwendig.

Bislang ist der Carbonate Looping Prozess meist in Verbindung mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung bei Dampfkraftwerken [Abanades et al. 2007, Hawthorne 2009, Ströhle et al. 2009] untersucht worden. Nach diesen Abschätzungen liegt der abtrennungsbedingte Wirkungsgradverlust im Bereich von 6 bis 7 %-Punkte [Hawthorne 2010, Ströhle et al. 2009]. Die Anwendung in einem Vergasungskraftwerk ist bislang nicht in der Literatur dokumentiert. Es erscheint aber plausibel, dass der Prozess auch in einem IGCC-Kraftwerk aufgrund seiner Vorteile zu einer Effizienzsteigerung führen sollte. Zudem stimmt die Betriebstemperatur mit der Abgastemperatur moderner Gasturbinen überein, wodurch eine direkte Kopplung denkbar wäre. Die CO<sub>2</sub>-Reinheit sollte zudem höher liegen als bei Dampfkraftwerken da die Reinheitsanforderungen der Gasturbine deutlich restriktiver sind und so praktisch kein Schwefel im Rauchgas existent ist. Außerdem ist die Luftzerlegung bereits vorhanden und es besteht zusätzlich die Möglichkeit der Integration mit der Gasturbine. Vor diesem Hintergrund erscheint eine Kopplung des IGCC mit dem Carbonate-Looping Prozess ein aussichtsreiches Kraftwerkskonzept zu ermöglichen.

#### 1.5.4 Oxyfuel-Turbinen

Neben den bereits näher betrachteten Pre- und Post-Combustion Konzepten, ist der eingangs erwähnte Oxyfuel-Prozess der dritte Carbon-Capture-Ansatz. Bei diesem ursprünglich in der Glasindustrie und Erdölförderung<sup>7</sup> angewendeten Prozess, wird ein Brennstoff anstatt mit Luft, mit Sauerstoff verbrannt [Toftegaard et al. 2010]. Entsprechend besteht

---

<sup>7</sup>CO<sub>2</sub> für EOR - Enhanced Oil Recovery

das Abgas vornehmlich aus CO<sub>2</sub>, Wasserdampf und kleineren Anteilen an Inertgasen. Zur Gewinnung des CO<sub>2</sub> muss demnach hauptsächlich das Wasser kondensiert werden. Zur Moderierung der sonst zu hohen Verbrennungstemperaturen ist eine Rezirkulierung von Abgas notwendig. Da der Prozess einen signifikanten Eingriff in den Verbrennungsvorgang bedingt und zudem eine große Luftzerlegungsanlage benötigt, ist die Nachrüstung existierender Anlagen aufwändiger und die Technologie fest an die Bestrebungen zur CO<sub>2</sub>-Abtrennung gebunden. Die abtrennungsbedingten Wirkungsgradeinbußen werden beim Oxyfuel-Prozess maßgeblich durch den Energieaufwand für die LZA, die Rauchgasrezirkulierung und die CO<sub>2</sub>-Kompression verursacht. Gegenwärtig wird in Kohlekraftwerken daher von einer Reduzierung des Wirkungsgrades um 9 bis 11 %-Punkte ausgegangen [Spliethoff 2010, Klostermann et al. 2009]. Der Prozess liefert dabei CO<sub>2</sub> minderer Qualität, dessen Reinheit auch nach der Wasserkondensation nur im Bereich von 90 Vol.-% liegt. Der verhältnismäßig hohe Anteil an Inertgasen, begründet sich im Wesentlichen durch die Sauerstoffreinheit und den verbrennungstechnisch notwendigen Überschusssauerstoff. Außerdem trägt die Kohle ihrerseits Inertgase ein und auch ein gewisser Falschlufteintrag, im Bereich von 1 bis 2% entlang der Prozesskette, kann nicht gänzlich vermieden werden [Klostermann et al. 2009, Toftegaard et al. 2010]. Um das CO<sub>2</sub> auf ein transportfähiges Niveau zu bringen und Kompressionsarbeit zu sparen, müssen die Inertgase teilweise entfernt werden. Dies wird in der Regel durch eine Serie von Kompressoren, Zwischenkühlung und Absorbern realisiert. Eine vereinfachte Aufbereitungsstrecke ist in Abbildung 26 dargestellt. Dabei wird das Rauchgas zunächst gekühlt um Wasserdampf zu kondensieren. Die dabei erreichbaren CO<sub>2</sub>-Gehalte im Bereich von 85% bedarf einer weiteren Aufbreitung. In deren Verlauf werden durch Verdichtung und Zwischenkühlung zunächst weiter Wasserdampf kondensiert und in Absorberbetten Spurenstoffe gebunden. Die so erzielbare Reinheit des CO<sub>2</sub> liegt bei rund 99,7 Vol.-% [Burchhardt 2009]. Bei der Verflüssigung entsteht ein Abgas, welches zwar teilweise rezirkuliert wird, aber letztlich doch den Prozess verlässt und so zu einem Kohlendioxidschlupf führt. Darin enthalten sind auch die Störstoffe wie Sauerstoff, Stickstoff und Argon.

Neben dem Oxyfuel-Prozess auf Kohlebasis gibt es auch Ansätze Erdgas oder Synthesegas mit Sauerstoff zu verbrennen. Verschiedene Studien haben dabei Potential zur deutlichen Reduzierung der abtrennungsbedingten Wirkungsgradverluste in den Bereich von 6 - 7 %-Punkten nachgewiesen [Lozza et al. 2009, Jericha et al. 2008].

### 1.5.5 Hochtemperaturbrennstoffzellen

Das Prinzip der Brennstoffzelle wurde bereits im 19. Jahrhundert sowohl theoretisch als auch praktisch erforscht. Der Vorteil liegt in der Vermeidung der inhärenten Exergiever-

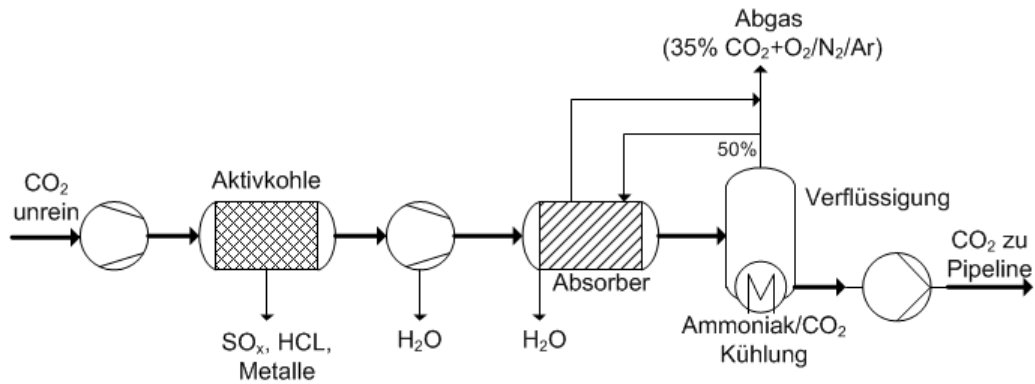


Abbildung 26: Schema der CO<sub>2</sub>-Aufbereitung (eigene Darstellung nach [Burchhardt 2009])

luste der Verbrennung, durch die direkte Umwandlung chemischer in elektrische Energie. Damit sind Brennstoffzellen nicht an die Limitierungen und Zusammenhänge des Carnot-Wirkungsgrades gebunden und weisen daher höchste Wirkungsgradpotentiale auf. Unter den verschiedenen Brennstoffzellentypen ist, für den hier betrachteten Temperaturbereich, insbesondere die SOFC (Solid Oxide Fuel Cell) von Interesse. Diese nutzt als Elektrolyt das sauerstoffionenleitende Yttrium-dotierte Zirkoniumoxid. Dieses befindet sich zwischen der aus einem Nickel- Cermet bestehenden Anode und einer Kathode aus porösem Perowskit. Gemäß Abbildung 27 trennt diese Anordnung den Luft- bzw. Brenngaskanal.

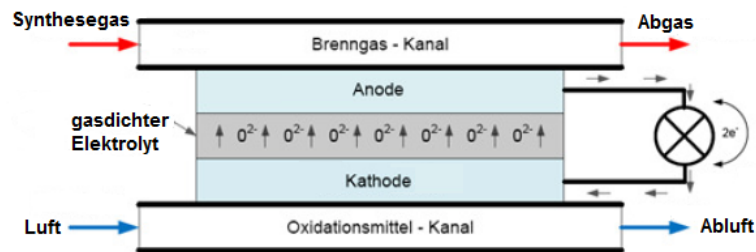


Abbildung 27: Aufbau und Wirkungsweise der SOFC-Brennstoffzelle (eigene Darstellung nach [Lokurlo 1999])

Im Betrieb werden an der Kathode Sauerstoffmoleküle adsorbiert und dissoziiert. An der Grenzfläche zum Elektrolyten nehmen die Moleküle Elektronen auf und diffundieren als  $O^{2-}$ -Ionen durch den gasdichten Feststoff hin zur Anode. Triebkraft für den Transport ist die Potentialdifferenz zwischen den beiden Elektroden. An der Anode wird dann Wasserstoff oder Kohlenmonoxid elektrochemisch oxidiert. Die dabei freiwerdenden Elektronen werden über die äußere Last wieder zur Kathode geleitet. Die Brennstoffzelle erzeugt so einen Gleichstrom, welcher für die weitere Nutzung noch in Wechselstrom überführt wer-

den muss. Beschreibt man das System thermodynamisch, kann die im Idealfall theoretisch erzielbare reversible Arbeit aus der Differenz der freien Reaktionsenthalpien berechnet werden, gemäß:

$$w_{rev} = \Delta^R G(T, p) = \Delta^R H(T, p) - T_0 * \Delta^R S(T, p) \quad (12)$$

Die Größe  $\Delta^R H$  stellt die Reaktionsenthalpie der Stoffe dar und kann bei exothermen Reaktionen durch den Heizwert der beteiligten Stoffe ausgedrückt werden. Der Ausdruck  $T * \Delta^R S$  berücksichtigt die Volumenänderung der Reaktion und ist daher aufgrund der Molzahlabnahme negativ. Die Berechnung des theoretisch maximalen Wirkungsgrades erfolgt dann über das Verhältnis der freien Reaktionsenthalpie zum Heizwert des Brennstoffes.

$$\eta_{max} = \frac{-\Delta^R G(T, p)}{H_u} = 1 + \frac{T_0 * \Delta^R S(T, p)}{H_u} \quad (13)$$

Da bei der Umsetzung von Wasserstoff und Kohlenmonoxid die Molzahl abnimmt, wird dieser, auch als thermischer Wirkungsgrad bezeichnete Wert, mit steigender Temperatur abnehmen [Lokurlo 1999]. Demnach ist das Verhalten des maximalen Brennstoffzellenwirkungsgrades dem, für Wärmekraftmaschinen charakteristischen, Carnot Wirkungsgrad entgegengesetzt. Ein Vergleich der maximal erreichbaren Wirkungsgrade der reversiblen SOFC ist für Wasserstoff, Kohlenmonoxid sowie ein Synthesegasgemisch aus 70% CO und 30% H<sub>2</sub> in Abbildung 28 dargestellt.

Der Verlauf des Wirkungsgrades fällt mit der Temperatur und liegt im Betriebsbereich der SOFC (800 - 1000°C) sogar unter dem theoretischen Carnot Wert. Aufgrund der deutlich höheren unvermeidlichen Verluste der Wärmekraftmaschinen, wird der effektiv erzielbare Wirkungsgrad der SOFC aber über dem konventioneller Energiewandler liegen. Es zeigt sich weiterhin, dass der Wirkungsgrad bei Einsatz von Wasserstoff deutlich höher liegt als bei Kohlenmonoxid. Für das Synthesegas kann je nach der Zusammensetzung ein maximaler Wirkungsgrad von rund 65 bis 70% erzielt werden. Allerdings wird der vollständige Umsatz der Komponenten aufgrund der Gleichgewichtslimitierung sehr langsam erfolgen und damit zu unwirtschaftlichen Verweilzeiten bzw. Zellenlängen führen. Daher ist in Abbildung 28 auch beispielhaft der maximale thermische Wirkungsgrad bei einem Brennstoffumsatz von 60% aufgeführt. Es handelt sich dabei um einen Mischumsatz, da Wasserstoff deutlich schneller umgesetzt wird als Kohlenmonoxid [Lokurlo 1999]. Entsprechend ist der Verlauf bei limitiertem Umsatz weniger temperaturabhängig als bei

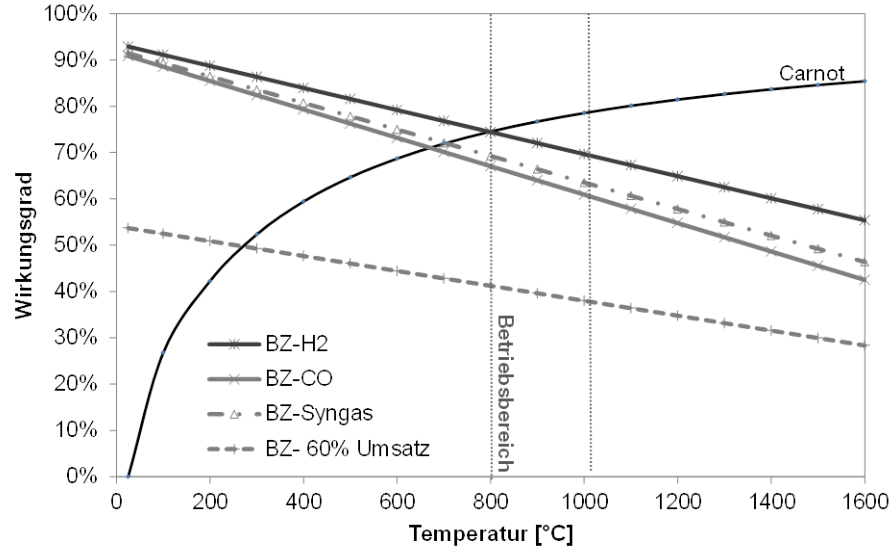


Abbildung 28: Ermittlung des Wirkungsgradpotentials der Brennstoffzelle (Stoffwerte:[Epsilon 2011])

vollständigem Synthesegasumsatz.

Neben der Limitierung des Umsatzes sind für die Ermittlung des realen elektrischen Wirkungsgradpotentials eine Reihe von Verlusten zu berücksichtigen. So werden in der realen Zelle irreversible Mischeffekte auftreten, wodurch die jeweiligen Partialdrücke der Reaktanden berücksichtigt werden müssen. Damit ergibt sich die maximal real erzielbare, sogenannte Nernst'sche Spannung gemäß Gleichung 14 [Frank 2009, Lokurlo 1999].

$$U_N = \frac{-\Delta^R G(T, p)}{n_{el} * F} - \frac{RT * \ln\left(\frac{p_{H_2O}}{p_{H_2} * p_{O_2}}\right)}{n_{el} * F} \quad (14)$$

Im Betrieb der SOFC wird die anliegende Spannung aufgrund von verschiedenen Verlusten geringer sein als die ermittelte Nernst Spannung. Die wesentlichen Verlustmechanismen in der SOFC sind dabei der ohmsche Widerstand (ohmsche Verluste) sowie Hemmungen im Ladungstransfer (Aktivierungsverluste) oder durch Diffusion bei hohem Umsatz (Konzentrationsüberspannung) [Frank 2009, Bieber 2011]. Der ohmsche Gesamtwiderstand der Zelle ist dabei proportional der Stromdichte. Er setzt sich aus der Summe der verschiedenen Einzelwiderstände (Anode, Kathode, Elektrolyts) und den jeweiligen Kontaktwiderständen zusammen. Er ist abhängig von Temperatur, Stromdichte sowie den verwendeten Materialien und der Geometrie [Frank 2009, Bieber 2011]. Die Aktivierungs-

verluste sind vor allem bei niedrigen Temperaturen und Stromdichten relevant. Bei sehr hohen Stromdichten kommt es zusätzlich zu Konzentrationsverlusten, da die Diffusion nicht mehr ausreicht um die Edukte an die Reaktionszone zu transportieren. Für den SOFC-Betrieb sind die Konzentrationsverluste aber in der Regel deutlich kleiner als ohmsche Verluste oder Aktivierungsverluste [Panopoulos et al. 2006]. Die Berechnung des effektiven elektrischen Wirkungsgrades der Zelle erfolgt mittels der erzielbaren elektrischen Leistung unter Berücksichtigung der auftretenden Spannungsverluste [Frank 2009].

$$\eta_{el} = \frac{P_{el}}{m * H_u} = \frac{I_{max} * (U_N - U_V)}{m * H_u} \quad (15)$$

Die SOFC ist zwar im Gegensatz zu anderen Brennstoffzellen relativ robust gegenüber Spurenstoffen, allerdings stellt Schwefel ein großes Problem dar. So konnte gezeigt werden, dass 100 ppm in kürzester Zeit zur vollständigen Deaktivierung der katalytisch aktiven Flächen führen [Finkenrath et al. 2005]. Aber auch schon kontinuierliche, niedrige einstellige ppm Konzentration führen zu einem signifikanten Abfall der Zellspannung und damit des Wirkungsgrades [Singhal 2000]. Wenngleich bei Reduzierung der Schwefelkonzentration Regenerierungseffekte belegt sind [Singhal 2000], sollte für einen optimalen Betrieb die Schwefelkonzentration deutlich unter einem ppm liegen [Veyo 1998]. Andere Spurenstoffe wie Kohlenwasserstoffe und HCl können zwar zu Betriebsstörungen führen, sind aber hinsichtlich der Grenzwerte weniger kritisch.

Es gilt vor allem Kohlenstoffablagerungen durch ausreichend Dampfzugabe zu vermeiden, da diese ebenfalls zur Inaktivierung der katalytischen Zentren führen würden. Die wesentlichen Reaktionspfade sind die umgekehrte Boudouard-Reaktion, die umgekehrte heterogene Wassergasreaktion sowie die Pyrolyse von Kohlenwasserstoffen [Bieber 2011] (Tabelle 1). Da die ersten Beiden exotherm sind, sinkt deren Einfluss bei den hohen Betriebstemperaturen der SOFC. Da zudem Synthesegas aus einer Hochtemperaturvergasung eingesetzt wird, finden sich im Gas nur geringe Methangehalte und nahezu keine höheren Kohlenwasserstoffe. Bei Umgebungsdruck wird so ein Steam to Carbon (S/C) -Verhältnis von 1,5 für sämtliche Temperaturbereiche als ausreichend erachtet [Rienschke et al. 1999]. Allerdings ist der Betriebsdruck recht hoch, was nach dem Gesetz von Le Chatelier die Rußbildung unterstützt. In der Praxis werden die Brennstoffzellen daher eher mit einem S/C-Verhältnis von 2 betrieben [Finkenrath 2005]. Da der Kohlendioxidgehalt, insbesondere bei Anodengaszirkulation, in der Regel recht hoch ist (> 30 Vol.-%) und bei der Boudouardreaktion der Rußbildung entgegen wirkt, sollten bei Synthesegasen auch geringere S/C-Raten möglich sein. Im Falle von Ammoniakspuren im Brenngas konnte auch bei hohen Konzentrationen keine negative Auswirkung beobachtet werden [Singhal 2000]. Es han-

delt sich bei dieser Komponente sogar eher um einen Brenn- als Schadstoff [Wojcik 1998]. Hinsichtlich der baulichen Ausführung von Brennstoffzellen wurde bisher hauptsächlich das planare und tubulare Design verfolgt. Aus der jeweiligen Ausführung ergeben sich verschiedene Aspekte, welche in Abbildung 29 kurz qualitativ bewertet sind.

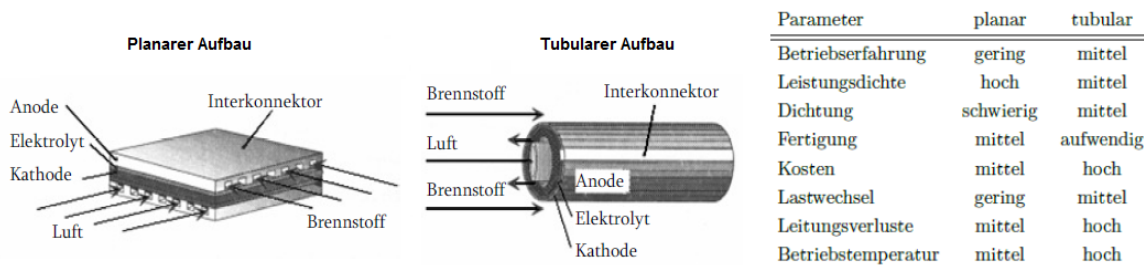


Abbildung 29: Vergleich verfügbarer SOFC-Bauarten (nach [Blum et al. 2005, Groß et al. 1993, Frank 2009])

Da es in der Zelle zur exothermen, elektrochemischen Umwandlung von Wasserstoff sowie der ebenfalls exothermen CO-Konvertierung kommt, wird eine beträchtliche Wärmemenge frei. Aus der Energiebilanz der Brennstoffzelle [EG&G 2004] wird deutlich, dass sich diese aus der Reaktionswärme abzüglich der realisierten elektrischen Arbeit (Gleichstrom) und etwaigen Wärmeverluste an die Umgebung bestimmen lässt. Die verbleibende freie Reaktionswärme muss aus dem System ausgeschleust werden, um Schaden an der Zelle zu vermeiden. Die Kühlung kann dabei intern und/oder extern realisiert werden [Winkler 2002]. Bei der internen Kühlung wird, analog der Gasturbine, das System mit einem hohen Luftüberschuss ( $\lambda$ ) im Bereich von 5 bis 10 betrieben [Winkler 2002]. Zusätzlich wird das Brenngas sowie die Luft unterkühlt zugeführt und eine gewisse Aufwärmung um 150 bis 300°C toleriert. Die Reaktionswärme wird somit durch das Abgas sowie die Abluft abgeführt und kann anschließend in einem AHDE genutzt werden. Bei der externen Kühlung wird das Lambda reduziert und die entsprechende Reaktionsenthalpie über Wärmetauscher abgeführt [Winkler 2002]. Hier kann also direkt Dampf gewonnen werden. Dieser sollte zur Vermeidung dicker Rohrwände auf einem vergleichbaren Druckniveau erzeugt werden. Zudem sollte das Speisewasser nicht zu kühl eintreten, um große Temperaturgradienten zu vermeiden.

## 1.6 Aktuelle Projekte und Studien

Im Zuge der in den 1990er Jahren entstandenen IGCC-Demoanlagen und der steigenden Sensibilisierung für klimarelevante Themen, finden sich auch zunehmend theoretische Studien zu vergasungsbasierten Kraftwerken mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung. Eine Auswahl der ermittelten Wirkungsgrade (Bezugsbasis Heizwert) sowie deren wesentliche Randbedingungen sind in Tabelle 11 zusammengestellt.

Tabelle 11: Vergleich ausgewählter Studien von Steinkohle IGCC-Kraftwerken [Kloster 1999, Göttlicher 1999, DOE 2007, Rezvani et al. 2009, Lozza et al. 2009, Buschsieweke 2009, Sanz et al. 2010, Gräbner 2010]

Quelle	Jahr	Eta IGCC	Eta IGCC-CCS	$\Delta\eta$	TET (ISO)	$p_{Kondensator}$	CO <sub>2</sub> Abtr. <sup>1</sup>
IGCC 98	1998	51,7%	45,5%	6,2%	1250°C	k.A.	90%
Kloster	1998	50,5%	k.A.	k.A.	1200°C	30 mbar	-
Göttlicher	1998	51,5%	42,9%	8,6%	1300°C	k.A.	< 90%
DOE	2007	43,1%	32,4%	11,3%	1320°C <sup>2</sup>	68 mbar	90%
Rezani	2009	44,9%	35,1%	9,8%	1235°C	k.A.	≈ 90%
Lozza	2009	47,7%	38,4%	9,3%	1335°C	40 mbar	90%
ENCAP	2009	46,3%	35,9%	10,4%	1250°C <sup>3</sup>	k.A.	90%
Jericha	2010	50,8%	38,7%	12,1%	1300°C	23 mbar	88%
COORIVA	2010	45,9%	34,9%	11,0%	1250°C <sup>3</sup>	k.A.	91%

1 Abtrennungsrate des CO<sub>2</sub>, 2 Abschätzung da bei GE Turbine nicht direkt gegeben

3 F-Klasse SGT 4000F mit ca. 1250°C TET ISO

Vergleicht man die publizierten Wirkungsgrade und die abtrennungsbedingten Verluste, so stellt man fest, dass diese deutlich schwanken und sich teilweise gravierend unterscheiden. Auffallend ist die fallende Tendenz der ermittelten Kraftwerkswirkungsgrade im Zeitverlauf, welche sowohl Anlagen mit als auch ohne CO<sub>2</sub>-Abscheidung betrifft. Die Diskrepanz lässt sich demnach nicht allein auf die unterschiedliche CO<sub>2</sub>-Abscheidung zurückführen. Die Hauptgründe dürften eher der unterschiedliche Detaillierungsgrad der jeweiligen Betrachtung und die Wahl der Randbedingungen sein. Je nach Zielsetzung der Studie, also Potentialermittlung oder konkrete Realisierungsabsicht, können durch recht optimistische oder eher konservative Annahmen deutliche Diskrepanzen entstehen, welche beim Vergleich verschiedener Studien berücksichtigt werden müssen. Aus diesem Grund wird in der vorliegenden Arbeit ein eigener IGCC-Basisfall mit CO<sub>2</sub>-Abscheidung herangezogen und im Rahmen einer Sensitivitätsanalyse die Schwankungsbreite dessen Anlagenwirkungsgrades verdeutlicht.



Neben den IGCC-Studien finden sich gegenwärtig auch konkrete in der Realisierung oder Planungsphase befindliche IGCC-Kraftwerksprojekte, sowohl ohne als auch mit CO<sub>2</sub>-Abscheidung. Der Schwerpunkt der Aktivitäten liegt dabei in den USA und China wobei es sich weniger um Demonstrationsanlagen als industrielle Anlagen handelt. Allerdings muss auch auf die hohe Abbruchquote dieser Projekte hingewiesen werden.

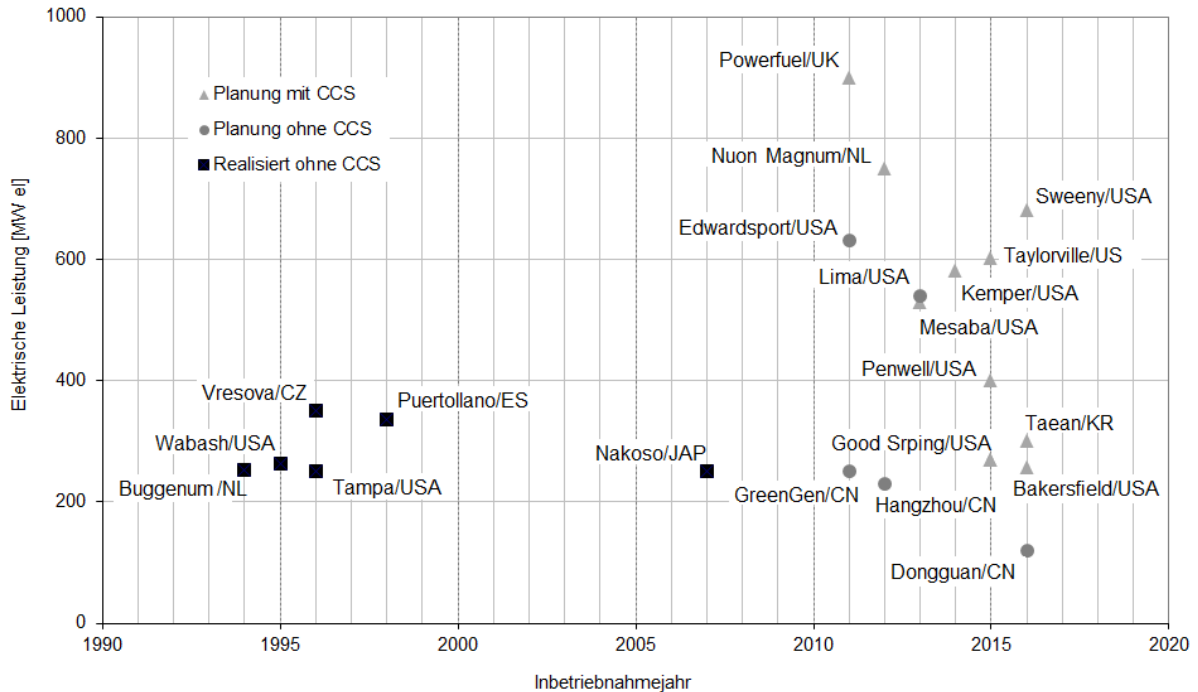


Abbildung 30: Überblick zu realisierten und gegenwärtig geplanten IGCC-Kraftwerken (eigene Darstellung nach [DOE 2010])

Neben den klassischen Pre-Combustion IGCC-Kraftwerken wurden auch schon verschiedene alternative Konzepte betrachtet unter Einbezug neuer Prozessansätze und Komponenten. So wurden von Air Products bereits Berechnungen zum Einsatz der von ihnen forcierten Sauerstoffmembran im IGCC publiziert [vStein et al. 2002]. Dabei wurde vornehmlich die Vollintegration mit der Gasturbine verfolgt, was unter den gewählten Randbedingungen zu einer Wirkungsgradsteigerung von 0,9 %-Punkten, bezogen auf den Vergleichsfall mit kryogener LZA, führte. Die Steigerung auf 41,8% konnte aber nur für das OTM-Konzept mit direkter Lufterwärmung durch Synthesegaszugabe erreicht werden. Bei indirekter Lufterwärmung mittels Wärmeübertrager lag der erzielbare Wirkungsgrad mit 40,1% sogar noch 0,8 %-Punkte unter dem Vergleichsfall [vStein et al. 2002]. Aller-

dings muss man hervorheben, dass beim genannten Konzept aus dem Jahre 2002, keine Brenngasverdünnung berücksichtigt wurde, da die OTM typischerweise nur 50% des Sauerstoffs aus der Luft nutzt und dementsprechend kein sauerstoffarmes Verdünnungsmedium zur Verfügung steht. Neuere Prozessvarianten aus dem Jahre 2006, welche diesem Umstand durch einen zusätzlichen Luftkompressor sowie Membranfläche bzw. Partialdruckdifferenz berücksichtigen, ergaben nur noch eine Wirkungsgradsteigerung von 0,5 %-Punkten [vStein et al. 2007]. Interessanterweise sank im genannten Zeitraum auch der Nettowirkungsgrad des Vergleichsfalls um 1,1 %-Punkte (Basis Brennwert), so dass der Wirkungsgrad für das neuere OTM-Konzept lediglich bei 38,8% (Basis Brennwert) liegt. Nimmt man einen typischen Faktor von 1,04 für die Umrechnung von Brenn- auf Heizwert an [Konstantin 2009], sollte der Nettowirkungsgrad nach eigener Abschätzung im Bereich von 40,3% bzw. bei Bezug auf den alten Vergleichsfall von 2002 bei 41,4% liegen. Demnach kann das bislang in der Literatur dokumentierte Potential mit 0,5 bis 1 %-Punkten beziffert werden.

Das Thema Warmgasreinigung und insbesondere der Einsatz von Membranreaktoren in IGCC-Kraftwerken mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung wurde bislang nur von wenigen Autoren aufgegriffen. Die älteste Studie aus dem Jahre 1997 errechnete für ein IGCC mit Membran-Shift-Reaktor einen Nettowirkungsgrad von 42,8%. Dies entspricht einer Steigerung von 2,3 %-Punkten gegenüber dem IGCC-Vergleichsfall mit klassischer Shift und Sauer gaswäsche. Bei Einsatz einer trockenen Gasreinigung wurde ein weiteres Wirkungsgradpotential von 0,6 %-Punkten auf dann 43,4% aufgezeigt. Allerdings muss man hervorheben, dass das CO<sub>2</sub> gasförmig übergeben wird und die Abtrennungsrate jeweils nur 80% beträgt. Aufgrund mangelnder Randbedingungen kann daher das Potential für den Membranreaktor mit trockener Gasreinigung mit 2 bis 2,5 %-Punkten geschätzt werden. Die vereinzelt neueren Studien geben Steigerungen des Nettowirkungsgrades durch Einsatz eines Membran-Shift-Reaktors mit 1,3 und 1,4 %-Punkten gegenüber deren jeweiligen konventionellem IGCC-Vergleichsfall an [Ku et al. 2011, Rezvani et al. 2009]. Allerdings wurde bei unzureichender Membranreaktor Performance auch schon ein Abfall der Anlageneffizienz nachgewiesen [Ku et al. 2011].

Der Einsatz des Carbonate Looping Verfahrens ist bislang nur für konventionelle Dampfkraftwerke untersucht worden. Eine Kombination mit einem IGCC ist daher bislang nicht dokumentiert. Hingegen existieren für die Kombination aus Sauerstoffverbrennung und IGCC bereits vereinzelt Studien. Im besonderen Maße damit verbunden ist der nach seiner Herkunft bezeichnete Graz Cycle, welcher das Oxyfuel Prinzip auf Erdgaskraftwerke anwendet und dabei je nach Komplexität des Prozesses Nettowirkungsgrade zwischen 52,5 und 54,1% erzielen soll [Sanz et al. 2004, Jericha et al. 2008]. In neuerer Zeit wurden zu-

dem Berechnungen für eine synthese-gas-basierende Variante (S-Graz Cycle) veröffentlicht, welche einen Nettowirkungsgrad von 45% und damit eine Steigerung gegenüber dem gewählten IGCC-Vergleichsfall von 6,3 %-Punkten erzielten [Sanz et al. 2010]. Für andere Ansätze wie dem CES-Cycle werden auch längerfristig für Vergasungskraftwerke wenig aussichtsreiche Wirkungsgrade von 35 bis 38% angegeben [Mac et al. 2007], was auch anhand eigener Berechnungen bestätigt werden konnte.

Dagegen häufiger betrachtet wurde bislang bereits die Kombination aus IGCC-Kraftwerk und Hochtemperaturbrennstoffzelle (in der Regel SOFC). Für diese sogenannten IGFC (Integrated Gasification Fuel Cell) Konzepte wurde ein um 5 bis 7 %-Punkte höherer Wirkungsgrad im Vergleich zum konventionellen IGCC ermittelt [Spallina et al. 2010, Grol et al. 2008, Grol 2009]. Entscheidend für den Anlagenwirkungsgrad ist hier in erster Linie der Vergaser und der Systemdruck. Bei atmosphärischen Brennstoffzellen ergeben sich Wirkungsgrade für das IGFC mit CO<sub>2</sub>-Abscheidung im Bereich von 41 bis 44% [Grol et al. 2008, Grol 2009]. Bei druckaufgeladener SOFC kann dieser Wert noch auf rund 47,5% bis 49,5% (Hu) gesteigert werden [Spallina et al. 2010, Minh 2005]. Einzelne Studien nehmen zudem eine katalytische Niedertemperaturvergasung (hoher Methangehalt im Rohgas) an, mittels derer sogar Wirkungsgrade (inkl. CO<sub>2</sub> Abscheidung) im Bereich von 53% ermittelt wurden [Grol et al. 2008, Grol 2009]. Der durch die CO<sub>2</sub>-Abscheidung verursachte Wirkungsgradverlust wird dabei für alle Konzepte im Bereich von 6 %-Punkte angegeben [Grol 2009, Grol et al. 2008, Spallina et al. 2010].



## 2 Motivation und Aufgabenstellung

Die weltweite Energieerzeugung wird, trotz des verstärkten Ausbaus regenerativer Energiequellen, auch mittelfristig zu großen Teilen auf dem Einsatz fossiler Energieträger basieren. Um den damit einhergehenden anthropogenen Einfluss auf das Klima zu mindern, erscheinen Effizienzsteigerungen und das Abtrennen des erzeugten Kohlendioxids als wirkungsvollste Maßnahmen. Letzteres wird als eine Schlüsseltechnologie für die Begrenzung der prognostizierten Erderwärmung auf ein beherrschbares Maß angesehen [IPCC 2005, IPCC 2007]. Hier können optimierte IGCC-Kraftwerke einen Beitrag leisten, da diese höhere Wirkungsgrade als vergleichbare Dampfkraftwerke erreichen und zudem eine Abtrennung des CO<sub>2</sub> in konzentrierter Form ermöglichen. Allerdings ist diese Kraftwerksart weit weniger verbreitet und deren Aufbau sowie Wirkungsweise komplexer. Daher wurde in **Kapitel 1** der Stand der IGCC-Technologie und deren kraftwerkstechnische Umsetzung aufgezeigt.

Hier wurde zunächst der Aufbau eines klassischen IGCC-Kraftwerks behandelt. Für die wesentlichen Teilsysteme wurde die Anlagenstruktur detailliert beschrieben sowie deren Funktionsweise und Zusammenwirken erläutert. Zudem wird der Einfluss und die technische Umsetzung der CO<sub>2</sub>-Abtrennung bei IGCC-Kraftwerken erläutert. Aufgrund der Vielzahl von Aktivitäten wird zudem eine Übersicht über geplante IGCC-Kraftwerke sowie bereits bestehende Studien gegeben. Aus diesem Stand der Technik ergeben sich einige Ansatzpunkte, welche im Rahmen der vorliegenden Arbeit adressiert werden sollen.

- Bei der Analyse existierender Studien zu Wirkungsgraden von IGCC-Konzepten fallen beträchtliche Abweichungen in den ermittelten Potentialen auf. Diese können nicht eindeutig etwaigen Unterschieden in den zugrundeliegenden Simulationsannahmen zugeordnet werden. Die entstehende Diskrepanz erschwert die Vergleichbarkeit von Simulationsergebnissen sowie die Bewertung von Optimierungsschritten, da die Schwankungsbreite ggf. größer ist als die Effizienzsteigerung der betrachteten Maßnahme. Hier ist die Modellierung eines klassischen IGCC-Basisfalls in Verbindung mit einer umfangreichen Sensitivitätsanalyse der Randbedingungen hilfreich. Dies erlaubt eine Abschätzung des Einflusses der verschiedenen Annahmen, die richtige Bewertung der Simulationsergebnisse sowie eine bessere Vergleichbarkeit mit bestehenden Studien.

- Thermodynamische Simulationen sind ein verbreitetes Mittel zur Potentialabschätzung von komplexen Prozessen. Entsprechend häufig kommen sie für die Bewertung verschiedenster technischer Systeme zum Einsatz. Allerdings ist nur in wenigen Studien der explizite Nachweis erbracht worden, dass die erstellten Modelle auch in der Lage sind, die Ergebnisse und das Verhalten realer Anlagen nachzubilden. Eine dokumentierte Verifizierung ist aber bei komplexen verfahrenstechnischen Prozessen notwendig und sollte daher für die Modelle der wesentlichsten Teilsysteme des IGCC-Konzeptes vollzogen werden.
- Während die energetischen Auswirkungen der CO<sub>2</sub>-Abtrennung auf das IGCC bereits vielfach untersucht wurde, sind die ökonomischen Auswirkungen bislang noch nicht ausführlich aufgezeigt worden. Die Identifizierung der wesentlichen Wertehelbel und deren Veränderung im Falle der CO<sub>2</sub>-Abtrennung sind aber wichtige Indikatoren für die Optimierung von Kraftwerken. Daher sollte die Kostenstruktur und die Auswirkung ökonomischer Randbedingungen auf die Stromgestehungskosten von IGCC-Kraftwerken sowohl ohne als auch mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung abgeschätzt werden. Daraus lassen sich Schlussfolgerungen zum Bau, Betrieb und Wirtschaftlichkeit von IGCC-Anlagen mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung ableiten.
- Der Einfluss der CO<sub>2</sub>-Abtrennung auf die Anlageneffizienz des IGCC ist bislang noch nicht durch eine strukturierte Exergieanalyse betrachtet worden. Dies ermöglicht aber die entstehenden Verluste den jeweiligen Teilsysteme zuzuordnen und deren Signifikanz bewerten zu können. Zudem wird durch einen Vergleich mit dem jeweiligen Idealprozess weiteres Optimierungspotential aufgezeigt. Dadurch können gezielt neue Technologien als Substitution der größten Verlustbringer ausgewählt und untersucht werden.
- Wie in Kapitel 1.5 aufgezeigt, gibt es eine ganze Reihe neuer Technologien, welche für den Einsatz im IGCC-Kraftwerk in Frage kommen. Durch die Implementierung dieser Technologien in den IGCC-Prozess ergeben sich neue Kraftwerkskonzepte, welche nicht mehr nur auf die klassische CO<sub>2</sub>-Abtrennung vor der Verbrennung beschränkt sind. Aufgrund der Vielzahl von Technologien und voranschreitender Forschung sind deren Kombinationsmöglichkeiten bisher noch nicht umfassend in der Literatur untersucht worden. Bestehende Arbeiten beziehen wiederum das Potential auf den jeweiligen Basisfall, was einen direkten Vergleich verschiedener Arbeiten bzw. Kraftwerkskonzepte erschwert.
- Thermodynamische Betrachtungen gehen der praktischen Forschung meist voraus.

Dabei erfordert die steigende Komplexität und Kombination verschiedenster Technologien zunehmend interdisziplinäre Forscherteams, welche in der Regel nur an der Entwicklung eines Teilsystems beteiligt sind. Da der Fokus auf dem Teilsystem liegt, sind spätere Wechselwirkungen im komplexen Gesamtsystem möglicherweise weniger klar. Eine tiefere Analyse der zukünftigen Gesamtkonzepte sowie deren Wechselwirkungen, ermöglicht gezielt Forschungsbedarf abzuleiten und bietet damit einen Mehrwert für die praktische Weiterentwicklung der Teilsysteme.

Gegenstand der vorliegenden Arbeit sind demnach die genannten sechs Themenbereiche, wobei der Fokus auf der Bewertung zukünftiger IGCC-Kraftwerke liegt. Um diese aber bewerten zu können und aussichtsreiche Konzepte zu finden, bedarf es eines verifizierten IGCC-Basisfalls und dessen detaillierter Analyse. Die für die Analyse notwendigen Daten werden durch thermodynamische Simulationen der zukünftigen Kraftwerkskonzepte ermittelt. Dafür werden für die wesentlichen Komponenten entsprechende thermodynamische Modelle erstellt und diese zu einem Gesamtsystem verschaltet. Dazu werden die thermodynamischen Simulationsprogramme Aspen Plus und Epsilon Professional genutzt. Dabei wird auf die vorhandene Bauteilbibliothek und die umfangreiche Stoffdatenbank zurückgegriffen. Da die vorliegende Arbeit aber komplexere Systeme betrachtet, werden die wichtigsten Modelle mit Betriebs- oder Literaturdaten verifiziert und anschließend zum Gesamtsystem kombiniert (**Kapitel 3**).

Ausgangspunkt der Betrachtung ist zunächst ein konventionelles IGCC-Kraftwerk nach Stand der Technik (**Kapitel 4**). Dieses wird energetisch bilanziert und die entstehenden CO<sub>2</sub>-Emissionen mit anderen fossilen Kraftwerkstypen verglichen. Zudem werden die Investitionskosten abgeschätzt und die sich daraus ergebende Zusammensetzung der Stromgestehungskosten ermittelt.

Anschließend wird in **Kapitel 5**, dieses Kraftwerk mit klassischer CO<sub>2</sub>-Abtrennung simuliert und bildet fortan den konventionellen IGCC-Basisfall. Zunächst wird der Einfluss der konventionellen CO<sub>2</sub>-Abtrennung auf den Anlagenwirkungsgrad und die Stromgestehungskosten aufgezeigt. Die wesentlichen Einflussgrößen auf Beide werden durch umfangreiche Sensitivitätsanalysen herausgestellt. Basierend auf konventionellen Optimierungsschritten wird das mittel- und langfristige Wirkungsgradpotential des Basisfalls ermittelt. Außerdem wird eine strukturierte Exergieanalyse durchgeführt, mittels dieser sowohl die Verluste der Einzelsysteme aufgezeigt werden, als auch deren Einfluss auf den Gesamtprozess verdeutlicht wird. Ausgehend davon werden aussichtsreiche Ansätze aber auch Limitierungen für die Optimierung des konventionellen IGCC abgeleitet.

In **Kapitel 6** werden nun, ausgehend vom Basisfall, fünf aussichtsreiche zukünftige IGCC-Konzepte beschrieben und analysiert. Dabei liegt der Fokus auf der Anhebung des

Temperaturniveaus der Gasreinigung, dem Einsatz von Membranen und der Nutzung aller drei CO<sub>2</sub>-Abtrennungsansätze (Pre-, Post-combustion, Oxy-fuel) im IGCC-Kraftwerk. Da die betrachteten Technologien teilweise noch nicht real existieren, werden die notwendigen Annahmen aus Laborergebnissen und verfügbarer Literatur abgeleitet. Die ausgewählten Kraftwerkskonzepte lassen sich gliedern in ein Konzept mit Sauerstoffmembran (IGCC-OTM), sowie in eines, in dem die CO-Konvertierung und CO<sub>2</sub>-Abtrennung kombiniert in einem Membranreaktor (IGCC-MR) realisiert wird. Zudem wird ein IGCC mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung aus dem Abgas mittels Carbonate Looping Prozess (IGCC-CL) sowie ein Konzept nach dem Oxy-fuel Prinzip (IGCC-Oxy) betrachtet. Abschließend wird im IGCC-BZ-Konzept noch die Kombination aus IGCC und Hochtemperaturbrennstoffzelle untersucht. Für die Konzepte wird jeweils das mittel- und langfristige Wirkungsgradpotential ermittelt, wobei unter mittelfristig die erste Generation des jeweiligen Kraftwerks verstanden wird. In Abgrenzung dazu beinhaltet die langfristige Konfiguration bereits zahlreiche individuelle Optimierungsschritte.

Im **Kapitel 7** wird das Potential der vorgeschlagenen zukünftigen IGCC-Konzepte für beide Zeithorizonte verglichen und bewertet. Bewertungskriterien sind, neben dem ermittelten Anlagenwirkungsgrad, auch die verbleibenden spezifischen CO<sub>2</sub>-Emissionen sowie qualitative Einschätzungen hinsichtlich der jeweiligen Anlagenflexibilität und dem vermeintlich notwendigen Forschungsbedarfs. Den Schluss der Arbeit bildet ein Fazit und kurzer Ausblick zur weiterführenden Betrachtung des Themas.



## 3 Methodik

### 3.1 Vorhaben und Vorgehen

#### 3.1.1 Konzeptübersicht

Obwohl der Fokus der Arbeit auf zukünftigen IGCC-Kraftwerkskonzepten liegt, so ist für deren Bewertung die Simulation gegenwärtig realisierbarer Kraftwerke notwendig. Da diese IGCC-Kraftwerke nach Stand der Technik zunächst analysiert werden und die Bewertung zukünftiger Konzepte für zwei Zeithorizonte erfolgt, ergeben sich eine Vielzahl von Konzepten und Varianten. Aus diesem Grund, soll an dieser Stelle ein kurzer Überblick über die betrachteten Konzepte, deren Varianten und Analysen gegeben werden (Abbildung 31).

IGCC nach SdT	Zukünftige IGCC-Konzepte		
<b>IGCC</b> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Energetische Analyse</li> <li>• Abschätzung Stromgestehungskosten</li> </ul>	<b>Konzept</b>	<b>Mittelfristig</b>	<b>Langfristig</b>
<b>IGCC mit CO<sub>2</sub>-Abtr. (Basisfall)</b> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Energetische Analyse</li> <li>• Einfluss CO<sub>2</sub>-Abtrennung</li> <li>• Abschätzung Stromgestehungskosten</li> <li>• Sensitivitätsanalyse</li> <li>• Exergieanalyse</li> </ul>	Basisfall	BF-I	BF-II
	O <sub>2</sub> -Membran	OTM	-
	Membranreaktor	MR-I	MR-II
	Carbonate-looping	CL-I	CL-II
	Oxy-fuel	Oxy-I	Oxy-II
	Brennstoffzelle	BZ-I	BZ-II

Abbildung 31: Schema der betrachteten Kraftwerkskonzepte

In der vorliegenden Arbeit wird zunächst ein IGCC-Kraftwerk ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung basierend auf konventioneller Technologie modelliert. Davon ausgehend, wird nach Stand der Technik ein IGCC mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung (IGCC-CCS) betrachtet, welches kurzfristig als realisierbar angesehen wird. Um die getroffenen Randbedingungen zu bewerten und eine bessere Vergleichbarkeit mit anderen Studien zu ermöglichen, wird zunächst eine umfangreiche Sensitivitätsanalyse durchgeführt. Dafür werden eine ganze Reihe von Parametern variiert um deren Auswirkung auf den Kraftwerkswirkungsgrad zu verdeutlichen. Außerdem wird durch den direkten Vergleich der beiden Kraftwerkskonzepte miteinander, sowohl der energetische wie auch der ökonomische Einfluss der CO<sub>2</sub>-Abtrennung auf Vergasungskraftwerke aufgezeigt und diskutiert. Darüber hinaus werden die mit der Abtrennung einhergehenden Verluste exergetisch analysiert. Dabei werden die größten Verlustbringer

im IGCC-System identifiziert und der Anteil vermeidbarer Verluste herausgestellt.

Das konventionelle IGCC mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung (**IGCC-CCS**) bildet zudem den Basisfall für die Potentialabschätzung von zukünftigen IGCC-Konzepten. Diese werden für einen mittel- und einen langfristigen Zeithorizont analysiert. Die zukünftigen Konzepte umfassen IGCC-Anlagen mit Pre-Combustion CO<sub>2</sub>-Abtrennung, mit Post-Combustion CO<sub>2</sub>-Abtrennung sowie nach dem Oxyfuel-Prinzip. Ein Fokus der Betrachtungen liegt auf dem Einsatz von Hochtemperaturmembranen, sowohl zur Erzeugung von Sauerstoff als auch zur Stofftrennung im Vergasungsgas. Dies wird vornehmlich in den beiden ersten Konzepten **IGCC-OTM** und **IGCC-MR** untersucht. Es folgt ein Konzept, welches die CO<sub>2</sub>-Abtrennung mit dem Carbonate Looping Prozess nach der Verbrennung realisiert (**IGCC-CL**). Abschließend wird noch ein IGCC nach dem Oxyfuel Ansatz, bei dem das unkonvertierte Gas mit Sauerstoff verbrannt wird (**IGCC-Oxy**), sowie ein Brennstoffzellenkonzept betrachtet (**IGCC-BZ**).

Bei allen zukünftigen Konzepten erfolgt ausgehend vom Basisfall die stufenweise Adaption von Optimierungsschritten hin zur finalen Konfiguration. So kann der Einfluss der einzelnen Schritte auf die Anlagenperformance verdeutlicht werden. Für die abschließende Bewertung, werden alle Konzepte für einen mittelfristigen sowie einen langfristigen Zeithorizont hinsichtlich deren thermodynamischen Potentials sowie bestehenden Forschungsbedarfs bewertet und diskutiert. Dabei bezeichnet mittel- bzw. langfristig keinen festen Zeithorizont, sondern vielmehr die erste Generation der vorgeschlagenen Kraftwerkskonzepte (mittelfristig) sowie die folgende Generation (langfristig), welche bereits zahlreiche Optimierungsschritte erfahren hat.

### 3.1.2 Thermodynamische Modellierung komplexer Systeme

Die wichtigsten Voraussetzungen für die realitätsnahe Modellierung von komplexen Technologien ist eine hinreichend genaue Kenntnis des Prozesses selbst, dessen konstruktive Umsetzung sowie geeignete Stoffdaten. Der prinzipielle Prozessaufbau kann durch eine Literaturrecherche sowie Herstellerangaben eruiert werden. Bereits hier setzt die Datenlage in der Regel Grenzen für die Genauigkeit des Modells. So werden Hersteller nur begrenzt Angaben zu ihren Prozessen veröffentlichen. Andererseits ist die Modellierung bis ins kleinste Bauteil mitunter wenig praktikabel. Auch die Genauigkeit der im Programm verwendeten Stoffdaten bedarf der Aufmerksamkeit. Für übliche Stoffsysteme und Umgebungsbedingungen mögen die inzwischen sehr umfangreichen Datenbanken verlässliche Ergebnisse liefern. Im Falle weniger gebräuchlicher Vielstoffsysteme sowie bei ungewöhnlichen Betriebsbedingungen werden in der Software dagegen oft Korrelationen verwendet, deren Aussagekraft nicht ungeprüft bleiben sollte.

Für die Modellerstellung können zwei grundsätzliche Verfahrensweisen gewählt werden. Nach dem Bottom-up Prinzip können die notwendigen Stoffdaten oder Einflussparameter durch experimentelle Arbeiten quantifiziert und in das Modell eingepflegt werden. Diese Verfahrensweise ist aufwändig und daher eher für überschaubare Einzelsysteme praktikabel. Nach dem Top-down Ansatz wird von der realen Anlage ausgegangen und deren Struktur grob modelliert. Stoffdaten werden weitestgehend aus Datenbanken übernommen. Anschließend muss das Modell so angepasst werden, dass es das Verhalten der zugrundeliegenden realen Anlage hinreichend genau reproduziert. Im Allgemeinen können so in der Software hinterlegte vorgefertigte Bauteile genutzt und auch komplexere Strukturen mit vertretbarem Zeitaufwand abgebildet werden. Der Ansatz impliziert aber, dass die notwendigen Stoffdaten innerhalb der betrachteten Betriebsgrenzen vorhanden sind und die Prozessstruktur realer Anlagen bekannt ist. Entsprechend wird in der vorliegenden Arbeit soweit möglich der Top-down Ansatz gewählt und wo notwendig, insbesondere bei den zukünftigen Technologien, ein vereinfachtes Bottom-up Prinzip verwendet. Zur Gewährleistung aussagekräftiger Simulationen werden die Hauptsysteme der betrachteten Konzepte anhand von Literaturdaten und Betriebsangaben realer Anlagen verifiziert.

Als Simulationssoftware wird sowohl Aspen Plus als auch Epsilon Professional verwendet. Beide Programme wurden bereits vielfach in publizierten Arbeiten eingesetzt und bieten sowohl umfangreiche Stoffdatenbanken als auch Bauteilbibliotheken. Während der Fokus bei Aspen Plus mehr auf der Modellierung von verfahrenstechnischen Anlagen liegt, ist Epsilon Professional eher für kraftwerkstechnische Komponenten geeignet. Daher wird die Vergasungsinsel, Luftzerlegung und die Gasaufbereitung in Aspen Plus modelliert, während der Gas- und Dampfturbinenteil mit Epsilon Professional simuliert wird.

Aspen Plus ist ein Gleichung-basiertes Simulationsprogramm für stationäre verfahrenstechnische Prozesse. Das Modell selbst wird mittels vordefinierter Bauteile als ein Fließschema erstellt und anschließend durch Eingabe der notwendigen Parameter auf die jeweiligen Bedürfnisse angepasst. Dabei kann für Stoffwerte auf die umfangreiche NIST-Datenbank sowie vorgefertigte thermodynamische Zustandgleichungen zurückgegriffen werden. Schnittstellen erlauben aber auch die Einbindung eigener Stoffdaten. Über *User-Routinen* können zudem Fortran- und Excelprogramme eingebunden werden. Die Lösung der grafisch erzeugten Gleichungssysteme erfolgt iterativ unter Vorgabe von Startwerten. Dabei führt das Programm auch komplexere Reaktionen aus und löst Masse- und Energiebilanzen. Zudem besseres Verständnis der Modellierung ist ein grobes Schema des thermodynamischen Modells der Gaserzeugung und -reinigung in Abbildung 32 dargestellt. Die detailliertere Betrachtung der modellierten Teilsysteme findet sich in Kapitel 3.2.

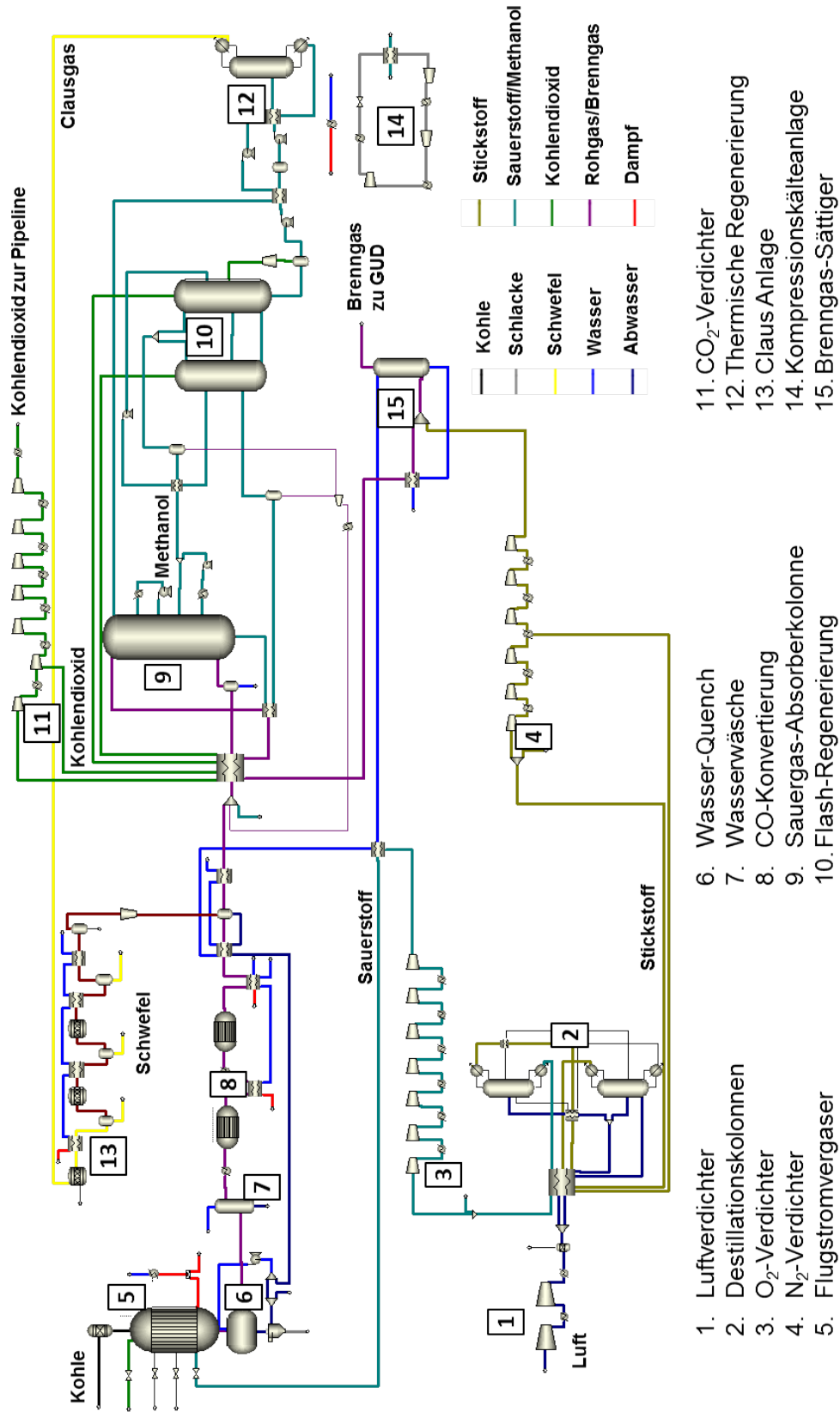


Abbildung 32: Schema des thermodynamischen Modells der Gaserzeugung und -reinigung

### 3.1.3 Analyse- und Bewertungsmethoden

#### Spezifische Bewertungsgrößen

Für die Bewertung von Kraftwerkskonzepten finden sich in der Literatur eine Vielzahl von verschiedenen Ansätzen, welche sich hinsichtlich des Fokus, der verwendeten Kennzahlen und Methodik grundlegend unterscheiden. In der vorliegenden Arbeit steht zunächst die energetische Bilanzierung im Vordergrund. Ziel ist dabei die Ermittlung des Wirkungsgrades eines betrachteten Systems. Dieser ist im Allgemeinen definiert als das Verhältnis von gewonnener Energie zur Menge der eingesetzten Energie. Bei Kraftwerkskonzepten im Speziellen, steht der elektrische Wirkungsgrad im Vordergrund. Dieser ist definiert als das Verhältnis von gewonnener elektrischer Energie zur eingesetzten Brennstoffenergie. Zur Bewertung der Güte von Teilsystemen, werden bei Vergasungskraftwerken aber noch eine Reihe von weiteren Kennzahlen genutzt. So ist im Zusammenhang mit dem Vergaser der Kaltgaswirkungsgrad von besonderer Bedeutung. Dieser gibt an, wie viel der eingesetzten Energie sich chemisch gebunden im Rohgas wiederfindet. Die fühlbare Wärme des Gases sowie die genutzte Abwärme des Vergasungsprozesses bleiben dabei unberücksichtigt.

$$\text{Kaltgaswirkungsgrad} : \frac{Hu_{\text{Rohgas}}}{Hu_{\text{Brennstoff}}} \quad (16)$$

Neben der energetischen Betrachtung, ist für die Bewertung von komplexen Kraftwerkskonzepten eine stoffliche Analyse notwendig. Dies ist bei Vergasungskraftwerken von besonderer Bedeutung, da diese typischerweise verfahrenstechnische Systeme der Stofftrennung und -wandlung beinhalten. Für die Bewertung dieser Systeme ist oft der Umwandlungsgrad einer gefragten Komponente bzw. der Trenngrad von entscheidender Bedeutung. In die erste Kategorie fallen der Kohlenstoffumwandlungsgrad im Vergaser sowie der CO-Umwandlungsgrad in der CO-Konvertierungsanlage. Beide Größen sind essentiell für die Bewertung der jeweiligen Prozesse. Der Kohlenstoffumwandlungsgrad ist ein Maß für die Ausnutzung des zugeführten Brennstoffs und ist definiert als das Verhältnis zwischen dem Kohlenstoffstrom im Rohgas und dem zugeführten Kohlenstoffstrom.

$$C - \text{Vergasungsgrad} : 1 - \frac{C_{\text{Rückstand}}}{C_{\text{Brennstoff}}} \quad (17)$$

In Abgrenzung zum Kaltgaswirkungsgrad wird also zunächst nur die Freisetzung von Energie im Vergaser durch die chemische Umwandlung des Kohlenstoffs im Brennstoff betrachtet. Im Fall von Vergasungskraftwerken mit Pre-Combustion CO<sub>2</sub>-Abtrennung ist

zudem der CO-Umwandlungsgrad in der Konvertierungsstufe ein weiteres Gütekriterium. Dieser ist insofern von Bedeutung, als das verbleibendes CO im Brenngas zu entsprechenden CO<sub>2</sub>-Emissionen des Kraftwerkes führen würde. Bei gegebenen Emissionsgrenzwerten wird demnach ein Mindestwert für die CO-Umwandlungsrate festgelegt, welcher durch die Prozessführung gewährleistet sein muss.

$$CO - Konvertierungsgrad : 1 - \frac{\dot{m}_{CO_{nach.Shift}}}{\dot{m}_{CO_{vor.Shift}}} \quad (18)$$

Mit der Thematik ebenfalls verbunden, ist die Güte des CO<sub>2</sub>-Abtrennungsprozesses. Hier ist der CO<sub>2</sub>-Abtrennungsgrad entscheidend, welcher das Verhältnis des abgetrennten Molenstroms zum eintretenden Molenstrom darstellt. Der Abtrennungsgrad kann sowohl für den einzelnen Abtrennungsschritt (CO<sub>2</sub>-Wäsche), als auch für das gesamte Kraftwerk ermittelt werden. Bei Letzterem entspricht die eintretende Menge dann dem CO<sub>2</sub>-Äquivalent, des durch die Brennstoffe zugeführten Kohlenstoffs. Da die Oxidation von Kohlenstoff äqui-molar verläuft, kann der Molenstrom direkt herangezogen werden. Hervorzuheben ist dabei die Abgrenzung des Abtrennungsgrads vom Rückhaltegrad, welcher sich nur auf die vermiedenen Emissionen bezieht. Da diese aber auch durch eine schlechte Kohlenstoffumwandlung im Vergaser verringert wird, ist der Abtrennungsgrad das geeignetere, wenngleich schärfere Kriterium.

$$CO_2 - Abtrennungsgrad : \frac{CO_2_{abgetrennt} [\text{kmol/s}]}{C_{zugeführt} [\text{kmol/s}]} \quad (19)$$

## Energetische Bewertung

Im Rahmen der energetischen Bewertung steht die Ermittlung des Brutto- sowie Nettowirkungsgrades im Fokus. Desweiteren wird der Leistungsbeitrag der einzelnen Teilsysteme Gasturbine, Dampfkreislauf und ggf. Brennstoffzelle ermittelt und damit deren Einfluss auf das Gesamtsystem aufgezeigt. Zudem wird die Verteilung des Eigenbedarfs der verschiedenen Verbraucher analysiert. Für die Ermittlung des Gesamtwirkungsgrades wird die abgegebene Leistung in Relation zum zugeführten Heizwertstrom aller Brennstoffe (im konkreten Fall Kohle und Erdgas) betrachtet.

$$Anlagenwirkungsgrad : \frac{\text{Elektr. Nettoleistung}}{Hu_{Kohle} * \dot{m}_{Kohle} + Hu_{Erdgas} * \dot{m}_{Erdgas}} \quad (20)$$

Neben der Bestimmung des Wirkungsgrades der Gesamtanlage wird in der Arbeit auch der spezifische Energieaufwand errechnet, beispielsweise für die Erzeugung des Sauerstoffs oder die Abtrennung und Verdichtung des Kohlendioxids. Auf diese Weise lässt sich die Effizienz der jeweiligen Prozesse größenunabhängig bewerten und mit anderen Arbeiten vergleichen.

## **Exergetische Bewertung**

Neben der energetischen Bewertung werden in der vorliegenden Arbeit auch exergetische Analysen durchgeführt. Diese Methode ist zwar in der Praxis weniger verbreitet, hat sich aber hinsichtlich der detaillierteren Analyse von komplexen Prozessen bewährt. Der Vorteil liegt in der Gewichtung von verschiedenen Energieformen was insbesondere bei Polygeneration Anlagen<sup>8</sup> von Vorteil ist. In Verbindung mit IGCC-Kraftwerken wurde die Methode bereits von zahlreichen Autoren verwendet [Woudstra 2001, Fiatschi 2002, Kim 2001, Erlach et al. 2010]. In der vorliegenden Arbeit wird diese Methode zur Verlustanalyse verwendet, da auch hier verschiedene Energieformen bewertet werden müssen. Dazu wird ein hierarchischer Ansatz gewählt, bei dem die Betrachtung auf drei Ebenen durchgeführt wird. Dabei werden neben dem Gesamtsystem, sowohl auf der Teilsystemebene die Bereiche Gasinsel, Gasreinigung und GUD für sich bilanziert, als auch auf der Komponentenebene die wesentlichen Teilsysteme. Hinsichtlich der eigentlichen Analyse werden in der Literatur verschiedene Ansätze diskutiert [Riedl 2007, Fratzscher 1986, Zheng et al. 2002, Szargut et al. 2007]. Diese unterscheiden sich im Wesentlichen durch die Definition des Umgebungszustandes und der gebildeten Kennzahlen. Grundsätzlich wird aber die Exergie eines Stroms immer in Relation zur definierten Umgebung berechnet. Da sich die Exergie im hier relevanten Kontext aus den Anteilen der physikalischen, chemischen und Konzentrationsexergie zusammensetzt, sind neben den thermodynamischen auch stoffliche Umgebungsparameter erforderlich. Im Falle von Temperatur und Druck werden oft Standardbedingungen, sprich 25°C und 1,01325 bar gewählt. Auch bei der Zusammensetzung der Luft kann dieser Bezug genutzt werden. Diese feuchte Luft<sup>9</sup> bildet damit die Gasphase der Umgebung. Während als flüssige Phase reines Wasser angesehen wird, ist die Wahl der festen Phase schwieriger. In der Literatur vorgeschlagene Zusammensetzungen, welche sich an der Lithosphäre orientieren, erscheinen wenig praktikabel und aussagekräftig. Daher wird vereinfachend angenommen, die Umgebung bestehe nur aus Asche und Gips. Im Verlauf der Exergieanalyse werden alle Stoffströme des Modells relativ zu der gewählten

---

<sup>8</sup>Polygeneration bezeichnet Anlagen mit verschiedenen Produkten, bsp. Strom, Wärme sowie Erzeugnissen aus integrierten Synthesenanlagen

<sup>9</sup>Zusammensetzung gemäß Tabelle 15

Umgebung betrachtet. Eine Besonderheit stellt dabei die Bewertung der festen Brennstoffe sowie des Vergasungsgases dar, da beide Ströme Stoffe enthalten, welche so in der Umgebung nicht definiert sind. Für die Exergie der Kohle wird daher folgender Zusammenhang genutzt [Baehr et al. 2009]:

$$\text{spez. Exergie}_{\text{Kohle}} : \left( 0,967 + \frac{2,389 \frac{MJ}{kg}}{H_u \frac{MJ}{kg}} \right) * H_u \frac{MJ}{kg} \quad (21)$$

Dieser wurde von *H.D Baehr* [Baehr et al. 2009] aus einem Verfahren zur Abschätzung der Exergie aus der Elementarzusammensetzung (Baehr) und dem von *F. Brandt* empirisch ermittelten Zusammenhang zwischen Massenanteilen der Elementaranalyse und dem Heizwert abgeleitet. Es gilt mit gewisser Abweichung für Kohle mit einem Heizwert unter  $33 \frac{MJ}{kg}$  und den auch hier gewählten Umgebungsbedingungen [Baehr et al. 2009].

Bei den Rohgasströmen werden die undefinierten Komponenten chemisch in definierte Komponenten umgewandelt. So wird CO in CO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub> in H<sub>2</sub>O oder CH<sub>4</sub> in CO<sub>2</sub> und zwei H<sub>2</sub>O überführt. Dazu muss aus der Umgebung der notwendige Sauerstoff aufkonzentriert werden, was mit entsprechendem Aufwand verbunden ist. Damit lässt sich eine umgebungs-konforme äquivalente Zusammensetzung bilden, für die die Exergie bestimmt werden kann. Zu beachten ist dabei, dass der Wasseranteil nur bis zur Sättigung dampfförmig vorliegen darf und darüberhinausgehende Mengen als flüssig zu deklarieren sind. Eine ausführliche Beschreibung kann der einschlägigen Literatur [Kim 2001, Fiatschi 2002, Fratzscher 1986, vGoll 1998, Bejan 1996] und früheren Arbeiten entnommen werden [Kunze et al. 2011].

Besondere Aufmerksamkeit bei der exergetischen Bewertung komplexer Systeme bedarf zudem die Verlustallokation. Die Frage zu welchem Teilsystem welche Verluste zugeordnet werden sollen, ist nicht immer eindeutig und damit subjektiven Einflüssen unterworfen. Zu beachten ist in jedem Falle die Transitbereinigung im betrachteten System. Als Transitexergie wird jene Exergie bezeichnet, die zwar über die Systemgrenze eingebracht wird, mit dem System aber nicht wechselwirkt und daher unberührt wieder austritt. Eine fehlende Bereinigung kann deshalb zu falschen Schlussfolgerungen führen. Man stelle sich zwei Kompressoren vor, jeweils für Erdgas und Kohlendioxid. Die Kompressionsverluste sind bei konstanten Randbedingungen in einer vergleichbaren Größenordnung. Bezieht man diese Verluste aber auf die eintretende Exergie, so ist der Verlustgrad beim Erdgaskompressor deutlich niedriger als bei Kohlendioxidkompressor. Der Grund liegt im beträchtlichen Anteil der chemischen Exergie im Fall von Erdgas, welcher die Verluste verwässert. Aus diesem Grund beziehen sich die im Folgenden behandelten Kennzahlen ausschließlich auf die transitbereinigte, zugeführte Exergie, die sogenannte Einsatzexergie. Zum besseren Verständnis ist die Methodik in Abbildung 33 auf der nächsten Seite verdeutlicht.



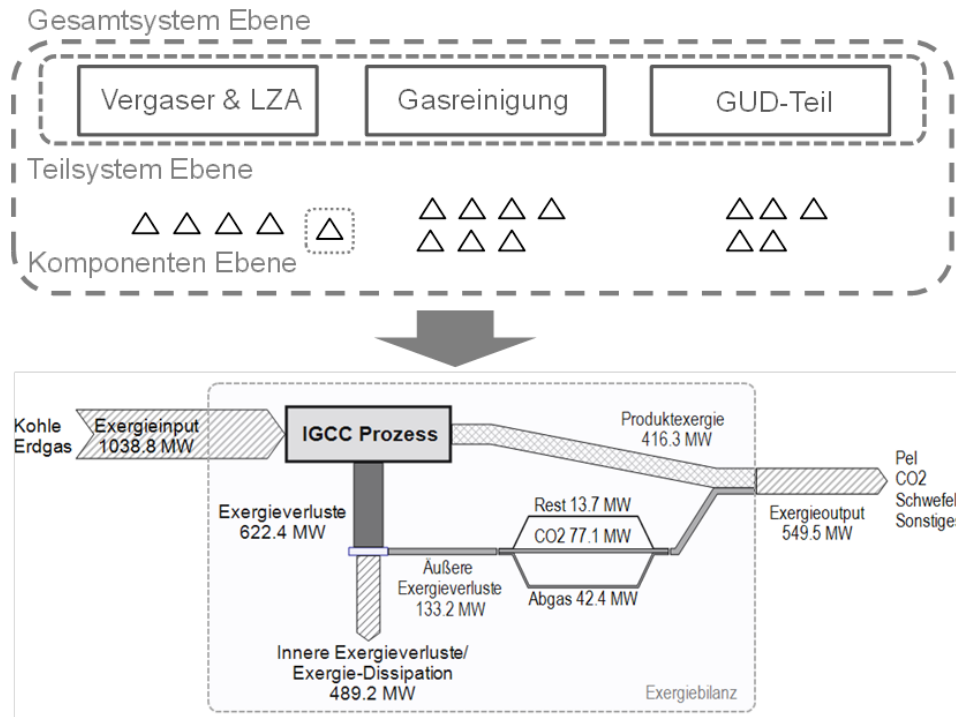


Abbildung 33: Schema der Exergieberechnung

Zur eigentlichen Bewertung der Prozesse werden aus den berechneten Größen drei Kennzahlen gebildet. Die naheliegendste ist dabei der exergetische Verlustgrad  $\varepsilon$ . Diese Kennzahl ist die inverse Größe zum Wirkungsgrad und verdeutlicht wieviel Exergie durch den jeweiligen Prozess verloren geht.

$$\text{Verlustgrad } \varepsilon = 1 - \eta = \frac{\text{Exergieverluste} + \text{Exergiedissipation}}{\text{Einsatzexergie}} \quad (22)$$

Damit kann ein betrachtetes System bewertet werden. Wichtig ist zudem die Kenntnis, in welchem Maß die Verluste eines Teilsystems zu den Verlusten des Gesamtsystems beitragen. Um diesen sogenannten Verlustbeitrag  $\lambda$  zu berechnen, muss die dritte Kennzahl eingeführt werden, die Verlustgewichtung  $\kappa$ . Diese gibt an, wie hoch der Einfluss des Verlustgrades eines Teilsystems auf den Verlustgrad des Gesamtsystems wirkt. Das Produkt des Verlustgrades und dessen Gewichtung eines Teilsystems ergibt demnach dessen Verlustbeitrag in der Gesamtsystembetrachtung.

$$\text{Verlustgewichtung } \kappa = \frac{\text{Einsatzexergie}_{\text{Ebene } x}}{\text{Einsatzexergie}_{\text{Ebene } x-1}} \quad (23)$$

$$\text{Verlustbeitrag } \lambda_{\text{Anlage } A_{\text{Ebene } X}} = \varepsilon_{\text{Anlage } A_{\text{Ebene } X-1}} \times \kappa_{\text{Anlage } A} \quad (24)$$

## Ökonomische Bewertung

Da im Rahmen der vorliegenden Arbeit auch die Auswirkung der CO<sub>2</sub>-Abtrennung auf die IGCC-Stromgestehungskosten betrachtet wird, soll an dieser Stelle kurz auf die zugrundeliegende Methodik eingegangen werden. Ziel der Wirtschaftlichkeitsrechnung ist die Quantifizierung der Rentabilität von Projekten. Dies soll sicherstellen, dass nur Projekte realisiert werden, die bei optimalem Ressourceneinsatz die maximale Unternehmenswertsteigerung erzielen. Zur Bestimmung der Rentabilität von Projekten gibt es innerhalb der Investitionsrechnung eine Reihe von Methoden, welche sich grundsätzlich in statische und dynamische Verfahren unterscheiden lassen. Zur Beurteilung von komplexen Kraftwerksanlagen eignen sich aber nur dynamische Mehrperioden-Betrachtungen, die den zeitlichen Anfall der Zahlungen mittels Zinseszinsrechnung berücksichtigen [Konstantin 2009].

Eine in der Praxis häufig eingesetzte Technik ist die Kapitalwertmethode. Diese überprüft, ob die Investition mehr Mittel generiert als eingesetzt werden mussten, unter Berücksichtigung des zeitlichen Verlaufs der Gegenleistungen. Der Kapitalwert einer Investition ist dabei definiert, als die Differenz zwischen dem Barwert investitionsbedingter Einzahlungen und dem Barwert investitionsbedingter Auszahlungen [Wöhe et al. 2010]. Hier ist zu beachten, dass der Wert immer relativ zu einer sogenannten Basisinvestition zu sehen ist, welche als Opportunitätskosten<sup>10</sup>, der Investition betrachtet werden können. Da es sich bei Großkraftwerken immer um kreditfinanzierte Investitionen handelt, entspricht der Zins der Basisinvestition den gewichteten Kapitalkosten (WACC<sup>11</sup>). Diese errechnen sich gemäß Gleichung anteilig aus den Fremdkapital- sowie Eigenkapitalkosten [Wöhe et al. 2010].

$$\text{WACC} : (\text{Eigenkapitalanteil} * \text{Eigenkapitalzins} + \text{Fremdkapitalanteil} * \text{Fremdkapitalzins}) \quad (25)$$

Ist der Kapitalwert positiv, deckt die Investition nicht nur die Opportunitätskosten sondern erwirtschaftet darüber hinaus noch einen zusätzlichen Beitrag [Wöhe et al. 2010].

<sup>10</sup>Opportunitätskosten, sind Kosten welche durch eine alternative Verwendung der Investitionssumme entstehen, bsp. einer sicheren Bankeinlage zu einem festen Zinssatz

<sup>11</sup>Weighted Average Costs of Capital

Die zur Bestimmung notwendigen Zahlungsströme werden mittels einer Cash-flow Analyse ermittelt. Durch diese werden die Zahlungsmittelströme des Kraftwerks transparent erfasst, ohne durch steuerrechtliche Aspekte verzerrt zu werden [Wöhe et al. 2010]. Dadurch wird ermittelt wieviel Liquidität zur Verfügung steht, um sämtliche Kapitalgeber zu bedienen, was eine realistische Bewertung der Wirtschaftlichkeit erlaubt.

Bei Kraftwerken steht neben der Ermittlung des Kapitalwertes insbesondere die Bestimmung der Stromgestehungskosten im Fokus, da das Hauptprodukt Strom regelmäßig Preisschwankungen unterworfen ist. Daher ist es entscheidend die Grenzkosten zu ermitteln, bei denen das Kraftwerk eingesetzt werden kann. Diese sind definiert als die Summe aus allen variablen Kosten des Kraftwerks, im Wesentlichen also Brennstoffkosten, die variablen O&M-Kosten<sup>12</sup> und bei emissionsrechtlicher Erfassung zusätzlich CO<sub>2</sub>-Zertifikatskosten [Erdmann et al. 2010]. Übersteigt der Strompreis diese variablen Betriebskosten, kann ein positiver Beitrag zur Deckung der fixen Kosten des Kraftwerks erlöst werden. Dieser als Deckungsbeitrag bezeichnete Geldbetrag, dient zur Finanzierung der Kapitalkosten sowie der fixen O&M-Kosten.

Eingabewerte	Jahr	-4	-3	-2	-1	Inbetriebnahme	1 bis 25
Input	926 MWth	<b>Kapitalkosten</b>					
Wirkungsgrad	50 %	Investkosten	- 104.689.840 €	- 314.069.520 €	- 418.759.360 €	- 209.379.680 €	- 1.046.898.400 €
Netto Leistung	464 Mwe	Barwert	- 145.085.326 €	- 401.157.582 €	- 492.973.988 €	- 227.176.953 €	- <b>1.266.393.848 €</b>
Verfügbarkeit	88 %/a	Annuität					- <b>123.741.474 €</b>
Strommenge	3577 GWh	<b>O&amp;M Kosten</b>					
CO <sub>2</sub> Emission	672 kg/MWh	Personal				- 7.200.000 €	- 7.344.000 €
		Versicherung				- 2.617.246 €	- 2.669.591 €
		Wartung				- 15.703.476 €	- 16.017.546 €
		Betriebsstoffe				- 5.234.492 €	- 5.339.182 €
		Barwert				- <b>135.357.275 €</b>	
		Annuität				- <b>13.225.987 €</b>	
		<b>Brennstoffkosten</b>					
Kapitalzins	8,5 %	Kohle				- 62.692.438 €	- 63.946.287 €
Annuitätsfaktor	9,7 %	Gas				- 2.492.101 €	- 2.541.943 €
Nutzungsdauer	25 a	Barwert				- <b>907.064.864 €</b>	
Preisanstieg	2 %/a	Annuität				- <b>88.630.834 €</b>	
Annuitätsfaktor	8,5 %	<b>Emissionskosten</b>					
Investkosten	2261 €/KWel	CO <sub>2</sub>				- 60.034.084 €	- 61.234.766 €
Versicherung	0,25 %/Invest	Barwert				- <b>945.486.832 €</b>	
Wartung	1,5 %/Invest	Annuität				- <b>92.385.109 €</b>	
Betriebsstoffe	0,5 %/Invest						
Personal	120 MA						
Personalsatz	60000 €/a	<b>Annuität Gesamtkosten</b>				- <b>317.983.404 €</b>	
		<b>Stromgestehungskosten</b>					<b>88,90 € je MWh</b>

Abbildung 34: Methode zur Bestimmung der Stromgestehungskosten

Im Folgenden soll nun kurz die Methode zur Bestimmung der Stromgestehungskosten unter Verwendung der Abbildung 34 erläutert werden. Die sich ergebenden Cashflows werden unter Berücksichtigung von Preissteigerungen für jedes Jahr der Nutzungsdauer in Excel modelliert. Alle getroffenen Randbedingungen und ermittelten Größen beziehen

<sup>12</sup>Operation and Maintenance Kosten, also Betriebs- und Wartungskosten

sich auf das Inbetriebnahmejahr. Wichtig zu beachten ist dabei die Wertung des zeitlichen Verlaufs der Zahlungsströme durch Diskontierung. Dies gilt auch für die Bauzeit, da hier zwar bereits Kapital investiert wurde aber noch keine Erträge erwirtschaftet werden können. Entsprechend müssen die Investitionskosten auf das Jahr der Inbetriebnahme mit dem Kapitalzins aufgezinnt werden. Es ist daher notwendig die gesamten Investitionskosten auf die 4 jährige Bauzeit zu verteilen. Hierzu wird folgender Schlüssel verwendet: 1.Jahr 10%, 2.Jahr 30%, 3.Jahr 40%, 4.Jahr 20%. Eine Planungsphase wird nicht gesondert erfasst und die damit verbundenen Ausgaben werden dem ersten Baujahr zugeordnet. Im Anschluss werden die einzelnen Kosten für jedes Nutzungsjahr ermittelt. Da sich aufgrund der Preissteigerungen in jedem Jahr andere Stromgestehungskosten ergeben, müssen diese für die Bewertung auf einen repräsentativen Durchschnittswert gebracht werden. Da die Geldbeträge aufgrund des zeitlichen Anfalls aber nicht gleichwertig sind, ist ein einfacher Mittelwert ungeeignet. Stattdessen wird für die Nutzungsdauer und unter Verwendung des Kapitalzins der Barwert der verschiedenen Kostenarten bezogen auf den Inbetriebnahmezeitpunkt bestimmt. Die einzelnen Barwerte können aufaddiert und anschließend als Annuität ausgedrückt werden. Diese errechnet sich aus dem Kapitalzins (WACC) und der Nutzungsdauer gemäß folgender Gleichung:

$$\text{Annuitätenfaktor} : \frac{\text{Kapitalzins} * (1 + \text{Kapitalzins})^{\text{Nutzungsdauer}}}{(1 + \text{Kapitalzins})^{\text{Nutzungsdauer}} - 1} \quad (26)$$

Dabei werden die ermittelten Gesamtkosten gleichmäßig als jährlicher Betrag über die Nutzungsdauer verteilt. Mittels dieses Wertes und der jährlichen Stromproduktion können nun die durchschnittlichen Stromgestehungskosten für das Kraftwerk ermittelt werden (siehe Abbildung 34).

## 3.2 Modellverifizierung

Die Verifizierung von Modellen komplexer Anlagen ist essentiell für die Aussagekraft späterer Simulationen. Daher sollen im folgenden Abschnitt kurz die wesentlichen Systeme hinsichtlich Genauigkeit und Anlagenverhalten bewertet werden. Dafür werden neben Herstellerangaben auch Betriebsdaten real existierender Anlagen herangezogen und mit den Ergebnissen der Modelle verglichen.

### 3.2.1 Vergaser

Bei der thermodynamischen Modellierung von Flugstromvergasungsanlagen wird in der Regel davon ausgegangen, dass bei den hohen Betriebstemperaturen die Reaktionen nahe

am Gleichgewicht verlaufen. Das erscheint aus chemischer Sicht plausibel, ist aber auch dem Umstand einer bislang fehlenden umfassenden kinetischen Beschreibung der Hochtemperaturvergasung geschuldet. Daher wird in der vorliegenden Arbeit ebenfalls von einem Gleichgewichtsansatz ausgegangen. Die verwendete Software Aspen Plus bietet allerdings die Möglichkeit für einzelne implementierte Reaktionsgleichungen eine Abweichung vom Gleichgewicht zu definieren. Dadurch wird das Rohgas zwar die definierte Vergasertemperatur, jedoch nicht die für diese Temperatur gültige Zusammensetzung aufweisen. Auf diese Weise kann die Zusammensetzung des Rohgases an Daten realer Anlagen angepasst werden. Die dafür notwendigen Betriebsdaten basieren auf Herstellerangaben [SFG 2008] und entsprechenden Publikationen [Schingnitz et al. 2005b, Schingnitz et al. 2005, Supp 1990].

Wie in Kapitel 1 beschrieben, laufen beim Vergasungsprozess eine Vielzahl von homogenen und heterogenen Reaktionen ab, welche aber bei hohen Temperaturen auf fünf Hauptreaktionen und sechs Nebenreaktionen (Tabelle 1) reduziert werden können. Entsprechend wurden auch nur diese 11 Gleichungen im Modell hinterlegt und mittels des zuvor genannten Mechanismus angepasst. Bei der Darstellung der Spurenkomponenten wurde sich ebenfalls auf die wesentlichen Komponenten  $\text{H}_2\text{S}$ ,  $\text{HCN}$ ,  $\text{COS}$ ,  $\text{NH}_3$  und  $\text{HCL}$  beschränkt, da die Konvergenz mit zunehmender Speziesanzahl leidet. Zudem erscheint die Aussagekraft der Simulationsergebnisse für geringste Konzentrationen im einstelligen ppm Bereich und darunter zumindest fragwürdig. Entsprechend wurden metallische Komponenten auch bei der Definition des Brennstoffs nicht berücksichtigt. Zum besseren Verständnis der modelltechnischen Umsetzung des Flugstromvergasers ist ein vereinfachtes Schema des Modells in Abbildung 35 dargestellt.

Damit das Simulationsprogramm Aspen Plus einen undefinierten, makromolekularen Stoff wie Kohle oder Biomasse verwenden kann, muss dieser durch seine Elementar- und Immediatanalyse charakterisiert werden. Zudem muss ein idealerweise experimentell ermittelter Heizwert für den Brennstoff zur Verfügung stehen. Der definierte Kohlestrom wird also zunächst entsprechend den Analysedaten in die definierten Komponenten zerlegt und reagiert erst anschließend im Vergaser (Gleichgewichtsreaktor), gemäß dem hinterlegten Reaktionsmechanismus. Um die Energiebilanz nicht zu verletzen, muss der mit dem Zerlegungsprozess einhergehende Wärmestrom in den Vergasungsreaktor eingebunden werden. Wird der Vergasungsprozess oberhalb des Ascheschmelzpunktes betrieben<sup>13</sup>, so muss auch die Ascheschmelzenthalpie durch einen entsprechenden äquivalenten Wärmestrom ausgekoppelt werden. Aspen Plus berücksichtigt zwar die fühlbare Wärme der Asche, nicht jedoch die bei der Phasenumwandlung benötigte Energiemenge, welche bei aschereichen

---

<sup>13</sup>was bei Flugstromvergasern regelmäßig der Fall sein wird

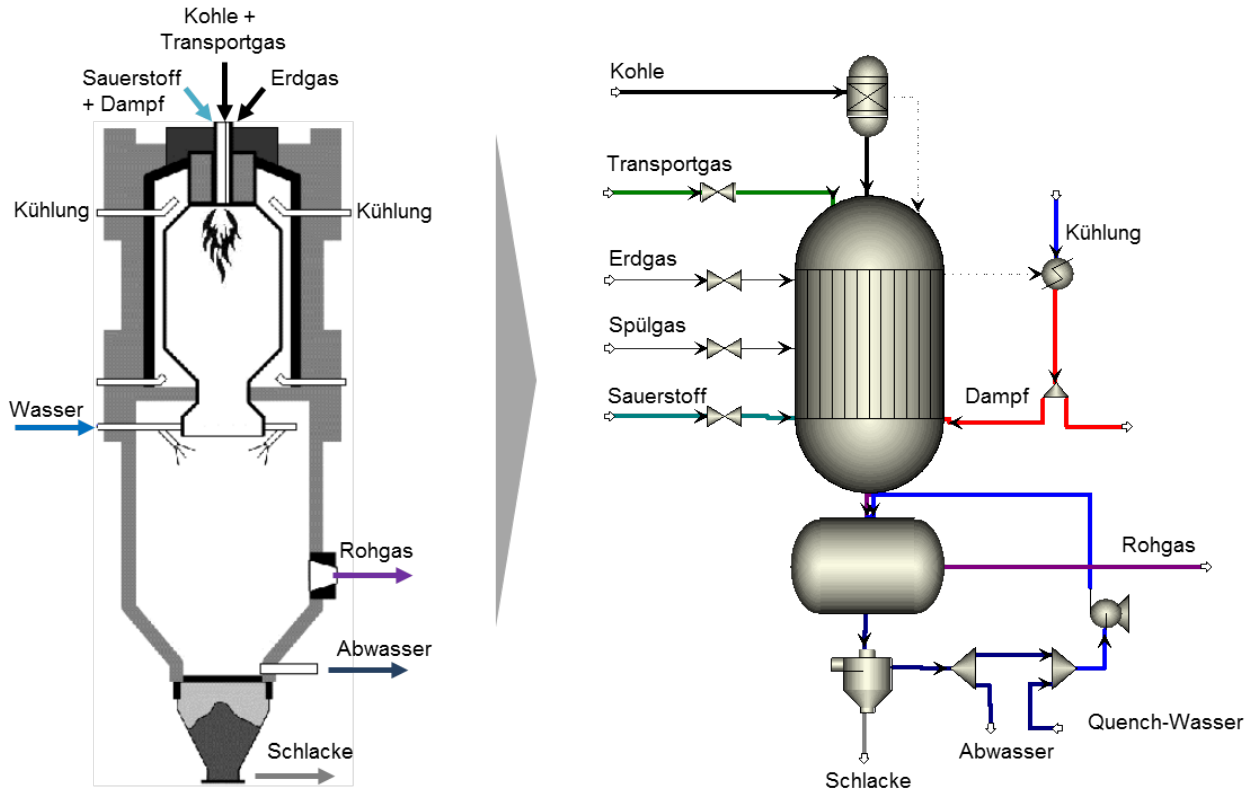


Abbildung 35: Modell des Flugstromvergasers mit Wasserquench

Kohlen signifikant werden kann.

Mit der Kohle gelangen, wie in Kapitel 1 beschrieben, entsprechende Mengen an Transport- und Spülgas ( $\text{CO}_2$ ) sowie Sauerstoff und Dampf in den Vergasungsraum. Während der Dampfbedarf in einem festen Verhältniss der eingetragenen Kohlenstoffmenge folgt, wird der Sauerstoff mittels User-Routine so variiert bis die Energiebilanz aufgeht. Bei Einsatz der in Tabelle 16 definierten Steinkohle ergeben sich nach der Simulation sowie erfolgter Anpassung die folgenden Gaszusammensetzungen und Abweichungen von den Vergleichswerten (Tabelle 12).

Es konnte unter den Annahmen eines unvollständigen Kohlenstoffumsatzes von 98,5%, einer Kühlleistung von 7 MW sowie einer Gleichgewichtsabweichung von 80K eine gute Übereinstimmung mit den Referenzwerten erzielt werden. Damit ist die Abweichung vom Gleichgewicht im Vergasungsreaktor bei den hohen Temperaturen von  $1450^\circ\text{C}$  nur gering. Der im Rahmen der Verifizierung verwendete spezifische Bedarf an Oxidationsmittel (Sauerstoff), Vergasungsmittel (Dampf) sowie Transport- und Spülgas (Stickstoff/ Kohlendioxid) wird für die weiteren Simulationen im Vergasermmodell hinterlegt und damit automatisch bei Brennstoffänderungen angepasst. Für das Oxidationsmittel ergibt sich ein

Tabelle 12: Verifizierung des Vergasermodells

Parameter	Einheit	Referenz	Modell
Kohle	t/h	82,50	
Erdgas	t/h	0,36	
Inertgas	t/h	17,49	
Dampf	t/h	5,26	
Sauerstoff	t/h	68,7	69,4
Rohgas tr.	t/h	156,42	155,04
Heizwert	MJ/kg	11,84	11,81
H <sub>2</sub>	Vol.-%	25,04	24,96
CO	Vol.-%	70,35	70,34
CO <sub>2</sub>	Vol.-%	3,13	3,22
N <sub>2</sub>	Vol.-%	1,26	1,29

für Flugstromvergaser typischer Kennwert [Supp 1990] von 0,44 Mol Sauerstoff pro Mol an Kohlenstoff, oder bezogen auf die Ausbeute an Synthesegas, ein Wert von 0,32 Nm<sup>3</sup> pro Nm<sup>3</sup> an Wasserstoff und Kohlenmonoxid. Neben der Gesamtmenge an Rohgas stimmt auch die Synthesegasausbeute von 2195 Nm<sup>3</sup> (H<sub>2</sub>+CO) pro Tonne Kohle (waf) gut mit Literaturwerten überein [Supp 1990]. Damit bildet das erstellte Modell ausreichend genau den Prozess der großtechnischen Flugstromvergasung ab.

### 3.2.2 Luftzerlegungsanlage

Die Luftzerlegung ist ein weiteres wichtiges Teilsystem des IGCC. Da typischerweise einige Tausend Tonnen Sauerstoff pro Tag benötigt werden, stellt die Luftzerlegungsanlage einen der Großverbraucher im System dar. Entsprechend wichtig ist die korrekte Wiedergabe des Energiebedarfs in Abhängigkeit der Einflussparameter. Der Wichtigste ist dabei die erforderliche Reinheit der Produkte. Da im IGCC nicht nur die Sauerstoffreinheit, sondern aufgrund der Integration, meist auch die Reinheit des verbleibenden Stickstoffs gewissen Anforderungen unterworfen sind, gilt es beide Größen zu beachten. In der vorliegenden Arbeit wird vornehmlich eine luftseitig unabhängige Niederdruckluftzerlegungsanlage mit zwei Kolonnen verwendet. Die Modellierung erfolgt gemäß der Beschreibung in Kapitel 1 mittels Aspen Plus. Ein vereinfachtes Schema des Modells ist in Abbildung 36 dargestellt.

Die eintretende Luft wird unter Zwischenkühlung auf rund 6,3 bar verdicht, von Wasserdampf und CO<sub>2</sub> befreit und anschließend gegen die Produkte gekühlt. Ein Booster regelt dabei die Grädigkeit im zentralen Wärmeübertrager. Der Druck der Niederdruckkolonne wird so angepasst, dass zur Verdampfung im Sumpf, die Wärme der Kondensation im Kopf

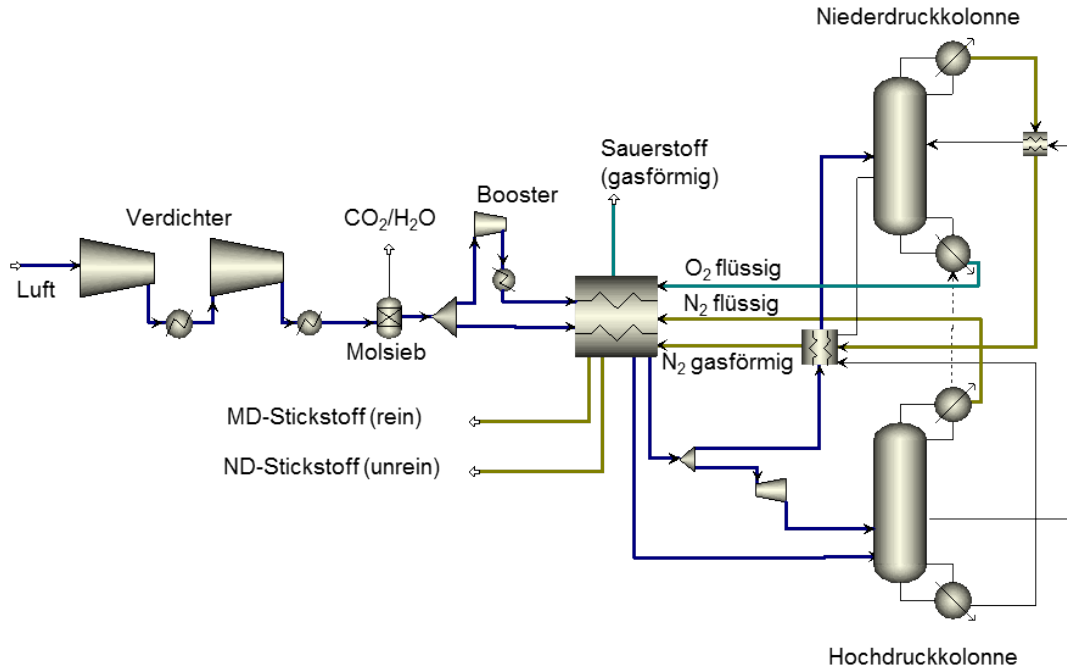


Abbildung 36: Modell der Niederdruckluftzerlegungsanlage

der Hochdruckkolonne verwendet werden kann. Die Luft wird dann in einen reinen Hochdruckstickstoff sowie Niederdrucksauerstoff bzw. -stickstoff zerlegt. In der Literatur wird für eine derartige Doppelkolonnenanlage bei einer Sauerstoffreinheit von 98% ein spezifischer Energiebedarf je Kilogramm erzeugten drucklosen Sauerstoffs von rund 0,25 bis 0,27 kWh [Springmann 1974, Ogriseck 2006, Hausen et al. 1985] genannt. Da in der gegenwärtigen Funktion auch die Stickstoffreinheit bei 98% liegen soll, orientiert sich der Vergleich an dem oberen Wert. Im Rahmen der Verifizierung konnte mit dem erstellten Modell eine Produktreinheit von mindestens 98% bei einem spezifischen Energiebedarf von 0,268 kWh pro Kilogramm Sauerstoff erzielt werden. Der Vergleich zeigt demnach, dass das erstellte Modell den typischen Energiebedarf der kryogenen Luftzerlegung wiedergeben kann.

Neben dem Energieaufwand für die Luftzerlegung soll an dieser Stelle noch die Verdichtung der Produkte selbst, anhand von Herstellerdaten verifiziert werden. Hierzu werden mehrstufige Getriebeturbo mit Zwischenkühlung auf 40°C und polytrope Wirkungsgrade zwischen 84 und 88%<sup>14</sup> als Vergleich herangezogen. Der Energiebedarf des Modells entsprach bei diesem simplen Prozess mit einer Abweichung von nur 0,5% der Vergleichsrechnung des Herstellers[Zorn 2009]. Entsprechend können auch diese Teilsysteme als verlässlich angesehen werden.

<sup>14</sup>Der polytrope Wirkungsgrad fällt von Stufe zu Stufe



### 3.2.3 CO-Konvertierung

Neben der Vergasung selbst, ist die CO-Konvertierung ein weiteres System mit einer signifikanten chemischen Umwandlung. Das System wird ebenfalls zunächst als Gleichgewichtsreaktor modelliert und die homogene Wassergasreaktion implementiert. Als Nebenreaktionen werden zusätzlich noch die Hydrolyse von COS sowie HCN zu H<sub>2</sub>S bzw. NH<sub>3</sub> über entsprechende Gleichungen berücksichtigt. Zur Kühlung wird nach jedem Reaktor Wärme abgeführt und nach verlassen des letzten Reaktors das Überschusswasser auskondensiert. Zum besseren Verständnis ist ein vereinfachtes Schema des Shift-Modells in Abbildung 37 dargestellt.

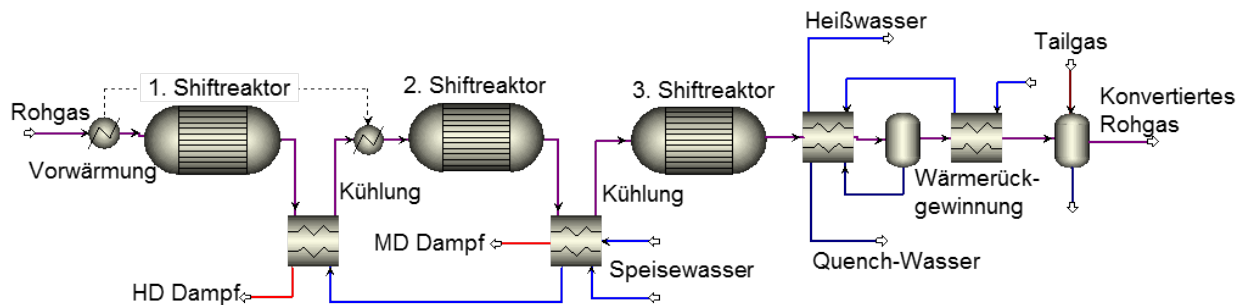


Abbildung 37: Modell der CO-Konvertierung

Da der Prozess signifikante Energiemengen umgewandelt, soll auch hier das Modell mit Literaturdaten verglichen werden. Dazu wird eine dreistufige Rohgaskonvertierung bei 50 bar und einem Wasser zu Kohlenmonoxid-Verhältnis von 2,5 betrachtet. Während die Reaktoren adiabat betrieben werden, erfolgt zwischen ihnen eine Abkühlung des Gases. Das trockene Rohgas ist dabei ein Gemisch aus 37,8 Vol.-% H<sub>2</sub>, 43,8 Vol.-% CO, 14,8 Vol.-% CO<sub>2</sub> und 3,6 Vol.-% Sonstige. Die Ergebnisse des Modells und die verwendeten Literaturdaten können gemäß Abbildung 38 verglichen werden [Higman 2007].

Die Simulation wurde zunächst als Gleichgewichtsbetrachtung durchgeführt. Entsprechend bewegt sich die CO-Konzentration am Reaktoraustritt (gepunktete Linie) entlang der Gleichgewichtslinie. Während Anfangs- und Endkonzentration gut übereinstimmen, kommt es vor allem nach dem ersten Reaktor zu einer größeren Konzentrationsabweichung von 1,2 %-Punkten. Um dies zu vermeiden, kann, analog zum Vergaser, für den betreffenden Shiftreaktor eine Abweichung vom Gleichgewicht definiert werden. Das Modell zeigt daraufhin (rote Linie) eine bessere Übereinstimmung mit den Literaturwerten im betrachteten Temperaturintervall. Wie in der Abbildung erkennbar, wurde im Reaktor 1 ein etwas niedrigerer und im Reaktor 2 ein minimal höherer Umsatz angenommen.

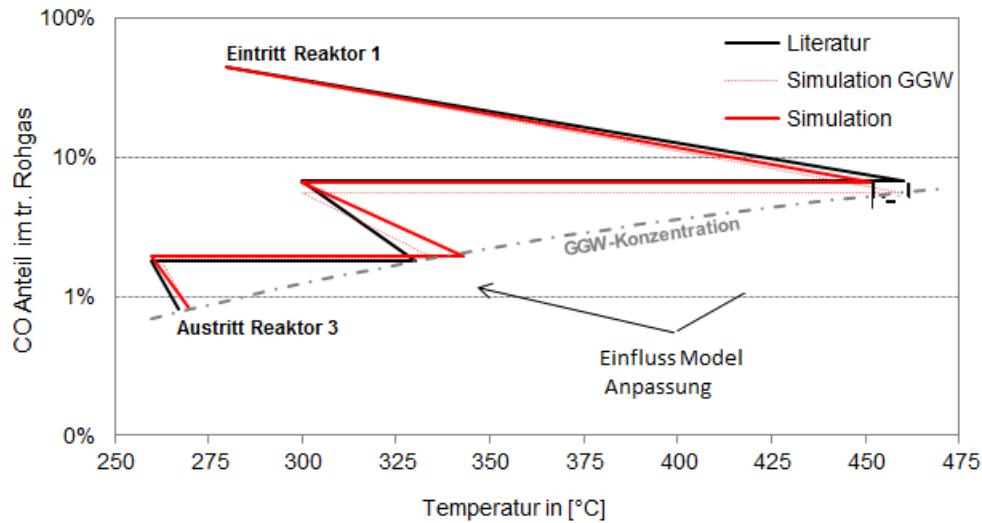


Abbildung 38: Verifizierung der CO-Konvertierung (Vergleichsdaten nach [Higman 2007])

Entsprechend verschiebt sich aufgrund der Exothermie die Rohgastemperatur minimal. Letztlich konnte mit der Betrachtung eine für die vorliegende Arbeit ausreichende Genauigkeit des Modells nachgewiesen werden.

### 3.2.4 Sauergaswäsche

Die Abtrennung der sauren Gasbestandteile (Schwefelverbindungen und Kohlendioxid) mittels physikalischer Wäschen ist, wie in Kapitel 1.3 beschrieben, mit einem signifikanten Energiebedarf verbunden. Da der Prozess zudem recht komplex ist, bedarf es nicht nur eines Abgleiches des Energiebedarfs, sondern auch einer Verifizierung des Modellverhaltens bei veränderten Randbedingungen. Die wichtigste Prozessgröße in diesem Zusammenhang ist bei physikalischen Wäschen der Partialdruck der abzutrennenden Komponente. Da dieser sowohl durch den Absolutdruck, wie auch durch die Konzentration im Gas bestimmt wird, schwankt der Wert je nach Anwendung. Die Modellierung des Prozesses orientiert sich an verschiedenen Literaturstellen und der Konfiguration real existierender Anlagen [Kohl et al. 1997, Koss et al. 2003, Prelipceanu et al. 2007, Supp 1990, Herbert 1956, Hochgesand 1970]. Ein vereinfachtes Schema des Modells ist in Abbildung 39 dargestellt.

Zur Verifizierung des Modells, wird eine in der Literatur dokumentierte Massen- und Energiebilanz einer selektiven Rectisolwäsche genutzt [Kohl et al. 1997]. Diese hat einen Durchsatz von 2480 t Rohgas pro Tag und entfernt bei 78 bar die Sauergase, aus einem Gemisch aus 62,4 Vol.-% Wasserstoff, 34,1 Vol.-% Kohlendioxid, 0,3 Vol.-% Schwefelver-

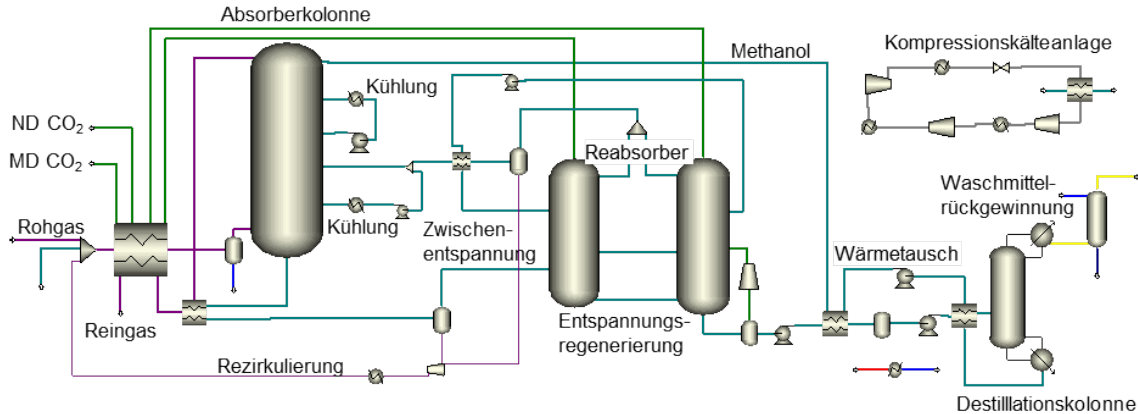


Abbildung 39: Modell der selektiven Methanolwäsche

bindungen und 3,2 Vol.-% sonstiger Bestandteile. Der überwiegende Teil des abgetrennten Kohlendioxids wird in der Waschmittelregenerierung bereits durch Entspannung auf 2,8 bar bzw. 1,1 bar freigesetzt. Dabei wird das beladene Waschmittel in der Niederdruckkolonne zusätzlich mit rund 7200 kg/h Stickstoff gestrippt. Dies senkt den  $\text{CO}_2$ -Partialdruck in der Gasphase ab, was die  $\text{CO}_2$ -Freisetzung aus der Flüssigphase unterstützt, aber auch zu einer Verdünnung des  $\text{CO}_2$ -Stroms führt. Danach erfolgt eine Heißregenerierung des Waschmittels, wodurch das restliche  $\text{CO}_2$  und vor allem die Schwefelkomponenten freigesetzt werden.

Tabelle 13: Verifizierung der Massebilanz der selektiven Sauer gaswäsche [Kohl et al. 1997]

Größe	Einheit	Reingas		$\text{CO}_2$ -MD		$\text{CO}_2$ -ND		Clausgas	
		Referenz	Model	Referenz	Model	Referenz	Model	Referenz	Model
Menge	kmol/h	3936	3956	1284	1254	1004	1018	54	53
$\text{H}_2$	Vol.-%	95,27	95,03	0,84	0,09	0,07	<0,001	0,31	-
$\text{CO}_2$	Vol.-%	<0,001	0,19	98,75	99,66	74,57	74,85	68,01	69,05
$\text{N}_2$ Ar	Vol.-%	0,76	0,77	0,08	0,03	25,32	25,12	4,36	<0,001
CO/ $\text{CH}_4$	Vol.-%	3,97	4,01	0,33	0,16	0,04	<0,001	0,08	-
$\text{H}_2\text{S}$	Vol.-%	<0,001	<0,001	<0,001	<0,001	<0,001	<0,001	27,24	30,94

Abweichungen ergeben sich durch Runden und Spurenstoffe.

Wie in der Gegenüberstellung ersichtlich (Tabelle 13), ist das erstellte Modell in der Lage, das eintretende Rohgas mit ausreichender Genauigkeit in die geforderten Gasströme zu zerlegen und deren Zusammensetzung wiederzugeben. Wenngleich bei sehr geringen Konzentrationen die relative Abweichung mitunter hoch ist, so ist die absolute Abweichung

akzeptabel und hinsichtlich der energetischen Bewertung der Gesamtanlage vernachlässigbar. Das Modell ist demnach in der Lage, ein nahezu schwefelfreies Reingas zu erzeugen und das abgetrennte CO<sub>2</sub> in der Waschmittelregenerierung entsprechend der Literaturangaben in den verschiedenen Strömen freizusetzen. Kleinere Limitierungen ergeben sich bei geringsten Konzentrationen und bei der Schwefelaufkonzentrierung, welche im Rahmen der vorliegenden Arbeit aber nicht entscheidend sind.

Neben der stofflichen Betrachtung erfolgt nun noch die energetische Bewertung des Modells bei verschiedenen Prozessdrücken. Dies ist aufgrund der starken Abhängigkeit physikalischer Wäschen vom CO<sub>2</sub>-Partialdruck notwendig und wurde bereits in Kapitel 1.2 beschrieben. Ausgangspunkt der Betrachtung ist wiederum die bereits beschriebene Hochdruckanlage. Das Modell wird anschließend für Drücke von 50 und 25 bar angepasst und die Änderungen des jeweiligen spezifischen elektrischen Eigenbedarfs mit Herstellerangaben [Preliceanu et al. 2007] verglichen. Für die in der Literaturquelle [Kohl et al. 1997] beschriebene Anlage bei 78 bar wird ein elektrischer Eigenbedarf von 1100 KWel der Anlage selbst sowie 1050 KWel für die Kompressionskälteanlage genannt. Bei einer Abtrennung von 88,73 t/h CO<sub>2</sub> ergibt sich ein spezifischer Eigenbedarf von circa 0,0242 kWh/kg CO<sub>2</sub>. Im Modell konnte unter Verwendung eines isentropen Wirkungsgrads von 0,8 für Pumpen und Verdichter, ein elektrischer Eigenbedarf der Wäsche von 1085 KWel ermittelt werden, was einer Abweichung von 1,4% entspricht. Hinsichtlich der Kältebereitstellung ergibt sich ein Wert von 1020 KWel und damit eine negative Differenz zum Referenzwert von 2,8%. Aufgrund des hohen Systemdrucks können die niedrigsten Temperaturen im Prozess durch die Waschmittelentspannung bereitgestellt werden, wodurch die Zwischenkühlung auf einem moderaten Temperaturniveau von -15 bis -20°C erfolgen kann. Bei der betrachteten Ammoniakkompressionsanlage ergibt sich damit ein effektiver COP<sup>15</sup> Wert von rund 2,2, was im Einklang mit Literaturwerten steht [Cube et al. 1997, Jungnickel et al. 1980, Göttlicher 1999]. Damit ergibt sich für das Modell ein spezifischer elektrischer Gesamteigenbedarf von 0,0238 kWh pro Kilogramm CO<sub>2</sub>, was dem Literaturwert mit einer Abweichung von unter 2% ausreichend nahe kommt. Auch der Dampfbedarf der thermischen Regenerierung wies im Modell mit 6228 kg/h nur eine Abweichung von 3,9% gegenüber der Literaturangabe auf [Kohl et al. 1997].

Im folgenden soll nun die relative Änderung des elektrischen Eigenbedarfs vom Systemdruck untersucht werden. In der Literatur [Preliceanu et al. 2007] ist ein Anstieg des elektrischen Eigenbedarfs mit sinkendem Absolutdruck und damit CO<sub>2</sub>-Partialdruck dokumentiert, welcher auch im Modell erzielt werden konnte (Abbildung 40).

---

<sup>15</sup>Coefficient of Performance, Leistungszahl welche die Nutzwärme in Relation zur eingesetzten Energie setzt

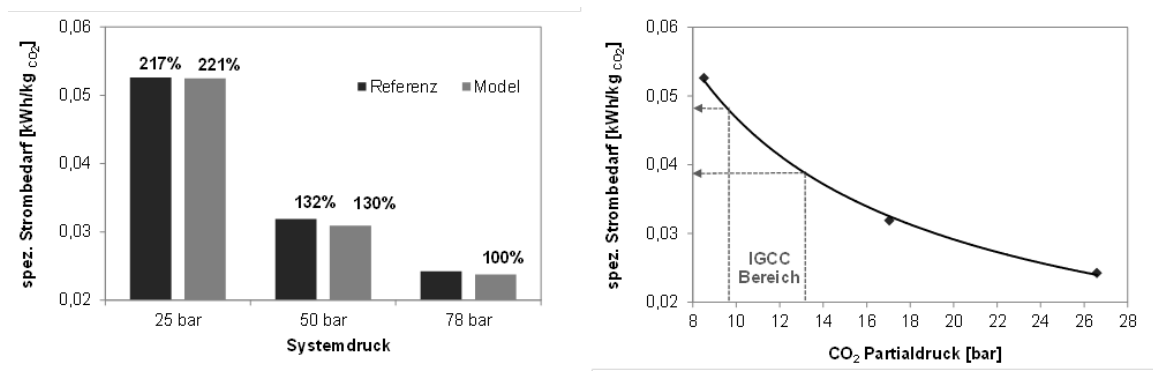


Abbildung 40: Vergleich des Strombedarfs bei ausgewählten Drücken [Preliceanu et al. 2007]

Der Hauptgrund für den starken Anstieg des Strombedarfs ist das sinkende Temperaturniveau der Waschmittelunterkühlung. Der Grund dafür liegt in der verminderten Entspannungsregeneration und der damit verbundenen Kühlwirkung. Das entspannte Waschmittel erreicht nicht die niedrigen Temperaturen um das vollständig regenerierte Waschmittel ausreichend tief abzukühlen. Deshalb muss vor der Entspannung die Temperatur des beladenen Waschmittels zunehmend stärker abgesenkt werden. Damit steigt der entsprechende Energiebedarf in der Kompressionskälteanlage, da der COP-Wert zu tieferen Temperaturen hin stark abfällt. So sinkt der COP-Wert bei 25 bar auf 1,6 ab. Der geringere Verdichtungsaufwand, aufgrund des niedrigeren Druckniveaus, hat somit nur einen geringen positiven Einfluss auf den elektrischen Eigenbedarf.

Die Abweichungen des Modells steigen zwar mit abnehmenden Systemdruck, liegen aber mit 2% bzw. 4% in einem akzeptablen Bereich. Im typischen Partialdruckbereich von IGCC-Kraftwerken sollte die Abweichung daher maximal 3% betragen und der spezifische Elektroenergiebedarf im Bereich von 0,039 bis 0,047 kWh pro Kilogramm abgetrenntes CO<sub>2</sub> liegen. Damit hat die Verifizierung gezeigt, dass das Modell der Sauergaswäsche in der Lage ist, die Stoffverteilung sowie den resultierenden Energiebedarf im notwendigen Druckbereich hinreichend genau darzustellen.

### 3.2.5 Gasturbine

Die Gasturbine ist ein wesentliches Element für die Simulation von IGCC-Kraftwerken. Umso kritischer ist die begrenzte Datenlage hinsichtlich der Betriebsparameter modernster Gasturbinen. Da die vorliegende Arbeit auf der neuesten Gasturbinengeneration basiert, bleibt für die Modellierung nur die Abschätzung der wesentlichen Größen, ausgehend von

den wenigen verfügbaren publizierten Werten. Für die neueste Gasturbinengeneration wird auf Erdgasbasis eine Bruttoleistung von 375 MW bei einem Druckverhältnis von 19,2 erreicht [Siemens 2010]. Das Abgas weist dabei einen Massenstrom von 820 kg/s und eine Temperatur von 620°C auf [Siemens 2010]. Unter Verwendung des Simulationsprogramms Epsilon Professional kann ausgehend von diesen Werten, bei Einsatz von Methan, einer Luftkühlung sowie einem Generatorwirkungsgrad von 98,5% eine Turbineneintrittstemperatur ISO (TET) im Bereich von 1360 bis 1380°C abgeschätzt werden. Aufgrund der Unsicherheit der Abschätzung und dem Fakt, dass bislang bei Einsatz von Synthesegas die TET abgesenkt wird [v.Holthoon 2009], wird für die weitere Betrachtung ein Wert von 1320°C (ISO) gewählt. Es sei an dieser Stelle erwähnt, dass dieser Wert trotz des Abschlags als herausfordernd eingestuft werden kann und daher kaum in den ersten IGCC Demoanlagen erreicht werden wird. Diese werden wohl aus Gründen der Verfügbarkeit zunächst auf bewährte Maschinen zurückgreifen, bei denen mehr Betriebserfahrung besteht. Da im Vorfeld der Inbetriebnahme, verschiedene Literaturstellen [Ratliff et al. 2007, Karg 2009] die Nettleistung der neuesten Gasturbine mit 340 MW angeben, wurde dieser Wert auch für die vorliegende Arbeit festgelegt. Ausgehend von der ermittelten TET wird zudem ein Druckverhältnis von 20 gewählt. Es handelt sich daher bei dem hier verwendeten Gasturbinenmodell um eine generische Gasturbine, deren Betriebsparameter von der neuesten Generation abgeleitet wurden und ausdrücklich nicht um die Nachbildung einer real existierenden Maschine.

### **3.2.6 SOFC Brennstoffzelle**

Das Modell der Brennstoffzelle stellt in den entsprechenden Kraftwerkskonzepten das wesentliche Teilsystem für die Stromerzeugung dar und bedarf daher einer Verifizierung. Da die Modellierung der Brennstoffzelle ausschließlich über eigens gewählte Gleichungen erfolgt, ist zu überprüfen, in wieweit die einzelne Zelle des Modells die zugrundeliegenden Zusammenhänge auch korrekt widerspiegelt. Modelliert wird die Brennstoffzelle durch eine Kombination aus Excel und Aspen Plus. Über Aspen Plus erfolgt die Kopplung mit den übrigen Kraftwerkskomponenten, wodurch die Randbedingungen wie die Zusammensetzung des Brenngases, Druck und Temperatur geliefert werden. Die internen Prozesse der SOFC, wie die Ermittlung der Zellspannung, die elektrochemische Umwandlung, der sich ergebende Sauerstoff- und Luftbedarf sowie die elektrische Leistung, wird in Excel berechnet und an Aspen Plus übergeben. Dort wird anschließend, unter Berücksichtigung der Wasserstoffumwandlung und des Sauerstoffeintrags, die sich unter Gleichgewichtsbedingungen ergebende Zusammensetzung des Anodenabgases berechnet. Für die Ermittlung der elektrischen Leistung wird die Stromstärke und realisierbare Zellspannung benötigt.

Der elektrische Strom der Zelle kann dabei durch Multiplikation der Faradaykonstante mit der umgesetzten Wasserstoffmenge berechnet werden.

$$I = 2F * n_{H_2\text{reagiert}} \quad (27)$$

Zur Vereinfachung wird angenommen, dass Wasserstoff die einzig elektrochemisch reagierende Komponente ist. Kohlenmonoxid wird dabei über die Wassergasshift (WGS) Reaktion in Wasserstoff umgewandelt. Daher wird im Modell ein Brennstoffumsatz bei einmaligem Passieren der SOFC vorgegeben. Die Summe aus eintretenden und in der Zelle gebildeten Wasserstoff dient dann als Grundlage der Berechnung. Über die umgesetzte Wasserstoffmenge wird zudem die notwendige Sauerstoffmenge und über Multiplikation mit der vorgegebenen Luftzahl (Lambda) der Luftbedarf berechnet. Anschließend wird die realisierbare Zellspannung abgeschätzt. Ausgehend von der reversiblen Spannung wird die unter den gegebenen Randbedingungen (Druck, Temperatur und Gaszusammensetzungen) erzielbare Nernst-Spannung der Zelle berechnet. Dabei werden jeweils die Durchschnittswerte zwischen Ein- und Austritt genutzt.

Da beim Betrieb vor allem ohmsche Verluste und Aktivierungsverluste auftreten, liegt die real erzielbare Spannung deutlich unter der Nernst-Spannung. Die Konzentrationsverluste sind dagegen gering und werden im vorliegenden Modell daher vernachlässigt [Panopoulos et al. 2006]. Die Ermittlung der Verluste erfolgt analog der Darstellung von Doherty [Doherty et al. 2009]. Dort werden über entsprechende Gleichungen und Materialgrößen für die verschiedenen Teile der tubularen Zelle (Elektrolyt, Anode usw.) die Spannungsverluste ermittelt. Genutzt werden in der Literatur dokumentierte Materialkonstanten [Chan et al. 2002, Panopoulos et al. 2006, Doherty et al. 2009] sowie typische geometrische Parameter der einzelnen Komponenten [Panopoulos et al. 2006, Doherty et al. 2009] und deren Schichtdicke [Stiller et al. 2003, Doherty et al. 2009]. Nach der Ermittlung der elektrischen Leistung wird deren Wert von der Reaktionsenthalpie der Brenngasumwandlung abgezogen, um die entstehende Abwärme zu ermittelt. Dabei sind endotherme (CH<sub>4</sub>-Reformierung) wie exotherme (CO-Konvertierung) Nebenreaktionen zu beachten. Die ermittelte Abwärme muss aus dem System intern (Luft-/Anodengaserwärmung) oder extern abgeführt werden.

Die Verifizierung des Modells erfolgt anhand publizierter Werte aus der Literatur [Zhang et al. 2005, Doherty et al. 2009]. Angenommen wird dort eine Betriebstemperatur von 910°C bei 1,08 bar und ein Brennstoffumsatz an der Anode von 68,7%, bezogen auf den zugeführten Brennstoffstrom. Als Zellspannung wird 0,7V bei einer Stromdichte von 178 mA/cm<sup>2</sup> angegeben und der Luftnutzungsgrad liegt bei 19%. Im vorliegenden

Modell wird die Stromdichte so variiert, dass sich bei den gegebenen Betriebsparametern die entsprechende Zellspannung ergibt. Da die ermittelten Spannungsverluste auf einer bestimmten Geometrie bzw. angenommenen typischen Schichtdicken der einzelnen Komponenten basieren, wird in dem vereinfachten Modell die Stromdichte vorgegeben und über die errechnete Stromstärke die notwendige Zellfläche ermittelt.

Tabelle 14: Vergleich des SOFC-Modells mit der Literatur [Doherty et al. 2009, Zhang et al. 2005]

Parameter	H <sub>2</sub>	CO	CH <sub>4</sub>	CO <sub>2</sub>	H <sub>2</sub> O	N <sub>2</sub>	Molenstrom
Einheit	Vol.-%	Vol.-%	Vol.-%	Vol.-%	Vol.-%	Vol.-%	kmol/h
Brenngas	27,00	5,60	10,10	23,10	27,90	6,20	6,39
Abgas	11,60	7,40	0,0	24,90	50,90	5,10	7,68
Modell	11,63	7,45	0,0	24,86	50,90	5,16	7,68

Wie in Tabelle 14 ersichtlich, ist das Modell in der Lage den Brennstoffumsatz und damit die Abgaszusammensetzung gut wiederzugeben. Dabei konnte mit dem Modell für die gegebene Brenngaszusammensetzung eine Zellspannung von 0,698V ermittelt werden, was nahezu mit dem Literaturwert übereinstimmt und auf eine verlässliche Abschätzung der Spannungsverluste schließen lässt. Auch die mittels SOFC erzeugte elektrische Leistung (119,8 KWel) stimmt mit dem Literaturwert von 120 KWel überein. Die Reaktionswärme durch die elektrochemische Wasserstoffumwandlung sowie CO-Konvertierung ergibt abzüglich der Brennstoffzellenleistung die freie Reaktionswärme der SOFC, welche durch die Temperaturerhöhung des Anodengases sowie Überschussluft aufgenommen wird. Die Abweichung der so ermittelten Abwärme beträgt nur rund 3% zum Literaturwert. Damit ist das vereinfachte SOFC Modell ausreichend genau um die in der vorliegenden Arbeit gefragten wesentlichen Zusammenhänge zur Ermittlung der Brennstoffzellenleistung abzubilden.

### 3.3 Randbedingungen der Simulationen

Die Aussagekraft thermodynamischer Simulationen ist nur bei genauer Kenntnis der zugrundeliegenden Annahmen und Randbedingungen gegeben. Zudem ist eine Vergleichbarkeit verschiedener Simulationen nur zulässig, wenn die wesentlichen Parameter der Annahmen übereinstimmen. Aus diesen Gründen werden im folgenden Abschnitt die detaillierten Randbedingungen dieser Arbeit zusammengefasst.



## Anlagendaten und Umgebungsbedingungen

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wird die Anlagengröße des Basisfalls so festgelegt, dass die Gasturbine eine Nettoleistung von 340 MWel liefert. Der Brennstoffstrom wird entsprechend geregelt und liegt im Bereich von 1000 MWth. Zum Einsatz kommt ein generischer Flugstromvergaser mit pneumatischer Brennstoffzuführung und Kühlschirm. Für die Betrachtung der zukünftigen Konzepte und Prozessvariationen wird die sich aus dem Basisfall ergebende Brennstoffzuführung konstant gehalten.

Um die thermodynamische Simulation ganzer Kraftwerke praktikabel zu halten, beschränkt sich die Modellierung auf die wesentlichen Anlagensysteme. Als Systemgrenze gilt der Kraftwerkszaun. Die Bereitstellung der Rohkohle, der Betriebs- und Zusatzstoffe als auch die Entsorgung des Abwassers bzw. der Rückstände liegt außerhalb der Betrachtung. Um aber die zahlreichen Nebenanlagen im IGCC-Verbund insbesondere die Abwasserbehandlung, Haustechnik, Fackelanlage usw. zu berücksichtigen, wird als zusätzlicher Energiebedarf pauschal 2% des Eigenbedarfs angenommen. Als Umgebung werden die ISO-Bedingungen angenommen und als konstant betrachtet. Damit ergibt sich ein Luftdruck von 1,013 bar und eine Umgebungstemperatur von 15°C bei einer relativen Luftfeuchtigkeit von 60%. Daraus resultiert die Zusammensetzung der Luft gemäß Tabelle 15.

Tabelle 15: Zusammensetzung der Luft

Gaskomponente	Trocken, Vol.-%	Feucht, Vol.-%
Stickstoff	0,78103	0,77314
Sauerstoff	0,20946	0,20734
Argon	0,00918	0,00909
Kohlendioxid	0,00033	0,00033
Wasserdampf	0	0,01010

## Einsatzstoffe

Als Haupteinsatzstoff kommt eine generische Steinkohle zum Einsatz. Darüber hinaus werden, im Rahmen der Sensitivitätsanalyse, weitere Brennstoffe untersucht, welche hier ebenfalls spezifiziert werden. Für die Modellierung des Brennstoffs, ist dessen Zusammensetzung und der daraus resultierende Heizwert entscheidend. Entsprechend sind, für den

Anlieferungszustand, die jeweiligen Immediat- und Elementaranalysen in Tabelle 16 zusammengefasst. Bei Verwendung von Erdgas wird dieses als 100% Methan angenommen.

Tabelle 16: Charakterisierung ausgewählter Einsatzstoffe

Parameter	Einheit	Steinkohle	Braunkohle	Biomasse	Steinkohle aschereich	Steinkohle aschearm
C	Ma.-%	66,51	27,29	42,06	55,58	73,60
H	Ma.-%	3,78	2,00	5,37	3,16	4,18
O	Ma.-%	5,47	10,30	40,04	4,57	6,05
N	Ma.-%	1,56	0,40	0,26	1,30	1,73
S	Ma.-%	0,52	0,60	0,09	0,43	0,58
Cl	Ma.-%	<0,01	0,01	0,00	<0,01	<0,01
Asche	Ma.-%	14,15	4,90	0,18	28,3	5,00
Wasser	Ma.-%	8,00	54,50	12,00	6,69	8,85
Flüchtige	Ma.-%	22,90	23,20	72,69	19,13	25,34
Kohlenstoff	Ma.-%	54,90	17,40	15,14	45,92	60,81
Heizwert	kJ/kg	25,174	9012	15,565	21,504	27,857
Brennwert	kJ/kg	26,232	10787	17,084	22,408	29,028

## Gas- und Dampfturbinenteil

Der GUD-Teil besteht aus einer generischen Gasturbine, einem 3-Druck Abhitzedampferzeuger (AHDE) sowie Dampfturbinen mit einfacher Zwischenüberhitzung.

Tabelle 17: Randbedingungen im Gas- und Dampfturbinenteil

Parameter	Einheit	Wert	Parameter	Einheit	Wert
Gasturbinenteil			Dampfturbinenteil		
Wirkungsgrad Verdichter	%	89,3	HD-Frischdampfdruck	bar	170
Wirkungsgrad Turbine	%	89,5	MD-Frischdampfdruck	bar	40
TET ISO	°C	1320	ND-Frischdampfdruck	bar	6
Druckverhältnis	-	20	Effizienz HD-Turbine	%	89
Brenngaseintrittstemperatur	°C	320	Effizienz MD-Turbine	%	93
Druckverlust Brennkammer	bar	4	Effizienz ND-Turbine	%	92
Austrittsdruck	bar	1,04	Kondensatordruck	mbar	48
Abhitzedampferzeuger					
Grädigkeit HD-Überhitzer	K	25	Pinch Punkt Verdampfer	K	> 8
Grädigkeit MD-Überhitzer	K	20	Abgastemperatur	°C	< 90
Grädigkeit ECO	K	> 8	Druckverlust Abgas	mbar	30

Die wesentlichen Annahmen sind in Tabelle 17 zusammengefasst. Die Turbineneintrittstemperatur wird auf 1320°C ISO festgesetzt, bei einem Druckverhältnis von 20. Der Anteil von Wasserstoff im Brenngas auf 50% fixiert. Berücksichtigt man die Grädigkeit im Überhitzer, ergeben sich Frischdampftemperaturen von rund 590°C.

## Randbedingungen zukünftiger Kraftwerkskonzepte

Aufgrund der veränderten Anlagenstruktur und des zeitlichen Horizonts kommt es bei den zukünftigen Kraftwerkskonzepten zu abweichenden Werten. Diese sind für die einzelnen Konzepte in Tabelle 18 aufgeführt. Da im Rahmen der Potentialermittlung zahlreiche Optimierungsschritte vollzogen werden, kommt es an entsprechender Stelle zu abweichenden Annahmen. Da dies aber in Kapitel 6 explizit vermerkt ist, werden die Abweichungen an dieser Stelle nicht zusätzlich aufgeführt.

Tabelle 18: Übersicht der konzeptspezifischen Simulationsannahmen

IGCC-OTM		IGCC-CL	
prakt. Abtrennung ( $A_{pr}$ )	45-85%	Temperatur Kalzinierung	650°C
Permeatdruck OTM	> 0,5 bar	Temperatur Karbonisierung	950°C
O <sub>2</sub> -Partialdruckdifferenz	> 5 bar	Dampfparameter CL-II	630°C/250 bar
Temperatur OTM	850°C	Energiebedarf CO <sub>2</sub> -Reinig.	3 MWel
Wärmeverlust OTM	2%	Druckverlust CO <sub>2</sub> -Reinig.	5 bar
IGCC-MR		IGCC-Oxy	
H <sub>2</sub> -Partialdruckdifferenz	> 5 bar	TET (ISO)	1120°C/1220°C
$\frac{H_2O}{CO}$ Verhältnis Shift	1,13	Dampfparameter Oxy-II	615°C/250 bar
Dampfparameter MR-II	650°C/280bar	Energiebedarf CO <sub>2</sub> -Reinig.	3 MWel
Energiebedarf CO <sub>2</sub> -Reinig.	3 MWel	Druckverlust CO <sub>2</sub> -Reinig.	5 bar
Druckverlust CO <sub>2</sub> -Reinig.	5 bar	Kondensatordruck	100 mbar
IGCC-BZ			
Einzelumsatz $U_F$	70%	Zellen Durchmesser	20 mm
Betriebstemperatur	900°C	Zellen Länge	2 m
Wechselrichter $\eta$	98%	Dicke Elektrolyt	0,03 mm
Stromdichte	150 $\frac{mA}{cm^2}$	Dicke Kathode	2,5 mm
$\frac{H_2O}{CO}$ Verhältnis SOFC	1,8	Dicke Anode	0,1 mm
Wärmeverlust	2%	Dicke Interkonnektor	0,08 mm

### Emissionen und CO<sub>2</sub>-Spezifikation

Neben dem Rauchgas gilt es bei Kraftwerken mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung auch die CO<sub>2</sub>-Reinheit zu beachten. Während für Rauchgas die entsprechenden Emissionsgrenzwerte für Gasturbinenkraftwerke (13. BImSchV §6) bindend sind, existieren für das Kohlendioxid bislang kaum Regelungen. Eine Orientierung bietet hier das Enhanced Oil Recovery (EOR), wo seit Jahrzehnten, Millionen Tonnen pro Jahr von unreinem CO<sub>2</sub> transportiert und sequestriert werden. Aufgrund der Unsicherheit, wird aber eine hohe Reinheit angenommen, basierend auf Empfehlungen [Dynamis 2007] und praktischer Erfahrungen [IPCC 2005]. Danach ergeben sich CO<sub>2</sub>-Anforderungen gemäß Tabelle 19. Zudem wird das CO<sub>2</sub> mit einem Druck von 110 bar und 25°C an der Systemgrenze übergeben.

### Ökonomische Randbedingungen

Neben der thermodynamischen Optimierung von Kraftwerken ist stets die Wirtschaftlichkeit der angedachten Maßnahmen zu bewerten. Dies ist in der Regel schwierig und mit hohen Unsicherheiten behaftet, da insbesondere Rohstoff- und Anlagenpreise in den ver-

Tabelle 19: Anforderungen an die CO<sub>2</sub>-Reinheit

Spezies	Konzentration	Spezies	Konzentration	Spezies	Konzentration
CO <sub>2</sub>	> 98 Vol.-%	H <sub>2</sub>	< 1 Vol.-%	Schwefel	< 100 ppmv
N <sub>2</sub>	< 1 Vol.-%	O <sub>2</sub>	< 0,1 Vol.-%	CO	< 100 ppmv
Ar	< 1 Vol.-%	H <sub>2</sub> O	< 100 ppmv	NO	< 100 ppmv

gangenen fünf Jahren enorme Preisschwankungen erfahren haben. Die zur Bestimmung notwendigen Annahmen sind in Tabelle 20 zusammengefasst.

Tabelle 20: Ökonomische Randbedingungen für die Wirtschaftlichkeitsanalyse

Parameter	Wert	Parameter	Wert	Parameter	Wert
Eigenkapital	35%	Versicherung	0,25% Investkosten	Kohlepreis	2,5 €/GJ
Eigenkapitalzins	15%	Wartung	1,5% Investkosten	Erdgaspreis	5 €/GJ
Fremdkapitalzins	5%	Betriebsstoffe	0,5% Investkosten	Preisanstieg	2 %/a
Bauzeit	4 a	CO <sub>2</sub> -Preis	25 €/t	Personalsatz	60000 €/a
Nutzungsdauer	25 a	Inbetriebnahme	2018	Personal	120

## 4 IGCC ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung

Wie erwähnt, liegt der Fokus der Arbeit auf IGCC-Kraftwerken mit CO<sub>2</sub>-Abscheidung. Um aber den Einfluss der Abscheidung nach Stand der Technik zu verdeutlichen, wird basierend auf den genannten Randbedingungen ein Vergasungskraftwerk ohne Abtrennung simuliert. Neben der thermodynamischen Bilanzierung soll hier auch, im Rahmen einer ökonomischen Betrachtung, die mögliche zukünftige monetäre Auswirkung der CO<sub>2</sub>-Emissionen aufgezeigt werden.

### 4.1 Konzeptbeschreibung

Die Anlagenkonfiguration des IGCC-Kraftwerkes entspricht im Wesentlichen dem Schema der Abbildung 2. Die nachfolgenden Ausführungen zur modelltechnischen Abbildung der Gaserzeugung und -reinigung beziehen sich ausschließlich auf Aspen Plus. Nur bei der Modellierung des GUD-Teils wurde Epsilon Professional verwendet. Der folgende Abschnitt beschränkt sich zudem auf die Erläuterung der Anlagenstruktur und deren programmtechnischen Umsetzung. Eine Beschreibung der Anlagenkomponenten und -funktionsweise sowie der Modellierungsannahmen finden sich hingegen in Kapitel 2.2 bzw. 3.3.

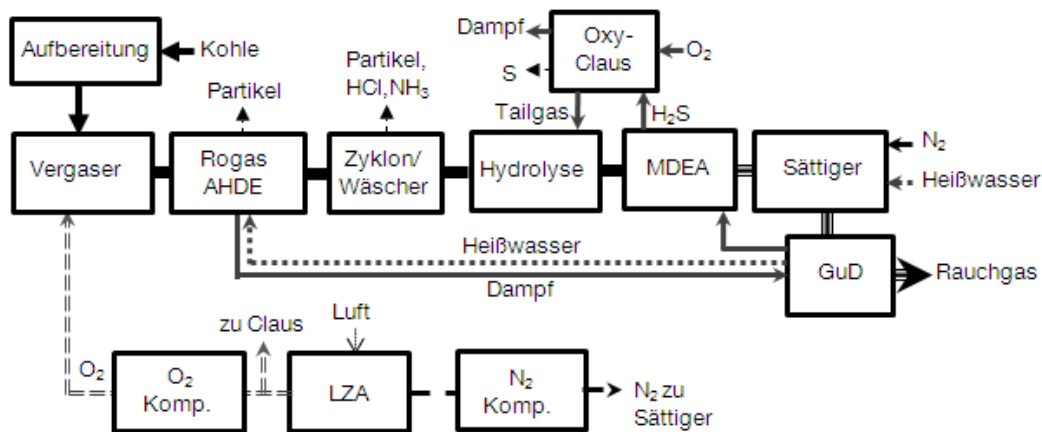


Abbildung 41: Anlagenkonfiguration des IGCC-Konzepts ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung

Die Kohleaufbereitung des Kraftwerkes wird nicht explizit modelliert. Stattdessen wird der erforderliche Energie-, Brennstoff- und Transportgasbedarf über spezifische Kenngrößen, basierend auf Herstellerangaben, berücksichtigt. Die Verdichtung von Prozessgasen wird über mehrstufige Kompressoren mit Zwischenkühlung realisiert. Die Medien werden mit 5 bar Überdruck dem Vergaser zugeführt. Der Kohlestrom wird wie in Kapitel 3.2.1 be-

schrieben zunächst in einem *Yield*-Reaktor<sup>16</sup> gemäß seiner Zusammensetzung (Tabelle 16) in reaktionsfähige Komponenten zerlegt und anschließend in einem *Gibbs*-Reaktor vergast. Die Sauerstoffbereitstellung wird durch eine luftseitig unabhängige kryogene Niederdruckluftzerlegungsanlage realisiert. Der Stickstoff wird dem Brenngasstrom zugemischt. Die Enthalpie des entstehenden Rohgases wird zunächst in einem Rohgaswärmetauscher zur Hochdrucksattdampfgewinnung genutzt. Anschließend erfolgt bei rund 200°C eine Partikelabtrennung (*Split*-Bauteil) und anschließend bei rund 100°C eine Wasserwäsche. Hier werden Feinstaubpartikel und wasserlösliche Komponenten (NH<sub>3</sub>, HCL) abgetrennt. Das gekühlte Rohgas wird nun wieder auf 150°C erwärmt, über eine Hydrolysestufe geleitet und in einer MDEA-Wäsche vom Schwefel befreit. Im Hydrolysereaktor (*RStoic*-Reaktor) wird zunächst COS in H<sub>2</sub>S überführt. Dieses wird anschließend in der Absorberkolonne der Wäsche (*Radfrac*-Kolonne) vom Amin-Waschmittel aufgenommen und in der thermischen Regenerierungsstufe (*Radfrac*-Kolonne) in konzentrierter Form freigesetzt. Das schwefelreiche Gas wird in einem Oxy-Claus Prozess (*RStoic*-Reaktor) in elementarem Schwefel überführt und das entstehende Tailgas rezirkuliert. Das resultierende Brenngas wird mit Stickstoff verdünnt und zusätzlich mit Heißwasser gesättigt (*Radfrac*-Kolonne). Anschließend erfolgt die Vorwärmung auf 320°C durch Heißwasser und die Umsetzung des Brenngases in der Gasturbine. Die Modellierung des GUD-Teils erfolgt in Epsilon Professional unter Verwendung einer generischen Gasturbine sowie der Randbedingungen aus Kapitel 3.3. Der Wärmeinhalt des heißen Turbinenabgases wird in einem 3-Druck-AHDE genutzt. Dabei wird sowohl Heißwasser für den Rohgaswärmetauscher ausgekoppelt, als auch dessen Sattdampf für die Überhitzung eingekoppelt. Die Prozesswasser- und Speisewasseraufbereitung sowie die Rückkühlung über den Nasskühlturm werden nicht detailliert betrachtet, sondern nur als zusätzlicher Energiebedarf berücksichtigt.

## 4.2 Energetische Bilanzierung

Da in den betrachteten IGCC-Konzepten die Gasturbinenleistung auf 340 MWel fixiert werden soll, ergibt sich je nach Wirkungsgrad des Prozesses ein unterschiedlicher thermischer Input. Im Falle des IGCC ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung bedeutet dies einen Rohkohleeinsatz von rund 3100 t/d, was einer thermischen Leistung von 926,1 MWth entspricht. Die Simulation des Konzepts ergab einen Bruttowirkungsgrad von 58,7%. Die in der vorliegenden Arbeit ermittelten Wirkungsgrade beziehen sich dabei jeweils auf den Heizwert der zugeführten Brennstoffe. Entsprechend ergibt sich für das IGCC eine Bruttoleistung von 543,4 MWel. Ein Teil dieser Leistung wird noch zur Deckung des Eigenbedarfs der Anlage benö-

---

<sup>16</sup>Fachausdruck aus der Bauteilbibliothek von Aspen Plus

tigt, womit sich eine Nettoleistung von 463,6 MWel und ein Nettowirkungsgrad von 50,1% ergibt <sup>17</sup>. Letztlich kann also nur die Hälfte der Kohleenergie in Strom gewandelt werden. Verglichen mit anderen Dampfkraftwerken auf Kohlebasis ist der Wirkungsgrad jedoch sehr hoch. So erreichen neueste Steinkohlekraftwerke nur rund 45% und liegen damit 5 %-Punkte unter dem ermittelten Wert. Vergleicht man das IGCC allerdings mit erdgasgefeuerten GUD, so liegt der Wirkungsgrad rund 10 %-Punkte niedriger. Grund dafür ist der mit der Gaserzeugung einhergehende energetische Aufwand. So beträgt der Eigenbedarf des IGCC-Konzepts rund 14,7% der Bruttoleistung. Eine Aufschlüsselung findet sich in Abbildung 42.

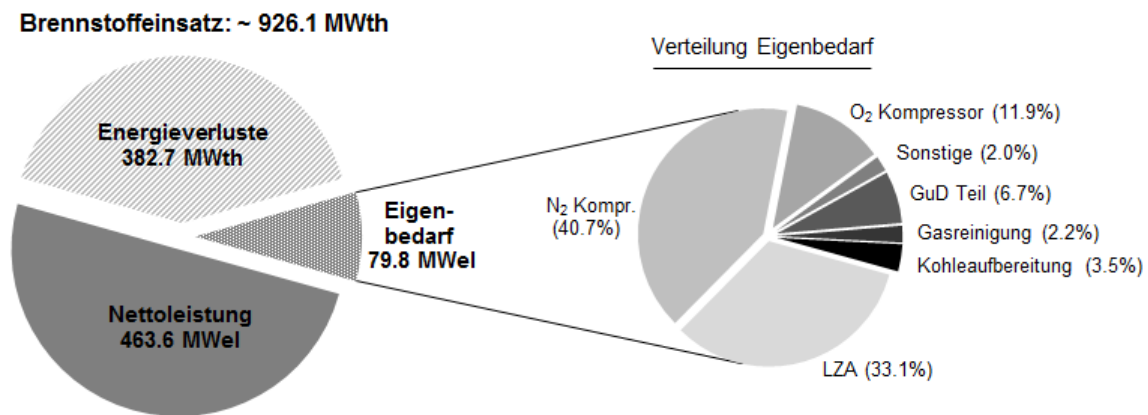


Abbildung 42: Energiebilanz IGCC-Konzept ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung

Die Hauptverbraucher stammen allesamt aus dem Umfeld der kryogenen Luftzerlegungsanlage. Diese allein bedingt etwa ein Drittel des gesamten Eigenbedarfs. Da die entsprechenden Produkte, Sauerstoff und Verdünnungsstickstoff, auch noch bei niedrigen Drücken anfallen, benötigt allein deren Verdichtung mehr als die Hälfte (52,6%) des Kraftwerkseigenbedarfs. Dagegen sind die weiteren Verbraucher von untergeordneter Bedeutung. So ist die Gaskonditionierung aufgrund der reinen Entschwefelung mittels chemischer Wäsche im Hinblick auf den Elektroenergiebedarf kaum relevant. Im Gas- und Dampfturbinenteil wird der Bedarf im Wesentlichen durch die Speisewasserpumpe und den Kühlwasserumlauf des Kondensators verursacht.

Die Zumischung des Verdünnungsstickstoffs bewirkt im Konzept eine Erhöhung des Brenngasmassenstroms um fast 130%. Außerdem führt die Aufsättigung mit Wasserdampf zu einer zusätzlichen Zunahme von 6,7%. In Summe führt dies zu einer Absenkung des

<sup>17</sup>Bezug auf Ho-Basis: 47.96%



spezifischen Heizwertes des Brenngases von 11,85 MJ/kg auf 4,75 MJ/kg und damit um rund 60%. Entsprechend sinkt auch der Anteil der Brenngase ( $H_2 + CO$ ) von 92,5 Mol-% im Rohgas auf 42,9 Mol-% im Brenngas. Aufgrund dieser Verdünnung beträgt der notwendige Luftüberschuss (Verhältnis von Verbrennungs- und Kühlluft zur stöchiometrisch notwendigen Menge) der Gasturbine zur Einhaltung der geforderten Turbineneintrittstemperatur nur rund 2,9. Zugleich wird durch den erhöhten Massenstrom mehr Leistung in der Expansionsmaschine abgegeben. Diese liefert 340,44 MW und erzeugt damit 62,7% der Kraftwerksleistung. Der Dampfkreislauf trägt demnach, trotz Einkopplung des Dampfes aus dem Rohgaswärmetauscher, nur 37,3% zur Kraftwerksleistung bei.

### 4.3 Ökologisch - Ökonomische Analyse

Wie beschrieben, weist das IGCC-Konzept ohne  $CO_2$ -Abtrennung einen vergleichsweise hohen Nettowirkungsgrad von 50% auf. Im Zuge der klimapolitischen Entwicklungen ist für fossile Kraftwerke neben Effizienz und Einhaltung der Emissionsgrenzwerte auch deren  $CO_2$ -Emission von großer Bedeutung. Im IGCC-Konzept werden bei einem Kohleeinsatz von rund 3100 Tonnen pro Tag, rund 7500 Tonnen  $CO_2$  täglich emittiert. Dabei beträgt die Emissionsrate 99%. Es verbleibt also nur wenig Kohlenstoff in der Asche oder in gelöster Form im Prozesswasser. Bei einer Anlagenauslastung von 88%, entspricht das rund 2,4 Mio. Tonnen  $CO_2$  pro Jahr. Zur Berücksichtigung der Kraftwerkseffizienz wird typischerweise die emittierte  $CO_2$ -Menge auf die produzierte Strommenge bezogen. Damit ergeben sich für das simulierte IGCC-Konzept spezifische  $CO_2$ -Emissionen von 672 Gramm pro erzeugte Kilowattstunde. Eine Einordnung dieses Wertes im Vergleich zu alternativen Kraftwerken ist in Abbildung 43 dargestellt. Dabei wird deutlich, dass sich durch die Substitution älterer Dampfkraftwerke durch moderne Vergasungskraftwerke bereits eine deutliche Senkung der  $CO_2$ -Emissionen um 25 bis 35% erreichen lässt.

Die vollständige Umstellung des Kraftwerksparks auf Erdgas, zur Reduzierung der  $CO_2$ -Emissionen, wäre hingegen aus Gründen der Versorgungssicherheit und Preisstabilität nicht zielführend. Zudem muss bei der Bilanzierung der gesamte Lebenszyklus betrachtet werden und nicht nur der finale Schritt der Stromerzeugung. So ist die Förderung des Erdgases, insbesondere aus alternativen Quellen (Shalegas), bisweilen mit signifikanten  $CO_2$  und Methan Emissionen verbunden [Howarth et al. 2011]. Vergasungskraftwerke bieten hingegen eine effiziente Alternative zur Nutzung günstiger, sicher verfügbarer und auch minderwertiger Brennstoffe. Jedoch sind die Anlagenkosten bei Vergasungskraftwerken deutlich höher als bei konventionellen Kraftwerken. Es stellt sich daher zwangsläufig die Frage nach der Wirtschaftlichkeit dieser Kraftwerke im Vergleich zu alternativen Kraft-

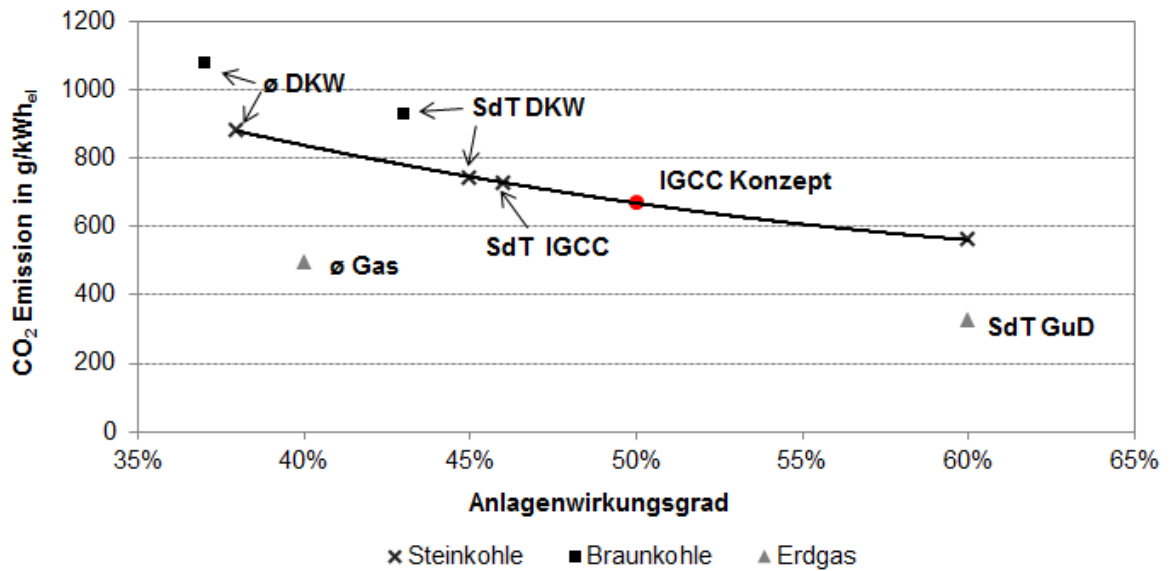


Abbildung 43: Einordnung der spezifischen CO<sub>2</sub>-Emissionen des IGCC-Konzepts

werken sowie im Hinblick auf die CO<sub>2</sub>-Abtrennung. Denn bei steigendem Zertifikatspreis werden auch die Stromgestehungskosten des IGCC-Kraftwerks ansteigen und damit die Abtrennung des CO<sub>2</sub> zunehmend attraktiv machen. Die Emissionskosten sind demnach ein Maß für die akzeptablen, abtrennungsbedingten Wirkungsgradverluste. Je nach eingesetzter Technologie ergeben sich damit unterschiedliche Break-even Zertifikatspreise, bei denen gerade die Stromgestehungskosten des IGCC mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung günstiger werden.

Basis für die Bestimmung dieses Preises ist die in Kapitel 3 beschriebene Methodik und die dort zusammengefassten Randbedingungen. Als Input dienen die im Rahmen der energetischen Bilanzierung ermittelten thermodynamischen Größen: thermischer Input, elektrischer Nettooutput, die Menge an emittierten CO<sub>2</sub> und der Nebenprodukte. Zusätzlich wird eine Auslastung von 88% angenommen. Die Ermittlung der Investitionskosten stellt bei derartigen Analysen ein besonderes Problem dar. Zunächst gibt es bislang nur Demonstrationsanlagen, welche kaum als Orientierung dienen können. Außerdem sind Details zu den Investitionskosten einzelner Anlagenteile oft nicht öffentlich. Weiterhin ist die Verwendung älterer Publikationen als Datengrundlage aufgrund der volatilen Rohstoffpreise und limitierten Engineering-Kapazitäten mit großer Unsicherheit behaftet. Bei ausländischen Daten führt zudem das schwankende Wechselkursverhältnis zu teilweise beträchtlichen Verzerrungen. Dennoch wird an dieser Stelle, basierend auf bestehenden Studien sowie Herstellerangaben, eine Abschätzung der Investitionskosten für das simu-

lierte IGCC-Kraftwerk vollzogen. Daher werden im Anschluss die getroffenen Annahmen im Rahmen einer Sensitivitätsanalyse variiert und deren Auswirkungen auf die Stromgestehungskosten herausgestellt.

Tabelle 21: Investitionskostenermittlung und -verteilung IGCC ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung [Ogriseck 2006, Lösche 2009, COORIVA 2009]

Komponente	Abschätzung	Kosten [Mill. €]	Verteilung	spez. Kosten [€/KWel]
LZA inkl. Verdichtg	90 € * Vergaserleistung	83,34	8,2 %	180
Kohleaufbereitung	240 € pro kg Kohle	31,10	3,1 %	67
Vergasungsinsel	350 € * Vergaserleistung	324,1	32,0 %	699
Gasaufbereitung	60 € * Vergaserleistung	55,56	5,5 %	120
GUD	700 € * Bruttoleistung	380,38	37,5 %	820
Nebenanlagen	130 € * Vergaserleistung	120,38	11,9 %	260
Sonstiges	20 € * Vergaserleistung	18,52	1,8 %	40
<b>Gesamtanlage</b>		<b>1013,38</b>	<b>100 %</b>	<b>2186</b>

Vergaserleistung in KW

Wie in Tabelle 21 ersichtlich, betragen die Gesamtinvestitionskosten rund 1 Mrd. Euro, was bei der ermittelten Nettoleistung zu spezifischen Investitionskosten im Bereich von 2186 € pro KWel führt. Vergleicht man die spezifischen Investitionskosten mit Werten gegenwärtig geplanter Steinkohlekraftwerke (Tabelle 22), so liegen diese für IGCC-Kraftwerke rund 30% bis 40% höher. Allerdings muss in diesem Zusammenhang auch der deutlich höhere Wirkungsgrad von 50% gegenüber den 45% bei entsprechenden Dampfkraftwerken berücksichtigt werden. Die Kosten für ein ähnlich effizientes 700°C-Dampfkraftwerk sollten durch Einsatz höherwertiger Materialien letztlich auch deutlich ansteigen.

Tabelle 22: Abschätzung aktueller Investitionskosten für Steinkohlekraftwerke

Projekt	Betreiber	Leistung [MW]	Invest-Kosten [Mill. €]	spez. Kosten [€/KWel]
Lünen	Trianel	750	1400	1870
Uentrop	RWE	1600	2200	1380
Emshaven	RWE	1600	2900	1810
Lubmin	Dong Energy	1600	2300	1440
Ingelheimer Aue	KMW	820	1300	1590
<b>Durchschnitt (gerundet)</b>		<b>1250</b>	<b>2000</b>	<b>1600</b>

Angaben basierend auf Medienberichten, Werte gerundet, Planung oder Inbetriebnahme 2010 bis 2015

Der Kostenstruktur lässt sich entnehmen, dass die GUD Anlage und die Vergasungsinsel mit Abstand die größten Kostenpositionen darstellen. Da im IGCC-Kraftwerk ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung nur Spurenstoffe aus dem Rohgas entfernt werden, sind die Investitionskosten der Gasreinigung vergleichsweise gering. Verteilt man die Nebenkosten entsprechend, entfallen grob 60% der Gesamtkosten auf den Vergasungsteil und etwa 40% auf den konventionellen Kraftwerksteil (GUD).

Die ermittelten Investitionskosten werden gemäß dem gewählten Schlüssel (10%/ 30%/ 40%/ 20%) auf die vierjährige Bauzeit verteilt. Da der Kapitaleinsatz mit Opportunitätskosten verbunden ist, müssen die Zahlungen zum Betrachtungszeitpunkt aufgezinst werden, in diesem Fall das Inbetriebnahmehjahr. Als Zinssatz muss hier der gewichtete Kapitalzins genutzt werden, welcher nach Gleichung 23 und der gewählten Finanzierung 8,5% beträgt. Damit ergeben sich Gesamtkapitalkosten in Höhe von 1,226 Mrd. Euro. Im Anschluss werden für jedes einzelne Nutzungsjahr die O&M sowie Brennstoff- und Emissionskosten ermittelt. Da sich diese aufgrund der Steigerungsraten jährlich ändern und außerdem der unterschiedliche Zeitpunkt der Kosten berücksichtigt werden muss, werden diese ebenfalls mit dem Kapitalzins auf das Inbetriebnahmehjahr diskontiert und aufsummiert. Für die Berechnung der durchschnittlichen Stromgestehungskosten muss der ermittelte Barwert der Gesamtkosten wieder als äquivalente, konstante, jährliche Zahlung (Annuität) ausgedrückt werden. Dazu wird der Betrag mit dem Annuitätenfaktor multipliziert, welcher nach Gleichung 24 9,77% beträgt. Mit den so ermittelten jährlichen Kosten und der jährlichen, produzierten Strommenge, ergeben sich Stromgestehungskosten in Höhe von circa 81 €/MWh. Dabei verteilen sich die einzelnen Kostenpositionen wie in Abbildung 44 verdeutlicht.

Es entfallen über 40% der Gesamtkosten auf die Kapitalkosten, welche letztlich die periodisierten Investitionskosten des Kraftwerks darstellen. Die Brennstoffkosten sind aufgrund des hohen Wirkungsgrades moderat. Allerdings führen die hohen Investitionskosten dennoch zu vergleichsweise hohen Stromgestehungskosten im Bereich von 60 € je MWh. Im Falle der emissionsrechtlichen Erfassung des emittierten CO<sub>2</sub> kommt zudem eine weitere Komponente hinzu, welche unter den getroffenen Annahmen immerhin rund ein Viertel der Stromgestehungskosten ausmacht. Damit steigen diese in den Bereich von 80 € je MWh, was rund 25% über den aktuellen Börsenpreisen liegt. Da in der vorliegenden Betrachtung zahlreiche unsichere Annahmen und Entwicklungstendenzen unterstellt wurden, sollen im folgenden Abschnitt die wesentlichen Parameter variiert werden. Die Verläufe der sich jeweils ergebenden Stromgestehungskosten sind in Abbildung 45 zusammengefasst.

Wie anhand der Strompreiszusammensetzung zu erwarten, haben die Kapitalkosten,

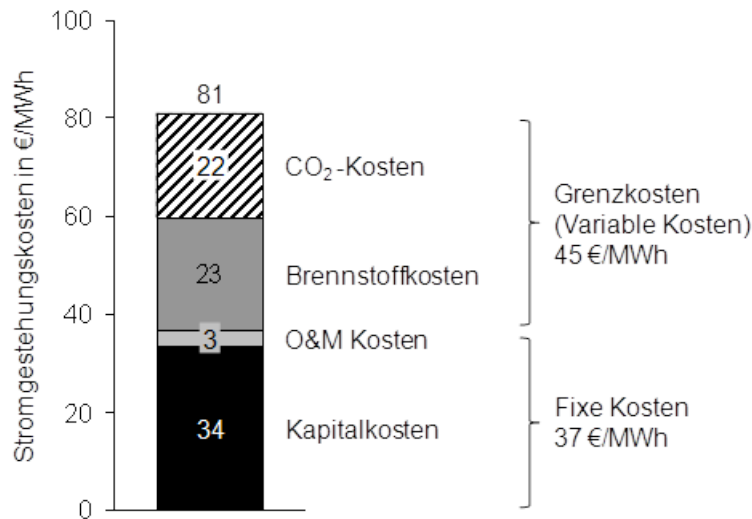


Abbildung 44: Zusammensetzung der ermittelten Stromgestehungskosten beim IGCC ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung

ausgedrückt durch die reinen **Investkosten (a)** und den **Zinssatz (b)**, einen großen Einfluss auf die Stromgestehungskosten der IGCC Anlage. Beide Faktoren sind hier einzeln variiert, würden sich demnach bei gleicher Tendenz noch überlagern. Weiterhin wurden die anlagenspezifischen Größen **Auslastung (c)** und **Wirkungsgrad (d)** variiert. Da bei höherer Auslastung auch die CO<sub>2</sub>-Emissionen ansteigen, ist dieser Parameter von geringerer Bedeutung, was den Einsatz als Mittellastkraftwerk begünstigen sollte. Der Wirkungsgrad hingegen hat nicht nur den direkten Einfluss auf die erzeugte Strommenge, sondern über die Brennstoffmenge auch auf die Brennstoff- und Emissionskosten. Damit ist der Anlagenwirkungsgrad im konventionellen IGCC ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung der wesentliche Parameter für den wirtschaftlichen Kraftwerksbetrieb. Die alleinige Variation der **Brennstoffkosten (e)** hat hingegen nur eine geringere Auswirkung auf die Stromgestehungskosten. Anders die bzw. **CO<sub>2</sub>-Kosten (f)**, welche sehr volatil sind und damit starken Einfluss auf die Stromgestehungskosten haben können.

Betrachtet man abschließend noch die Parameter bei einer relativen Änderung von +/- 5%, können deren Einflüsse direkt verglichen werden. Wie in Abbildung 46 ersichtlich, ist der Wirkungsgrad mit Abstand der wesentlichste Parameter zur Beeinflussung der Stromgestehungskosten. Aber auch die Auslastung des Kraftwerks und der CO<sub>2</sub>-Preis spielen aufgrund der hohen Volatilität dieser Parameter eine entscheidende Rolle für die Wirtschaftlichkeit. Addiert man zudem alle positiv bzw. negativ wirkende Faktoren, dann ergibt sich eine Schwankungsbreite von +13,2% bzw. -12,3% und damit ein Bereich für die

voraussichtlichen Stromgestehungskosten eines solchen IGCC-Kraftwerks von 71 €/MWh bis 92 €/MWh.

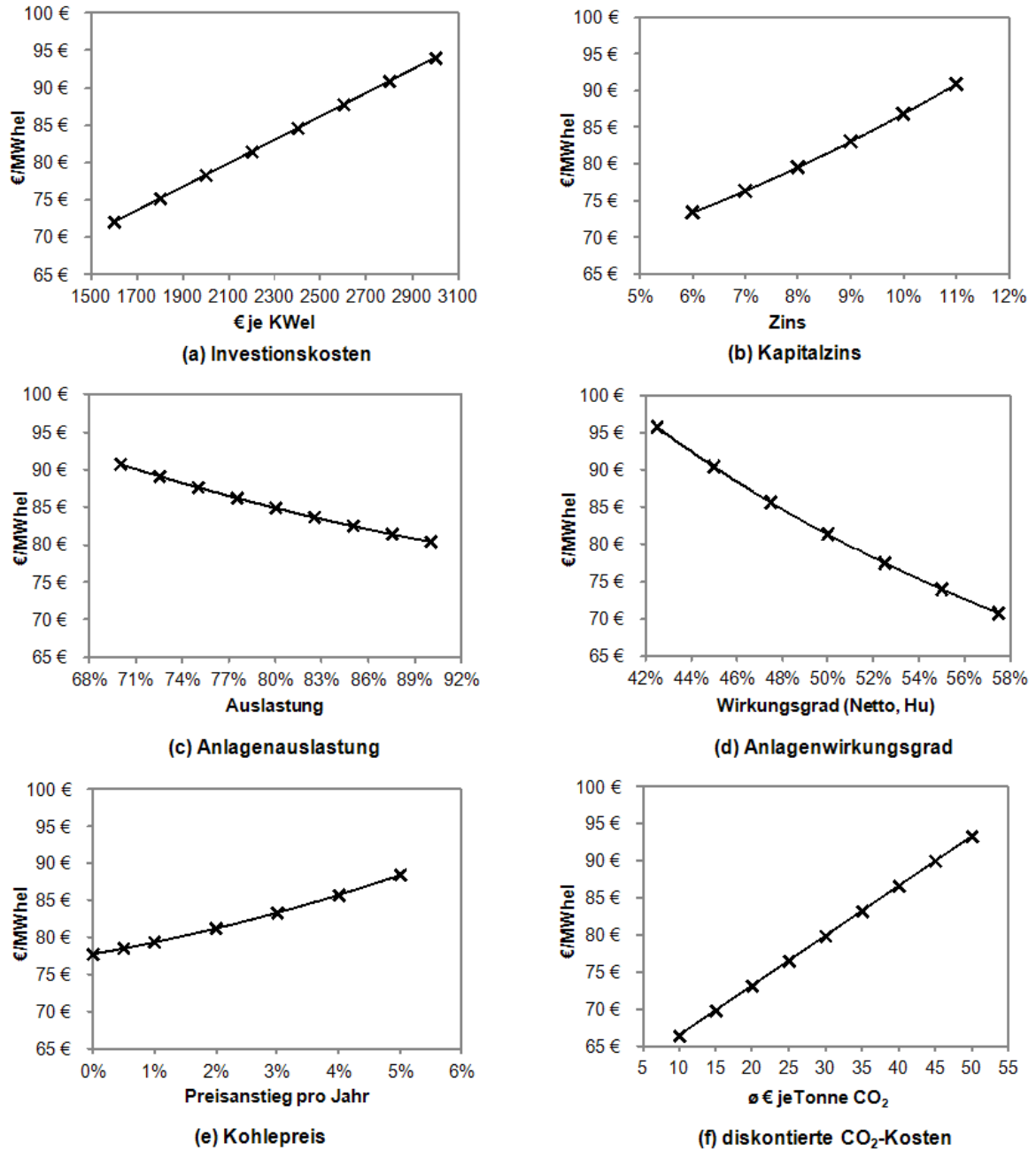


Abbildung 45: Einfluss ausgewählter Parameter auf die Stromgestehungskosten des IGCC ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung

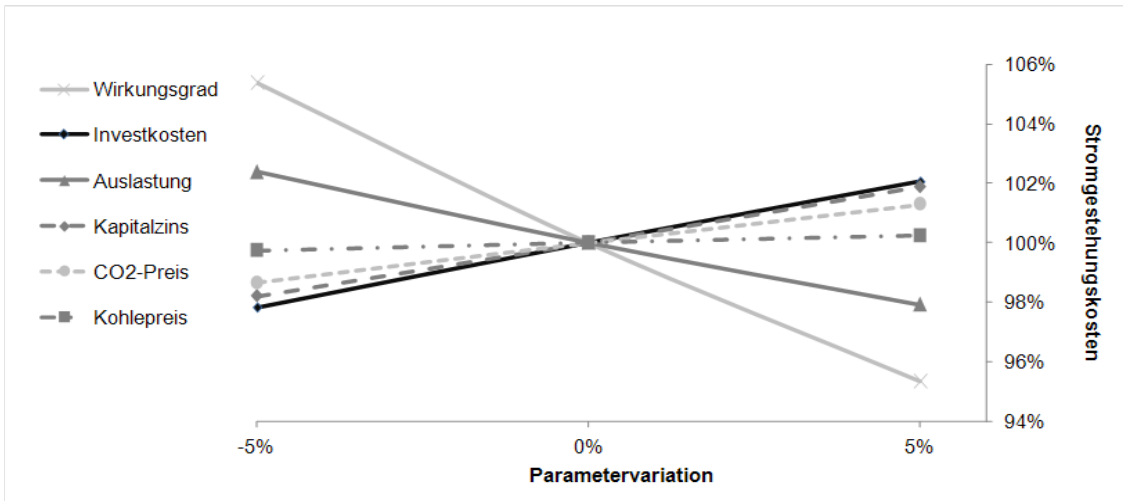


Abbildung 46: Sensitivitätsanalyse ausgewählter Parameter auf Stromgestehungskosten des IGCC ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung

## 5 IGCC mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung

Wie in Kapitel 4 verdeutlicht, erreichen IGCC-Kraftwerke kurz- wie mittelfristig tendenziell höhere Wirkungsgrade als konventionelle Dampfkraftwerke. Trotz der hohen Effizienz steigen die Stromgestehungskosten durch die Belastungen aus dem CO<sub>2</sub>-Handel. Da die Entwicklung dieses Faktors mit hoher Unsicherheit behaftet und das wesentliche Ziel der zukünftigen Energieversorgung die Reduktion der CO<sub>2</sub>-Emissionen ist, liegt der Fokus der Arbeit auf IGCC-Konzepten mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung. Daher wird im folgenden Kapitel ein IGCC mit konventioneller CO<sub>2</sub>-Abtrennung betrachtet und der damit einhergehende Einfluss auf das Kraftwerk untersucht.

### 5.1 Konzeptbeschreibung

Die Ausführungen zur Modellierung des IGCC-Kraftwerks mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung beschränken sich an dieser Stelle nur auf die Anlagenteile, welche nicht schon im vorangegangenen Kapitel beschrieben worden sind. Die wesentlichen Komponenten sind dabei der Wasserquench, die CO-Konvertierung sowie die physikalische Wäsche zur selektiven Abtrennung von Schwefelverbindungen und Kohlendioxid. Da die Modellierung der Shift und der Wäsche bereits im Rahmen der Verifizierung (Kapitel 3.2) erläutert wurden, wird an dieser Stelle nur das Gesamtkonzept gemäß Abbildung 47 beschrieben.

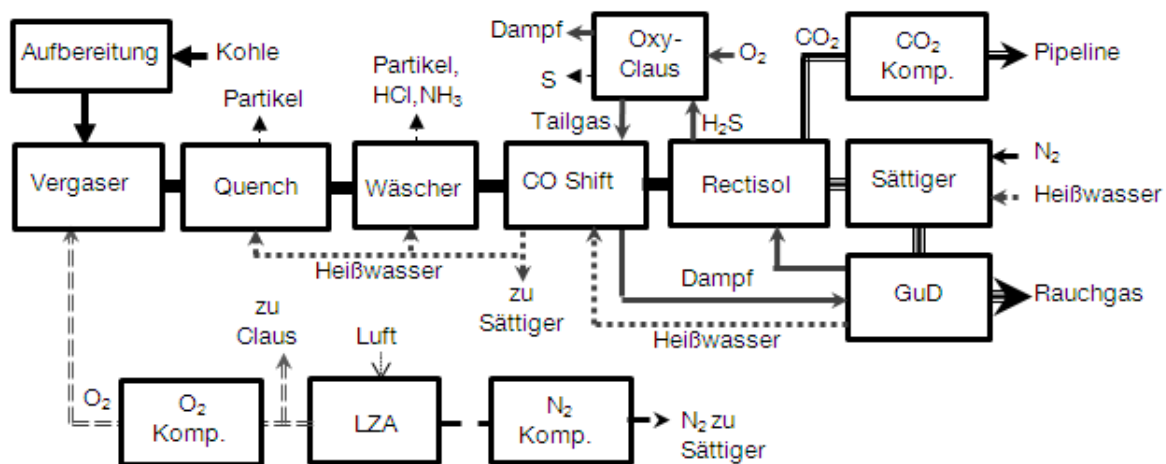


Abbildung 47: Konfiguration des IGCC mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung (Basisfall)

Die Kohleaufbereitung erfolgt analog dem IGCC-Konzept ohne Abtrennung über spezifische Kennzahlen. Auch die Bereitstellung von Sauerstoff und Verdünnungstickstoff



erfolgt, wie bisher, durch eine luftseitig unabhängige Niederdruckluftzerlegung. Anstelle zur Dampfproduktion wird nun aber der Wärmeinhalt des Rohgases genutzt, um dieses mit Wasserdampf zu sättigen. Dies ist notwendig, da im weiteren Verlauf der Gasreinigung das Kohlenmonoxid im Rohgas über die Wassergasshift-Reaktion in Kohlendioxid und Wasserstoff umgewandelt werden muss. Um Nebenreaktionen zu vermeiden (Kohlenstoffablagerungen) und einen hohem Umsatz sicherzustellen, muss ausreichend Wasser im Rohgas zur Verfügung stehen. Dazu wird das Rohgas beim Verlassen des Vergasers mittels Heißwasser auf rund 200°C gequenchet. Das Quenchwasser wird teilweise rezirkuliert, wobei Partikel und wasserlösliche Verbindungen abgetrennt werden, um deren Aufkonzentration im Wasser zu vermeiden. Durch den direkten Kontakt der heißen Schlacke mit dem Quenchwasser, kann zudem deren Wärmeinhalt und Schmelzenthalpie teilweise zurückgewonnen werden. Anschließend wird das Rohgas weiter in einer Wasserwäsche gereinigt, bevor es in der CO-Shift Anlage konvertiert wird.

Da durch die Verwendung von Heißwasser im Quench bereits ausreichend Wasser im Rohgas vorhanden ist, wird hier kein zusätzlicher Dampf benötigt. Die Reaktionswärme der exothermen Reaktion wird ihrerseits zur Dampfgewinnung verwendet. Da die nachfolgende physikalische Wäsche bei niedrigsten Temperaturen arbeitet, sollte der gesamte Wärmeinhalt des konvertierten Gases genutzt werden. Im vorliegenden Konzept wird daher zunächst Heißwasser für die Brenngassättigung erzeugt. Zudem kann das anfallende Kondensat des Gasstroms, mit zusätzlichem Heißwasser vermischt, im Quench eingesetzt werden.

Nach der Wärmerückgewinnung werden in der Methanol-Wäsche Kohlendioxid und Schwefelverbindungen selektiv aus dem Gasstrom entfernt. Der Schwefel wird wie gehabt mittels einer Oxy-Claus Anlage zurückgewonnen und das Tailgas in die Konvertierungsstufe rezirkuliert. Das abgetrennte CO<sub>2</sub> ist von hoher Reinheit und kann ohne weitere Aufbereitung in einem mehrstufigen Verdichter mit Zwischenkühlung verflüssigt werden. Das verbleibende kalte Reingas besteht nun zu über 93 Vol.-% aus Wasserstoff und muss für die Verbrennung in der Gasturbine noch aufgewärmt und verdünnt werden. Dazu wird ein Heißwasser-Sättiger genutzt sowie der Stickstoff aus der Luftzerlegungsanlage. In der vorliegenden Arbeit wird auf diese Weise der Wasserstoffanteil im Brenngas auf 50 Vol.-% reduziert. Anschließend erfolgt eine weitere Vorwärmung durch Kesselspeisewasser auf 320°C und die Verbrennung in der Gasturbine. Der Wärmeinhalt des rund 600°C heißen Abgases wird nun wie gehabt in einem 3-Druck Abhitzedampferzeuger genutzt.

## 5.2 Auswirkung der CO<sub>2</sub>-Abtrennung

### 5.2.1 Energetische Auswirkung

Da auch im IGCC-Konzept mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung die Gasturbinenleistung auf 340 MWel fixiert werden soll, ergibt sich aufgrund der höheren Verluste im Prozess eine signifikant höhere thermische Leistung von 1068,9 MWth. Das bedeutet einen um 15,8% höheren Rohkohleeinsatz von rund 3590 Tonnen pro Tag. Da aber die Nettoleistung des Konzepts geringer ist, steigt der Kohleeinsatz auf Basis gleichen Outputs sogar um gut 30%.

Die Simulation des IGCC-Konzepts im Rahmen der genannten Randbedingungen ergab einen deutlich niedrigeren Bruttowirkungsgrad von 49,4%. Mit der bereits niedrigeren Bruttogleistung (528 MWel) muss zudem noch der erhöhte Eigenbedarf gedeckt werden. Dessen Anteil steigt im Abtrennungsfall auf 21,8% der Bruttogleistung. Am Ende ergibt sich für das IGCC mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung eine Nettogleistung von 412,9 MWel und somit ein Nettowirkungsgrad auf Basis des Heizwertes von 38,6%. Bezieht man den Nettowirkungsgrad auf den Brennwert der zugeführten Kohle, ergibt sich ein Wert vom 37%. Auch hier relativiert ein Vergleich mit CO<sub>2</sub>-armen Dampfkraftwerken den Wirkungsgradverlust. So werden bei Einsatz konventioneller Wäschen zur nachträglichen Abscheidung von Kohlendioxid aus dem Kraftwerksabgas Einbußen von 10% bis 14%-Punkte angegeben [Göttlicher 1999]. Die energetische Bilanz und Eigenbedarfsverteilung des Kraftwerks ist in Abbildung 48 dargestellt.

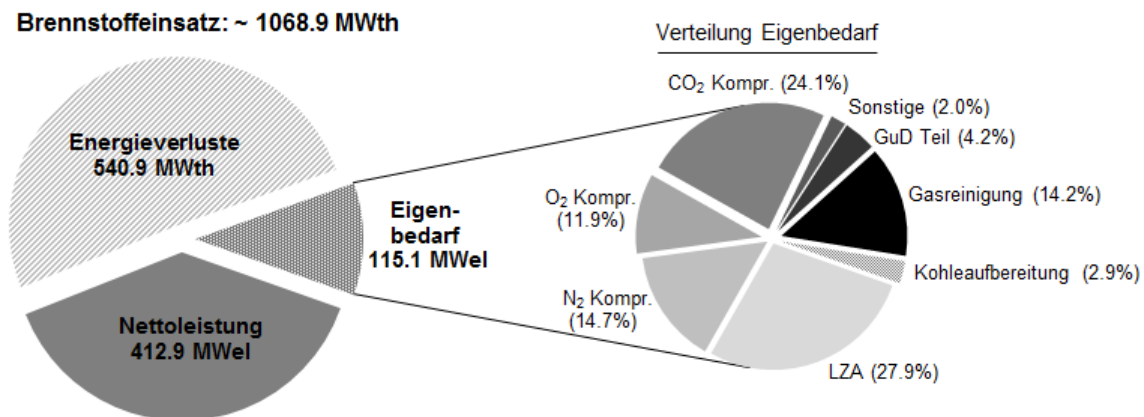


Abbildung 48: Energiebilanz IGCC-Konzept mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung

Betrachtet man die Eigenbedarfsverteilung im Abtrennungsfall, so fällt auf, dass die Gewichtung der kryogenen Luftzerlegungsanlage (27,9%) sowie die Verdichtung der Produkte (24,9%) gemessen am Gesamteigenbedarf abnimmt. Hingegen steigt die Bedeutung

der Gaskonditionierung (14,2%), aufgrund des Einsatzes einer physikalischen Wäsche mit entsprechendem Kühlbedarf und hoher Abtrennungsleistung. Da die beträchtliche Menge an abgetrenntem Kohlendioxid zudem bei geringem Druck frei wird, muss es für den Transport verdichtet werden. Entsprechend ist der CO<sub>2</sub>-Verdichter mit 24,1% der zweitgrößte Verbraucher im Kraftwerkskonzept. Somit verursacht allein die CO<sub>2</sub>-Abtrennung und Verdichtung jeweils einen spezifischen Energieaufwand von 0,046 kWh bzw. 0,085 kWh pro Kilogramm CO<sub>2</sub>.

Vergleicht man die betrachteten Konzepte mit und ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung wird deutlich, dass die zur Abtrennung notwendigen Teilsysteme zu vermehrten Energieverlusten im Kraftwerk und einer Reduzierung des Bruttowirkungsgrades um 9,3 %-Punkte führen. Bedingt durch den zusätzlich erhöhten Eigenbedarf für CO<sub>2</sub>-Abtrennung und Verdichtung, verringert sich der Nettowirkungsgrad sogar um 11,4 %-Punkte. Das ist deutlich mehr als in früheren Studien [Pruschek et al. 1998b, Göttlicher 1999] prognostiziert, deckt sich aber wiederum mit neueren Studien [COORIVA 2009, Gräbner 2010, Buschsieweke 2009, Sanz et al. 2010] und konkreten Demoanlagen. Die Unterschiede erklären sich vor allem durch unterschiedliche Teilsysteme und Anlagenstruktur sowie deutlich optimistischere Simulationsannahmen. So werden sehr niedrige Umgebungsbedingungen zu Grunde gelegt sowie Meerwasserkühlung, welche geringste Kondensatordrücke ermöglicht. Außerdem unterscheidet sich die CO<sub>2</sub>-Abtrennungsrate und Reinheit. Aufgrund der Vielzahl von verschiedenen Parametern wird in Kapitel 5.3 eine Sensitivitätsanalyse durchgeführt, um den Einfluss der wichtigsten Parameter auf den Anlagenwirkungsgrad zu quantifizieren.

### 5.2.2 Ökologische und Ökonomische Auswirkung

Im Gegensatz zum zuvor beschriebenen IGCC-Konzept ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung, wird im nun behandelten Kraftwerk 90% des durch die Kohle theoretisch freigesetzten CO<sub>2</sub> abgetrennt. Da aber der Anlagenwirkungsgrad signifikant sinkt und zugleich der Kohleinsatz steigt, betragen die spezifischen CO<sub>2</sub>-Emissionen nicht ein zehntel des zuvor beschriebenen Konzepts sondern rund 87,7 Gramm pro Kilowattstunde. Damit beträgt die Emissionsreduzierung im Vergleich zu einem IGCC ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung nur 87%. Berücksichtigt man durch den komplexeren Prozess eine leicht reduzierte Anlagenauslastung von 86%, verringern sich die CO<sub>2</sub>-Emissionen des Konzepts auf rund 0,27 Mio. Tonnen pro Jahr. Das ist eine signifikante Senkung insbesondere im Vergleich zu konventionellen Kohlekraftwerken (Abbildung 49).

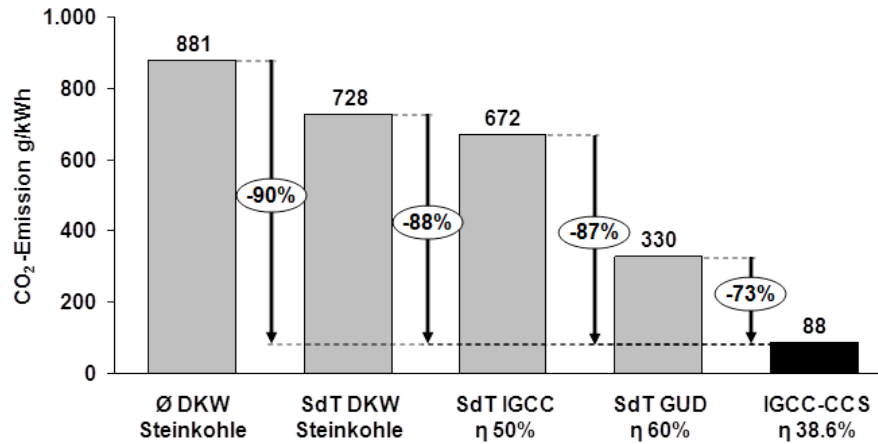


Abbildung 49: Einordnung der spezifischen CO<sub>2</sub>-Emissionen des IGCC-Konzepts mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung

Durch die gesunkenen CO<sub>2</sub>-Emissionen werden auch die damit verbundenen Emissionskosten des Kraftwerks gesenkt. Demgegenüber stehen allerdings erhöhte Brennstoff- und Investitionskosten durch zusätzliche Anlagenkomponenten. Analog Kapitel 4 sollen daher die Stromgestehungskosten für das IGCC mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung bestimmt werden. Als Basis für die Berechnung dienen die ermittelte Brennstoffleistung, die elektrische Nettoleistung sowie die CO<sub>2</sub>-Emission. Aufgrund der erhöhten Anlagenkomplexität wird von einer Anlagenauslastung von 86% ausgegangen. Zunächst werden wie gehabt die Investitionskosten basierend auf bestehenden Studien- sowie Herstellerangaben abgeschätzt.

Tabelle 23: Investitionskostenermittlung und -verteilung [Ogriseck 2006, Lösche 2009, COORIVA 2009]

Komponente	Abschätzung	Kosten [Mill. €]	Verteilung	spez. Kosten [€/KWe]
LZA inkl. Verdichtg	90 € * Vergaserleistung	96,20	8,2 %	208
Kohleaufbereitung	240 € pro kg Kohle	35,89	3,0 %	77
Vergasungsinsel	270 € * Vergaserleistung	288,61	24,5 %	623
Gasaufbereitung	170 € * Vergaserleistung	181,71	15,4 %	392
GUD	740 € * Bruttoleistung	390,69	33,1 %	843
Nebenanlagen	150 € * Vergaserleistung	160,34	13,6 %	346
Sonstiges	25 € * Vergaserleistung	26,72	2,3 %	58
<b>Gesamtanlage</b>		<b>1180,16</b>	<b>100 %</b>	<b>2858</b>

Vergaserleistung in KW

Wie in Tabelle 23 ersichtlich, werden die Gesamtinvestitionskosten des IGCC mit CCS

auf rund 1,18 Mrd. Euro bzw. 2858€ pro KWel geschätzt. Damit liegen die spezifischen Investitionskosten um 30% höher als im IGCC ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung und fast 80% über dem gegenwärtigen Niveau von Dampfkraftwerken. Verglichen mit den beiden anderen CCS-Optionen sind die Mehrkosten vergleichsweise hoch. So werden für Dampfkraftwerke mit konventioneller post-combustion Abtrennung 30 bis 50% höhere Investitionskosten angegeben [Görner 2009] bzw. 2100 bis 2400 €/KWel. Für Oxy-fuel liegen optimistische Abschätzungen bei 20 bis 30% [Altman et al. 2005], also rund 1900 bis 2100 €/KWel. Allerdings schwanken die publizierten Angaben für alle drei Optionen sehr stark, weshalb auch die eigene Abschätzung nur als grober Anhaltewert interpretiert werden darf.

Von der aufgezeigten Kostensteigerung im IGCC mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung sind letztlich nur rund 7,2% auf tatsächlich höhere Investitionskosten zurückzuführen. So wird zwar die Gasaufbereitung deutlich teurer, der Einsatz eines Quenchvergaser führt aber wiederum zu signifikanten Kosteneinsparungen. Besonders der Wegfall des Rohgaswärmeübertragers und der Einsatz eines Kühlschirms, anstatt der kostenintensiven Membranwände, führen hier zu Einsparungen. Der überwiegende Teil des Anstiegs (23,5%) ist demnach auf die signifikante Reduzierung der Nettoleistung zurückzuführen, verursacht durch die abtrennungsbedingten Wandlungsverluste und Energieaufwand.

Der Kostenstruktur lässt sich entnehmen, dass bedingt durch die aufwändigere Gasreinigung, rund zwei Drittel der Investkosten auf die Gasinsel und entsprechend nur noch ein Drittel auf das GUD entfallen. Dabei spielt die Gasaufbereitung nun mit 15,4% der Gesamtinvestitionssumme nicht nur energetisch sondern auch monetär eine deutlich wichtigere Rolle als im IGCC ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung (5,5%). So erhöhen sich im konkreten Fall die spezifischen Kosten der Gasreinigung um 226% auf 392 €/KWel, was leistungsbereinigt einer Mehrinvestition von 117,48 Mio.€ entspricht.

Für die Berechnung der Stromgestehungskosten ergeben sich unter Berücksichtigung der Kapitalzinsen (8,5%) die Gesamtkapitalkosten in Höhe von 1,428 Mrd. Euro. Analog Kapitel 4 lassen sich Stromgestehungskosten im Abtrennungsfall von rund 81 €/MWh berechnen. Dieser Bereich wird auch von anderer Seite als prognostizierter Wert für ein mittelfristiges kommerzielles IGCC angegeben [Renzenbrink et al. 2009]. Damit liegen die Stromgestehungskosten genau auf dem Niveau des IGCC ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung. Die gewählten Annahmen stellen somit gerade den Break-even für die Abtrennungsvariante dar, bei dem also die CO<sub>2</sub>-Abtrennung anfängt sich zu rentieren. Die CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten liegen mit 32 €/t daher auf dem Niveau des Barwertes der Zertifikatskosten über die Nutzungsdauer<sup>18</sup>. Wenngleich der absolute Wert der Gestehungskosten identisch ist, so unterscheidet sich die Zusammensetzung doch deutlich voneinander, wie in Abbildung 50

---

<sup>18</sup>Annahme: Kosten von 25 €/t im Inbetriebnahmejahr und 2 %/a Kostensteigerung

aufgezeigt wird.

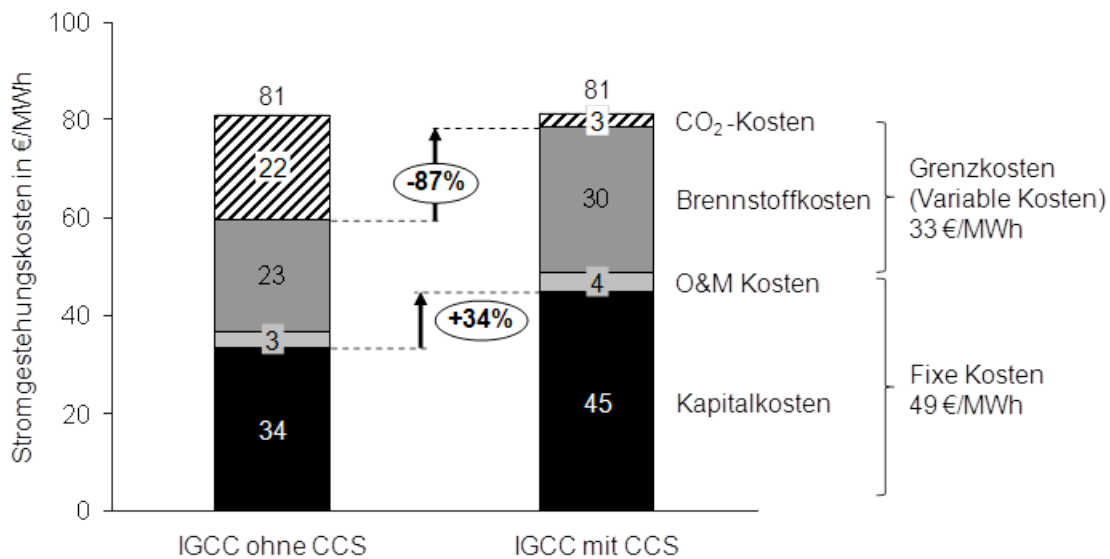


Abbildung 50: Zusammensetzung der ermittelten Stromgestehungskosten beim IGCC mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung

Durch die zusätzlichen Anlagenteile entfallen nunmehr 55,2% der Stromgestehungskosten auf die Kapitalkosten und damit letztlich auf die Investitionskosten des Kraftwerks. Der Anteil der Brennstoffkosten ist aufgrund des verminderten Wirkungsgrades ebenfalls deutlich höher und beträgt nun 36,3%. Da die O&M-Kosten anteilig vom Investitionsvolumen berechnet werden, steigen diese ebenfalls um fast ein fünftel, wenngleich der absolute Beitrag gering bleibt. Allein die Emissionskosten verringern sich drastisch und machen nunmehr lediglich 3,5% der Stromgestehungskosten aus. Aufgrund dessen verringern sich auch die Grenzkosten des Kraftwerks deutlich von 44 €/MWh auf 32 €/MWh (-27%). Das bedeutet, dass das Kraftwerk auch bei einem geringeren Strompreis einen Deckungsbeitrag erwirtschaftet und damit tendenziell eine höhere Auslastung erreichen sollte. Dieser Aspekt erscheint in einem zunehmend volatilen Strommarkt von besonderer Bedeutung. Da auch im vorliegenden Fall unsichere Annahmen getroffen wurden, sollen durch Parametervariationen deren Einfluss auf die Stromgestehungskosten (Abbildung 51) verdeutlicht werden. Um außerdem noch den Einfluss der CO<sub>2</sub>-Abtrennung herauszustellen, sind in einigen Fällen zusätzlich die Verläufe für das IGCC ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung (Kapitel 4) dargestellt.

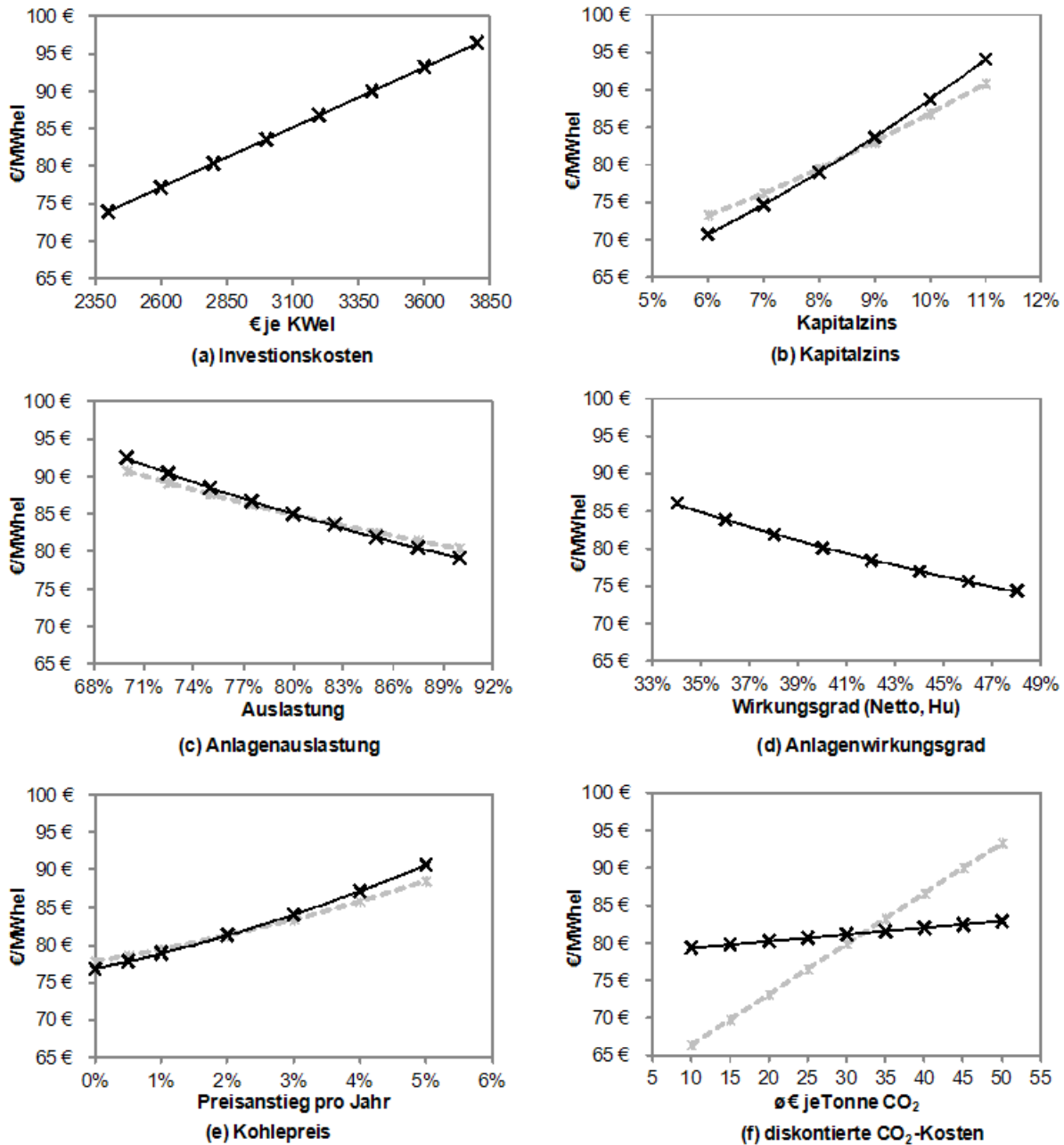


Abbildung 51: Einfluss ausgewählter Parameter auf die Stromgestehungskosten des IGCC mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung (gestrichelte Linie IGCC ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung)

Entsprechend der Strompreiszusammensetzung zeigen die Stromgestehungskosten eine hohe Abhängigkeit von den **Investkosten** (a) des Kraftwerks. Aufgrund der höheren spezifischen Investitionskosten ist zudem der **Kapitalzins** (b) höher gewichtet als im IGCC ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung. Aufgrund der CO<sub>2</sub>-Abtrennung ist im vorliegenden Fall die Erhöhung der **Auslastung** (c) nicht mehr an beträchtliche Emissionskosten gebunden,

weshalb deren Einfluss auf die Gesteherungskosten deutlicher zum Tragen kommt. Hingegen schwächt sich der Einfluss des **Anlagenwirkungsgrades (d)** aufgrund der geringen Emissionskosten signifikant ab. Die alleinige Variation **CO<sub>2</sub>-Kosten (f)** hat entsprechend kaum noch Auswirkung auf die Stromgestehungskosten des IGCC-Konzepts mit CCS. Außerdem zeigt der Vergleich mit dem IGCC ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung (gestrichelte Linie), dass sich die Kurven bei rund 32 €/t<sup>19</sup> schneiden und damit beide Kraftwerke gleiche Stromgestehungskosten aufweisen. Der steile Anstieg der gestrichelten Linie verdeutlicht die starke Abhängigkeit des konventionellen IGCC von den Emissionskosten und die zunehmende Wirtschaftlichkeit der CO<sub>2</sub>-Abtrennung mit steigendem Zertifikatspreis.

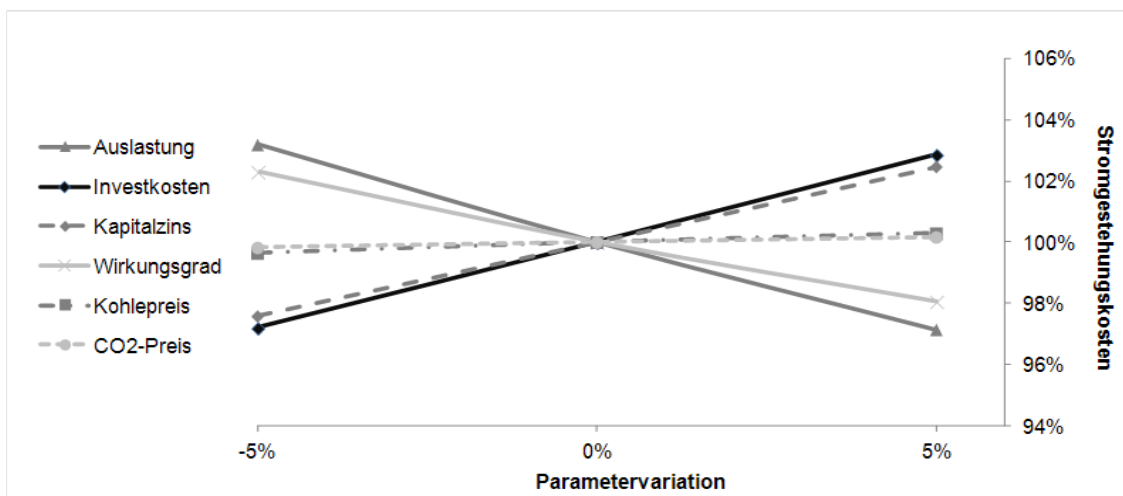


Abbildung 52: Sensitivitätsanalyse ausgewählter Parameter auf Stromgestehungskosten des IGCC mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung

Vergleicht man die Parameter bei einer relativen Änderung von +/- 5%, fällt auf, dass im Gegensatz zum konventionellen IGCC der Wirkungsgrad nicht mehr die alleinige bestimmende Größe für die Beeinflussung der Stromgestehungskosten ist. Stattdessen sind vielmehr die Auslastung und Kapitalkosten gleichwertige Hebel für die Senkung der Stromgestehungskosten. Addiert man wiederum alle positiv bzw. negativ wirkende Faktoren, dann ergibt sich eine Schwankungsbreite von +12,3% bzw. -10,5% und damit ein Bereich für die abgeschätzten Stromgestehungskosten eines IGCC-Kraftwerks mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung von 73 €/MWh bis 91 €/MWh. Damit ist dessen Elastizität hinsichtlich der Kostenentwicklungen höher als beim IGCC ohne CCS und die Stromgestehungskosten damit stabiler.

<sup>19</sup>diskontierter CO<sub>2</sub> Preis im Inbetriebnahmejahr



## 5.3 Sensitivitätsanalyse

Wie erwähnt, führt die Diskrepanz publizierter Wirkungsgradpotentiale für IGCC-Konzepte dazu, dass die ermittelten Ergebnisse kaum mit anderen Werten verglichen werden können. Betrachtet man die innerhalb eines Jahrzehnts publizierten Wirkungsgrade werden massive Unterschiede deutlich. Nach anfänglich sehr ambitionierten Werten, ist nicht zuletzt auch aufgrund des zunehmenden Detaillierungsgrades, eine deutlich fallende Tendenz des Anlagenwirkungsgrades zu erkennen. Dies ist sicherlich auch dem Umstand zu optimistischer Randbedingungen in der Vergangenheit und der zunehmenden Fokussierung auf Auslastung und Kosten in neuer Zeit geschuldet. Zudem existiert kein einheitliches Set von Rahmenbedingungen, weshalb wesentliche Prozessparameter unterschiedlich gewählt worden sind und aufgrund der mangelnden Kenntnis ihres Einflusses eine direkte Vergleichbarkeit von Studien in der Regel schwer möglich ist.

Aus diesem Grund wird im folgenden Abschnitt für das IGCC mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung eine Sensitivitätsanalyse durchgeführt. Dadurch soll der Einfluss der wesentlichen Parameter auf den Anlagenwirkungsgrad aufgezeigt werden, um eine bessere Vergleichbarkeit der Ergebnisse zu ermöglichen. Die Parameter können dabei in die drei Bereiche, Gasinsel, Gasverwendung und Prozesskonfiguration eingeteilt werden. Erstere betrachtet insbesondere die Variation des Einsatzstoffes. Neben der bisher betrachteten Steinkohle werden nun minderwertige Brennstoffe eingesetzt, mit hohem Wasser- oder Ascheanteil. Außerdem wird in der Gaskonditionierung der Grad der CO<sub>2</sub>-Abtrennung zwischen 70% und dem maximal realisierbaren Wert variiert. Bei der Gasverwendung im GUD werden dessen klassische Parameter Turbineneintrittstemperatur und Kondensatordruck zwischen 1250°C und 1600°C bzw. zwischen 23 und 60 mbar variiert. In der letzten Rubrik wird zusätzlich der Einfluss einiger Konfigurationsänderungen, wie die luftseitige Integration der LZA, die Rohgasabhitzedampfnutzung und eine verminderte CO<sub>2</sub>-Reinheit betrachtet.

### 5.3.1 Parameter der Gasinsel

#### **Einsatzstoff**

Es liegt nahe, dass vor allen Prozessparametern, der unterschiedliche Einsatzstoff ein wesentlicher Grund für die Diskrepanz der Studien ist. Wenngleich überwiegend hochwertige Steinkohlen genutzt wurden, soll das Brennstoffband auch in Richtung minderwertiger Brennstoffe erweitert werden. Dies erscheint sinnvoll, da bei zunehmender Nachfrage und schwindenden Ressourcen, zukünftig steigende Preise für hochwertige, fossile Brennstoffe zu erwarten sind. Die Flexibilität der Nutzung minderwertiger Brennstoffe ist damit ein wesentlicher Vorteil der IGCC-Technologie. Daher wird im folgenden Abschnitt der

Einfluss vier verschiedener Einsatzstoffe auf die Anlageneffizienz untersucht. Die sich ergebenden Wirkungsgrade sind in Abbildung 53 zusammengefasst.

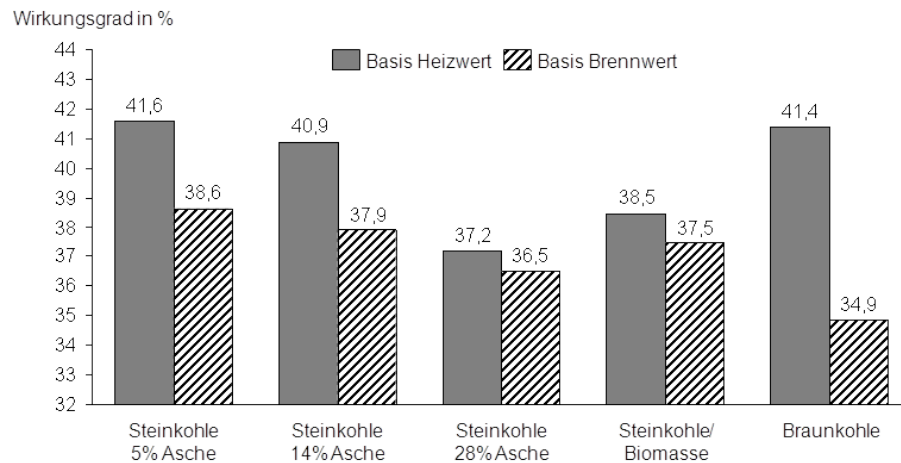


Abbildung 53: Einfluss des Einsatzstoffes auf den IGCC-Anlagenwirkungsgrad

Zunächst wird der Ascheanteil der Steinkohle zwischen 5 Ma.-% (aschearm) und 30,3 Ma.-% (aschereich) variiert. Es ergeben sich unterschiedliche Heizwerte der Kohle und damit variierende Massenströme zur Bereitstellung der geforderten thermischen Leistung. Im Falle einer qualitativ schlechten Kohle, muss ein größerer Brennstoffstrom aufbereitet und umgesetzt werden. Entsprechend steigt der Energiebedarf für die Aufbereitung. Außerdem wird dem Vergaser vermehrt thermischer Ballast zugeführt, welcher durch die typischen Betriebstemperaturen auch noch aufgeschmolzen werden muss. Demnach steigt der Sauerstoffbedarf wohingegen der Kaltgaswirkungsgrad des Prozesses bedingt durch die verstärkten exothermischen Reaktionen um 2,2 %-Punkte sinkt. Hingegen führt die Quenchanordnung in Verbindung mit der Rückgewinnung der Schmelzenthalpie zu einer verstärkten Sättigung des Rohgases mit Wasser. Dies erhöht die CO-Umwandlung in der Shift und verringert damit den notwendigen Abscheidegrad in der Sauer gaswäsche. In Summe bedeuten die genannten Faktoren eine verringerte Bruttoleistung bei gleichzeitig gestiegenem Eigenbedarf. Dies führt zu einem deutlichen Absinken des Nettowirkungsgrades um 1,4 %-Punkte auf dann 37,2%.

Im Gegensatz dazu bewirkt die Verringerung des Aschegehaltes einen Anstieg des Kaltgaswirkungsgrades im Vergleich zum Basisfall um 2,9 %-Punkte auf dann 85%. Entsprechend steigt die Bruttoleistung des Kraftwerks. Da in der Gas aufbereitung nur eine geringere Wassersättigung erreicht werden kann, wird das Brenngas überwiegend mit Stickstoff verdünnt. Trotz des damit einhergehenden Verdichtungsaufwandes steigt der

Nettowirkungsgrad auf 41,6%, was einem Plus von fast 3 %-Punkten gegenüber dem Basisfall entspricht. Damit ergibt sich trotz konstanter Anlagenkonfiguration bereits bei unterschiedlicher Kohlequalität eine Schwankungsbreite im Wirkungsgrad von rund 4,4 %-Punkten.

Als Möglichkeit zur Verbesserung der Klimabilanz von Kohlekraftwerken wird oft die anteilige Nutzung von biogenen Brennstoffen genannt. Da diese in der Regel nur in geringeren Mengen wirtschaftlich und ökologisch sinnvoll bezogen werden können, wird eine Zumischung zur Kohle als effizienteste Verwendung angesehen. Entsprechend wird in einer weiteren Konzeptvariante 20 Ma.-% des Brennstoffstroms durch holzartige Biomasse (Fichtenholz-Hackschnitzel) ersetzt. Der Bezug auf den Brennstoffstrom ist allgemein üblich und entspricht im konkreten Konzept rund 13,4% des thermischen Inputs des Kraftwerks. Zu beachten ist hier insbesondere der erhöhte Aufwand für Zerkleinerung und Verdichtung, der je nach Art und Feuchtegehalt der Biomasse, einen Faktor 2 bis 5 betragen kann [Spliethoff 2010]. Zudem wird mehr Wasser und Sauerstoff in den Vergaser eingetragen. Daher wird hier kein zusätzlicher Dampf zugegeben. Der Brennstoff ist zudem reaktiver, was grundsätzlich eine Reduzierung der Vergasungstemperatur ermöglicht. Allerdings muss sichergestellt sein, dass diese, für die sich ergebenden Schlackemischungen, zu jeder Zeit, oberhalb der Ascheschmelztemperatur liegt. Aus diesem Grund wird die Vergasertemperatur von 1450°C beibehalten. Die Simulation des IGCC-Konzepts ergab einen Nettowirkungsgrad von 38,5%. Während die Bruttoleistung nahezu konstant gehalten werden kann, steigt der Eigenbedarf leicht an, was letztlich zu der Verringerung von 0,15 %-Punkten gegenüber dem Basisfall führt. Allerdings bedeutet die konstante CO<sub>2</sub>-Abtrennungsrate von 90% das neben dem Kohlenstoff aus fossiler Quelle auch originär biogener Kohlenstoff der Umwelt entzogen wird. Bezogen auf den fossilen Teil des Kohlenstoffs ergibt sich damit eine theoretische CO<sub>2</sub>-Abtrennungsrate von 104,2% und somit eine negative CO<sub>2</sub>-Bilanz. Das Kraftwerk stellt damit eine CO<sub>2</sub>-Senke dar. Berücksichtigt man noch Emissionen, welche im Zusammenhang mit Abbau und Aufbereitung der Einsatzstoffe entstehen, so sollte aufgrund des Puffers (4,2%) das IGCC-Konzept zumindest CO<sub>2</sub>-neutral betrieben werden können.

Abschließend soll das IGCC-Modell noch an eine Braunkohle angepasst werden. Wenn gleich das Konzept weitestgehend erhalten bleibt, so müssen aufgrund des hohen Wassergehaltes die Brennstoffaufbereitung vollständig ausgetauscht und die Gaskonditionierung geringfügig angepasst werden. Anstelle der Kohlemühlen mit Heißgaserzeuger wird eine Feinkorn-Wirbelschichttrocknung mit Brüdenkompression angenommen, um die Braunkohle auf circa 12 Ma.-% zu trocknen. Die Kohle wird grob zerkleinert und durch Prozesswasser vorgewärmt. Nach der Wirbelschichttrocknung erfolgt eine Nachzerkleinerung.

Der entstehende Brüden wird nach einer Entstaubung, auf wenige Bar verdichtet und im Prozess zur Fluidisierung sowie Beheizung (Kondensation) genutzt. Neben dem spezifischen Elektroenergiebedarf von rund 65 kWh/t Rohbraunkohle, wird aber noch Zusatzdampf im Umfang von circa 0,11 Tonnen je Tonne Rohbraunkohle benötigt [RWE 2009]. Ähnliche Bereiche wurden auch an anderen Stellen genannt [Rode 2004, Zuideveld 2005, Ogriseck 2006], wobei die Werte je nach geforderten Restwassergehalt und Prozesskonfiguration gewissen Schwankungen unterworfen sind. Damit trägt die Braunkohle bereits mehr als genug Wasser in den Vergasungsprozess ein, weshalb kein zusätzlicher Dampf benötigt wird. Da nun das überschüssige Wasser zusätzlich verdampft werden muss, sinkt der Kaltgaswirkungsgrad der Vergasers deutlich auf 79,7%. Da in der Quenchsektion das Rohgas weiter aufgesättigt wird, erreicht das Gas auch bei geringerer Quenchwassertemperatur ein  $H_2O$  zu  $CO$ -Verhältniss von 2,5. Der hohe Eduktüberschuss führt in der Shift zu hohen  $CO$ -Umsätzen (96,7 Mol-%), wodurch in der Sauergaswäsche eine geringere  $CO_2$ -Absorptionsrate (94 Mol-%) ausreicht, um die geforderte 90 %-ige  $CO_2$ -Abtrennung im Kraftwerk zu realisieren. Da vor der Wäsche das Rohgas gekühlt wird, fällt eine größere Menge Kondensat und damit Niedertemperaturwärme an. Diese kann neben der ND-Dampfgewinnung als auch zur Heißwassererzeugung genutzt werden. Mit diesem lässt sich bereits ein großer Teil der notwendigen Brenngasverdünnung realisieren. Da nicht nur die Dampfproduktion der Gasinsel steigt, sondern auch signifikante ND-Dampfmengen für die WTA ausgekoppelt werden müssen, steigt die Integration mit dem GUD-Teil im Vergleich zum Steinkohlefall. Die Simulation des beschriebenen IGCC-Konzepts auf Basis der gewählten Braunkohle ergab einen Nettowirkungsgrad von 41,4% bezogen auf den Heizwert. Da der Wert deutlich über dem Basisfall mit hochwertigem Brennstoff liegt, ist der Bezugsbasis (Heizwert) in Verbindung mit der WTA geschuldet. Da hier durch Einsatz von Elektroenergie der Brüden komprimiert und auf einem energetisch höheren Niveau kondensiert wird, kann die Kondensationswärme für die Trocknung selbst genutzt werden. Es ergibt sich damit ein "Wärmepumpeneffekt", welcher den Wirkungsgrad bei Bezug auf den Heizwert verfälscht. Vergleicht man hingegen (Abbildung 53) die Wirkungsgrade auf Brennwertbasis, wird der Nachteil des minderwertigen Brennstoffs deutlich. So liegt der Wirkungsgrad ( $H_o$ ) im Braunkohlefall mit 34,9% rund 3 %-Punkte unter dem Basisfall mit Steinkohle. Dies macht sich auch in den spezifischen  $CO_2$ -Emissionswerten bemerkbar, welche mit 93 g/kWh rund 6,4% höher liegen als im Steinkohlefall.

### **$CO_2$ -Abtrennungsrates**

Eine zweite wichtige Größe der Gasinsel ist die angestrebte Rate der  $CO_2$ -Abtrennung. Dabei muss klar zwischen der Abtrennungsrates und der in einzelnen Studien verwend-

ten Rückhalterate unterschieden werden. Die Abtrennungsrate gibt die Menge CO<sub>2</sub> an, welche aus dem Prozess abgetrennt und der Pipeline zugeführt wird. Hingegen gibt die Rückhaltung vielmehr die vermiedene direkte CO<sub>2</sub>-Emission an. Damit führt aber auch ein geringerer Kohlenstoffumsatz im Vergaser oder die Lösung von CO<sub>2</sub> im Prozesswasser zu einer “verbesserten” Rückhaltung, was nicht im Sinne der Anwendung ist. Das strengere Kriterium ist demnach die Abtrennungsrate, welche in den meisten Untersuchungen im Bereich von 90% liegt. Um die Sensitivität der IGCC-Anlage auf diese Größe zu verdeutlichen, soll nun die Abtrennungsrate zwischen 70% und der maximal erreichbaren Rate variiert werden.

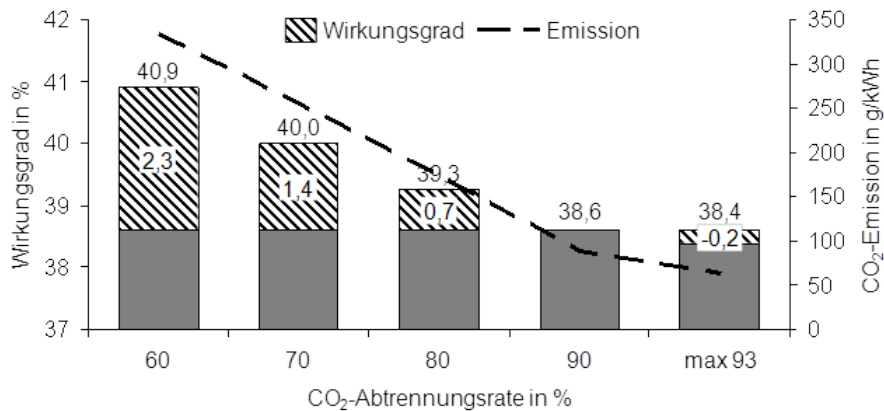


Abbildung 54: Einfluss des CO<sub>2</sub>-Abtrennungsgrades auf den IGCC-Anlagenwirkungsgrad

Wie in Abbildung 54 ersichtlich, führt die Reduzierung des Abtrennungsgrades durch den geringeren Eigenbedarf zu einem deutlichen Anstieg des Anlagenwirkungsgrades. Neben der massenstrombedingten Verringerung der Verdichtungsleistung des CO<sub>2</sub>-Verdichters, sinkt auch die des Stickstoffverdichters aufgrund des verringerten Verdünnungsbedarfs des Brenngases. Während sich beide Größen linear verhalten, sinkt der Energiebedarf der Sauer gaswäsche (Abbildung 40) überproportional. Damit bietet sich die Möglichkeit durch Absenkung des Abtrennungsgrades, die Leistung des Kraftwerks in Abhängigkeit von der Flexibilität der Sauer gaswäsche um 1,6% bis 5,8% zu erhöhen<sup>20</sup>. Die Variation kann auch dem Vergleich mit konventionellen Kraftwerken dienen. So entspricht die 60 %-ige Abtrennung einer CO<sub>2</sub>-Emission von rund 333 g/kWh. Das bedeutet in etwa eine Halbierung der spezifischen CO<sub>2</sub>-Emissionen im Vergleich zum IGCC ohne Abtrennung (Kapitel 4). Damit liegt das Konzept zudem auf dem Niveau neuester Gas- und Dampfturbinenkraftwerken und erzielt dabei einen Nettowirkungsgrad von rund 40,9%.

<sup>20</sup>1,6% bei 80% CO<sub>2</sub>-Abtrennungsgrad bzw. 5,8% bei 60% CO<sub>2</sub>-Abtrennungsgrad

Soll das Kraftwerk hingegen so wenig wie möglich CO<sub>2</sub>-Emissionen aufweisen, wird die Limitierung des klassischen IGCC deutlich. So konnte im vorliegenden Konzept nur eine CO<sub>2</sub>-Abtrennungsrate von 93% erreicht werden. Der erhöhte Trenaufwand und die zusätzliche CO<sub>2</sub>-Verdichtung führt zu einem weiteren Wirkungsgradverlust von rund 0,24 %-Punkte. Nimmt man dies in Kauf, lassen sich die verbleibenden Emissionen auf rund 63 g/kWh reduzieren. Dies bedeutet zwar eine beträchtliche Absenkung von etwa 23% im Vergleich zum Basisfall, ein nahezu CO<sub>2</sub>-freier Betrieb ist hingegen bei klassischer Anlagenstruktur nicht möglich.

### 5.3.2 Parameter der Gasverwendung

#### Turbineneintrittstemperatur

Bei der Analyse des IGCC-Kraftwerkes wurde gezeigt, dass rund zwei Drittel der Leistungsabgabe auf die Gasturbine entfallen. Entsprechend ist die Komponente und folglich deren Betriebsparameter von hoher Relevanz für die Effizienz des Gesamtsystems. Im Rahmen der Sensitivitätsanalyse soll daher die Turbineneintrittstemperatur (ISO) variiert werden. Da diese im GUD-Kreislauf zum Erreichen des Optimums nicht unabhängig vom Druckverhältnis festgelegt werden kann, wird dieses entsprechend angepasst.

Zunächst wird das Konzept an eine ältere Gasturbinengeneration (TET 1250°C ISO) angepasst. Dies entspricht in etwa der bewährten F-Klasse, was sowohl eine bessere Vergleichbarkeit mit älteren Studien ermöglicht, als auch die vorgründige Ausrichtung realer Kraftwerksprojekte auf hohe Verfügbarkeit berücksichtigt. Anschließend werden mögliche zukünftige Generationen betrachtet, mit Turbineneintrittstemperaturen von 1450°C und 1600°C (ISO). Während 1450°C noch durch verbesserte Werkstoffe und Kühlsysteme realisierbar erscheinen, bedingt eine weitere Temperaturerhöhung wahrscheinlich Vollkeramikschaufeln. Ob dies selbst langfristig zu vertretbaren Kosten realisierbar ist, bleibt gegenwärtig fraglich.

Wie in Abbildung 55 ersichtlich, führen bereits verhältnismäßig geringe Veränderungen der TET zu signifikanten Wirkungsgradunterschieden. So sinkt im Falle der F-Klasse Gasturbine der Wirkungsgrad um 1,63%-Punkte auf nunmehr 37% ab. Ähnliche Werte werden an anderer Stelle berichtet [Gräbner 2010, Buschsieweke 2009]. Allerdings kommt es auch hier aufgrund der Vielzahl der verbleibenden Annahmen (Brenngasvorwärmung, Integrationsgrad, Kondensatordruck, usw.) noch zu gewissen Unterschieden. Betrachtet man die Entwicklung des Anlagenwirkungsgrades bei einer Erhöhung der TET zeigt sich, welches Potential der IGCC-Prozess birgt. So führt bereits eine Anhebung auf 1380°C zu einem

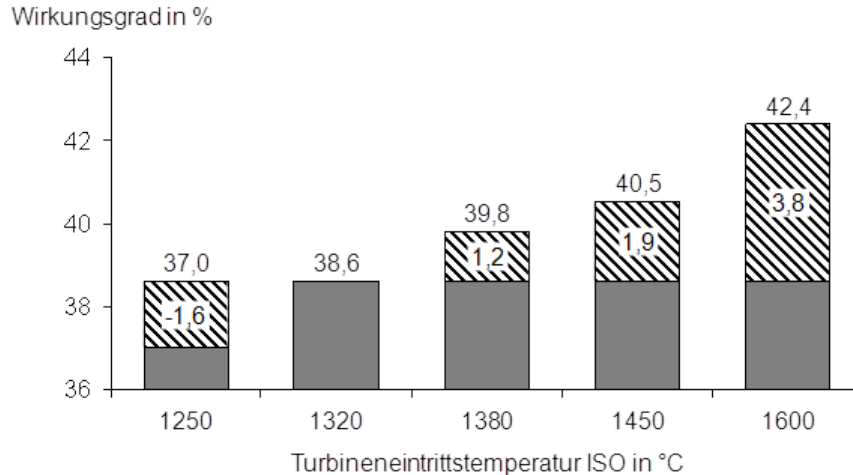


Abbildung 55: Einfluss der TET (ISO) auf den IGCC-Anlagenwirkungsgrad

Gewinn von 1,17%-Punkten. Dabei sollten gegenwärtig moderne Schaufelbeschichtungen und -kühlssysteme vergleichbare TET im Erdgasbetrieb bereits ermöglichen. Aufgrund der veränderten Gaszusammensetzung kommt es aber zu einem erhöhten Wärmeeintrag in die Schaufeln und zu verstärkter NO<sub>x</sub>-Bildung, weshalb derzeit für Kohlegasbetrieb noch ein Sicherheitsabschlag bei der TET gemacht wird. Sollte diese auf Erdgasniveau angehoben werden können, erscheinen Wirkungsgrade für IGCC-Anlagen mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung von rund 40% als realisierbar. Betrachtet man abschließend noch die Auswirkungen der langfristigen Entwicklungsperspektiven, so führt allein die Implementierung einer möglichen zukünftigen Gasturbine mit 1600°C (ISO) Eintrittstemperatur zu einem Effizienzgewinn von 3,76% und damit zu einem IGCC-Anlagenwirkungsgrad inklusive CO<sub>2</sub>-Abtrennung von 42,4%.

### Kondensatordruck

Wenngleich die Gasturbine das größere Gewicht im klassischen IGCC Verbund hat, so ist der Dampfkreislauf immerhin für rund ein Drittel der Leistungsabgabe verantwortlich und soll daher im folgenden Abschnitt ebenfalls näher betrachtet werden. Stellvertretend wird hierfür der Kondensatordruck untersucht. Besonders die frühen optimistischen Studien (Tabelle 11) setzen hier sehr niedrige Werte basierend auf Meerwasserkühlung an. Daher wird ausgehend vom Nasskühlturm des Basisfalls (48 mbar) der Einfluss der Meer- (23 mbar) und Flusswasserkühlung (30 mbar) sowie eines Trockenkühlturms (60 mbar) auf den Anlagenwirkungsgrad betrachtet.

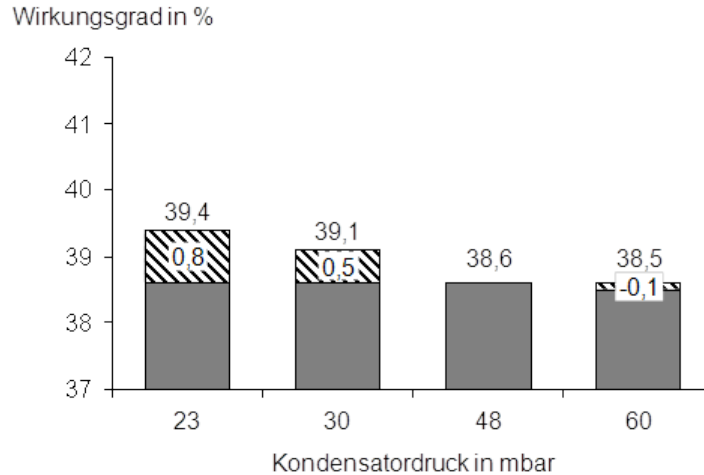


Abbildung 56: Einfluss des Kondensatordrucks auf den IGCC-Anlagenwirkungsgrad

Wie in Abbildung 87 ersichtlich, besteht ein starker Zusammenhang zwischen dem realisierbaren Kondensatordruck und dem Wirkungsgrad der Gesamtanlage. Die Umstellung der Nassturmkuhlung auf Meerwasserkühlung ermöglicht eine weitere Entspannung des Niederdruckdampfes, was im konkreten Fall die Leistungsabgabe der Dampfturbinen um 5,1% erhöht. Da der Eigenbedarf nahezu konstant bleibt, führt dies auch zu einer vergleichbaren Nettoleistungserhöhung und damit zu einem signifikanten Nettowirkungsgradanstieg um rund 0,8 %-Punkte. Die Anhebung des Drucks auf 60 mbar hat hingegen ein Absinken des Wirkungsgrads zur Folge, wengleich der Effekt aufgrund der geringen Änderung moderat ist.

### 5.3.3 Prozesskonfiguration

Neben den kontinuierlich variierbaren Prozessparametern sollen in diesem Abschnitt noch ausgewählte Änderungen in der Prozesskonfiguration betrachtet werden. Diese umfassen die luftseitige Integration der LZA, die Nutzung der Rohgaswärme zur Dampfproduktion sowie eine geringfügige Absenkung der CO<sub>2</sub>-Reinheit.

#### Luftzerlegungsanlage

Bei der luftseitigen Integration der Luftzerlegungsanlage wird nun ein Teil der Verbrennungsluft aus der entsprechenden Druckstufe des Gasturbinenkompressors ausgekoppelt. Die heiße Druckluft wird zunächst zur Vorwärmung des Brenngases genutzt. Damit entfällt dessen Vorwärmung durch Heißwasser im GUD-Teil. Die Luft wird weiter abgekühlt und in der Luftzerlegungsanlage aufgetrennt. Die stickstoffseitige Teilintegration bleibt



bestehen und führt damit zu einem unveränderten Wasserstoffgehalt im Brenngas. Das modifizierte IGCC-Konzept weist, durch die Luftentnahme, eine deutlich reduzierte Gasturbinenleistung auf. Allerdings sinkt der Eigenbedarf des Konzepts durch Nutzung des effizienteren Gasturbinenkompressors überproportional. Zudem kann der Wärmeinhalt der Druckluft sinnvoll eingebunden werden. Dies führt zu einer Wirkungsgradsteigerung gegenüber dem Basisfall von 0,24 %-Punkten. Die zusätzliche luftseitige Integration der LZA führt damit nicht nur zur Einsparung von Equipment, sondern auch zu einer thermodynamischen Verbesserung der Anlage. Allerdings sollte in diesem Zusammenhang auch die mit der Maßnahme verbundene Erhöhung der Anlagenkomplexität mit entsprechender Verminderung der Verfügbarkeit erwähnt werden.

### **Rohgasabwärmenutzung**

Eine weitere verbreitete Prozessvariation stellt die Abhitzedampfnutzung im Rohgaspfad dar. Anstelle des Wasserquenches wird nun der Wärmeinhalt des heißen Rohgases nach Austritt aus dem Vergaser mittels Strahlungs- und Konvektionswärmeübertrager auf das Temperaturniveau der Gaskonditionierung abgekühlt. Wenngleich es das Temperaturniveau zuließe, werden bislang aufgrund der erosiven und korrosiven Umgebung in der Regel nicht die höchsten Frischdampfparameter realisiert, um die Lebensdauer der verwendeten Materialien nicht zu stark zu verkürzen [Karg 2000]. Im konkreten Konzept wird nun zunächst überhitzter Hochdruckdampf erzeugt und das Rohgas dabei auf rund 350°C abgekühlt. Anschließend wird Mitteldrucksattdampf erzeugt, was das Rohgas um weitere 100°C abkühlt. Da bislang keine Verunreinigungen abgetrennt wurden, darf die Gastemperatur nicht weiter absinken um Kondensation und Salzbildung (Ammoniumsalze) zu vermeiden. Entsprechend werden anschließend Partikel durch Filter und wasserlösliche Substanzen in einer Wasserwäsche entfernt, bevor das Gas wie zuvor beschrieben konvertiert wird.

Da nun das Rohgas nur einen geringen Wasseranteil aufweist, ist für die CO-Shift ein sehr hoher zusätzlicher Dampfbedarf notwendig, um das geforderte Wasserdampf zu Kohlenmonoxid Verhältnis sicherzustellen. Dieser kann jedoch durch Einsatz eines Kühler-Sättiger-Kreislaufes (Abbildung 15) in der Konvertierungsstufe deutlich reduziert werden. Dabei wird anstelle von Dampf Heißwasser erzeugt, mit dem das eintretende Rohgas erwärmt und gesättigt wird (Sättiger). Das überflüssige, abgekühlte Wasser wird rückgekühlt und dient anschließend zur Kühlung des konvertierten Gases. Dabei kondensiert überschüssiges Wasser im konvertierten Gasstrom aus und wird so zurückgewonnen. Allerdings muss trotz dieser Maßnahme zusätzlich noch Sattdampf zugegeben werden, um das notwendige Verhältnis von Wasser zu Kohlenmonoxid sicherzustellen.

Die Simulation des IGCC-Konzepts erzielte einen Nettowirkungsgrad von 40%, was

einer Steigerung im Vergleich zur Quenchkonfiguration von 1,35 %-Punkten entspricht. Bedingt ist diese Zunahme vor allem durch eine deutlich erhöhte Leistungsabgabe (+6,9%) der Dampfturbinen. Der Eigenbedarf steigt nur leicht an (+3,8%). Durch das KKS-Regime fällt nur Heißwasser mit geringer Temperatur für die Brenngassättigung an. Dadurch vermindert sich die Aufsättigung wodurch mehr Stickstoff zur Verdünnung verdichtet werden muss. Der KKS stellt dafür aber rund 67% der notwendigen Rohgasfeuchte für die Konvertierung zur Verfügung. Der Bedarf an Zusatzdampf verringert sich so deutlich, da nur noch ein Drittel der Gasfeuchte bereitgestellt werden muss. Wenngleich die Substitution des Wasserquenches durch den Rohgaswärmeübertrager mit einer deutlichen Wirkungsgradsteigerung verbunden ist, so muss beachtet werden, dass der apparative Aufwand und damit die Kosten stark ansteigen. Zudem kann es durch die korrosive und erosive Umgebung zu Betriebsproblemen und damit zur Verminderung der Anlagenverfügbarkeit kommen.

### **CO<sub>2</sub>-Reinheit**

Ein weiterer, bisher in der Literatur nur wenig betrachteter Aspekt, ist der Einfluss der CO<sub>2</sub>-Reinheit auf den Wirkungsgrad von IGCC-Kraftwerken. Während dieser Punkt für andere Abtrennungsvorgänge, insbesondere dem Oxyfuel-Verfahren, als wichtiges Kriterium identifiziert wurde, finden sich bislang kaum Aussagen zu Vergasungskraftwerken. Daher wird für die Sauergaswäsche eine alternative Prozessvariante untersucht. Dazu wird das Tailgas aus der Clausanlage nicht zur Konvertierung zurückgeführt, sondern dem CO<sub>2</sub>-Strom zugemischt. Außerdem wird der Druck in der Zwischenentspannung der Sauergaswäsche erhöht. Damit werden weniger co-absorbierte Gasspezies rezirkuliert und gelangen so bei der Waschmittelentspannung in das dort freigesetzte Kohlendioxid. Zusätzlich kann der Druck der Entspannungsregenerierung herabgesetzt werden, wodurch die Freisetzung absorbierter Gaskomponenten verbessert und die Reabsorption vermindert wird. Dies führt bei der Simulation des entsprechenden Konzepts, in Summe, zu einem starken Anstieg von Wertkomponenten und Spurenstoffen im CO<sub>2</sub>-Strom. Allerdings muss man hervorheben, dass die CO<sub>2</sub>-Reinheit aufgrund der hohen Selektivität des modellierten Waschprozesses nur auf 99,6 Mol-% absinkt. Da keine größeren Mengen an Inertgasen eingetragen werden und das CO<sub>2</sub> vormals nur wenige Spuren enthielt (Reinheit 99,9%), handelt es sich nur relativ gesehen um eine starke Zunahme der Verunreinigungen. Allerdings werden die in den Annahmen formulierten Reinheitsanforderungen deutlich überschritten, wie in Abbildung 57 ersichtlich.

Der hohe Anstieg der NO<sub>x</sub>-Konzentration ist dabei auf die Zumischung des Tailgases

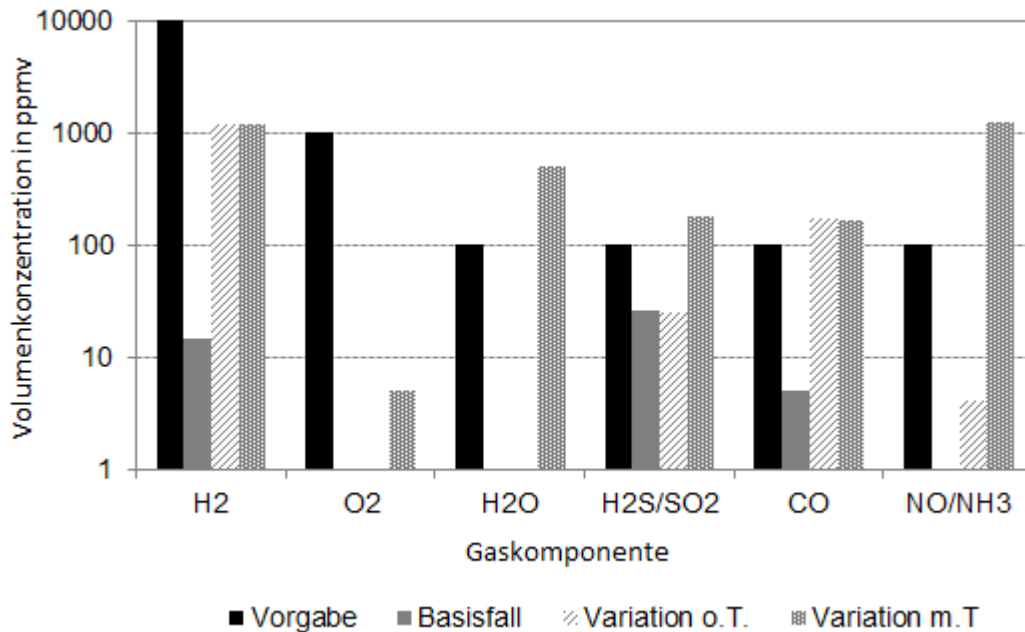


Abbildung 57: Vergleich der Spurenstoffkonzentration im CO<sub>2</sub>-Strom

zurückzuführen. Dieses trägt auch den überwiegenden Teil des Wassers ein, was bei Trocknung dieses Teilstroms die Einhaltung der Vorgaben ermöglichen sollte. Die Durchführung der genannten Maßnahmen führt, trotz der verstärkten co-absorption von Brenngaskomponenten, nur zu einer unwesentlichen Verminderung der Gasturbinenleistung. Da nun der Eigenbedarf durch den geringeren Rezirkulierungsaufwand um 2,6% fällt, ermöglicht die Absenkung der CO<sub>2</sub>-Reinheit mittels der genannten Maßnahmen eine moderate Erhöhung des Nettowirkungsgrades um rund 0,3 %-Punkte (**Variation m.T.**). Dabei sind nur rund 0,1 %-Punkte auf die Zumischung des Tailgases aus der Clausanlage zurückzuführen. Daher kann bei Rückführung des Tailgases in den Shiftprozess (**Variation o.T.**) immer noch eine Wirkungsgradsteigerung von 0,2%-Punkten realisiert werden, bei einem deutlich geringeren Grad an Verunreinigungen.

#### 5.3.4 Fazit

Im Rahmen der Sensitivitätsanalyse wurden zahlreiche Prozessvariationen durchgeführt und deren Einfluss auf den Anlagenwirkungsgrad aufgezeigt. Es zeigt sich, dass durch Veränderung der Prozessstruktur und/oder Randbedingungen der resultierende Anlagenwirkungsgrad deutlichen Schwankungen unterworfen ist. Zudem besteht eine hohe Abhängigkeit hinsichtlich der Qualität des Einsatzstoffes. Dieser Umstand macht den detail-

lierten Vergleich von verschiedenen Studien sehr aufwändig. Die im Rahmen der Sensitivitätsanalyse aufgezeigten Wirkungsgradänderungen können aber als Anhaltewerte für die ausgewählten Maßnahmen dienen und stellen zudem die Wichtigkeit einzelner Parameter heraus.

## 5.4 Potentialanalyse

Aufbauend auf der Sensitivitätsanalyse kann im folgenden Abschnitt das mittels konventioneller Ansätze zukünftig realisierbare Effizienzpotential des klassischen Pre-Combustion IGCC-Kraftwerkes abgeschätzt werden. Neben den klassischen GUD-Parametern, Kondensatordruck und Turbineneintrittstemperatur werden IGCC spezifische Optimierungsansätze wie der Rohgaswärmeübertrager und die vollständige Integration der Luftzerlegung in der Potentialermittlung berücksichtigt. Darüber hinaus wird die Verbesserung der Kohlequalität einbezogen und ein geringfügiges Absinken der CO<sub>2</sub>-Reinheit als vertretbar angesehen. Die Ergebnisse sind in Abbildung 58 zusammengefasst und werden im Folgenden diskutiert.

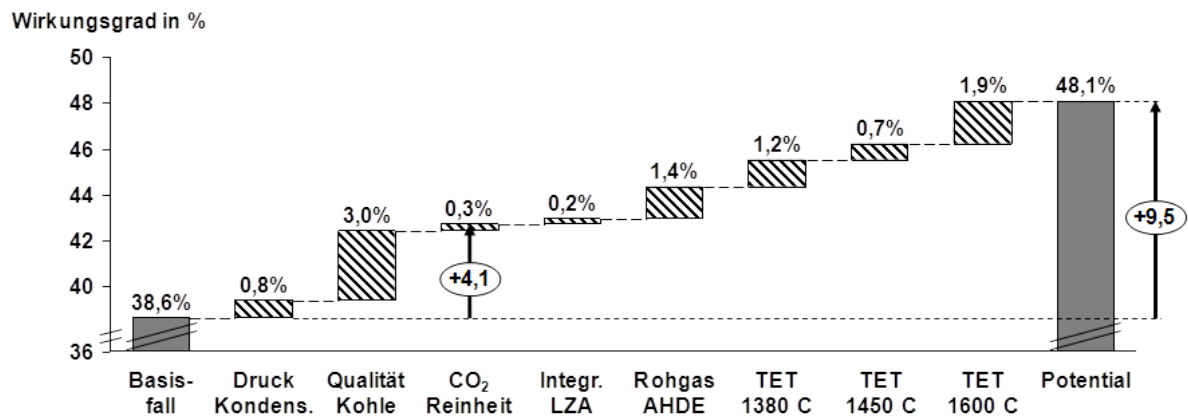


Abbildung 58: Potentialanalyse des konventionellen IGCC mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung

Es zeigt sich, dass bereits durch Wahl einer qualitativ hochwertigen Kohle (5% Asche) und eines optimalen Standortes (Kondensatordruck 23 mbar) der Anlagenwirkungsgrad bei sonst gleichen Randbedingungen signifikant um rund 3 bzw. 0,78 %-Punkte gesteigert werden kann. Außerdem kann bei Tolerierung einer geringfügig reduzierten CO<sub>2</sub>-Reinheit der Anlagenwirkungsgrad um weitere 0,3 %-Punkte gesteigert werden. Damit ergibt sich allein durch diese externen Faktoren, bei gleicher Anlagentechnik, ein Wirkungsgradpotential im Bereich von 4 %-Punkten. Das verdeutlicht den großen Einfluss der Simulationsannahmen

und dürfte auch der Hauptgrund für die Schwankungsbreite publizierter Wirkungsgrade in der Literatur (Tabelle 11 auf Seite 58) sein.

Neben den externen Faktoren kann auch durch Prozessoptimierung weiteres Wirkungsgradpotential erschlossen werden. Da die Brenngastemperatur bereits recht hoch gewählt wurde, zeigte eine weitere Anhebung nur wenig Potential. Ähnlich verhält es sich mit den Dampfparametern, die aufgrund der Gasturbinenaustrittstemperatur nur bedingt steuerbar sind. Auch die luftseitige Integration der gegebenen Luftzerlegung mit der Gasturbine führt aufgrund des geringen Betriebsdrucks nur zu einer moderaten Steigerung des Wirkungsgrads in Höhe von 0,24 %-Punkten. Voraussetzung der Realisierung ist hierbei die optimale Nutzung der Druckluftenthalpie, beispielsweise zur Brenngasvorwärmung. Einen signifikanten Einfluss auf die Anlageneffizienz (+1,4 %-Punkte) hat hingegen die Nutzung der Rohgasenthalpie zur Dampfgewinnung (**Rohgas-AHDE**). Auf die damit verbundenen kostenintensiven Zusatzsysteme wurde bereits hingewiesen.

Soll die Anlageneffizienz weiter erhöht werden, muss in erster Linie die Turbineneintrittstemperatur der Gasturbine erhöht werden. Sollten in der nächsten Generation 1380°C (ISO) realisiert werden können, würde die zu einer Wirkungsgradsteigerung von rund 1,2 %-Punkten führen. Interessant ist aber vor allem der Einsatz von Vollkeramikschaufeln. Damit sollten deutlich höhere Temperaturen erreichbar sein. Eine Anhebung auf 1600°C würde die Anlageneffizienz damit um fast 2,6 %-Punkte erhöhen. Allerdings ist es fraglich, ob solch hohe Temperaturen in absehbarer Zeit zu realisieren sind. Zudem ist die Gasturbine ein sehr komplexes System deren Entwicklung kostenintensiv und zeitaufwändig ist.

Da in der bisherigen Betrachtung nicht nur interne sondern auch externe Faktoren berücksichtigt wurden, kann das ermittelte Potential nicht für den Vergleich mit zukünftigen Konzepten herangezogen werden. Vernachlässigt man diese externen Randbedingungen wie Kohlequalität und verfügbare Kühlmethode (Kondensatordruck), beschränken sich signifikante Effizienzsteigerungen im Wesentlichen auf die Erhöhung der Turbineneintrittstemperatur (Abbildung 59). Die prozessbedingten (internen) Ansätze zeigen hingegen in Summe nur begrenztes Wirkungsgradpotential. Zudem bedingen sie entweder eine verstärkte Prozessintegration, was mit tendenziell geringerer Anlagenverfügbarkeit einhergeht (Vollintegration der LZA), oder höhere Anlagenkosten (Rohgaswärmetauscher).

In Kapitel 5.2.2 wurde gezeigt, dass beide Faktoren zu einem deutlichen Anstieg der Stromgestehungskosten führen. Das Potential des konventionellen IGCC ist demnach beschränkt und dürfte auch mittelfristig bei den gewählten Randbedingungen im Bereich von 40,2% zu erwarten sein. Sollten langfristig deutlich höhere Turbineneintrittstemperaturen

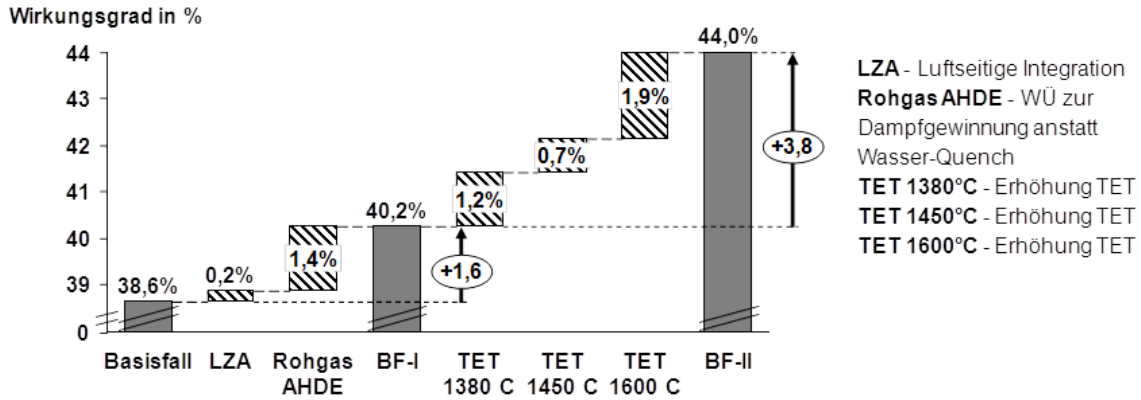


Abbildung 59: Optimierungspotential des konventionellen IGCC mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung

realisierbar sein, dürfte das Wirkungsgradpotential dennoch auf einen Bereich von 41,5 bis 44% beschränkt bleiben. Da zudem die Abtrennungsrate auf 93% beschränkt ist, sollten auch langfristig die verbleibenden CO<sub>2</sub>-Restemissionen im Bereich von 60 g/kWh liegen.

## 5.5 Exergetische Verlustanalyse

Wie in Kapitel 5.2 gezeigt, führt die Abtrennung des CO<sub>2</sub> auch bei IGCC-Kraftwerken zu einer signifikante Reduzierung des Wirkungsgrads. Um zu analysieren wo genau die Verluste im IGCC-Verbund anfallen, wird abschließend eine Verlustanalyse durchgeführt. Da hier verschiedene Energieströme und Temperaturniveaus betrachtet werden, ist eine exergetische Analyse notwendig. Aus diesem Grund werden im folgenden Abschnitt nur exergetische Größen verwendet, was zu leichten Abweichungen im Vergleich zur energietischen Bilanzierung des Basisfalls führt. Die Exergieströme werden aus den Enthalpien und Entropien der verwendeten Simulationssoftware berechnet. Als Bezugszustand werden als thermodynamische Größen ein Druck von 1,01325 bar und eine Temperatur von 25°C verwendet. Die Umgebung besteht aus feuchter Luft (Tabelle 15), Wasser, Gips, Kalziumcarbonat sowie Asche. Da dies nicht der voreingestellten Berechnungsbasis der thermodynamischen Programme (Aspen Plus und Epsilon Professional) entspricht und diese Probleme bei der Berechnung von feuchten Gasströme haben, müssen die Simulationsergebnisse auf diesen generischen Umgebungszustand umgerechnet werden.

Die exergetische Analyse des IGCC ergab einen exergetischen Nettowirkungsgrad von 40%. Demnach gehen 60% der Brennstoffexergie im Prozess verloren. Dabei muss zwischen äußeren Verlusten an Exergie (Exergie der im Prozess nicht weiter genutzt wird) und inneren Exergieverlusten (Dissipation), sprich der Exergievernichtung, unterschieden werden.

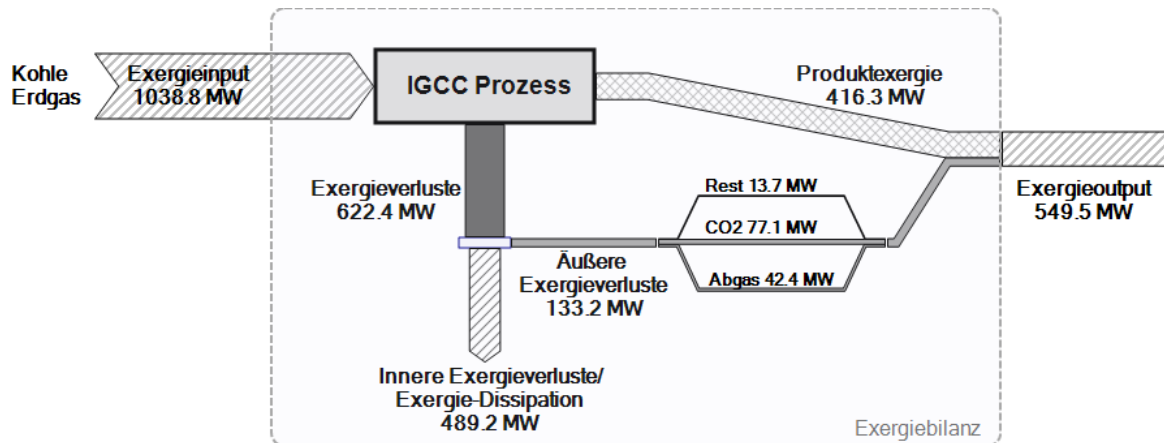


Abbildung 60: Exergiestromdiagramm des IGCC-Basisfall

Wie im Exergiestromdiagramm verdeutlicht, gehen 78,6% der nicht genutzten Exergie durch Dissipation (innere Exergieverluste) verloren. Das ist also der deutlich überwiegende und auch aussagekräftigere Teil, da sich in den äußeren Exergieverlusten auch Stoffströme wie Asche, Spurenstoffe und Kohlendioxid wiederfinden, welche bewusst aus dem Prozess entfernt wurden. Diese bewusst in Kauf genommenen Exergieverluste, müssen für die Bewertung des Basisfalls ausgeklammert werden. Anhand der Aufschlüsselung in Abbildung 60 ist ersichtlich, dass die äußeren Verluste zu fast 90% aus dem verflüssigten CO<sub>2</sub> und dem Rauchgas bestehen. Da Ersteres abgetrennt werden soll und eine Mindesttemperatur im Abgas gewährleistet werden muss, ist kaum nennenswertes Potential zur Verringerung der äußeren Verluste vorhanden. Daher beschränkt sich die folgende Analyse auch nur auf die inneren Exergieverluste.

Durch den bereits erwähnten hierarchischen Ansatz, wird nun zunächst die Verteilung der Gesamtverluste auf die drei Teilsysteme Gasinsel (inklusive LZA), Gasreinigung und GUD-Teil analysiert. Dabei werden für jedes Teilsystem drei Kennzahlen gebildet. Der Dissipationsgrad  $\varepsilon$  des Teilsystems gibt an, wieviel der zugeführten Exergie im Prozess durch Dissipation verloren geht. Der Verlustgrad von 60% reduziert sich durch Abgrenzung der externen Verluste auf einen Dissipationsgrad von 47%. Dieser ist durch die Prozessführung und den gewählten thermodynamischen Randbedingungen bedingt. Die Aufschlüsselung in Abbildung 61 zeigt, dass die größte Exergiedissipation (32,7%) im GUD-Teil auftritt. Die Teilsysteme Gasinsel und -reinigung hingegen, zeigen einen wesentlich geringeren Grad der Exergievernichtung von 10,8% bzw. 8,7%. Die Umwandlung des Feststoffes in ein nahezu kohlenstoffreies Brenngas, ist demnach weniger verlustbehaftet als dessen Nutzung

im GUD. Um die Auswirkungen der Teilsystemverluste auf die Gesamtanlage zu verdeutlichen, ist die Gewichtung der entstehenden Verluste notwendig. Der Wichtungsfaktor  $\kappa$  bestimmt sich aus dem Verhältnis der zugeführte Einsatzexergie des Teilsystems zur Einsatzexergie des Gesamtsystems. Da im Verbund zahlreiche Ströme rezirkuliert werden, kann dieser Faktor auch über 100% liegen.

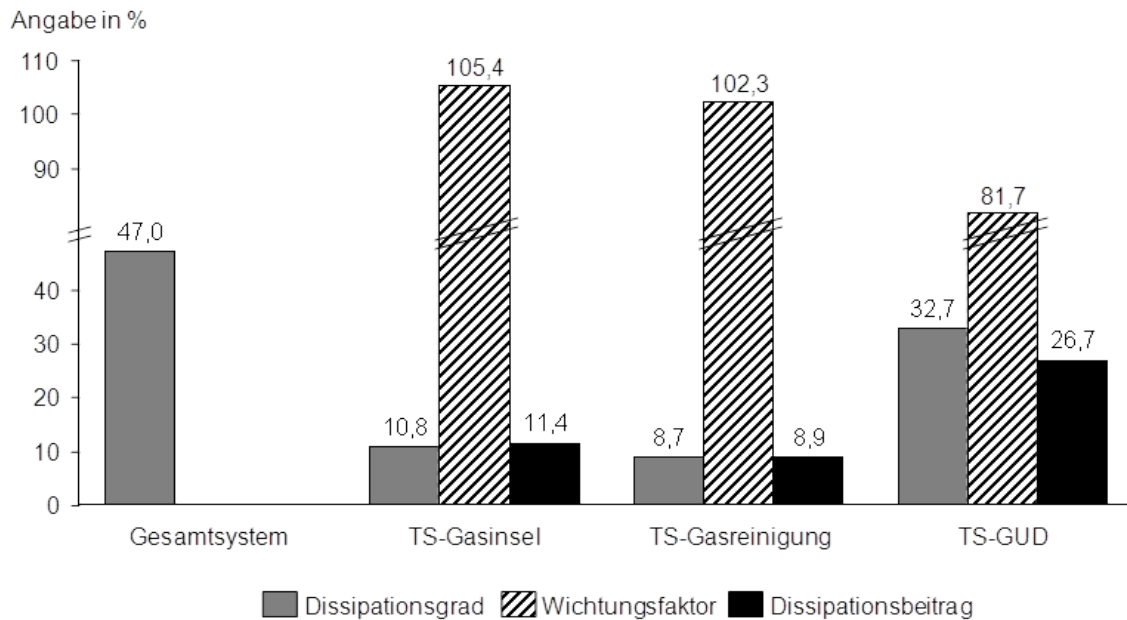


Abbildung 61: Exergetische Verlustanalyse der IGCC-Teilsysteme

Da den Teilsystemen am Anfang der Prozesskette, insbesondere der Gaserzeugung, der größte Exergiestrom zugeführt wird, sind deren Verluste von besonderer Bedeutung für das Gesamtsystem. Somit wiegt die Exergiedissipation in der Gasinsel und -reinigung um den Faktor 1,29 bzw. 1,25 schwerer, als die internen Exergieverluste des GUD-Teils. In dessen zugeführter Exergie sind bereits die bis dato angefallenen Exergieverluste, insbesondere auch externe Verluste wie der  $\text{CO}_2$ -Strom, inbegriffen. Dies führt zu einer verringerten Einsatzexergie des Teilsystems und damit niedrigeren Verlustgewichtung. Das Produkt aus Dissipationsgrad und Wichtungsfaktor bildet den Dissipationsbeitrag des Teilsystems zum Dissipationsgrad der Gesamtanlage. Trotz der gegensätzlichen Gewichtung liefert nach wie vor der GUD-Teil mit 26,7% den größten Beitrag zu den Dissipationsverlusten der IGCC-Anlage. Somit findet 56,8% der Exergievernichtung beim IGCC-Verbund im Gas- und Dampfkraftwerk statt. Erst mit deutlichem Abstand folgen Gasinsel inklusive der LZA und die Gasreinigung mit einem Dissipationsbeitrag von 11,4% sowie 8,9%.

Um die Aussagekraft der Verlustanalyse zu erhöhen, wird nun die Betrachtung auf



die einzelnen Anlagenkomponenten ausgedehnt, um zu analysieren an welcher Stelle es zu vermehrter Exergievernichtung kommt. Die Analyse umfasst damit 17 Einzelsysteme von denen zehn einen signifikanten Dissipationsbeitrag zum Dissipationsgrad des zugehörigen Teilsystems liefern und daher in Abbildung 62 dargestellt sind.

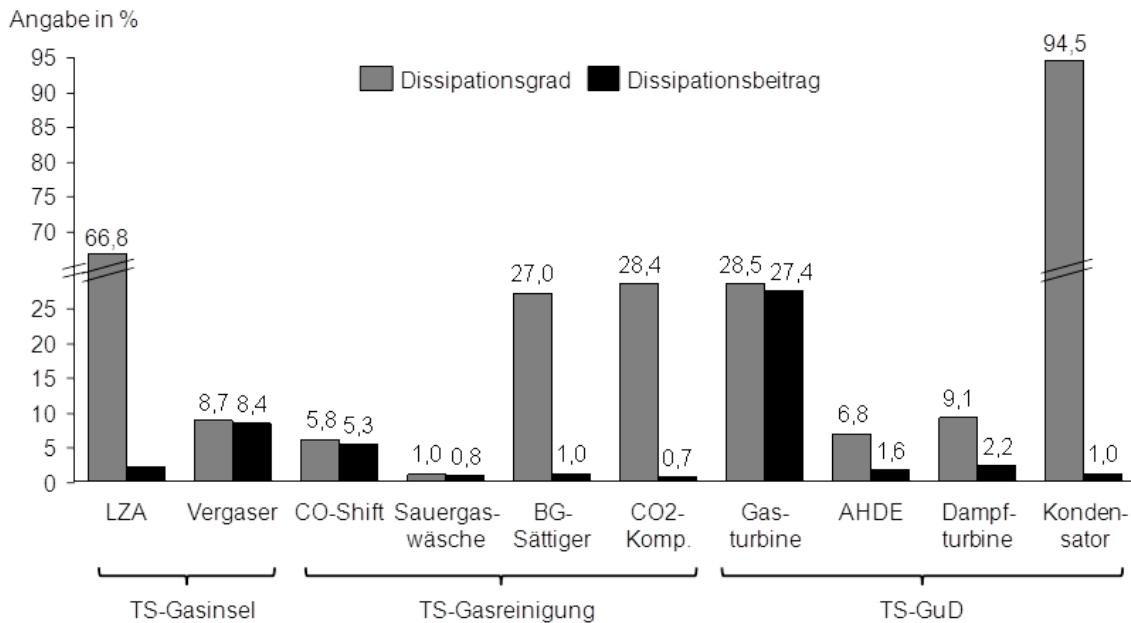


Abbildung 62: Exergetische Verlustanalyse der wesentlichen IGCC-Einzelsysteme

Zur besseren Übersicht wurde auf die Darstellung des Wichtungsfaktors verzichtet. Allerdings wird dieser durch das Verhältnis des Dissipationsgrades und des dazugehörigen Dissipationsbeitrages des jeweiligen Einzelsystems tendenziell sichtbar. Liegt der Dissipationsgrad nominal deutlich unter dem Dissipationsbeitrag, zeigt dies eine geringere Wertigkeit der Exergieverluste des betreffenden Systems an. Besonders deutlich wird das am Beispiel der Luftzerlegungsanlage deren interne Exergieverluste zwar bei 66,8% liegen, deren Beitrag zu den Verlusten des Teilsystems Gasinsel aber aufgrund der geringen Gewichtung nur bei 2% liegt. Damit sind 77,7% der Exergievernichtung im Teilsystem Gasinsel allein auf den Vergaser selbst zurückzuführen. Dies ist plausibel, da die Umwandlung des festen Brennstoff in ein Brenngas mit irreversiblen Verlusten behaftet ist. Außerdem wird durch die teilweisen exothermen Reaktionen zunächst chemische Energie in physikalische Energie umgewandelt, welche dann wiederum bedingt durch den Wasserquench des Basisfalls auf ein niedriges Temperaturniveau gebracht wird. Dies führt zu einem Dissipationsgrad von 8,7%, welcher aufgrund der hohen Gewichtung nahezu vollständig zum Verlustgrad

des Teilsystems beiträgt. Dabei vernichtet die Kühlung des 1450°C heißen Rohgases auf rund 200°C im Wasserquench, rund 20 MW an Exergie. Dies entspricht allein rund 1,9 %-Punkten des Dissipationsgrades des Vergasers. Damit entfallen 6,8 %-Punkte auf die irreversible und exotherme Umwandlung der Kohle in das Brenngas. Die verbleibenden Systeme der Kohleaufbereitung und Sauerstoffkonditionierung tragen nur mit rund 5% zum Verlustgrad der Gasinsel bei und sind daher von geringerer Bedeutung.

Auch im Teilsystem Gasreinigung lässt sich schnell der wesentliche Verlustbringer identifizieren. In diesem Fall können 61,3% der inneren Verluste des Teilsystems der CO-Konvertierung zugerechnet werden. Die Beiträge der anderen nennenswerten Einzelsysteme wie Sauergaswäsche, Sättiger und CO<sub>2</sub>-Kompressor liegen nur bei 9,7%, 11,8% und 8,5%. Beim Kompressor ist dafür vor allem die geringere Gewichtung verantwortlich, da die individuellen Dissipationsgrade sehr hoch sind. Im Fall der Wäsche sind die inneren Exergieverluste recht gering. Hier fallen eher die äußeren Verluste durch das abgetrennte CO<sub>2</sub> ins Gewicht, welche in der vorliegenden Betrachtung ausgenommen wurden. In der Shift-Stufe hingegen findet die exotherme Umwandlung des Kohlenmonoxids in Wasserstoff statt. Um einen ausreichend hohen Umsatz zu gewährleisten, muss die Prozesstemperatur begrenzt werden, wodurch die Reaktionswärme nur auf einem mittleren Temperaturniveau zurückgewonnen werden kann. Da das gesamte Rohgas im System umgewandelt wird, ergibt sich eine hohe Gewichtung der Verluste und damit ein nahezu ähnlich großer Dissipationsbeitrag.

Im dritten Teilsystem, dem GUD-Kraftwerk sind die inneren Exergieverluste im besonderen Maße konzentriert. Gut 83,7% der Verluste des Teilsystems können hier der Gasturbine zugerechnet werden. Das ist gleichermaßen durch einen hohen Dissipationsgrad, wie hohen Gewichtung der entstehenden Verluste begründet. Dabei werden 77,9% der Exergieverluste in der Gasturbine durch die Brennkammer und damit im Wesentlichen durch die chemische Umwandlung verursacht. Darausfolgt, dass mechanisch- und strömungstechnische Ansätze zur Verringerung der Kompressions- bzw. Entspannungsverluste geringer gewichtet sind, als die thermodynamische Optimierung, etwa durch Anheben der Turbineneintrittstemperatur. Die anderen erwähnenswerten Einzelsysteme des GUD-Teils weisen zwar durchaus auch signifikante Dissipationsgrade auf, haben aber aufgrund der geringen Gewichtung nur einen moderaten Einfluss auf das Teilsystem.

Nachdem die Dissipationsbeiträge der Einzelsysteme zum jeweiligen Teilsystem bestimmt wurden, kann durch Multiplikation mit der Teilsystemgewichtung der individuelle Beitrag jeder Komponente zur Gesamtdissipation des IGCC-Kraftwerks berechnet werden. Um zugleich das theoretisch maximal mögliche Optimierungspotential aufzuzeigen, ist den Einzelsystemen jeweils ihr idealer Vergleichsprozess gegenübergestellt. Dieser ver-

nachlässigt sämtliche Reibungs-, Druck- und Temperaturverluste sowie Grädigkeiten und unterstellt theoretischen minimalen Trenn- und Verdichtungsaufwand.

Wie in Abbildung 63 ersichtlich werden 78% der gesamten inneren Exergieverluste im IGCC durch nur drei Einzelsysteme verursacht. Es ist nicht verwunderlich, dass dies die Systeme mit einer signifikanten chemischen Umwandlung sind.

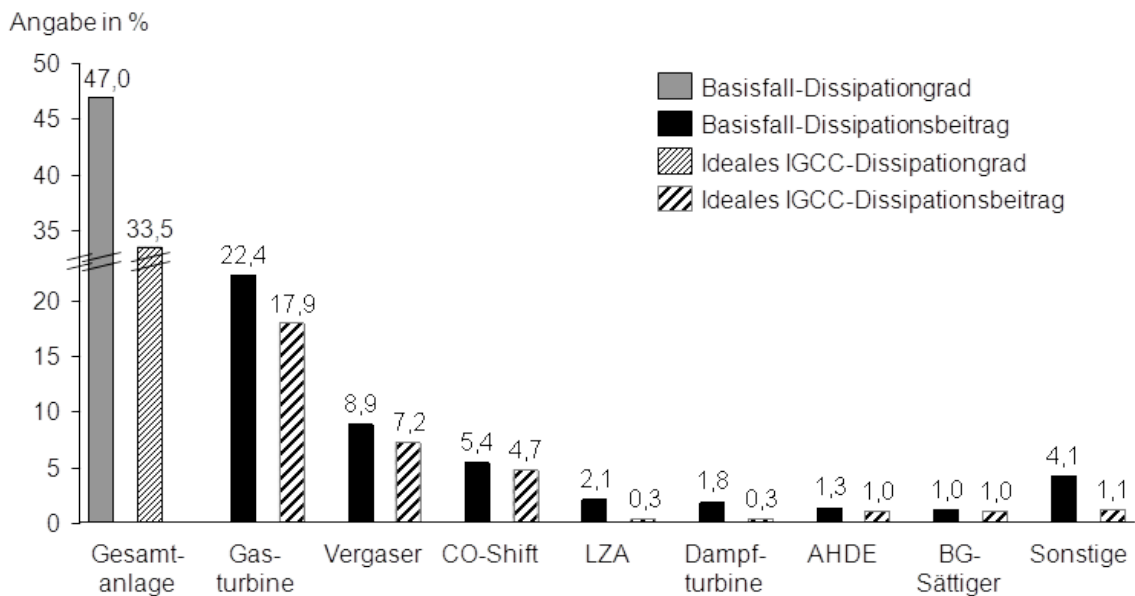


Abbildung 63: Ranking der Einzelsysteme nach Dissipationsbetrag zu Gesamtverlusten

Die mit Abstand größte Dissipation findet demnach in der Gasturbine statt, welche 22,4% aller inneren Verluste im IGCC verursacht. Berücksichtigt man die hohe Gewichtung des Brennkammereinflusses, können allein rund 17,5% aller Verluste auf die Brennkammer zurückgeführt werden. Der Vergleich mit der idealisierten Gasturbine zeigt entsprechend einen hohen unvermeidbaren Verlustbeitrag in Höhe von 17,9%. Das Verlustreduktionspotential ist damit selbst unter idealen Verhältnissen auf rund 20% beschränkt. Eine weitere Verringerung der Exergiedissipation lässt sich demnach nur durch eine Erhöhung der Turbineneintrittstemperatur realisieren.

Ein ähnliches Bild zeigt sich beim Vergaser und bei der CO-Konvertierung, welche zu 8,9% bzw. 5,4% zur Exergiedissipation im IGCC beitragen. Aufgrund der unvermeidbaren Umwandlungsverluste ist das Verlustreduktionspotential auch unter den unrealistischen, idealen Bedingungen auf rund 19% sowie 13% limitiert. Eine signifikante Verbesserung wird daher vor allem durch eine optimierte Prozesskonfiguration ermöglicht, welche das Temperaturniveau des Rohgases erhält und die Reaktionswärme auf einem exergetisch

vorteilhaften Niveau zurückgewinnt. Da der Wasserquench allein für rund 1,9% der Exergievernichtung im IGCC verantwortlich ist, sind außerdem Alternativen zur Verringerung der Shift-bedingten Anforderungen an den Wasserdampfgehalt des Rohgases gefragt.

Die übrigen Einzelsysteme weisen einen deutlich geringeren Beitrag zu den inneren Exergieverlusten im IGCC auf, da hier keine nennenswerte chemische Exergie im System gewandelt wird. Damit steigt aber auch deren theoretisches Verlustreduktionspotential insbesondere bei der Luftzerlegung. Letztlich ergibt sich bei vollständig idealen Bedingungen eine deutliche Reduzierung der inneren Exergieverluste im betrachteten IGCC-Basisfall um 28,7%. Unter Einbeziehung der zusätzlichen äußeren Verluste, bedeutet das einen exergetischen Wirkungsgrad des idealen Kraftwerks von rund 54,1%. Allerdings ist es fraglich, wie viel dieses Potentials tatsächlich realisierbar ist, da es sich um hochidealisierte Annahmen und den Einsatz bereits weitestgehend ausgereifter Technik handelt. Es scheint daher aussichtsreicher neben der klassischen Effizienzsteigerung einzelner Komponenten auch die bislang unvermeidbaren Verluste durch Einsatz neuer Technologien und Prozesskonfiguration zu reduzieren. Wie gezeigt werden konnte, ist dies insbesondere im Vergaser, der Konvertierung und der Gasverwendung aussichtsreich, da dort der Hebel hinsichtlich der Gesamteffizienzsteigerung am Größten ist.



## 6 Potential zukünftiger IGCC-Konzepte

Wie in Kapitel 5 aufgezeigt, bedingt die CO<sub>2</sub>-Abtrennung bei IGCC-Kraftwerken nach Stand der Technik einen signifikanten Wirkungsgradverlust. Wenngleich durch die klassischen Optimierungsansätze weiteres Effizienzpotential aufgezeigt werden konnte, stellt sich die Frage, ob eine grundlegendere Veränderung der Prozesstruktur unter Einbezug zukünftiger Technologien nicht deutlich höhere Wirkungsgrade bei geringeren Emissionen ermöglicht. Aus diesem Grund werden in der vorliegenden Arbeit fünf zukünftige CO<sub>2</sub>-arme IGCC-Kraftwerkskonzepte vorgeschlagen und detailliert analysiert. Die Konzepte werden in der Reihenfolge ihres geschätzten Zeithorizontes diskutiert, wobei einzelne Technologien auch in Kombination eingesetzt werden. Die Vorgehensweise folgt dem Schema der Konzeptbeschreibung, Analyse und Potentialabschätzung. Die Ermittlung des Potentials bezieht sich dabei auf das konventionelle IGCC mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung (Kapitel 5), welches fortan als Basisfall bezeichnet wird. Neben den klassischen Optimierungsansätzen werden auch konzeptspezifische Parametervariationen untersucht. In allen Konzepten konstant bleibend sind hingegen die getroffenen allgemeinen Randbedingungen sowie die Brennstoffmenge, dessen Aufbereitung und Vergasung. Auf abweichende Randbedingungen wird an entsprechender Stelle sowie in Kapitel 3.3 hingewiesen.

### 6.1 IGCC mit membranbasierter Sauerstofferzeugung

Zunächst soll die im Basisfall verwendete kryogene Luftzerlegungsanlage durch eine sauerstoffleitende Membran (OTM) ersetzt werden. Das Konzept stellt damit den geringsten Eingriff in die klassische IGCC-Prozessstruktur dar. Da sich die Technologie außerdem bereits im Demostatus befindet, sollte eine industrielle Umsetzung mittelfristig realisierbar sein. Eine weitergehende, langfristige Betrachtung entfällt daher für das Konzept. Nachfolgend wird demnach das Potential eines sonst klassischen IGCC-Konzepts mit OTM-basierter Sauerstofferzeugung (IGCC-OTM) bewertet.

#### 6.1.1 Konzeptbeschreibung

Für die Integration der Sauerstoffmembran gibt es wie bei der kryogenen Luftzerlegung verschiedene Ansätze. Zunächst soll dem Basisfall ein vergleichbares Konzept mit luftstoffseitig unabhängiger OTM gegenüber gestellt werden. Der Stickstoff wird im notwendigen Umfang dem Brenngas bei der Sättigung zugemischt und die darüber hinausgehende Menge

ausgelaugter Luft (Retentat) in einer Heißluftturbine entspannt. Die Luft wird mehrstufig auf rund 27 bar verdichtet, gegen die Produkte vorgewärmt und anschließend direkt mit Brenngas auf die notwendige Eintrittstemperatur von 850°C aufgeheizt. Als Partialdruckgefälle über die Membran wird bei allen Konzepten zunächst ein Wert von 5 angenommen, darüber die theoretische Abtrennungsrate gemäß Gleichung 7 ermittelt und die praktisch realisierbare Abtrennungsrate mit 85% angenommen. Da der Verdünnungsstickstoff für das Brenngas sehr geringe Restsauerstoffgehalte aufweisen muss, wird die OTM zweistufig ausgeführt (**Variante (a)**). Hierbei wird Retentat im erforderlichen Umfang nach der 1. Stufe abgezogen, nachverdichtet und in einem zweiten OTM-Modul bis zu dem notwendigen Restsauerstoffgehalt von maximal 2 Vol.-% weiter ausgelaugt. Der erzeugte zusätzliche Sauerstoff wird verdichtet und dem Hauptstrom zugemischt. Der überflüssige Anteil des Retentats kann aufgrund des geringen Druckverlustes im OTM-Modul, zur Energierückgewinnung in einer Heißluftturbine entspannt werden. Alternativ kann das Retentat aber auch der Verbrennungsluft der Gasturbine zugeführt werden (**Variante (b)**).

Da sich die Sauerstoffmembran vom Druckniveau her sehr gut mit dem Gasturbinenverdichter koppeln lässt, soll im zweiten Teil der Betrachtung eine integrierte OTM dem Basisfall gegenüber gestellt werden. Bei diesem wird aus Gründen der Vergleichbarkeit ebenfalls die kryogene LZA luftseitig voll integriert. Zunächst wird wie beim vorhergehenden Fall die Luft in einem zweistufigen Verfahren so ausgelaugt, dass teilweise Retentat dem Brenngas zur Sättigung zugemischt werden kann. Auch hier wird der verbleibende Anteil entweder in der Heißgasturbine vor Ort entspannt (**Variante (c)**) oder der Verbrennungsluft in der Gasturbine zugegeben (**Variante (d)**). Als letzte Variante soll nun noch ein vollintegriertes Konzept betrachtet werden (**Variante (e)**), bei dem das gesamte Retentat in der Gasturbine als alleinige Verbrennungsluft genutzt wird. Hier erfolgt demnach keine Vorvermischung mit dem Brenngas, weshalb der Restsauerstoffgehalt im Retentat keinen Restriktionen unterliegt. Alternativ wird daher die gesamte Luft aus dem Gasturbinenkompressor über die nun einstufige OTM geleitet und anschließend nach der Wärmerückgewinnung direkt der Brennkammer zugeführt. Das Brenngas wird in diesem Fall nur durch Wasser gesättigt. Eine Übersicht der betrachteten OTM-Integrationsvarianten ist in Abbildung 64 dargestellt.

Die Modellierung der Sauerstoffmembran erfolgt über eine in Aspen Plus implementierte *User-Routine*, welche bei jeder Iteration ausgeführt wird. Diese basiert auf den Gleichungen 7 und 8, welche in Excel implementiert wurden. Das Excel Sheet wurde mit Aspen gekoppelt, wodurch vor jedem Durchlauf des OTM-Moduls automatisch die aktuellen Eingangsdaten eingelesen und anhand der gewählten Randbedingungen die Aus-

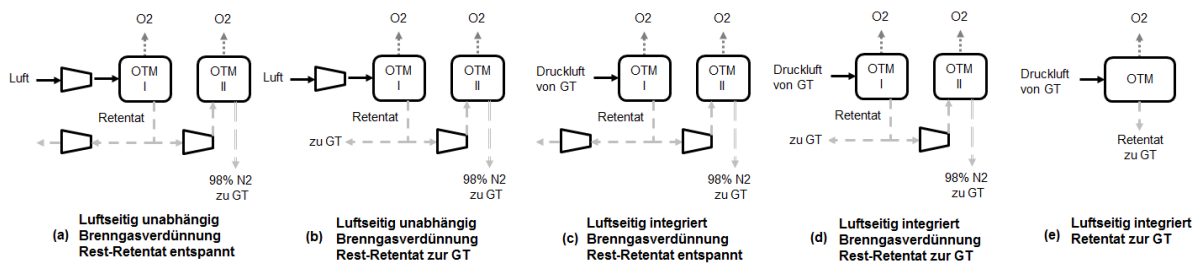


Abbildung 64: Übersicht zu den ausgewählten OTM-Konzepten

gangsgrößen berechnet werden. Diese werden an Aspen übergeben, wo die Abtrennung des Sauerstoffs sowie der notwendige Druckverlust im Permeatstrom durch einen einfachen *Separator-Block* vollzogen werden. Die notwendige Luftmenge wird über eine weitere *User-Routine* iterativ aus der OTM-Performance und des vorgegebenen Sauerstoffbedarfs ermittelt.

### 6.1.2 Konzeptanalyse IGCC-OTM

Im Folgenden werden nun die Simulationsergebnisse der zuvor beschriebenen Integrationsansätze vorgestellt und die ermittelten Wirkungsgrade mit der kryogenen Luftzerlegung verglichen. Dabei wird für die luftseitig unabhängigen **Varianten (a, b)** der Basisfall aus Kapitel 5.2.1 herangezogen. Bei OTM-Varianten mit luftseitiger Integration (**c bis e**), wird aus Gründen der Vergleichbarkeit, der Basisfall mit vollständig integrierter kryogener Luftzerlegungsanlage verwendet. Damit ergeben sich als Vergleichswirkungsgrade 38,6% bzw. 38,9% für luftseitig unabhängige bzw. integrierte Variante. Der Einfluss der unterschiedlichen OTM-Integrationsvarianten ist in Abbildung 65 dargestellt. Zudem wird nachfolgend das Verhalten der einzelnen Prozessvarianten analysiert und diskutiert. Die Gegenüberstellung und Einschätzung der sich ergebenden Wirkungsgradpotentiale erfolgt hingegen in Kapitel 6.1.3.

#### Luftseitig unabhängige OTM

Da in der vorliegenden Arbeit die thermodynamische Betrachtung im Vordergrund steht, wird die praktische Abtrennungsrate ( $A_{pr}$ ) mit 85% bereits sehr hoch angesetzt. Eine Betrachtung der Gleichung 8 impliziert aber, dass auch bei vollständiger Realisierung des theoretischen Abtrennungsgrades der Restsauerstoffgehalt im Retentat zwischen 5 und 10 Vol.-% liegt. Um das Retentat zur Verdünnung des Brenngases nutzen zu können, wäre daher ein extrem hohes Partialdruckgefälle notwendig, was unter praktischen Gesichts-



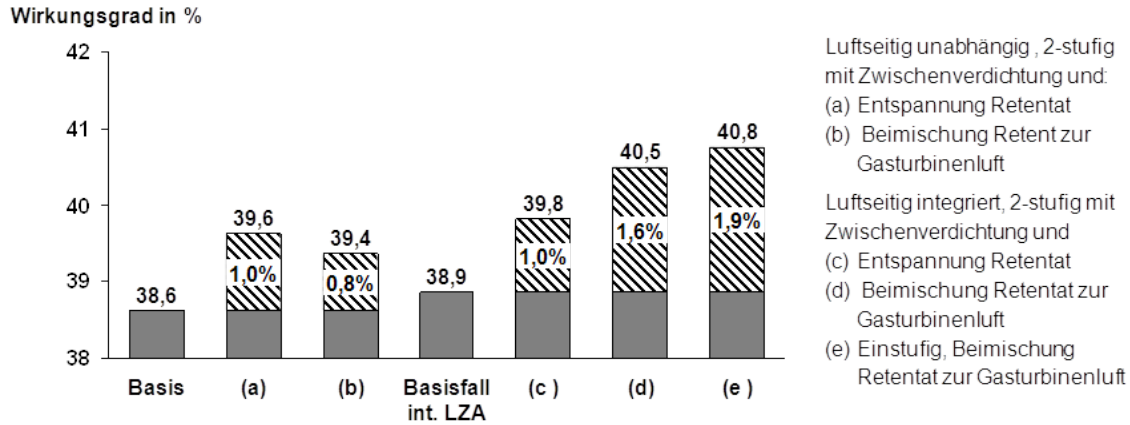


Abbildung 65: Einfluss der OTM-Integration auf den IGCC-Nettowirkungsgrad

punkten wenig realistisch erscheint. Damit bleibt nur die gewählte zweistufige Anordnung mit Zwischenverdichtung (**Variante (a)**). Dabei muss für die Einhaltung des 2 %-igen Restsauerstoffgehalts im zweiten Modul das Partialdruckgefälle auf 5,5 erhöht werden. Um den ohnehin schon sehr niedrigen Permeatdruck nicht noch weiter ins Vakuum absenken zu müssen, ergibt sich in der Simulation eine notwendige Druckerhöhung vor Modul II von mindestens 13 bar. Trotz des Anstiegs verursacht das geringe Druckniveau auf der Permeatseite von rund 0,45 bar möglicherweise praktische Probleme (Undichtigkeiten) sowie einen erhöhten Energiebedarf für die Verdichtung des auf diese Weise erzeugten Sauerstoffs. Trotz dieses Zusatzbedarfs, sinkt der Gesamtenergiebedarf für die Luftzerlegung sowie die Verdichtung der Produkte deutlich um ein Drittel gegenüber dem Basisfall. Durch die Zumischung des Stickstoffs mit erhöhter Temperatur ergibt sich für das Brenngas außerdem ein geringerer Vorwärmbedarf, welcher die Leistungsabgabe des Dampfkreislaufs um rund 1,4% erhöht und damit den Bruttowirkungsgrad auf 47,8% steigert. Zusammen mit dem reduzierten Eigenbedarf ergibt sich ein Nettowirkungsgrad von 39,6%, was einem Anstieg gegenüber dem Basisfall um einem Prozentpunkt entspricht. Neben der Entspannung des Retentats im OTM-Modul könnte dieses alternativ auch der Verbrennungsluft vor der Gasturbine zugemischt werden (**Variante (b)**). Damit wird dort der Verdichtungsaufwand reduziert, was zu einer höheren Leistungsabgabe führt. Die Simulation dieser Variante zeigte eine Leistungssteigerung von etwa 12,2% und einen damit einhergehenden Bruttowirkungsgrad von 53,5%. Da allerdings nun der Eigenbedarf stark ansteigt, sinkt der erzielbare Nettowirkungsgrad auf 39,4%, was zwar immer noch 0,8 %-Punkte über dem Basisfall aber 0,2 %-Punkte unter der ursprünglichen Variante liegt. Der Hauptgrund dafür liegt darin, dass bei der Entspannung des Retentats vor Ort angenommen wurde, dass die Heißluftturbine auf einer Welle mit der Luftverdichtung liegt und damit die Genera-

torverluste und anteilig auch die Motorverluste vermieden werden.

### **Einfluss der Abtrennungsrate**

Wie bereits erwähnt, ist die Abtrennungsrate die wesentliche Größe für die Beschreibung der OTM-Leistung. Dabei bestimmt das Partialdruckverhältnis über die Membran die theoretisch erzielbare Abtrennungsrate (thermodynamisches Kriterium). Inwieweit diese ausgeschöpft wird, kann über die Membranfläche (ökonomisches Kriterium) beeinflusst werden, was in dieser Arbeit als praktische Abtrennungsrate bezeichnet wird. Da diese ( $A_{pr}$ ) bei den unabhängigen Varianten mit 85% recht optimistisch ist, soll die Auswirkung dieser Größe auf den Nettowirkungsgrad des IGCC-Konzepts untersucht werden. Außerdem wird für verschiedene praktische Abtrennungsraten das Partialdruckverhältnis variiert, um dessen Einfluss auf den Wirkungsgrad zu verdeutlichen. Dabei wird angenommen, dass der Permeatdruck in Modul 2 nicht unter 0,5 bar absinken darf, um etwaige Dichtigkeitsprobleme zu vermeiden. Entsprechend werden die Parameter der zweiten Stufe angepasst. Die genannten Variationen wurden an der luftseitig unabhängigen OTM mit interner Retentatentspannung durchgeführt. Da in dieser Variante ein Teilstrom des Retentats für Verdünnungszwecke mit geringem Restsauerstoffgehalt bereitgestellt werden muss, betreffen die Parametervariationen nur das Modul I der zweistufigen Anordnung. Die Ergebnisse der entsprechenden IGCC-OTM Simulationen sind in Abbildung 66 zusammengefasst.

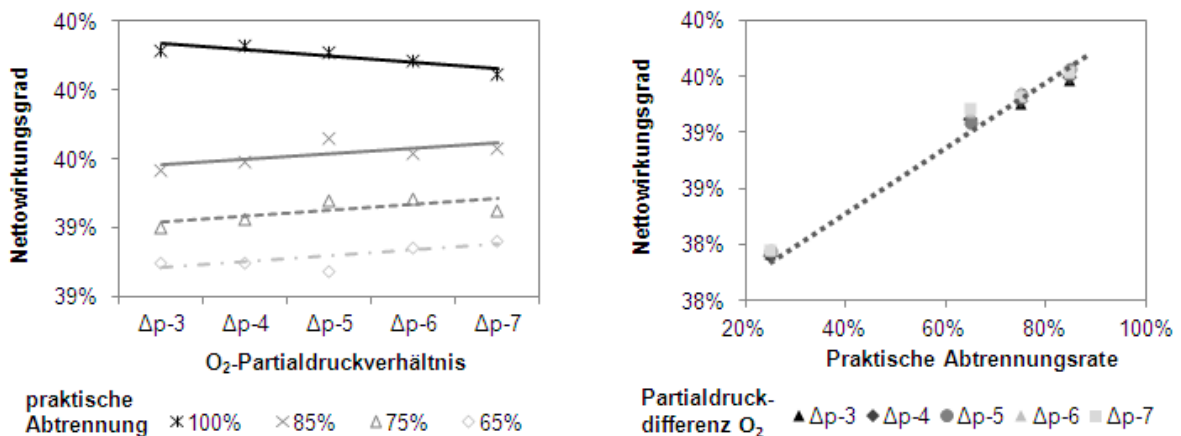


Abbildung 66: Sensitivitätsanalyse des OTM-Moduls

Es zeigt sich, dass bei der zweistufigen Anordnung das Sauerstoffpartialdruckverhältnis keinen signifikanten Einfluss auf den Anlagenwirkungsgrad hat. Erhöht man das Druck-

verhältnis, so steigt die theoretische Abtrennungsrates des Hauptmoduls an und weniger Luft muss bei gegebenem Sauerstoffbedarf verdichtet werden. Die verbesserte Abtrennung im ersten Modul führt aber zu geringeren Restsauerstoffgehalten und damit zu steigendem Aufwand (Zwischenverdichtung) in der zweiten Stufe. Durch den geringen Permeatdruck steigt zudem der Energieaufwand der Sauerstoffverdichtung. In Summe führt das zu einem steigenden Eigenbedarf des Kraftwerks und damit reduzierter Nettoleistung. Allerdings bedingt der geringere Luftmassenstrom auch einen geringeren Brenngasbedarf in der Luftvorwärmung. Damit sinkt auch die aufgewendete Brennstoffleistung, weshalb in Summe kein signifikanter Einfluss der Partialdruckdifferenz auf den Nettowirkungsgrad der Anlage nachgewiesen werden konnte.

Hingegen hat der Grad der Ausschöpfung (praktische Abtrennungsrates) der theoretisch ermittelten Abtrennungsrates einen deutlichen Einfluss auf den Systemwirkungsgrad. Je mehr Membranfläche zur Verfügung steht, umso mehr kann auch bei sinkender Triebkraft Sauerstoff abgetrennt werden. Damit muss deutlich weniger Luft verdichtet und erhitzt werden, was sowohl den Eigenbedarf als auch den Brennstoffverbrauch reduziert. Hier müssen ökonomische Aspekte abgewogen werden, um den wirtschaftlichsten Betrieb der Anlage zu erreichen.

### **Luftseitig integrierte OTM**

Im Falle der luftseitigen Integration mit der Gasturbine ist das Druckniveau der eintretenden Luft kein variierbarer Parameter mehr. Daher muss die theoretisch abtrennbare Menge des Sauerstoffs allein über den Permeatdruck geregelt werden. Im konkreten Fall (**Variante (c)**) wird die Luft mit 25,5 bar aus dem Gasturbinenverdichter entnommen. Aufgrund des Druckverlustes muss zur Einhaltung des geforderten Restsauerstoffgehaltes das Partialdruckgefälle auf 6.6 erhöht werden. Um aber den Permeatdruck nicht zu weit absenken zu müssen, wird in der Zwischenverdichtung (vor Modul II) der Druck auf 15 bar erhöht. Die Druckluft tritt nun mit der entsprechenden Verdichtertemperatur von rund 490°C in die Wärmerückgewinnung ein. Damit kann, im Gegensatz zu den luftseitig unabhängigen Konzepten, nur ein geringerer Teil des Wärmeinhalts der Produktströme für die Eduktvorwärmung genutzt werden. Entsprechend steht sowohl der Sauerstoff sowie der Verdünnungsstickstoff mit rund 500°C zur Verfügung, was insbesondere bei letzterem dazu führt, dass das Brenngas bereits auf nahezu 300°C vorgewärmt werden kann. Zur Bereitstellung der geforderten Sauerstoffmenge muss rund 38,6% mehr Luft im Gasturbinenverdichter komprimiert werden, als für die Umsetzung des Brenngases notwendig wäre. Entsprechend sinkt die Gasturbinenleistung selbst unter Einbezug der zusätzlichen Leistung aus der Retentatentension gegenüber dem Basisfall mit integrierter kryoge-

nen LZA ab. Dadurch reduziert sich der Bruttowirkungsgrad um 2 %-Punkte. Da aber im Gegensatz zum Basisfall keine zusätzliche Stickstoffverdichtung notwendig ist, sinkt der Eigenbedarf in einer ähnlichen Größenordnung, wodurch der IGCC Nettowirkungsgrad des Konzepts mit 39,8% letztlich 0,9 %-Punkte über dem Niveau des Basisfalls liegt. Damit liegt der Wirkungsgradvorteil gegenüber der kryogenen LZA, ähnlich wie bei unabhängiger Betriebsweise, im Bereich von einem Prozentpunkt.

Nun soll ebenfalls für die luftseitig integrierte Variante die überschüssige, ausgelaugte Luft nicht extern entspannt sondern alternativ nach der Wärmerückgewinnung wieder der Verbrennungsluft der Gasturbine zugemischt werden (**Variante (d)**). Damit reduziert sich der zusätzlich zu verdichtende Luftmassenstrom im Gasturbinenverdichter auf 17,6%, was zu einem deutlichen Anstieg der Gasturbinenleistung und letztlich auch des Nettowirkungsgrad auf 40,5% führt. Diese Form der Integration führt aber nicht nur zu einer Steigerung des Nettowirkungsgrades um 1,6 %-Punkte im Vergleich zum Basisfall (mit integrierter LZA), sondern auch zu einem reduzierten Equipmentbedarf im Vergleich zur unabhängigen Betriebsweise. Die Rückführung des überschüssigen Retentatstroms ist demnach thermodynamisch wie ökonomisch sinnvoll.

Allerdings erfordert die Bereitstellung von Verdünnungsstickstoff mit sehr geringem Restsauerstoffgehalt bisher in allen Varianten eine hohe praktische Abtrennungsrate und Zwischenverdichtung. Der Bedarf nach Zusatzsystemen und vergrößerter Membranfläche führt damit zwangsläufig zu höheren Kosten. Daher soll abschließend ein IGCC-Konzept betrachtet werden, bei dem die OTM sowohl luft- wie auch retentatseitig voll mit der Gasturbine gekoppelt ist (**Variante (e)**). Da sich damit der Luftmassenstrom vervielfacht, kann bzw. muss die realisierte Abtrennungsrate der OTM deutlich reduziert werden, um sowohl den geforderten Sauerstoffbedarf, wie auch den notwendigen Luftüberschuss in der Gasturbine bereitzustellen. In der Simulation des Konzepts musste daher durch Anheben des Permeatdrucks die Partialdruckdifferenz auf 3 reduziert und die praktische Abtrennungsrate auf 27,9% abgesenkt werden. Die real erzielte Sauerstoffabtrennungsrate sinkt damit auf rund 20%. Da der gesamte Luftstrom über den Gasturbinenkompressor läuft und über die Gasturbine mit entspannt wird, reduzieren sich die Generator- bzw. Motorverluste weiter. Außerdem führt der steigende Permeatdruck zu einem geringeren Energiebedarf in der Sauerstoffverdichtung. In Summe führt die vollständige Integration damit zu einem IGCC Nettowirkungsgrad von 40,8% und damit zu einer signifikanten Steigerung gegenüber dem Basisfall (mit integrierter kryogenen LZA) von 1,9 %-Punkten. Damit weist die vollständige Integration wie bei dem konventionellen IGCC das höchste Wirkungsgradpotential auf. Allerdings sind mit den thermodynamischen Vorteilen auch die entsprechenden Nachteile verbunden, auf welche im folgenden Abschnitt kurz eingegangen werden soll.

## Einfluss der OTM Integration auf Gasturbine

Wie bei der kryogenen LZA erhöht die Integration der OTM die Komplexität der Gesamtanlage, was einen negativen Einfluss auf die Flexibilität und Verfügbarkeit haben wird. Allerdings sollte dieser Effekt bei der OTM, aufgrund des einfacheren Prozesses und modularen Aufbaus, weniger kritisch sein als im Fall der kryogenen Luftzerlegung. Um den Einfluss der Integration auf die Gasturbine abzuschätzen, wurden in Tabelle 24 charakteristische Größen der einzelnen OTM-Varianten zusammengefasst und auf den Basisfall normiert. Es wird davon ausgegangen, dass die generische Gasturbine zum Zeitpunkt der OTM Realisierung als standardisierte Syngasturbine verfügbar ist und damit deren Parameter als Orientierung gelten können.

Tabelle 24: Einfluss der OTM-Integration auf die Stoffströme der Gasturbine

	Basisfall	Variante (a)	Basisfall inte. LZA	Variante (d)	Variante (e)
Brenngas-massenstrom	1	0,99	1,92	0,99	0,34
H <sub>u</sub> -Brenngas		1,01	0,53	1,03	3,00
Wobbe-Index		1,01	0,60	1,02	2,16
Verdichter-massenstrom		1,00	1,12	1,16	1,21
Turbinen-massenstrom		1,00	0,99	1,02	1,06

Es zeigt sich, dass die luftseitig unabhängige **Variante (a)** mit Brenngassättigung und interner Retentatentspannung aus Sicht der Gasturbine kaum Einfluss hat und damit ohne weiteres die kryogene LZA durch die OTM substituiert werden kann. Ähnlich verhält sich die luftseitig integrierte **Variante (d)** mit Stickstoffzumischung und Retentatenspannung über die Gasturbine. Eine Abweichung der Wobbezahl um 2% liegt dabei im Rahmen der Austauschbarkeit von Brenngasen. Lediglich der Verdichtermassenstrom erhöht sich durch die Integration um rund 16%, was möglicherweise eine Modifikation des Gasturbinenverdichters erfordert, um den Pumpgrenzabstand zu gewährleisten [Seume et al. 2010]. Die luftseitige Integration führt hingegen bei beiden Technologien zu einer deutlichen Veränderung der ermittelten Kennzahlen. Bei der kryogenen LZA erhöht sich, durch Zumischung der gesamten Stickstoffmenge, der Brenngasmassenstrom signifikant. Entsprechend sinkt der Heizwert und damit auch der Wobbeindex beträchtlich. Hier sind also Modifikationen erforderlich um dieses Brenngas in der Gasturbine nutzen zu können. Im Fall der OTM (**Variante (e)**) wird die Abluft nun aber dem Verdichter zugemischt. Damit ent-

fällt die Verdünnung des Brenngases mit Stickstoff was den Heizwert stark ansteigen lässt. Entsprechend liegt der Wobbeindex des Brenngases mehr als doppelt so hoch wie im Basisfall. Außerdem erhöht sich der Verdichtermassenstrom überproportional im Verhältnis zum Turbinenmassenstrom. Diese Art der OTM-Integration stellt damit einen größeren Eingriff in die Gasturbine dar und bedarf entsprechender Modifikationen.

### 6.1.3 Potentialabschätzung IGCC-OTM

Ausgehend von den ermittelten Wirkungsgraden soll das Potential eines CO<sub>2</sub>-armen IGCC-Kraftwerk mit OTM-basierter Luftzerlegung aufgezeigt werden. Die erzielten Effizienzsteigerungen der jeweiligen Maßnahmen können gemäß Abbildung 67 dargestellt werden. Es zeigt sich, dass bei Einsatz einer luftseitig unabhängigen OTM im konventionellen IGCC-Kraftwerk, die Effizienz um rund einen Prozentpunkt gesteigert werden kann. Durch eine vollständige Integration des Retentatstroms kann dieser Wert noch auf rund 2,2 %-Punkten<sup>21</sup> gegenüber dem Basisfall erhöht werden.

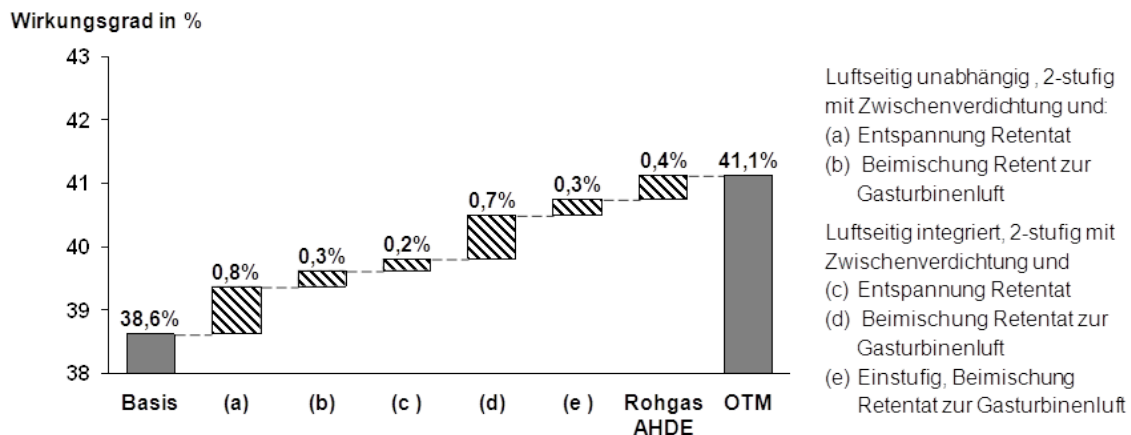


Abbildung 67: Potentialanalyse des IGCC mit OTM-Prozess

Die Adaption des unabhängigen OTM-Prozesses an die besonderen Vorgaben des IGCC-Prozesses bedingt eine zweistufige Ausführung. Damit kann Verdünnungstickstoff für das Brenngas bereitgestellt werden, wodurch dessen Verbrennungseigenschaften unverändert bleiben. Da die Simulation zeigte, dass die direkte Entspannung des verbleibenden Retentats in einer Heißluftturbine thermodynamisch vorteilhafter ist (**Variante (a)**), ergeben sich keinerlei Auswirkungen auf den GUD-Teil des Kraftwerks. Der Prozess ist zudem

<sup>21</sup>bzw. 1.89 %-Punkte gegenüber dem Basisfall mit integrierter kryogenen LZA

weniger komplex als die kryogene Luftzerlegung, weshalb die Wirkungsgradverbesserung sogar mit einer tendenziell verbesserten Anlageverfügbarkeit einhergehen sollte.

Die luftseitige Integration der OTM führt grundsätzlich zur weiteren Effizienzsteigerung. Besonders vorteilhaft ist hier im Gegensatz zur unabhängigen Variante, die Nutzung des restlichen Retentats als Verbrennungsluft in der Gasturbine (**Variante (d)**). Hier ist auch der Einfluss auf den GUD-Teil begrenzt. Lediglich der Anstieg des Verdichtermassenstroms um 16% bedarf möglicherweise einer entsprechenden Adaption. Da das Retentat nur rund 22% der Verbrennungsluft entspricht, sollte der Einfluss der Zumischung auf das Handling der Gasturbine tolerierbar sein. Mittels dieser Betriebsweise kann ein Wirkungsgradpotential von rund 1,9 %-Punkten, bei geringem Bedarf an Anlagenmodifikationen und begrenzter Auswirkung auf die Anlagenflexibilität, erschlossen werden .

Eine weitere Effizienzsteigerung kann nur durch die zusätzliche Integration der Retentatseite (**Variante (e)**) erzielt werden. Da hier kein Verdünnungstickstoff erzeugt werden muss, vereinfacht sich der OTM-Prozess merklich. Allerdings bewirkt die fehlende Sättigung eine signifikante Änderung des Brenngasverhaltens in der Gasturbine. Damit bedingt die thermodynamisch beste Variante den tendenziell höchsten apparativen Aufwand bei der Anpassung der bestehenden Systeme.

Abschließend soll noch darauf hingewiesen werden, dass Verbesserungen im konventionellen Teil (Gasinsel, GUD) auch im OTM-Konzept zu entsprechenden Wirkungsgradsteigerungen führen. So führt die Nutzung der bereits im Basisfall betrachteten Rohgaskühlung anstelle eines Quenches auch im OTM-Konzept zu einer Steigerung der Dampfmenge und damit der Dampfturbinenleistung (**Rohgas AHDE**). Allerdings reduziert der Einsatz des Kühler-Sättiger Kreislaufs in der CO-Konvertierung das Temperaturniveau des Heißwassers für die Brenngassättigung. Entsprechend sinkt dessen Massenstrom und Verdünnungsgrad. Aufgrund der vollständigen Integration muss nun die Abtrennungsrate im OTM-Prozess leicht gesenkt werden, damit mehr Abluft zur Temperaturmoderation in der Gasturbine zur Verfügung steht. Dies erhöht den Verdichtungsaufwand und damit den Eigenbedarf des Kraftwerks. Letztlich kann aber auch bei dem OTM-Konzept durch Substitution des Wasserquenches, durch die Rohgaskühlung der Anlagenwirkungsgrad um 0,3 %-Punkte gesteigert werden.

Trotz der erzielten Wirkungsgradsteigerung weisen alle betrachteten OTM-Konzepte erhöhte CO<sub>2</sub>-Emissionen auf. Grund hierfür ist die finale direkte Aufheizung der OTM-Luft durch Erdgas, was den Kohlenstoffschlupf des Gesamtprozesses vergrößert. Bei konstanter CO<sub>2</sub>-Abtrennungsrate (90%) aus dem Rohgas, ergeben sich für das OTM-Konzept daher spezifische CO<sub>2</sub>-Emissionen von rund 100 g/kWh. Das entspricht einer Gesamtabtrennungsrate von nur 87,5%. Daher muss das CO<sub>2</sub> aus dem Rohgas fast vollständig entfernt

werden, um über das gesamte Kraftwerk die angestrebte Abtrennungsrate von mindestens 90% zu gewährleisten. Dies führt zu einer Erhöhung des Eigenbedarfs und damit zu einem geringfügigen Absinken des Anlagenwirkungsgrades. Für das OTM-Konzept ergeben sich damit spezifische CO<sub>2</sub>-Emissionen im Bereich von 80,3 g/kWh, was einer leichten Reduzierung um 8,4% im Vergleich zum Basisfall entspricht.

## 6.2 IGCC mit Membranreaktor

Die Analyse des Basisfalls zeigt deutlich den beträchtlichen Exergieverlust, welcher durch die konventionelle Gasaufbereitung und CO<sub>2</sub>-Abtrennung verursacht wird. Insbesondere die umfangreiche Wärmeverschiebung in Verbindung mit der Niedertemperaturkonvertierung und -dekarbonisierung tragen signifikant zu den Exergieverlusten bei. Die Reduzierung der Verluste in diesen Teilsystemen hat demnach einen hohen Einfluss auf die Reduzierung der Gesamtverluste im Kraftwerk. Wie in Kapitel 1.4 beschrieben, existieren verschiedene Ansätze um das Temperaturniveau der Gasaufbereitung deutlich anzuheben. Daher soll im folgenden Konzept (MR) das thermodynamische Potential dieser Warm- bzw. Heißgasreinigung für die IGCC-Technologie mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung untersucht werden.

### 6.2.1 Konzeptbeschreibung

Während das Anheben des Temperaturniveaus in der Gasaufbereitung bei klassischen IGCC-Anlagen nur die Entfernung der Spurstoffe beeinflusst, so ist bei CO<sub>2</sub>-armen Anlagen zusätzlich die CO-Konvertierung und CO<sub>2</sub>-Abtrennung betroffen. Gerade der notwendige Umsatz der exothermen Shiftreaktion limitiert das erreichbare Temperaturniveau. Daher muss bei höchsten Temperaturen die Shiftreaktion membrangestützt ablaufen. Für das mittelfristige Konzept (MR-I) wird aber zunächst die Flüssigascheabscheidung zur Abtrennung von Partikeln sowie Alkalien und Metallverbindungen implementiert. Das heiße Rohgas wird anschließend mit Heißwasser teilweise gequench, um das festgelegte Wasserdampf zu Kohlenmonoxid-Verhältnis von 1,12 einzustellen. Durch die Temperatur des verfügbaren Heißwassers und dem Grad der notwendigen Aufsättigung, ergibt sich eine Rohgastemperatur von rund 500°C. Auf diesem Niveau wird das Rohgas mittels eines ZnO-Wirbelschichtreaktors (Tabelle 8), auf ein für die Folgesysteme notwendiges Maß, entschwefelt. Das ZnO wird nach der Reaktion zu ZnS mit Sauerstoff regeneriert und im Kreislauf geführt. Zur Modellierung dieser Warmgasentschwefelung werden zwei *RSTOIC*-Blöcke genutzt, in denen die entsprechenden Gleichung für Hinreaktion (Entschwefelung) bzw. Rückreaktion (Regenerierung ZnO) hinterlegt sind. Um das Rohgas ausreichend zu entschwefeln, wird der ZnO-Umlauf durch eine *User-Routine* variiert.



Das warme Rohgas tritt anschließend in den Membranreaktor ein und wird gemäß der Wassergasshiftreaktion (Tabelle 1) konvertiert. Der Membranreaktor wird isotherm betrieben, wobei die freiwerdende Reaktionswärme vom Spülgasstrom (Stickstoff) und einer Wasserkühlung (Dampfgewinnung) aufgenommen wird. Die Modellierung des Systems wird vereinfacht als Blackbox ausgeführt. Dabei wird in Aspen Plus mittels *STOIC*-Reaktor die Shiftreaktion bis zum vorgegebenen Umsatz erzwungen und die Wärmebilanz entsprechend angepasst. Ein Teil der Wärme wird an das Spülgas übertragen, um dieses auf das Temperaturniveau des Membranreaktors zu bringen. Ein *Seperator-Bloc* trennt anschließend den Wasserstoff mit der vorgegebenen Rate und Reinheit aus dem verbleibenden Rohgas (Retentat) ab und stellt auch notwendigen Druckverlust im Permeat ein. Im letzten Schritt werden Wasserstoff und Spülgas vermischt. Da sämtliche Verunreinigungen zusammen mit dem  $\text{CO}_2$  auf der Retentatseite verbleiben, weist das Wasserstoff-Stickstoff-Gemisch bereits eine hohe Reinheit auf. Allerdings fällt der Druck, bedingt durch den Abtrennungsprozess, auf 1 bis 5 bar. Der genaue Wert richtet sich nach dem Druckniveau des Vergasers, dem Druckverlust der Gasaufbereitung und der notwendigen Triebkraft für die Wasserstoffabtrennung im Membranreaktor. Wie bereits erläutert, wird diese Triebkraft durch den Partialdruckunterschied des Wasserstoffs über die Membran bestimmt. Im MR-I-Konzept wird mittelfristig ein minimaler Wert von 5 als realisierbar betrachtet. Das Permeat muss demnach für die Nutzung in der Gasturbine verdichtet werden. Für die Verdichtung wird das Gas abgekühlt, wobei der Wärmeinhalt für die Wiedererwärmung des komprimierten Brenngases genutzt wird. Damit entfällt die im Basisfall notwendige Brenngasvorwärmung.

Das weiterhin unter hohem Druck stehende Retentat besteht größtenteils aus Kohlendioxid, Wasser, Resten aus Wasserstoff und Kohlenmonoxid sowie den enthaltenen Spurenstoffen. Der Wärmeinhalt kann in einem Abhitzedampferzeuger genutzt werden. Um die Reinheit des  $\text{CO}_2$  gemäß der festgelegten Spezifikationen (Tabelle 7) zu gewährleisten, muss das Retentat katalytisch oxidiert und anschließend weiter gereinigt werden. Dies bedingt neben zusätzlichen Elektroenergiebedarf auch einen Druckverlust im  $\text{CO}_2$ -Strom. Grundsätzlich verbleibt der Druck aber auf einem hohen Niveau, wodurch sowohl der apparative wie energetische Aufwand für die Verdichtung sinkt. Gemäß der Beschreibung kann die Anlagenstruktur des **MR-I**-Konzepts wie folgt dargestellt werden.

Im Gegensatz zum mittelfristigen Konzept, wird für die langfristige Bewertung angenommen, dass die Stabilität der Membranwerkstoffe sowohl aus thermischer wie auch mechanischer und chemischer Sicht verbessert werden kann. Dies ermöglicht eine weitere Anhebung des Temperaturniveaus im Membranreaktor. Allerdings dürfte bei höchsten

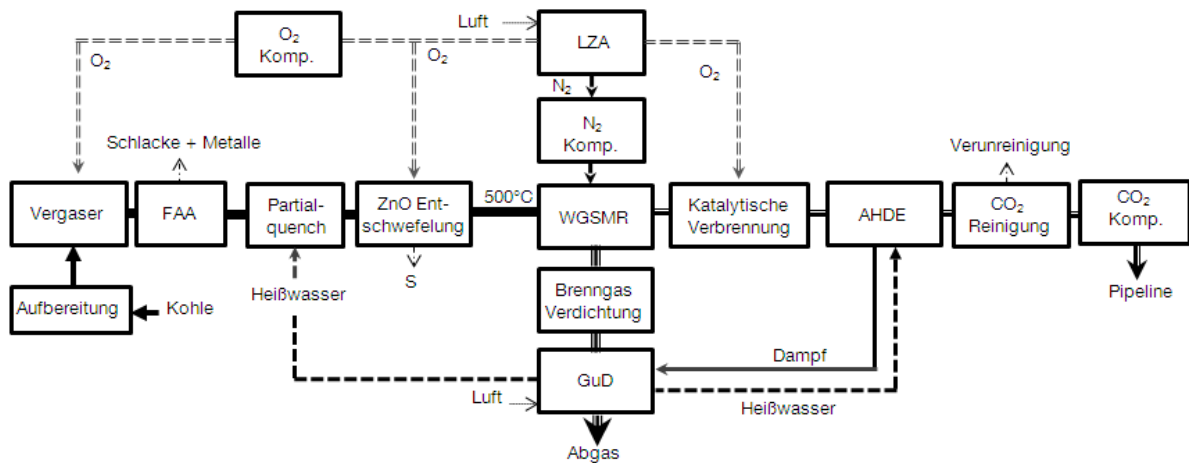


Abbildung 68: Schema der mittelfristigen Anlagenkonfiguration des MR-I-Konzepts

Temperaturen der Schwefel kaum im erforderlichen Umfang aus dem Rohgas entfernt werden können. Da aber in der Flüssigascheabscheidung Metallverbindungen und Alkalien abgetrennt werden, können diese Stoffe nicht mehr mit dem Schwefel reagieren. Damit sollte Hochtemperaturkorrosion vermieden werden. Zudem bleibt die Temperatur im gesamten System deutlich oberhalb des Schwefeltaupunktes. Damit bildet die chemische Beständigkeit des Membranreaktors, insbesondere der katalytisch wirksamen Komponenten, die entscheidende Voraussetzung für die Realisierung des Konzepts. Bei Einsatz solcher Materialien, könnte der Membranreaktor, wie beim konventionellen Fall, als Rohgas- bzw. Sourgas-Membranshiftreaktor betrieben werden. Dabei würde zunächst gänzlich auf eine Entschwefelung verzichtet und diese anschließend bei der Nachbehandlung des Retentats vollzogen. Auf diese Weise kann zusätzlich ein Teil des im  $\text{H}_2\text{S}$  gebundenen Wasserstoffs thermolytisch abspalten und zurückgewonnen werden. Allerdings sollte der Effekt erst bei Temperaturen über  $1000^\circ\text{C}$  im nennenswerten Umfang auftreten.

Im Fall des Sourgas-Betriebs würde nach der Flüssigascheabscheidung ein partieller Sattdampfquencher genutzt werden, um die geforderte Rohgassättigung zu gewährleisten und die Temperatur nicht zu weit absinken zu lassen. Bei typischen Rohgasdrücken ergibt sich dabei ein Temperaturniveau von rund  $900^\circ\text{C}$ . Der Membranreaktor wird isotherm auf diesem Temperaturniveau betrieben. Damit steigt die Temperatur des Permeats und damit des Brenngases weiter an. Zudem ermöglicht das Temperaturniveau die Produktion von überhitzten Hochdruckdampf bei der Abhitzenutzung des Retentats.

Der Systemsdruck ist eine weitere wichtige Größe, da dieser in der Membran als Triebkraft wirkt und den Verdichtungsaufwand für das  $\text{CO}_2$  reduziert. Auf lange Sicht wird daher unterstellt, dass bei Weiterentwicklung der Membranwerkstoffe, eine Reduzierung

des minimalen Partialdruckunterschiedes über die Membran von 3 realisierbar ist. Auf diese Weise steigt der Druck des Permeats. Zudem wird der Gesamtdruck im System angehoben, was eine Verstärkung dieses Effekts bewirkt. Daher wird angenommen, dass zukünftige Vergaser auch bei trockenem Kohleeintrag Betriebsdrücke von 60 bis 65 bar erreichen können. Dadurch kann das Kohlendioxid bei sehr hohen Drücken gewonnen werden, was eine direkte Kondensation nahe der Umgebungstemperatur ermöglichen sollte. Damit entfällt die energieintensive Gaskompression, da die finale Druckerhöhung durch Pumpen realisiert wird.

Entsprechend den genannten Modifikationen, ergibt sich für das langfristige Membranreaktorkonzept (**MR-II**) eine Prozessstruktur gemäß Abbildung 69. Das Potential des vorgeschlagenen Kraftwerkstyps wird nun im folgenden Abschnitt bestimmt. Ausgehend vom mittelfristigen Konzept (**MR-I**), erfolgt schrittweise die Umsetzung der aufgezeigten Optimierungsschritte hin zur langfristigen Variante (**MR-II**).

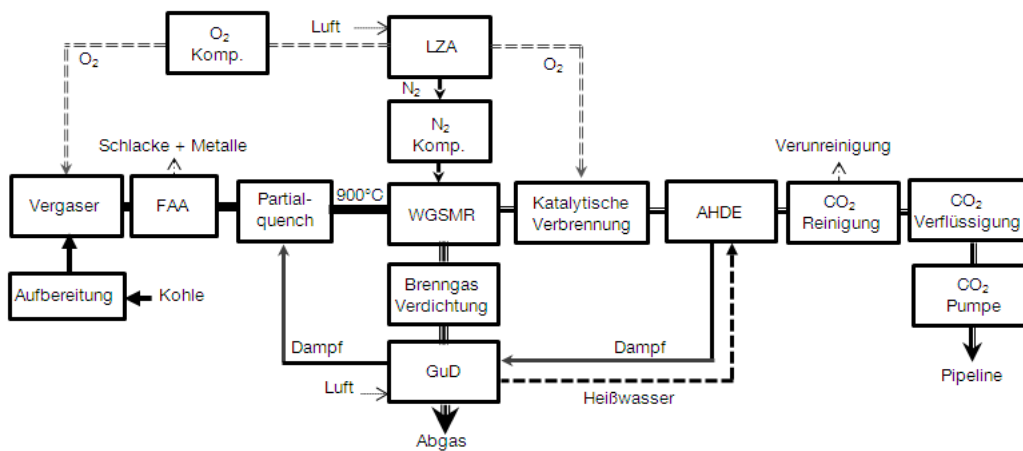


Abbildung 69: Schema der langfristigen Anlagenkonfiguration des MR-II-Konzepts

### 6.2.2 Konzeptanalyse IGCC-MR

Um die wesentlichen Zusammenhänge der neuen Kraftwerksstruktur aufzuzeigen, wird zunächst das mittelfristige MR-I-Konzept mit konventioneller kryogener Luftzerlegung und Warmgasentschwefelung analysiert. Die Simulation des Konzepts ergab einen Bruttowirkungsgrad von circa 52,9%. Dies entspricht einer deutlichen Steigerung von 3,5 %-Punkten gegenüber dem konventionellen IGCC mit Pre-Combustion CO<sub>2</sub>-Abtrennung (Basisfall). Die Brennstoffausnutzung ist demnach beim MR-I-Konzept deutlich besser als im Basisfall. Da der Eigenbedarf des Kraftwerks nur um rund 5,5% höher liegt, kann auch die

erzielbare Nettoleistung um 7,6% gesteigert werden. In Summe führt dies zu einem Nettowirkungsgrad von 41,5%, was einer Steigerung von rund 2,9 %-Punkten gegenüber dem Basisfall entspricht. Die Aufschlüsselung des Eigenbedarfs in Abbildung 70 veranschaulicht die neue Verbraucherstruktur des vorgeschlagenen IGCC-Konzepts.

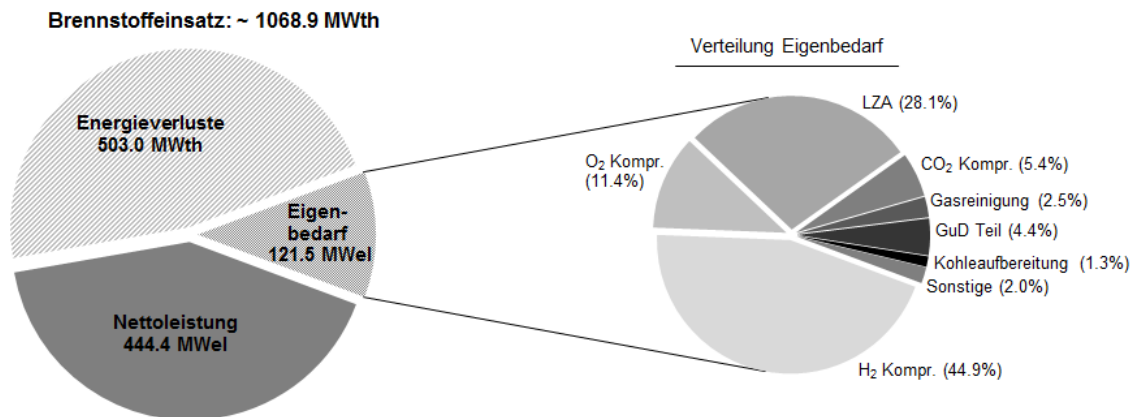


Abbildung 70: Energiebilanz des MR-I-Konzepts

Der wesentliche Verbraucher im Konzept ist nun die Brenngasverdichtung. Da im MR-Konzept Wasserstoff anstatt Kohlendioxid abgetrennt wird, verbleibt Letzteres auf hohem Druckniveau, während das Gemisch aus Wasserstoff und Spülgas (Brenngas) bei geringem Druck anfällt. Entsprechend muss das Brenngas auf das Niveau der Gasturbine verdichtet werden. Der Energiebedarf dafür beträgt rund 45% des gesamten Eigenbedarfs des Kraftwerks und richtet sich vor allem nach der notwendigen Druckdifferenz in der Membran, dem Vergaserdruck und dem Druckverhältnis der eingesetzten Gasturbine. Da der Verdünnungsstickstoff als Spülgas auf der Permeatseite eingesetzt wird, erfolgt die Verdichtung nur bis zum Permeatdruck.

Aufgrund des geringen Druckverlust, beträgt der Verdichtungsaufwand für das Kohlendioxid hingegen nur 5,4% des Kraftwerkseigenbedarfs. Da die Wertkomponente aus dem Rohgas abgetrennt wird, sinkt der Kohlenstoffschlupf im System, da sowohl unkonvertiertes CO als auch das gesamte CO<sub>2</sub> im Abgas verbleiben. Entsprechend steigt der CO<sub>2</sub>-Abtrennungsgrad auf rund 99%, was zu verbleibenden spezifischen CO<sub>2</sub>-Emissionen von 7,6 g/kWh führt. Dies stellt eine beträchtliche Reduzierung der Emissionen um 91,3% gegenüber dem IGCC-Basisfall dar.

## Einfluss der GUD-Parameter

Um das Verhalten des IGCC-Konzepts zu verdeutlichen, werden zunächst die klassischen GUD-Parameter Turbineneintrittstemperatur und Kondensatordruck variiert. Dabei zeigte sich (Abbildung 71), dass das MR-Konzept ähnlich sensitiv auf eine Variation TET reagiert wie der Basisfall. So sollte das Konzept durch Einsatz der nächsten Gasturbinengeneration Wirkungsgrade im Bereich 43% erreichen. Beim Kondensatordruck hingegen zeigt das MR-I-Konzept eine deutlich höhere Abhängigkeit aufgrund des größeren Anteils (38% gegenüber 35,5% beim Basisfall) der Dampfturbine an der Gesamtleistung. Hier ist also der Standort und die damit verbundenen Rückkühlungsmöglichkeiten von besonderer Bedeutung und ermöglichen bei besten Voraussetzungen Nettowirkungsgrade von deutlich über 42%.

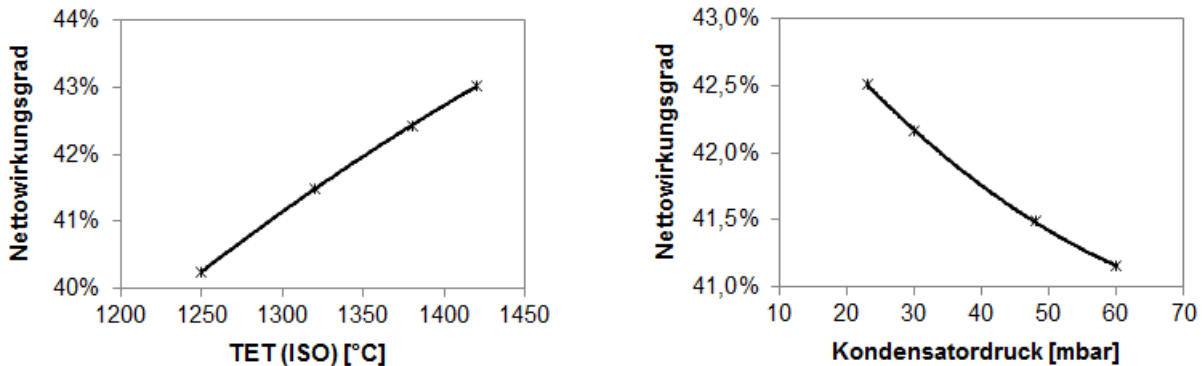


Abbildung 71: Einfluss TET und Kondensatordruck auf Anlagenwirkungsgrad

## Einfluss der Druckdifferenz über Membran und Gasturbine

Für den Einsatz einer Membran muss auf der Permeatseite ein geringerer Partialdruck der abzutrennenden Komponente vorliegen als im Rohgas (Retentatseite). Da für die Gasturbine das Brenngas typischerweise mit 20 bis 30 bar vorliegen muss, ist eine geringe Absolutdruckdifferenz erstrebenswert, um den Kompressionsaufwand zu minimieren. Da aber im MR-I Konzept das Brenngasgemisch zu rund 50 Mol-% aus Wasserstoff bestehen soll, ist die Menge an Spülgas (Stickstoff) festgelegt. Das Spülgas allein, führt damit bereits zu einer minimalen Partialdruckdifferenz über die Membran von 2. Dies wird wohl aber auch zukünftig nicht ausreichend sein, um mit praktikabler Membranfläche vernünftige Abtrennungsraten zu erzielen. Daher wird der Absolutdruck so abgesenkt, dass der Partialdruckunterschied wenigstens bei 5 liegt. Bereits bei diesem optimistischen Wert,

verdeutlicht die Energiebilanz (Abbildung 70) den enormen Energiebedarf des Brenngaskompressors der neben dem Wasserstoff auch das Spülgas verdichten muss. Folglich sinkt bei der Erhöhung der Differenz der Wirkungsgrad des Kraftwerks, wie in Abbildung 72 zu sehen ist.

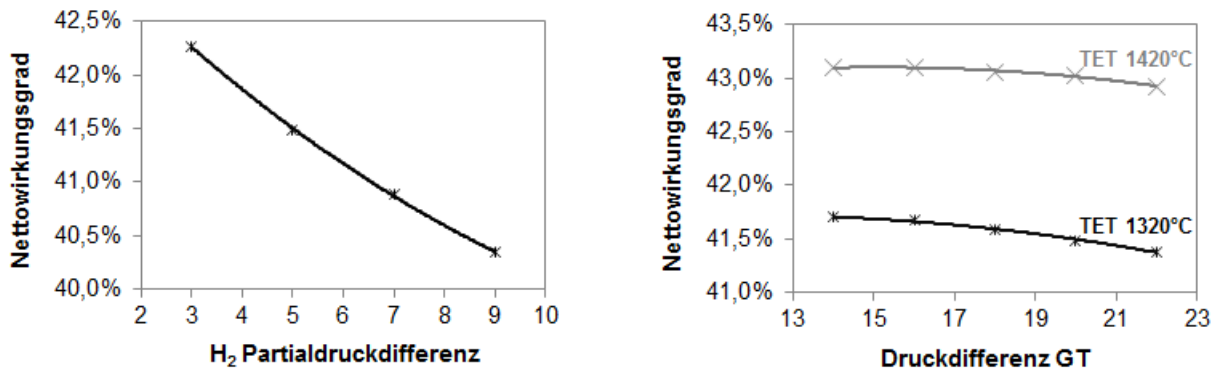


Abbildung 72: Einfluss der Druckdifferenz über Membran und Gasturbine auf den Anlagenwirkungsgrad

Allerdings reduziert sich damit auch die Membranfläche, was mit entsprechenden Kosteneinsparungen einhergehen sollte. Eine Alternative wäre die vollständige Zumischung des zur Verfügung stehenden Stickstoffs aus der Luftzerlegungsanlage. In diesem Fall sinkt der Wasserstoffgehalt im Brenngas auf rund 40 Mol-% ab, was bei gleicher Partialdruckdifferenz den Kompressionsaufwand verringert und den Massenstrom über die Turbine erhöht. Entsprechend steigt die Bruttoleistung des Kraftwerks um 6,5%. Da nun aber mehr Stickstoff verdichtet werden muss, steigt auch der Eigenbedarf um 9,5%. In Summe führt die vollständige stickstoffseitige Integration zu einer Wirkungsgradsteigerung von 0,13 %-Punkten. Allerdings verändern sich die Brenngaseigenschaften, was gegebenenfalls eine Anpassung der Gasturbine erforderlich macht. So reduziert sich der Heizwert um 30% auf  $5657 \frac{kJ}{kg}$  und der Brenngasmassenstrom erhöht sich um rund 43%.

Die Brenngasverdichtung wirkt sich außerdem auch auf das ideale Druckniveau der Gasturbine aus. Wie in Abbildung 72 ersichtlich, ergeben sich nicht mehr die typischen, gekrümmten Verläufe, welche die optimale Kombination von TET und Druckverhältnis aufzeigt. Stattdessen, ist der Verlauf flach mit fallender Tendenz hin zu größeren Druckverhältnissen. Im MR-Konzept ist daher aus energetischer Sicht ein geringes Druckniveau in der Gasturbine anzustreben, wenngleich der erzielbare Einfluss auf den Wirkungsgrad vergleichsweise gering ist.

## Einfluss des Systemdruck

Während sich beim Basisfall der Vergaserdruck nach der Gasturbine richtet, besteht beim MR-I-Konzept keine solche Abhängigkeit. Da der Brenngasdruck über einen unabhängigen Kompressor eingestellt wird, kann der Vergaserdruck frei gewählt werden. Allerdings wurde bereits aufgezeigt (Abbildung 72), dass ein hoher Druck zu einer Erhöhung der Partialdruckdifferenz über die Membran führt und damit den Wirkungsgrad des Kraftwerks erhöht. Zusätzlich hat der Systemdruck direkten Einfluss auf den Energiebedarf der CO<sub>2</sub>-Kompression. Da aus dem verbleibenden Retentatstrom das Kohlendioxid gewonnen wird, bedeutet ein hoher Ausgangsdruck einen geringeren Verdichtungsaufwand und kleineren Kompressor. Der Zusammenhang zwischen Kompressionsaufwand und Retentatdruck ist in Abbildung 73 zu sehen.

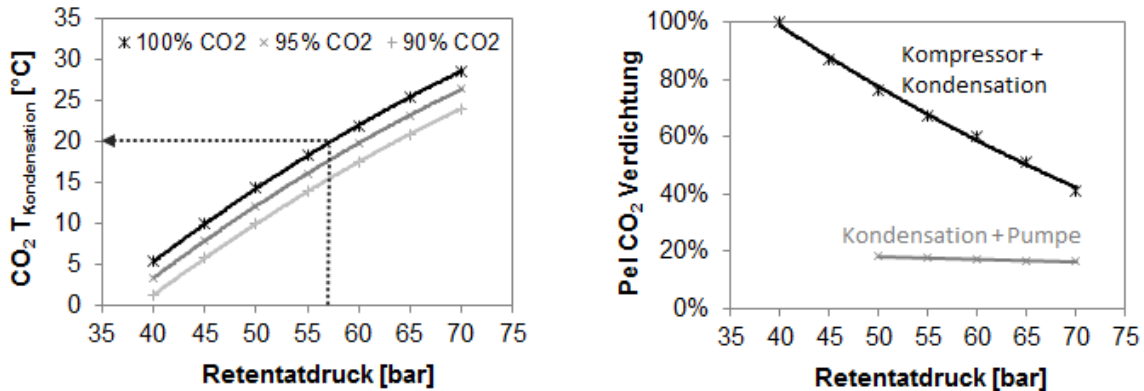


Abbildung 73: Einfluss Retentatdruck auf CO<sub>2</sub>-Kondensation und Verdichtung

Neben der klassischen Verdichtung bieten höchste Retentatdrücke ab 40 bar die Möglichkeit das CO<sub>2</sub> zunächst zu kondensieren und anschließend die Druckerhöhung durch Pumpen zu realisieren. Der Energiebedarf für die CO<sub>2</sub>-Verdichtung sinkt damit um den Faktor 2,5 bis 4. Allerdings erfordert die direkte Kondensation einen Wärmeentzug auf einem recht niedrigem Temperaturniveau. Gemäß Abbildung 73 sollte daher der Druck oberhalb von 55 bar liegen, um bei vertretbarer Grädigkeit noch Kühl- oder Flusswasser einsetzen zu können. Da zudem Störstoffe den Partialdruck und damit die Kondensationstemperatur herabsetzen, sollte das Kohlendioxid möglichst rein sein. Im Konzept verbleiben aber alle Verunreinigung, Spurstoffe wie Inertgase, im Retentat. Um transportfähiges Kohlendioxid zu gewinnen (Tabelle 19), ist daher eine Aufbereitung notwendig. Insbesondere überschüssiges Wasser aus der Konvertierung, sowie Reste von Sauerstoff und brennbaren Spezies gilt es auf die jeweiligen Grenzwerte zu reduzieren. Dies bedingt

zusätzlichen apparativen Aufwand und ist zudem mit einem gewissen Druckverlust und auch Kohlendioxidschlupf verbunden. Hier zeigt sich ein klarer Nachteil im Vergleich zum Basisfall mit klassischer Sauergaswäsche, welche sehr reines Kohlendioxid liefert.

### 6.2.3 Potentialabschätzung IGCC-MR

Wie bereits gezeigt, ermöglicht der Einsatz eines Membran-Shift-Reaktors sowohl die Umsetzung einer Warmgasreinigung als auch eine verbesserte Abhitzennutzung der Shiftreaktion sowie CO<sub>2</sub>-Abtrennung. Im folgenden Kapitel soll nun das weitere Potential des MR-Konzepts untersucht werden. Die sich ergebenden Anlagenwirkungsgrade für ausgewählte Optimierungsschritte sind in Abbildung 74 zusammengestellt und werden im Folgenden diskutiert.

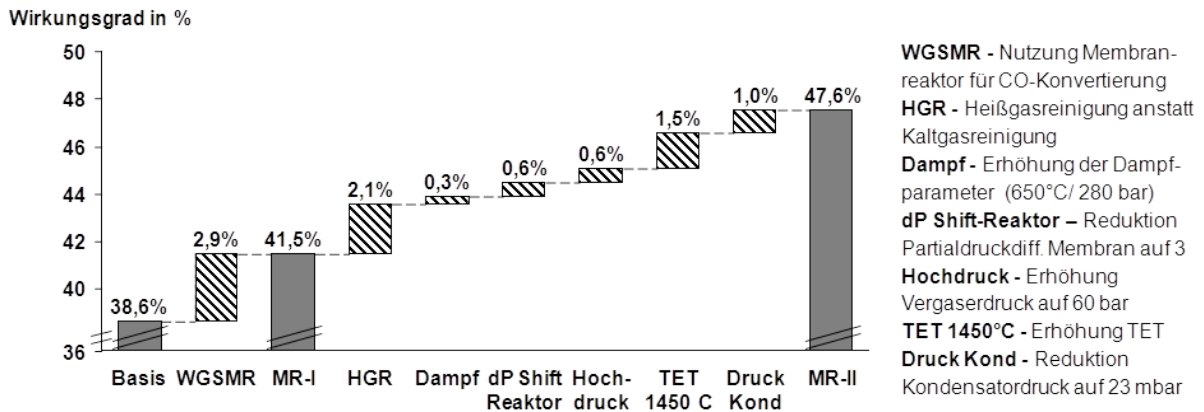


Abbildung 74: Potentialanalyse des MR-Konzepts

In der bisherigen Betrachtung wird davon ausgegangen, dass eine Entschwefelung vor dem Membranreaktor notwendig ist. Wenngleich dies aktuell der Fall ist, so wird an chemisch resistenteren Werkstoffen geforscht. Daher soll unterstellt werden, dass zukünftig auch im Membranreaktoren eine Rohgaskonvertierung möglich sein sollte. Aufgrund des hohen Temperaturniveaus wird es zu keiner Kondensation kommen und die Abtrennung der Alkalien durch die Flüssigascheabscheidung sollte Hochtemperaturkorrosion vermeiden. Allerdings ist dafür sowohl ein resistenter Membranwerkstoff als auch Katalysator notwendig. Existiert Beides, stellt sich noch die Frage nach dem zulässigen und erreichbaren Temperaturniveau. Um das vollständige Potential zu verdeutlichen, wird das Rohgas mit 900°C zugeführt. Um bei dieser Temperatur ausreichend Wasser ins Rohgas zu bekommen, muss im Partialquench anstatt Heißwasser, Sattdampf genutzt werden. Die Produkt-



ströme des Membranreaktors werden anschließend im AHDE zur Produktion von überhitztem Dampf genutzt. Die Entschwefelung findet nun in der Retentat-Nachbehandlung bei niedrigerer Temperatur statt.

Aufgrund der verbesserten Abwärmenutzung beim Hochtemperatur-Membranreaktor, zeigte die Simulation des Konzepts (**HGR**) einen deutlichen Anstieg der Dampfturbinenleistung. Dadurch steigt der Bruttowirkungsgrad im Vergleich mit der Warmgasreinigung (**WGSMR**) deutlich um 2,1 %-Punkte auf 55%. Durch die höhere Betriebstemperatur kann die Enthalpie des Brenngases (Wasserstoff-Stickstoff-Gemisch) für die Wärmerückgewinnung genutzt werden. Die Zuführung des Gases zur Gasturbine erfolgt dann aus Materialgründen mit 500°C. Beide Produktströme erlauben aufgrund des höheren Temperaturniveaus zudem die Produktion von überhitztem Hochdruckdampf. Außerdem wird die Reaktionsenthalpie der CO-Konvertierung überwiegend für die Aufwärmung des Spülgases auf das hohe Temperaturniveau genutzt. Somit kann durch Einsatz von MD-Sattdampf im Partialquench, im AHDE nach dem Membranreaktor höherwertiger, überhitzter Hochdruckdampf gewonnen werden. Da die Umstellung auf eine wirkliche Heißgasreinigung kaum einen Einfluss auf den elektrischen Eigenbedarf des Kraftwerks hat, steigt der Nettowirkungsgrad um 2,1 %-Punkte auf 43,6%. Damit lässt sich das Wirkungsgradpotential der Heißgasreinigung bei sonst gleichen Randbedingungen mit rund 5 %-Punkten gegenüber dem IGCC-Basisfall mit Kaltgasreinigung beziffern.

Die Anhebung des Temperaturniveaus der Abhitzedampferzeugung ermöglicht auch eine Anhebung der Dampfparameter auf überkritische Zustände. In der Konzeptvariation (**Dampf**), werden die Frischdampfparameter nun auf 280 bar und 650°C gesteigert. Da im GUD die Dampftemperaturen auf unter 600°C limitiert sind, dient die Gasinsel aufgrund des hohen Temperaturniveaus zur Überhitzung. Durch diese Maßnahme kann die Leistung des Dampfkreislaufs um 2,1% gesteigert werden, was zu einer Wirkungsgradsteigerung des Kraftwerks um 0,3 %-Punkte führt.

Wie bereits hervorgehoben, spielt der Druck im MR-Konzept eine entscheidende Rolle. Je höher der Druck des Rohgases, umso höher auch der Partialdruck des Wasserstoffs und damit die Triebkraft über die Membran. Somit lässt sich entweder die Abtrennungsleistung erhöhen oder bei gleicher Partialdruckdifferenz der Permeatdruck. Dies führt zu einer Verringerung des Energieaufwands in der Brenngasverdichtung. Der gleiche Effekt kann durch ein Absenken des Partialdruckgefälles in der Membran selbst erzielt werden. Daher wird der Einfluss einer Absenkung des H<sub>2</sub>-Partialdruckunterschieds zwischen Rohgas- und Permeatseite von 5 auf 3 untersucht. Die Simulation des Konzepts (**dp Shiftreaktor**) zeigt dabei eine Reduzierung des Kraftwerkseigenbedarfs um 9,7%, was zu einer Wirkungsgradsteigerung von 0,6 %-Punkten führt. Durch die geringere Partialdruckdifferenz kann der

Permeatdruck bei gegebenem Rohgasdruck um 60% angehoben werden, was den Verdichtungsaufwand des Brenngases verringert (-11,6%) und damit die Effizienz des Kraftwerks erhöht.

Einen ähnlichen Effekt hat auch die Erhöhung des Rohgasdrucks und damit des Vergaserdrucks. Dieser wird in einer Hochdruck-Variante (**Hochdruck**) von 45 auf 60 bar angehoben. Das Druckniveau entspricht bei pneumatischer Brennstoffzuführung gegenwärtig nicht dem Stand der Technik. Allerdings könnten Alternativen, wie die Feststoffpumpe, zukünftig auch bei trockener Brennstoffzuführung diese Vergaserdrücke ermöglichen. Somit steigt bei gleichem Partialdruckgefälle (3) im Membranreaktor der Permeatdruck um fast 31% an, wodurch sich der Eigenbedarf der Brenngasverdichtung um 7,4% verringert. Zudem wird das Kohlendioxid nun auf höherem Druckniveau gewonnen, was trotz Druckverlustes in der Aufbereitung, die direkte Kondensation nahe Umgebungstemperatur erlauben sollte. Die anschließende finale Druckerhöhung über Pumpen verringert den Eigenbedarf zusätzlich. In Summe führen die Einsparungen zu einem Anstieg des Anlagenwirkungsgrades um 0,6%-Punkte auf 45,1%.

Trotz des längerfristigen Zeithorizontes nutzt das MR-Konzept weiterhin die konventionelle kryogene Luftzerlegung. Eine Prozessvariation mit OTM erzielte in der Simulation, sowohl in luftseitig unabhängiger wie integrierter Form, keinen nennenswerten energetischen Vorteil. Der Grund dafür, liegt in der starken stickstoffseitigen Integration. Die Nutzung als Spülgas bedingt aber eine hohe Reinheit und damit hohen Verdichtungsaufwand in der OTM. Auch die in Kapitel 6.1 diskutierte zweistufige Ausführung bringt hier keine wesentliche Verbesserung des Anlagenwirkungsgrades. Ein Einsatz der OTM scheint im vorliegenden MR-Konzept daher allenfalls aus ökonomischer oder betriebstechnischer Sicht sinnvoll zu sein. Zudem erhöht die direkte Luftvorwärmung, durch Verbrennung von Brenngas, den CO<sub>2</sub>-Schlupf und damit die spezifischen CO<sub>2</sub>-Emissionen. Im konkreten Fall steigen diese um gut 60%, wenngleich auf geringem Niveau.

Neben den konzeptspezifischen Optimierungsschritten soll abschließend noch auf die zusätzlichen klassischen Optimierungsansätze, insbesondere der Anhebung der Turbinen-eintrittstemperatur und Absenkung des Kondensatordrucks hingewiesen werden. Unterstellt man im MR-Konzept zukünftig eine TET von 1420°C (ISO), steigt der Wirkungsgrad um 1,5 %-Punkte (**TET 1450°C**). Aufgrund der höheren Abgastemperatur bei gleichbleibendem Druckverhältnis, steigt mit der Anhebung nicht nur die Gasturbinenleistung, sondern auch die erzielbaren Frischdampfparameter. Durch die Anhebung auf 300 bar und 670°C erhöht sich die Leistung der Dampfturbinen um 5%. Nimmt man nun noch optimale Rückkühlungsverhältnisse im Kondensator (**Druck Kond**) an, steigt die Dampfturbinenleistung um weitere 4,3%. Somit sind bei dem vorgeschlagenem MR-II-Konzept langfristig

Nettowirkungsgrade im Bereich von 47,6% möglich und dies bei geringsten spezifischen CO<sub>2</sub>-Emissionen von 6,6 Gramm je Kilowattstunde.

### 6.3 IGCC mit Carbonate Looping

Neben den Pre-Combustion IGCC-Konzepten soll an dieser Stelle ein Ansatz analysiert werden, welcher Kohlendioxid aus dem Rauchgas der Gasturbine abtrennt. Im Gegensatz zu anderen Studien wird dafür keine Wäsche sondern das Carbonate Looping Verfahren eingesetzt. Aufgrund der neuartigen Kombination dieses CL-Konzepts, wird zunächst eine Basiskonfiguration analysiert, welche dann sukzessive optimiert wird. Dabei liegt der Fokus neben der Heißgasreinigung auch auf der Integration der membranbasierten Luftzerlegung. Das Potential des vorgeschlagenen CI-Konzepts wird im Folgenden bestimmt und mit dem IGCC-Basisfall verglichen.

#### 6.3.1 Konzeptbeschreibung

Im Gegensatz zu den bisherigen IGCC-Konzepten ist im CL-Konzept weder CO-Shift noch CO<sub>2</sub>-Wäsche Bestandteil der Rohgasaufbereitung. Das Rohgas muss daher nicht mit Wasser gesättigt werden, wodurch die physikalische Enthalpie vollständig zur Abhitze-dampfgewinnung genutzt werden kann (Rogas-AHDE). Aufgrund des hohen Temperaturniveaus kann hier überkritischer Dampf gewonnen werden. In der Basiskonfiguration (CL-I-Konzept) wird der Carbonate Looping Prozess zunächst an die Gasturbine eines sonst überwiegend konventionellen IGCC-Kraftwerk ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung angehängt (Abbildung 75).

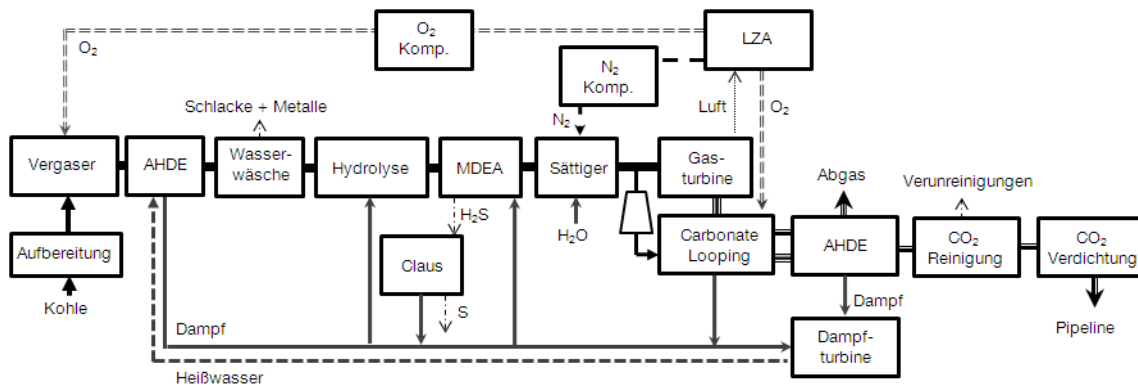


Abbildung 75: Schema der mittelfristigen Anlagenkonfiguration des CL-I-Konzepts

Analog besteht daher die Gasaufbereitung aus einer Partikelabtrennung, einer Wasserwäsche sowie der Entschwefelung via MDEA-Wäsche. Aufgrund der unvollständigen COS-Abtrennung ist eine Hydrolysestufe vorgeschaltet. Der abgetrennte Schwefel wird in einem Claus-Prozess zurückgewonnen. Die kryogene Luftzerlegungsanlage ist vollintegriert und nutzt einen Teil der Luft des Gasturbinenkompressors. Der entstehende Stickstoff wird im vollem Umfang dem Brenngas vor der Gasturbine zugemischt. Das Gasturbinenabgas wird direkt im nachfolgenden Karbonisierungsreaktor von  $\text{CO}_2$  befreit. Aufgrund des hohen Temperaturniveaus kann die Reaktionswärme des Prozesses in Form von überkritischem Dampf (250 bar,  $630^\circ\text{C}$ ) genutzt werden. Das Reaktionsprodukt ( $\text{CaCO}_3$ ) wird anschließend erwärmt und thermisch regeneriert. Modelltechnisch werden Karbonisierungs- sowie Kalzinierungsreaktor durch *STOIC*-Blöcke simuliert, für die Reaktion und Umsatz hinterlegt sind. Eine *User-Routine* variiert den Feststoffumlauf ( $\text{CaO}$ ) bis im Abgas das  $\text{CO}_2$  nahezu entfernt ist. Dabei wird kontinuierlich ein Teil des Feststoffs erneuert, um die unvollständige Regenerierung und die thermische wie mechanische Abnutzung des Materials zu kompensieren.

Zur Bereitstellung der für die Regenerierung erforderlichen Wärmemenge, wird ein Teil des Brenngases vor der Gasturbine abgetrennt, entspannt und mit Sauerstoff verbrannt. Zur Moderierung der Verbrennungstemperatur wird ein Teil des freigewordenen und abgekühlten  $\text{CO}_2$  rezirkuliert. Der Wärmeinhalt des restlichen Kohlendioxids, sowie des verbleibenden Rauchgases, kann im Abhitzedampferzeuger genutzt werden. Das kalte Kohlendioxid wird anschließend aufbereitet und verdichtet. Wie in Kapitel 1.4 erwähnt, weist es eine geringere Reinheit auf, weshalb ein zusätzlicher Energiebedarf für die Aufbereitung berücksichtigt wird.

Zur Verdeutlichung des langfristigen Potentials des CL-Konzepts wird die beschriebene Basiskonfiguration durch weitere technologische Anpassungen optimiert. Die einzelnen Schritte umfassen die Einführung einer Warm- sowie Heißgasreinigung sowie die Substitution der kryogenen LZA durch ein OTM-Modul. Durch Kombination des Konzepts mit der Warmgasreinigung (**WGR**) entfallen die Komponenten Wasserwäsche, Hydrolyse, MDEA sowie die Claus-Anlage. Das heiße Rohgas wird zunächst mittels Flüssigascheabscheidung von Partikeln, Alkalien und Metallen befreit. Im weiteren Verlauf erfolgt aber die Abkühlung auf ein mittleres Temperaturniveau von  $550^\circ\text{C}$  um mittels  $\text{ZnO}$  eine trockene Entschwefelung durchführen zu können. Das Brenngas kann anschließend mit deutlich höherer Temperatur der Brennkammer bzw. der Entspannungsturbine zugeführt werden.

Da der Carbonate Looping Prozess neben dem Kohlendioxid auch Schwefelkomponenten in Form von Kalziumsulfat bindet, ermöglicht das vorgeschlagene CL-Konzept grundsätzlich auch eine nachgeschaltete Entschwefelung (**HGR**). Auf diese Weise kann

die chemische Energie der vornehmlich als  $H_2S$  und  $COS$  vorliegenden Schwefelverbindungen in der Gasturbine genutzt werden. Auch hier wird angenommen, dass durch Einsatz der Flüssigascheabscheidung die Alkalienkonzentration ausreichend gesenkt und damit Hochtemperaturkorrosion vermieden wird. Damit entfällt grundsätzlich auch die Notwendigkeit das Rohgas auf ein mittleres Temperaturniveau abkühlen zu müssen. Da aber eine allzu heiße Zuführung des Gases zur Brennkammer auch längerfristig unwahrscheinlich erscheint, wird dieser Gasstrom weiterhin auf  $500^\circ C$  abgekühlt. Allerdings besteht diese Restriktion nicht im Fall der Entspannungsturbine, weshalb dieser das Brenngas mit  $1000^\circ C$  zugeführt wird. Abschließend wird für die endgültige Konzeptkonfiguration die membranbasierte Luftzerlegung integriert. Bei dieser OTM-Variante (**OTM**) wird die notwendige Luft ebenfalls in vollem Umfang aus dem Gasturbinenverdichter entnommen. Ein Teil des heißen Sauerstoffs wird direkt für die Regeneration im Carbonate Looping Prozess verwendet, während der Vergasungssauerstoff zunächst zur Vorheizung der eintretenden Luft dient und anschließend weiter gekühlt und verdichtet wird. Die ausgelaugte Luft dient ebenfalls der Vorwärmung der Eintrittsluft und wird anschließend in der Gasturbine genutzt. Da weder Verdünnungstickstoff anfällt, noch das Temperaturniveau des Brenngases eine Wasserstättigung erlaubt, wird dieses unverdünnt verbrannt. Das Konzept aus IGCC mit OTM und Post-Combustion capture via Carbonate Looping vereinfacht sich demnach zu der in Abbildung 76 dargestellten Anlagenkonfiguration.

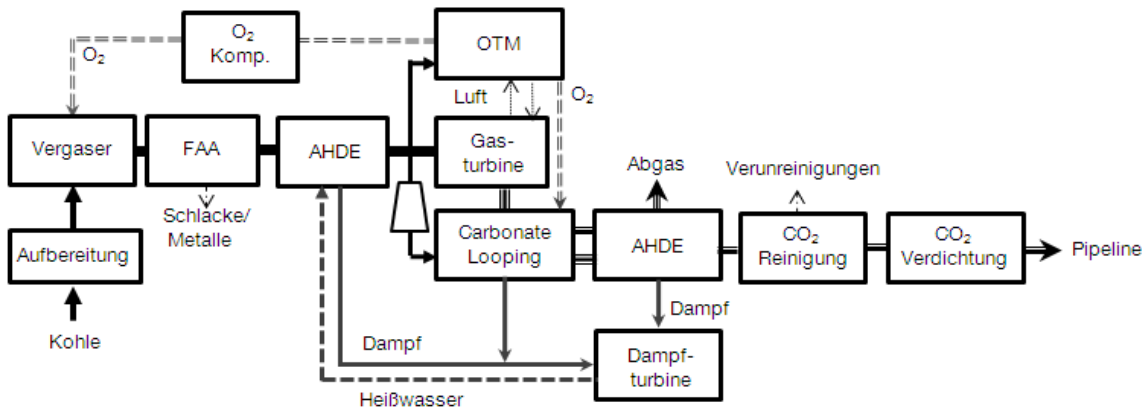


Abbildung 76: Schema der langfristigen Anlagenkonfiguration des CL-II-Konzepts

### 6.3.2 Konzeptanalyse IGCC-CL

Das CL-Konzept erreicht in seiner Grundkonfiguration mit konventioneller kryogener Luftzerlegung und Kaltgasreinigung einen Bruttowirkungsgrad von 51,6%. Das entspricht einer

Steigerung von 2,2 %-Punkten gegenüber dem Basisfall. Der vorgeschlagene Prozess nutzt demnach die Brennstoffenergie besser als das klassische IGCC. Allerdings bedingt die stickstoffseitige Vollintegration einen beträchtlichen Anstieg im Eigenbedarf des Konzepts (77). Dies führt dazu, dass der Nettowirkungsgrad mit 40,6% nur um rund 2 %-Punkte über dem Basisfall liegt. Vergleicht man diesen Anlagenwirkungsgrad mit dem des Basisfalls bei integrierter LZA, sinkt das Potential auf 1,7 %-Punkte. Wie bereits in Kapitel 5.5 verdeutlicht, ist die CO-Konvertierung mit hohen Exergieverlusten verbunden. Die Vermeidung dieser Verluste führt im CL-Konzept zu einem Anstieg des nutzbaren Brenngas-Heizwertstroms um 13,8%. Zudem wird eine Abtrennung des unter Druck stehenden Gases vermieden, was den Massenstrom durch die Turbine und damit die Leistung erhöht. Beide Faktoren bewirken daher eine effizientere Ausnutzung der Brennstoffenergie, was sich in der genannten Bruttowirkungsgradsteigerung widerspiegelt.

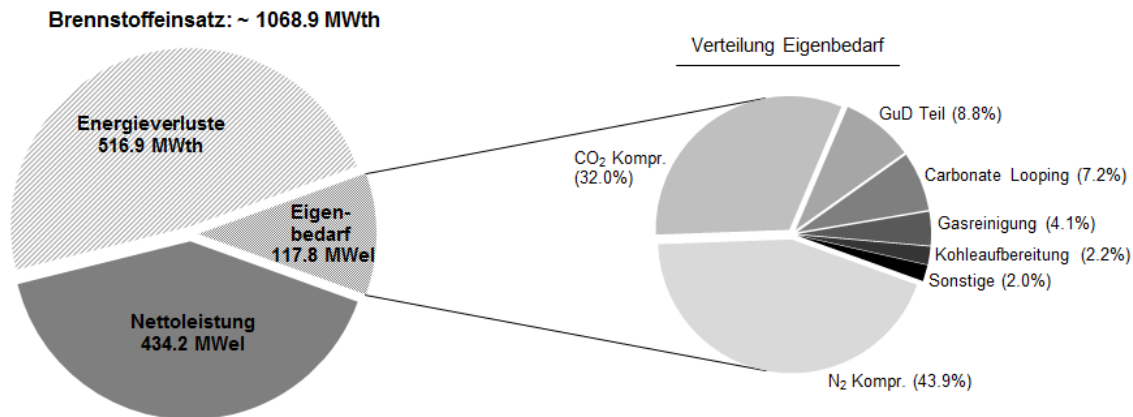


Abbildung 77: Energiebilanz des CL-I-Konzepts

Ein Nachteil beim Pre-Combustion-Ansatz sind die unvollständige CO-Konvertierung und CO<sub>2</sub>-Abtrennung, was zu einem Kohlenstoffschlupf von 5 bis 10% führt. Das CL-Konzept hingegen ermöglicht Abscheidungsraten von rund 98%. Dies führt zu spezifischen CO<sub>2</sub>-Emission im Bereich von 18,8 g/kWh, was einer Reduktion von fast 80% gegenüber dem Basisfall entspricht. Der verbleibende Schlupf wird vor allem durch unvollständigen Kohlenstoffumsatz im Vergaser, die Lösung von Kohlendioxid in Prozesswasser sowie die teilweise permanente Bindung als Karbonat verursacht. Der damit insgesamt höhere CO<sub>2</sub>-Massenstrom ist auch ein Grund für den hohen Eigenbedarf des CO<sub>2</sub>-Kompressors. Zudem wird das CO<sub>2</sub> auf einem geringeren Druckniveau frei und weist einen höheren Grad an Verunreinigungen auf. Dadurch steigt auch der spezifische Energieaufwand der Verdichtung um gut 20% gegenüber dem Vergleichsfall. Auch nach Kondensation der Feuchte erreicht

die CO<sub>2</sub>-Reinheit typischerweise nur rund 98%. Während die verbleibenden Anteile von Stickstoff und Argon wenig kritisch sind, ist die Konzentration von Sauerstoff gemäß der Anforderungen in Tabelle 7 zu begrenzen. Je nach Verwendung ist demnach eine weitere Aufbereitung, mit dem damit verbundenem energetischem und apparatetechnischem Aufwand, notwendig. Dieser wird in der vorliegenden Arbeit nicht detailliert betrachtet, sondern nur vereinfacht über einen CO<sub>2</sub>-Druckverlust von 5 bar und zusätzlichem Eigenbedarf (3 MWe) erfasst. Wenngleich die energieintensive Sauer gaswäsche des Basisfalls durch den Carbonate Looping Prozess ersetzt wird, so verursacht auch dieser, durch die Umwälzung des großen Feststoffstroms und der CO<sub>2</sub>-Rezirkulierung, einen signifikanten Energiebedarf (Abbildung 77). Es ergibt sich dadurch ein spezifischer Elektroenergiebedarf von 0,028 kWh pro Kilogramm an abgetrennten CO<sub>2</sub>, was aber immer noch eine Reduktion von 37% gegenüber dem Basisfall darstellt.

Da es sich insbesondere bei dem langfristigen CL-II-Konzept um eine neuartige Kombination von zukünftigen Technologien handelt, die zudem noch stark integriert sind, ist es wichtig die bestehenden gegenseitigen Abhängigkeiten einzelner Prozessparameter hervorzuheben. Das Brenngas wird im Gegensatz zum Basisfall in drei Teile aufgeteilt, wovon nur rund 62% direkt in der Gasturbine genutzt werden. Rund 1,5% des Brenngases werden in der OTM benötigt, um die komprimierte Luft nach dem internen Wärmetausch mit den Produktströmen auf die finale Eintrittstemperatur von 850°C zu erhitzen. Die genaue Brenngasmenge richtet sich nach der Verdichterendtemperatur, welche vom Druckverhältnis der Gasturbine abhängig ist. Außerdem ist die zu erwärmende Luftmenge ausschlaggebend, welche bei einem konstantem Sauerstoffbedarf durch den realisierten Abtrennungsgrad des OTM-Moduls bestimmt wird. Die verbleibenden 36,5% des Brenngases dienen der Wärmebereitstellung, für die Regenerierung des Kalziumkarbonats im Kalzinierungsprozess. Aufgrund der Brenngasaufteilung und vermehrter Dampfproduktion (Abhitzenutzung), verschiebt sich das Verhältnis der Leistungsabgabe von der Gasturbine zur Dampfturbine. Während im Basisfall das Verhältnis von Gas- zu Dampfturbinenleistung bei rund 1.8 liegt, fällt dieses beim CL-Konzept auf circa 0,6 ab. Damit reduziert sich die in Kapitel 5.5 hervorgehobene Abhängigkeit der IGCC-Performance von der Gasturbine.

### **Einfluss der GUD-Parameter**

Trotz der geringeren Bedeutung der Gasturbine im CL-Konzept, soll im folgenden Abschnitt zunächst der Einfluss deren Parameter herausgestellt werden. Dazu wird sowohl die Turbineneintrittstemperatur als auch das Druckverhältnis variiert und der entsprechende Anlagenwirkungsgrad ermittelt. Wie in Abbildung 78 ersichtlich, ist die Anhebung der TET mit einer deutlichen Steigerung des Wirkungsgrades verbunden. Allerdings ist der

Einfluss aufgrund der Brenngasaufteilung im Vergleich zum Basisfall weniger stark. Es ergeben sich nicht die typischen, gekrümmten Verläufe sondern eher flache Verläufe mit tendenziell steigendem Wirkungsgrad bei zunehmenden Druckverhältnis. Zudem verschiebt sich der optimale Bereich bei gegebener TET hin zu deutlich höheren Druckverhältnissen. Bei höchsten Temperaturen ergeben sich so Anforderungen an den Vergaserdruck, welcher bei trockenem Kohleeintrag gegenwärtig nicht realisierbar ist.

Neben der Gasturbine soll nun auch der Dampfkreislauf kurz betrachtet werden. So konnte in der Simulation ein besonders starker Einfluss des Kondensatordrucks auf den Anlagenwirkungsgrad nachgewiesen werden. Der gestiegene Leistungsanteil des Dampfkreislaufs im Kraftwerk, führt zu einer größeren Abhängigkeit hinsichtlich der möglichen Rückkühlungsmethode und damit auch des Kraftwerksstandorts.

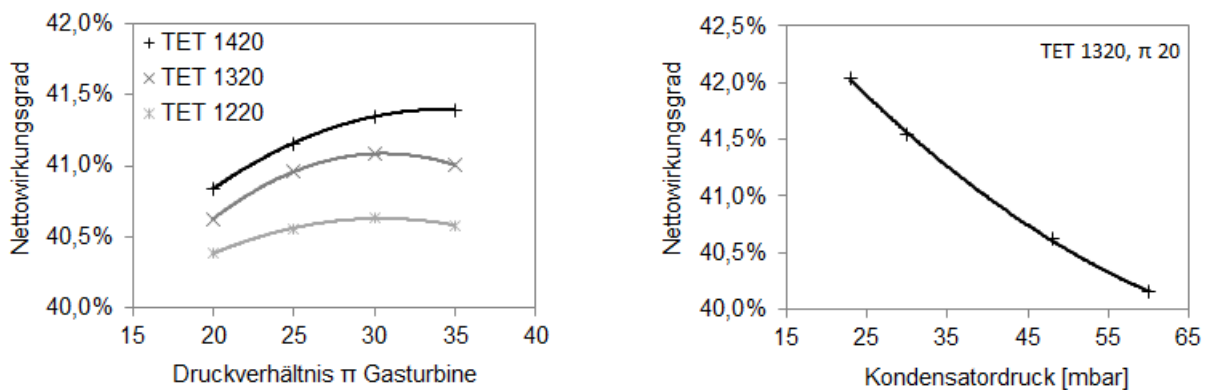


Abbildung 78: Einfluss der GUD-Parameter auf den Anlagenwirkungsgrad

### Einfluss der CO<sub>2</sub>-Abtrennungsrate

Wie beim klassischen IGCC, hat auch im CL-Konzept der CO<sub>2</sub>-Abtrennungsgrad einen signifikanten Einfluss auf den erzielbaren Anlagenwirkungsgrad. Erhöht man die Abtrennungsrate, steigt zwangsläufig der notwendige Feststoffumlauf (Kalziumoxid) und damit auch der Energieaufwand für dessen Regeneration. Entsprechend muss hier mehr Brenngas eingesetzt werden, wodurch weniger Brenngas für die Gasturbine zur Verfügung steht. Dies erfordert wiederum mehr Sauerstoff und erhöht den, mit dessen Bereitstellung verbundenen, Energiebedarf. Letztlich muss bei erhöhter Abtrennung auch ein größerer CO<sub>2</sub>-Massenstrom aufbereitet und verdichtet werden. Der sich in Summe daraus ergebende Einfluss auf den Anlagenwirkungsgrad ist beispielhaft in Abbildung 79 dargestellt. Es zeigt sich, dass das vorgeschlagene Konzept (CL-I) höchste Abtrennungsraten erreicht und bei



einer Reduzierung dieser, auf das Niveau des IGCC-Basisfalls (90% CO<sub>2</sub>-Abtrennung), eine Wirkungsgradsteigerung von rund 0,83 %-Punkte möglich ist. Ein solches Kraftwerk kann demnach geringste CO<sub>2</sub>-Restemissionen erreichen oder bei gegebenen Abtrennungsraten von 90% (Basisfall) noch zusätzliche Effizienzsteigerungen realisieren. Da im Konzept die CO<sub>2</sub>-Abtrennung nachgeschaltet ist, ist theoretisch auch ein teilweiser oder sogar vollständiger Verzicht in Zeiten hohem Strombedarfs vorstellbar. So könnte das gesamte Brenngas in einer überdimensionierten Gasturbine oder in einer zusätzlich vorgehaltenen Gasturbine genutzt werden. In diesem Fall würde zusätzlich der, mit der Sauerstoffbereitstellung sowie CO<sub>2</sub>-Rezirkulierung verbundene, Eigenbedarf sinken bzw. entfallen. Allerdings wäre diese optionale Prozessführung mit größeren Adaptionen an der Anlage verbunden und dürfte hinsichtlich Anlagendynamik begrenzt sein.

Während im mittelfristigen CL-I-Konzepts die Sauerstoffbereitstellung durch eine kryogene Luftzerlegung erfolgt, wird im CL-II-Konzept ein OTM-Modul eingesetzt. Selbst bei luftseitiger Integration der LZA mit dem Gasturbinenverdichter bleibt der Einfluss einer moderaten Veränderung des Sauerstoffbedarfs bedingt durch die Variation des Abtrennungsgrades begrenzt. So beträgt der Anteil des aus dem Gasturbinenverdichter entnommenen Luftstroms um die 49%, gemessen am gesamten Verdichtermassenstrom. Im CL-II-Konzept wird hingegen der gesamte Luftmassenstrom über die OTM geleitet und ausgelaut. Entsprechend ist der verfügbare Massenstrom kaum variierbar, was die hohe Anpassungsfähigkeit des OTM-Moduls bedingt. Hier kann entweder der Permeatdruck abgesenkt oder mehr Membranfläche zur Verfügung gestellt werden. In Abbildung 79(b) ist daher ein typischer Verlauf für die zu realisierende praktische Abtrennungsrate bei variierender CO<sub>2</sub>-Abtrennungsrate dargestellt. Um eine gewisse Flexibilität hinsichtlich der CO<sub>2</sub>-Abtrennung zu gewährleisten, muss beim langfristigen Konzept also der aufgezeigte Zusammenhang berücksichtigt werden. Neben der CO<sub>2</sub>-Abtrennung gibt es noch weitere Prozessparameter die direkt Auswirkungen auf andere Teilsysteme haben und daher im folgenden Kapitel näher betrachtet werden.

## **Integrationsgrad**

Bereits beim mittelfristigen CL-I-Konzepts besteht durch die luft- und stickstoffseitige Integration der kryogenen LZA eine gewisse Abhängigkeit dieses Systems von den Gasturbinenparametern. Zusätzlich beeinflussen diese, aufgrund der direkten Kopplung, auch den Carbonat Looping Prozess. Hier gilt es die Turbinenaustrittstemperatur (TAT) nicht zu stark absinken zu lassen, um das Abgas direkt im Kalzinierungsprozess zu dekarbonisieren. Die sich ergebende TAT bei verschiedenen Turbineneintrittstemperaturen (TET)

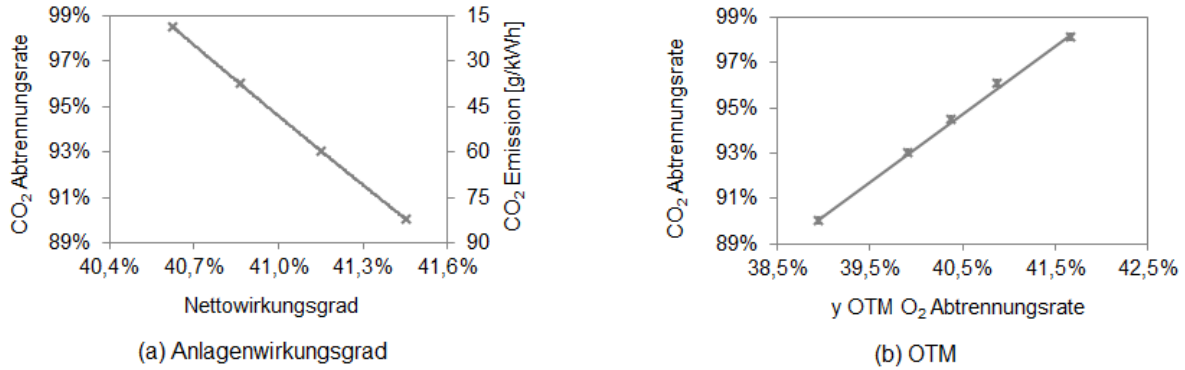


Abbildung 79: Einfluss der CO<sub>2</sub>-Abtrennung auf den Anlagenwirkungsgrad (a) und OTM (b)

und Druckverhältnissen ( $\pi$ ) sind in Abbildung 80 dargestellt. Betrachtet man den optimalen Wirkungsgradbereich aus Abbildung 78 wird deutlich, dass dieser aufgrund des hohen Druckverhältnisses zu einem Absinken der Abgastemperatur unter 600°C, bei niedriger TET sogar unter 500°C, führen würde. Da die Kalzinierung bei Temperaturen um 650°C stattfindet, sollte das Abgas nicht zu unterkühlt eintreten, um eine effektive Abtrennung zu ermöglichen. Daher wird der Prozess bei etwas niedrigeren Druckverhältnissen und damit außerhalb des optimalen Bereichs betrieben. Allerdings ist die Krümmung der Wirkungsgradverläufe (Abbildung 78) vergleichsweise gering und der damit verbundene Effizienzverlust somit moderat.

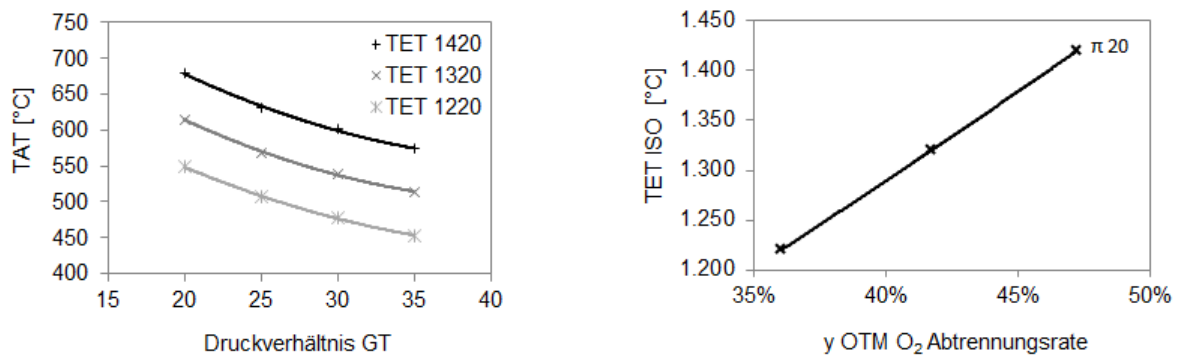


Abbildung 80: Einfluss der Gasturbinenparameter auf angrenzende Systeme

Im CL-II-Konzept ergeben sich, aufgrund des höheren Integrationsgrades, weitere Abhängigkeiten, welche dazu führen, dass einzelne Prozessparameter nicht frei variiert werden können. Im Wesentlichen betroffen sind hier das System OTM und Gasturbine. Ändert

sich bei Einsatz eines minderwertigen Brennstoffs der Sauerstoffbedarf des Gesamtprozesses, so muss die Sauerstoffabtrennungsrate und damit die OTM-Performance entsprechend angepasst werden, um eine konstante Turbineneintrittstemperatur zu gewährleisten. Gleiches gilt für die Variation der CO<sub>2</sub>-Abtrennungsrate (Abbildung 80b). Mit steigender Abtrennung wird mehr Brenngas und damit auch Sauerstoff in der Regeneration benötigt. Da nun auch weniger Brenngas in der Gasturbine umgesetzt wird, muss das Lambda der Gasturbine leicht reduziert werden, um eine konstante Turbineneintrittstemperatur zu gewährleisten. Infolge dessen muss die OTM-Abtrennungsrate steigen um den erhöhten Sauerstoffbedarf bei verminderter Luftzufuhr zu decken. Ein besonders starker Zusammenhang besteht zudem zwischen der OTM und der TET der Gasturbine. Die Vollintegration der OTM bei fehlender Brenngasverdünnung erfordert dabei für die jeweilige TET eine konkrete Menge an Überschussluft, was bei gegebenem Sauerstoffbedarf eine spezielle Sauerstoffabtrennungsrate im OTM-Prozess bedingt. Da aber dieser Parameter gasturbinspezifisch ist und in der Regel konstant gehalten wird, dürfte dieser Zusammenhang eher für die Auslegung, als den Betrieb eines solchen Kraftwerks relevant sein. Es stellt sich allerdings die Frage, wie sich das System in Teillast verhält. Da bei einer Absenkung der Vergaserleistung aber auch Sauerstoff- sowie Kühlluftbedarf sinken, sollten die Auswirkungen beherrschbar sein.

### 6.3.3 Potentialabschätzung IGCC-CL

Wie bereits aufgezeigt, ergibt sich für das CL-I-Konzept im mittleren Zeithorizont ein Wirkungsgradpotential von 40,6% bei spezifischen CO<sub>2</sub>-Emissionen von 18,8 g/kWh. Dies bedeutet eine Wirkungsgradsteigerung von 2 %-Punkten gegenüber dem Basisfall bei gleichzeitiger Reduzierung der Restemissionen. Bedenkt man allerdings die unsicheren Simulationsannahmen sowie die Herausforderungen bei der großtechnischen Umsetzung und Kombination von neuen Technologien, erscheint das CL-Konzept wenig aussichtsreich. Daher soll im weiteren Verlauf schrittweise das langfristige Potential durch den Einsatz der bereits beschriebenen Prozessvariationen untersucht werden. Die Einflüsse der verschiedenen Optimierungsschritte auf den Anlagenwirkungsgrad sind in Abbildung 81 dargestellt und werden im Folgenden diskutiert.

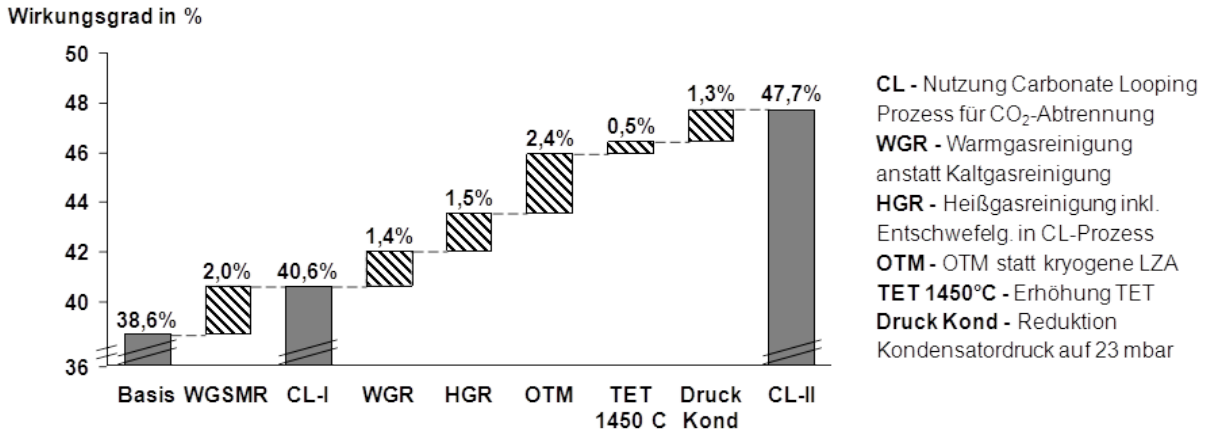


Abbildung 81: Potentialanalyse des IGCC-CL-Konzepts

Zunächst wird die konventionelle Kaltgasreinigung durch die Flüssiggasabscheidung und eine trockene Entschwefelung auf mittlerem Temperaturniveau ersetzt. Die Simulation des entsprechenden Konzepts (**WGR**) erzielte einen Nettowirkungsgrad von 42%. Die Warmgasreinigung (**WGR**) führt zu einer verminderten Abkühlung des Rohgases, vermeidet die Vorwärmung des Brenngases und erhöht darüber hinaus noch dessen Temperatur auf rund 450°C. Die Temperatur ergibt sich dabei aus der Betriebstemperatur der Entschwefelung und der Vorwärmtemperatur des Verdünnungstickstoffs. Außerdem ermöglicht der geringere Druckverlust in der Gasbehandlung in Verbindung mit der höheren Brenngastemperatur eine Entspannung des Brenngases vor der Gasturbine. Dadurch kann über die Entspannungsturbine zusätzlich Energie gewonnen werden. Die Anhebung der Brenngastemperatur und die vermiedene Wärmeverschiebung führen dazu, dass der Gasturbine sowohl mehr physikalische als auch chemische Enthalpie zugeführt wird. Um die TET dennoch konstant zu halten, muss demnach der Luftmassenstrom erhöht werden. Dies führt in Summe zu einem erhöhten Massenstrom durch die Turbine und damit zu einer Leistungserhöhung um rund 6%. Der erhöhte Abgasmassenstrom kompensiert zudem die geringere Abhitzedampfproduktion in der Rohgaskühlung. Da der Eigenbedarf nur leicht ansteigt, erhöht die Warmgasreinigung die Nettoleistung um 1,4 %-Punkte gegenüber dem Einsatz der Kaltgasreinigung.

Auch beim CL-Konzept ist grundsätzlich die Anwendung der Heißgasreinigung möglich (**HGR**). Hier ermöglicht die Kombination von FAA und Carbonate Looping Prozess gar die Möglichkeit auf die Entschwefelung gänzlich zu verzichten und damit das Temperaturniveau der Brenngaszuführung weiter zu erhöhen. Das im Gasturbinenabgas enthaltene SO<sub>x</sub> wird anschließend im Karbonisierungsreaktor in Kalziumsulfat umgesetzt und aufgrund der hohen Affinität des Schwefels zum Feststoff, dauerhaft gebunden. Durch die

Nutzung des chemischen Energieinhalts der Schwefelverbindungen erhöht sich die Leistungsabgabe der Gasturbine eines solchen Konzepts (**HGR**) leicht um rund 1,5%. Der Einfluss auf die Gesamtanlage ist demnach eher gering und erhöht den Nettowirkungsgrad des entsprechenden Kraftwerkskonzepts nur um rund 0,1 %-Punkte. Allerdings liegt der Schwefelgehalt im verwendeten Brennstoff nur bei rund 0,5 Ma.-%. Bei schwefelreichen Brennstoffen sollte der Heizwertanteil der Schwefelverbindungen im Brenngas leicht ein bis zwei Prozent ausmachen und damit der Wirkungsgradgewinn eher 0,3 bis 0,5 %-Punkte betragen. Den größeren Effekt erzielt jedoch die weitere Anhebung der Brenngastemperatur auf 530°C. Aufgrund der Entspannungsturbine kühlt sich das Brenngas auf die maximale Gasturbineneintrittstemperatur von 500°C ab. Daneben trägt die Entspannung des für die Regeneration bestimmten Brenngasstroms zur Leistungssteigerung bei, da dieser nun mit 1000°C zugeführt wird. Theoretisch wären hier höhere Gastemperaturen denkbar, allerdings soll auf den Einsatz von Kühlungsanlagen in der Entspannungsturbine verzichtet werden. In Summe führen die genannten Faktoren zu einer Wirkungsgradsteigerung um 1,5 %- Punkte gegenüber der Warmgasreinigung. Neben der Effizienzsteigerung vereinfacht die nachgeschaltete Entschwefelung das Anlagenkonzept deutlich, was auch zu entsprechenden monetären Einsparungen und tendenziell höherer Betriebsflexibilität sowie Verfügbarkeit führen sollte.

Da das Kraftwerkskonzept nach wie vor einen sehr hohen Eigenbedarf aufweist, liegt die Substitution der kryogenen Luftzerlegungsanlage durch ein OTM-Modul nahe (**OTM**). Dabei wird die gesamte Luft aus der Gasturbine entnommen, über die OTM geleitet und anschließend in der Gasturbine genutzt. Auf diese Weise entfällt die energieintensive Stickstoffverdichtung. Da nun keine Verdünnung des Brenngases mehr erfolgt und aufgrund der hohen Temperatur keine Wassersättigung möglich ist, wird das Brenngas unverdünnt zur Gasturbine geleitet. Dadurch steigt das Lambda der Gasturbine deutlich, um die gesetzte Turbineneintrittstemperatur gewährleisten zu können. Die Förderung des erhöhten Luftmassenstroms bewirkt ein Absinken der Gasturbinenleistung um 10,4%. Wenngleich die Leistung der Dampfturbinen steigt, führt dies trotzdem in Summe zu einem Abfall der Bruttoleistung um 2,4%. Allerdings sinkt durch die gewählte Konfiguration der Eigenbedarf des Kraftwerkskonzepts (**OTM**) um ein Drittel, was zu einem Anstieg der Nettoleistung um 5,4% und damit zu einer Wirkungsgradsteigerung um 2,4 %-Punkte führt. Aufgrund des Wegfalls des Stickstoffverdichters und des erhöhten Sauerstoffbedarfs hat der OTM-Einsatz einen größeren Effekt als beim Basisfall. Zudem ergeben sich Synergien aus der Kombination mit dem Carbonate Looping Prozess. Der Wirkungsgradvorteil des OTM-Prozess wird dabei nur durch die Reduzierung des Eigenbedarfs erreicht. Damit stellt der Prozess eine ideale Ergänzung zum Post-Combustion Capture Ansatz dar, wel-

cher bei IGCC-Kraftwerken vornehmlich auf die Reduzierung thermischer Verluste in der Brenngaserzeugung abzielt.

Der langfristig erzielbare Wirkungsgrad des vorgeschlagenen CL-Konzepts liegt demnach im Bereich von rund 45,9%. Dies entspricht einem signifikanten Effizienzpotential von 7,3 %-Punkten im Vergleich zum Basisfall. Aufgrund des höheren Wirkungsgrades sinken zudem auch die verbleibenden CO<sub>2</sub>-Emissionen auf rund 17,1 g/kWh. Betrachtet man den Teil des Kohlendioxids, welcher in Form von Kaliumkarbonat gebunden bleibt, ebenfalls als abgetrennt, sinken die spezifischen CO<sub>2</sub>-Emissionen auf rund 12 g/kWh. Trotz der zusätzlichen Unsicherheit durch die Einführung weiterer zukünftiger Technologien ist das aufgezeigte Optimierungspotential enorm und der Prozess sehr aussichtsreich. Gerade das weitere Effizienzpotential von 5,3 %-Punkten im Vergleich zum mittelfristigen CL-I-Konzepts verdeutlicht den Vorteil der konsequenten Neuausrichtung des IGCC-Kraftwerkes gegenüber der Kombination neuer Komponenten mit konventioneller Technik. Sowohl die Einführung der OTM als auch die Heißgasreinigung sind daher für IGCC-Kraftwerke mit nachgeschalteter CO<sub>2</sub>-Abtrennung ein aussichtsreicher Ansatz zur Effizienzsteigerung.

Abschließend soll zudem noch darauf hingewiesen werden, dass neben den bisher behandelten Ansätzen, zusätzlich auch die klassischen Optimierungsschritte angewendet werden können. So führt eine Anhebung der TET auf 1450°C (**TET 1450°C**) zu einer Wirkungsgradsteigerung um 0,5 %-Punkte. Der Effekt ist damit vergleichsweise moderat, was durch den verringerten Einfluss der Gasturbine (Brenngasaufteilung) im Konzept begründet ist. So wird zwar die Leistung der Gasturbinen um 4,2 % erhöht, allerdings auf Kosten des Dampfkreislaufes. Da dieser im Konzept aber einen deutlich höheren Anteil an der Stromproduktion hat, steigt der Wirkungsgrad des Gesamtkonzepts nur moderat. Dies ist auch der Grund für die signifikante Effizienzsteigerung von 1,3 %-Punkte bei Absenkung des Kondensatordrucks (**Druck Kond**). Diese bewirkt eine Steigerung der Dampfturbinenleistung um 4% bei konstanter Gasturbinenleistung. Die beiden Optimierungsschritte können außerdem additiv verknüpft werden. Das entsprechende **CL-II-Konzept** erreicht damit in der Simulation sogar Nettowirkungsgrade von 47,7%.

## 6.4 IGCC mit Sauerstoffverbrennung

Auch der dritte CCS-Ansatz, das Oxyfuel-Verfahren soll in Kombination mit der IGCC-Technologie in der vorliegenden Arbeit aufgegriffen werden. Im Gegensatz zu früheren Arbeiten, wie dem CES [Mac et al. 2007] oder Graz Cycle [Sanz et al. 2010, Sanz et al. 2004, Jericha et al. 2008], wird eine Balance zwischen Prozessintegration und Effizienz favorisiert. Dies ermöglicht eine bessere Analyse des Konzeptes und das Aufzeigen von Zu-

sammenhängen einzelner Parameter (IGCC-Oxy). Auch hier wird zunächst eine Basis-konfiguration (**Oxy-I**) aus überwiegend konventionellem IGCC und sauerstoffbetriebener Gasturbine analysiert. Für die Potentialermittlung werden anschließend die bereits behandelten Technologien schrittweise integriert (**Oxy-II**) und der Wirkungsgrad ermittelt.

#### 6.4.1 Konzeptbeschreibung

In der mittelfristigen Konfiguration (**Oxy-I**) wird nach der Vergasung der aufbereiteten Kohle, die Enthalpie des heißen Rohgases zunächst in einem Rohgaskühler zur Produktion von überhitztem Dampf genutzt. Anschließend werden in einer konventionellen Kaltgasreinigung Partikel, kondensierbare und wasserlösliche Bestandteile, in einer Wasserwäsche abgetrennt. Anschließend wird das Gas entschwefelt. Dazu wird in einer Hydrolysestufe COS in H<sub>2</sub>S überführt und dieses anschließend mittels MDEA-Wäsche abgetrennt. Das schwefelhaltige Gas wird in einer Claus-Anlage in elementaren Schwefel überführt. Das Reingas wird nun in der Gasturbine mit Sauerstoff verbrannt. Der Sauerstoff für die Verbrennung als auch für den Vergasungsprozess wird durch eine luftseitig unabhängige, kryogene Luftzerlegungsanlage bereitgestellt. Um eine Verdünnung des Rohgases zu vermeiden, entfällt die sonst übliche weitere Verwendung des Stickstoffs als Verdünnungsmedium. Um aber die Temperatur bei der Sauerstoffverbrennung begrenzen zu können, wird zur Verdünnung sowohl kaltes Rauchgas rezirkuliert als auch Mitteldruckdampf zugemischt. Da die Rezirkulierung den Gasturbinenbetrieb deutlich komplexer macht, wird auf eine zusätzliche luftseitige Integration der LZA verzichtet. Das restliche Abgas wird in einer Niederdruckturbine bis auf den Kondensationsdruck entspannt. Anschließend wird das Wasser auskondensiert und abgetrennt. Das verbliebende Kohlendioxid wird gereinigt und auf das notwendige Druckniveau verdichtet. Gemäß der Beschreibung kann das Anlagenschema gemäß Abbildung 82 dargestellt werden.

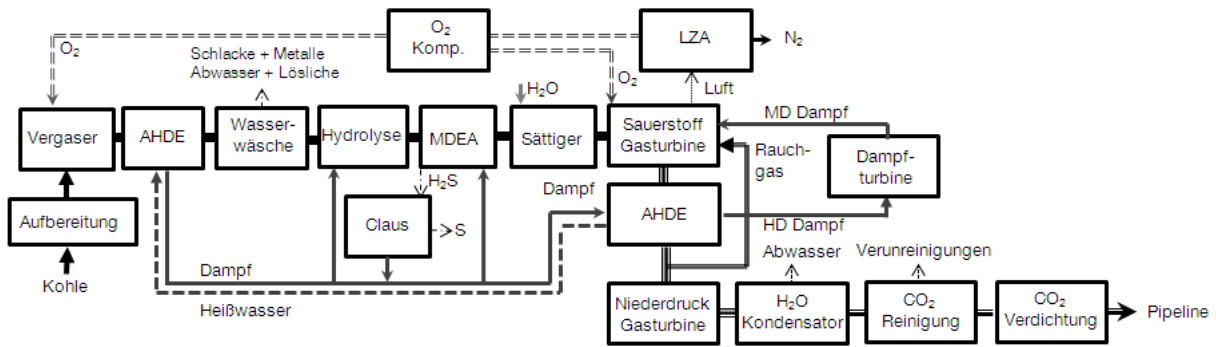


Abbildung 82: Schema der mittelfristigen Anlagenkonfiguration des Oxy-I-Konzepts

Da sich der Gas- und Dampfturbinenteil grundlegend vom Basisfall unterscheidet, soll dieser nun noch im Detail betrachtet werden. Im Unterschied zum Basisfall wird das Rauchgas in der Gasturbine nur teilweise entspannt. Auf diese Weise wird sichergestellt, dass die Abgastemperatur noch ausreicht um die festgelegten Dampfparameter im AHDE zu erreichen. Zudem muss der Wärmeinhalt des Abgases ausreichen, um die notwendige Dampfmenge zur Einhaltung der Turbineneintrittstemperatur zu erzeugen. Da das Abgas bei diesem Konzept zu einem großen Anteil aus Wasserdampf besteht, ist der Wärmeintrag in die Gasturbinenschaufeln höher. Aus diesem Grund wird die in Kapitel 3.3 festgelegte Turbineneintrittstemperatur im Oxy-Konzept abgesenkt. In dem mittelfristigen IGCC-Konzept (Oxy-I) wird daher eine TET von 1120°C (ISO) angenommen, was einer signifikanten Reduktion von 200°C im Vergleich allen anderen Konzepten entspricht.

Der im AHDE erzeugte überhitzte Hochdruckdampf wird mit dem Hochdruckdampf des Rohgaskühlers der Gasinsel gemischt und auf die Dampfturbine geleitet. Der Dampf wird bis auf das Niveau der Gasturbinenbrennkammer entspannt und dieser anschließend zugegeben. Nach der Abwärmerückgewinnung wird der Abgasstrom geteilt. Dabei wird über eine *User-Routine* soviel Abgas abgetrennt und wieder verdichtet wie als Moderator zur Temperaturbegrenzung in der Gasturbinenbrennkammer notwendig ist. Dabei ist darauf zu achten, dass die Verdichtertemperatur aus Materialgründen unterhalb von 500°C bleibt. Der verbleibende Abgasstrom wird über eine Niederdruckgasturbine geleitet und bis auf Kondensatordruck entspannt. Da es sich um eine Kondensation von wasserdampfbeladenem Rauchgas handelt, sind hier deutlich höhere Drücke (100 mbar) notwendig, als bei der klassischen Dampfkondensation. Zum besseren Verständnis ist das Anlagenschema in Abbildung 83 dargestellt.



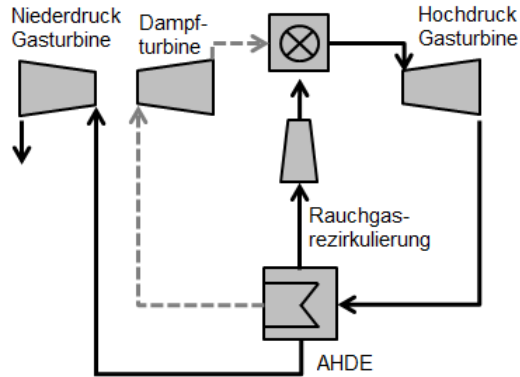


Abbildung 83: Detailschema des Gas- und Dampfkreislaufes des Oxy-Konzepts

Für die Simulation des langfristigen Konzepts (**Oxy-II**) wird die bisher beschriebene Struktur im Bereich der Gasreinigung, der Sauerstoffbereitstellung und den Gasturbinenparametern variiert. So wird die bereits aus den vorhergehenden Konzepten bekannte Warmgasreinigung eingesetzt, bestehend aus Flüssigascheabscheidung und Entschwefelung mittels ZnO. Für Letztere wird das Temperaturniveau des Gases, über einen Rohgaskühler, auf 500°C abgesenkt. Die Zuführung des Brenngases erfolgt demnach ebenfalls auf diesem erhöhten Niveau. Auf eine weitere Temperaturerhöhung in der Gaskonditionierung wird verzichtet, da aufgrund der Abgaskondensation eine vollständige Entschwefelung garantiert sein muss. Zudem wurde bereits auf die Problematik zu hoher Brenngastemperaturen hingewiesen (Abbildung 12). Daneben wird der Druck im Vergaser auf 60 bar angehoben. Dies ermöglicht die Brenngaszuführung auf einem deutlich erhöhten Druckniveau. Die Veränderungen im Bereich des GUD-Teils betreffen im Wesentlichen die Anhebung der Turbineneintrittstemperatur auf 1220°C, die Absenkung des Kondensatordrucks auf 75 mbar sowie die Nutzung überkritischer Dampfparameter (250 bar, >600°C). Durch die genannten Maßnahmen vereinfacht sich die Struktur des Oxy-II-Konzepts wie in Abbildung 84 dargestellt.

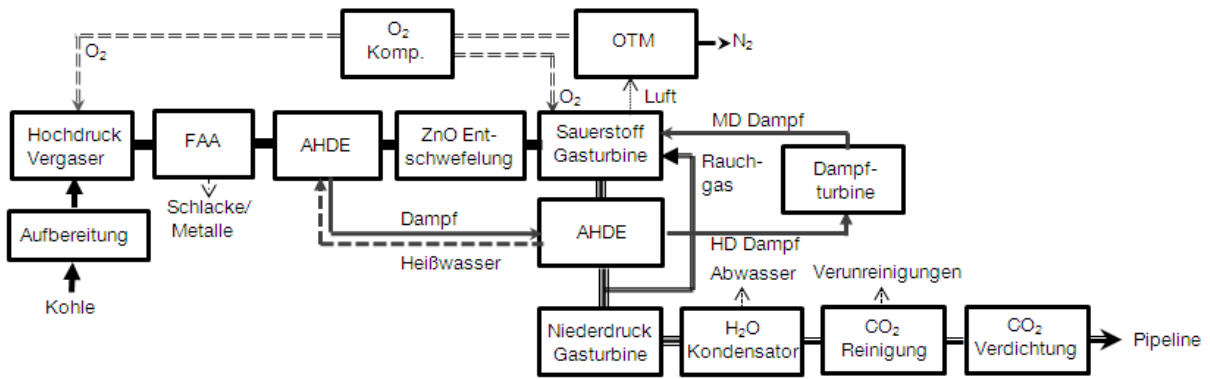


Abbildung 84: Schema der langfristigen Anlagenkonfiguration des Oxy-II-Konzepts

#### 6.4.2 Konzeptanalyse IGCC-Oxy

Die Simulation des Oxy-Konzepts ergab in der Grundkonfiguration mit klassischer, kryogener Luftzerlegung und Kaltgasreinigung einen Bruttowirkungsgrad von 56,2%. Dies entspricht einer deutlichen Steigerung von 6,8 %-Punkten gegenüber dem Basisfall. Der auf dem Oxyfuel-Prinzip basierende IGCC-Prozess nutzt damit die Brennstoffenergie wesentlich effizienter als das konventionelle IGCC. Allerdings ist der Sauerstoffbedarf des Prozesses rund zweieinhalb mal so groß, was mit einer beträchtlichen Steigerung des Eigenbedarfs der Luftzerlegungsanlage verbunden ist. Zudem wird das CO<sub>2</sub> bei sehr niedrigen Drücken und mit geringer Reinheit gewonnen, was zu einem erhöhten Aufbereitungsaufwand und steigendem Energiebedarf führt. In Summe führt dies nur zu einer Steigerung des Nettowirkungsgrades gegenüber dem Basisfall von 1,4 %-Punkte auf dann 40%.

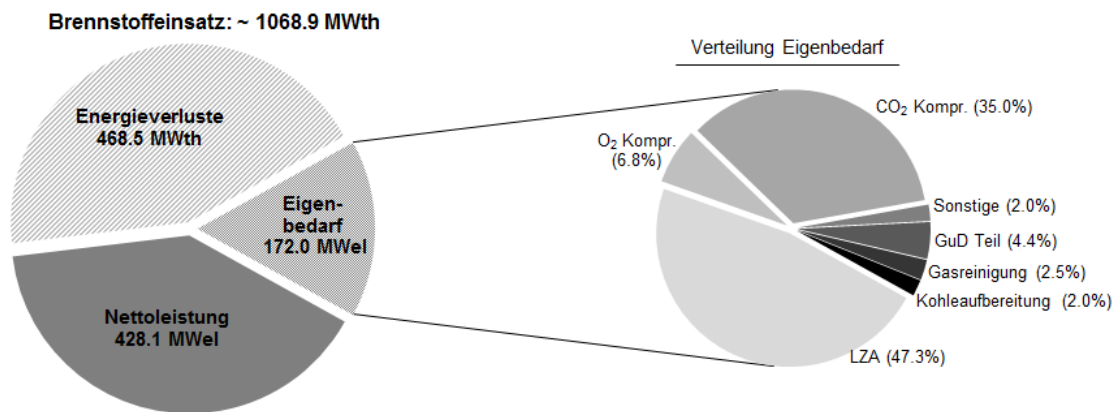


Abbildung 85: Energiebilanz des Oxy-I-Konzepts

Wie in Abbildung 85 ersichtlich, verursachen die beiden Systeme, Sauerstoffbereitstellung und CO<sub>2</sub>-Verdichtung, rund 82% des gesamten Eigenbedarfs. Während der Energieaufwand der Luftzerlegung in erster Linie aufgrund des höheren Sauerstoffbedarfs zunimmt, steigt bei der CO<sub>2</sub>-Verdichtung auch der spezifische Aufwand an. So ist im Vergleich mit dem Basisfall der spezifische Energiebedarf mit 0,166 kWh je Kilogramm CO<sub>2</sub> fast doppelt so hoch. In Summe liegt der Eigenbedarf rund 50% höher als im Basisfall. Darin nicht enthalten ist allerdings der Aufwand im Gas- und Dampfkreislauf für Rezirkulierung des Rauchgases. Betrachtet man nur die Bruttoleistungsabgabe erhält man einen Wert von 814,37 MW. Dabei entfallen 77,3% der Leistung auf die Hochdruckgasturbine und 10,4% bzw. 12,3 % auf die Dampf- sowie Niederdruckgasturbine. Die Differenz zur Nettoleistung des GUD von 600,4 MW, entspricht dem Aufwand zur Verdichtung des Oxidationsmittels und des rezirkulierten Rauchgases. Dabei verursacht letzteres fast 84% des Energieaufwandes.

Aufgrund der Rauchgaskondensation kann das CO<sub>2</sub> aus dem Gasturbinenabgas gewonnen werden. Da auch während der Gaskonditionierung nur geringfügiger Kohlenstoffschlupf auftritt, liegt die CO<sub>2</sub>-Abtrennungsrate in der Simulation bei rund 97,4%. Der überwiegende Teil entsteht dabei durch das Tailgas der Claus-Anlage, welches aufgrund des hohen Stickstoffanteils nicht rezirkuliert sondern nach entsprechender Aufbereitung an die Umgebung abgegeben wird. Die Stickstofffracht entsteht bei der Umsetzung des Claus-Gases mit Luft und würde das Brenngas mit Inertgas verdünnen. Es sei aber daraufhingewiesen, dass während der CO<sub>2</sub>-Aufbereitung ein CO<sub>2</sub>-Schlupf entstehen kann, welcher in der vereinfachten Betrachtung der Aufbereitungsstufe nicht erfasst ist. Die verbesserte Abtrennung führt aber zu geringen spezifischen CO<sub>2</sub>-Emissionen im Bereich von 22,4 g/kWh. Das entspricht einer weiteren Reduktion um 74,5% im Vergleich zum Basisfall.

### **Einfluss der Gasturbinenparameter**

Aufgrund des hohen Leistungsbeitrages der Hochdruckgasturbine ist die erzielbare Nettoleistung des Oxy-Konzepts sehr von deren Betriebsparametern abhängig. Aufgrund der Sauerstoffverbrennung und feuchten Rauchgasrezirkulierung verändert sich die Rauchgaszusammensetzung bzw. das Arbeitsmedium der Turbine. Ein Vergleich der wesentlichen physikalischen Eigenschaften des Arbeitsmediums, mit dem aus der luftgefeuerten Synthesegasverbrennung (Basisfall), ist in Tabelle 25 dargestellt. Im Basisfall beträgt der Anteil an Wasser und Kohlendioxid im Rauchgas nur rund 11,4 Vol.-% bzw. 1,3 Vol.-%. Der überwiegende Teil (86 Vol.-%) ist damit Stickstoff und Sauerstoff. Im Oxy-Konzept hingegen, besteht das Arbeitsmedium zu rund 65 Vol.-% und 33 Vol.-% aus Wasserdampf bzw. Kohlendioxid.

Tabelle 25: Analyse des Gasturbinenarbeitsmediums (Werte aus Epsilon)

Konzept	TET [°C]	Wärmekapazität cp [ $\frac{kJ}{kg \cdot K}$ ]	Wärmeleitfähigkeit $\lambda[\frac{W}{m \cdot K}]$	dyn. Viskosität $\eta[\mu Pa \cdot s]$
Basisfall	1320	1,393	0,133	59,694
Oxy-I	1320	2,157	0,149	54,683
	1120	2,113	0,129	49,909

Damit steigt der Wärmeeintrag in die Gasturbinenschaufeln, zum Teil durch die höhere Strahlung der dreiatomigen Gase (H<sub>2</sub>O und CO<sub>2</sub>), zum Teil durch den verbesserten konvektiven Wärmeübergang. Gemäß der Literatur [Seume et al. 2010] kann für die Abschätzung der konvektiven Wärmeübertragung an der Schaufelnase folgende Korrelation angenommen werden<sup>22</sup>:

$$\frac{Nu_L}{\sqrt{Re_L}} = 0,945 + 3,48 * \frac{(T_U * \sqrt{Re_L})}{100} - 3,99 * \left( \frac{T_U * \sqrt{Re_L}}{100} \right)^2 \quad (28)$$

Ersetzt man die Nusseltzahl  $Nu_L = \frac{\alpha * L}{\lambda}$  und Reynoldszahl  $Re_L = \frac{cp * L * \rho}{\eta}$  und stellt die Gleichung nach dem Wärmeübergangskoeffizienten  $\alpha$  um, so ergibt sich folgender Ausdruck, welcher anhand der ermittelten Stoffwerte aus Tabelle 25 eine Tendenz für die Veränderung des Wärmeeintrages durch das neue Arbeitsmedium erlaubt:

$$\alpha = 0,945 * \lambda * \sqrt{\frac{cp * \rho}{\eta * L}} + 0,0348 * \lambda * T_U * \frac{cp * \rho}{\eta} - 0,000399 * \lambda * T_U^2 * \frac{cp * \rho}{\eta} * \sqrt{L} \quad (29)$$

Die Wärmeübertragung steigt also, laut Gleichung 29, mit zunehmender Wärmekapazität sowie -leitfähigkeit und abnehmender Viskosität des Mediums. Vergleicht man die entsprechenden Werte der beiden Arbeitsmedien bei gleicher Turbineneintrittstemperatur wird deutlich, dass beim Oxy-Konzept die Wärmekapazität und Wärmeleitfähigkeit rund 55% bzw. 12 % höher liegen, während die Viskosität um rund 8% sinkt. Alle drei Parameter deuten demnach auf signifikant höhere thermische Belastung der Schaufeln hin. Die erhöhte Wärmekapazität führt zusätzlich zu einer geringeren Abkühlung des Mediums während der Entspannung. Damit steigt insbesondere der Wärmeeintrag in den hinteren, thermisch weniger belastbaren Schaufelreihen. Daher wurde im vorliegenden Konzept

<sup>22</sup>Der Wert L entspricht einer charakteristischen Länge und  $\rho$  bezeichnet die Dichte des Mediums

(Oxy-I) die Turbineneintrittstemperatur um 200°C abgesenkt. Dadurch sinkt zumindest die Wärmeleitfähigkeit deutlich und die thermische Belastung insgesamt, aufgrund der geringeren Gastemperatur. Die Absenkung der TET verhindert aber höhere Wirkungsgrade des Kraftwerks und erklärt zumindest teilweise die Wirkungsgraddifferenz zu früheren Arbeiten [Sanz et al. 2004, Jericha et al. 2008, Sanz et al. 2010].

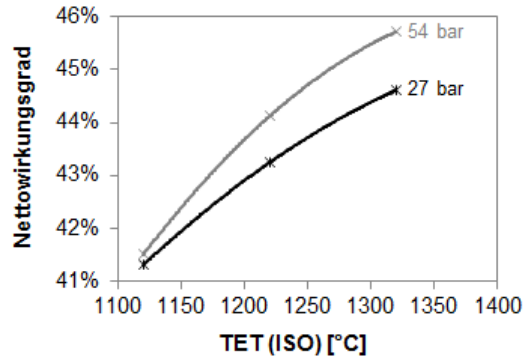


Abbildung 86: Einfluss der Gasturbinenparameter (TET und Druck) auf Anlagenwirkungsgrad

Wie in Abbildung 86 ersichtlich, steigt der Wirkungsgrad deutlich mit Anhebung der TET auf das Niveau des Basisfalls. Aber auch der Druck hat einen Einfluss auf das Konzept. So wurde zusätzlich ein Hochdruckfall betrachtet, in welchem das Rauchgas aus der Brennkammer mit 54 anstatt mit 27 bar auf die HD-Turbine geleitet wird. Auch hier ist insbesondere bei höheren Turbineneintrittstemperaturen eine deutliche Verbesserung des Anlagenwirkungsgrades erkennbar. Aufgrund der Integration und Rauchgasrezirkulierung gibt es einige Abhängigkeiten und Limitierungen im Prozess, welche konzeptspezifisch sind. Einerseits muss der Austrittsdruck der Turbine ausreichend hoch sein um die Grädigkeit im AHDE zu erhalten. Andererseits steigt mit dem Druck auch die Kondensationstemperatur an. Ist nun die TET niedrig (1120°C), muss viel Rauchgas rezirkuliert werden, wodurch dessen Wassergehalt steigt. Da zugleich das Druckverhältnis gering ist, um die Grädigkeit zu gewährleisten, muss die Temperatur am Austritt des AHDE angehoben werden, um Kondensation zu vermeiden. Mit steigender TET sind beide Faktoren weniger kritisch, weshalb eine Erhöhung des Druckniveau zunehmend vorteilhaft ist und daher der Wirkungsgrad stärker steigt. Im Gegensatz zum Basisfall ist das Druckverhältnis der Gasturbine also nicht konstant sondern kann sich je nach Variation auch bei konstantem Brenngasdruck ändern.

## Einfluss der Rauchgaskondensation

Ein weiteres kritisches Bauteil des Oxy-Konzepts ist der Kondensator und damit der Enddruck nach der Niederdruckgasturbine. Hier wird, im Gegensatz zum Basisfall, Wasserdampf in Gegenwart von signifikanten Mengen (rund ein Drittel) Permanentgas kondensiert. Damit kann der Kondensatordruck nicht auf die typischen 25 bis 60 mbar abgesenkt werden. Dies hat deutliche Auswirkungen auf den erzielbaren Wirkungsgrad des Gesamtprozesses wie Abbildung 87 (a) zeigt. Im Falle einer Reduzierung des Kondensatordrucks um 25%, kann der Wirkungsgrad des Gesamtprozesses um 0,4 %-Punkte verbessert werden. Der Anstieg würde noch deutlicher ausfallen, wenn nicht der Aufwand für die CO<sub>2</sub>-Aufbereitung ansteigen würde. Da das CO<sub>2</sub> aus dem Rauchgas gewonnen wird, steigt der Kompressionsaufwand signifikant mit der Absenkung des Kondensatordrucks (Abbildung 87 (b)). Zusätzlich erhöht sich bei konstanter Temperatur des Rauchgases die erzielbare Restfeuchte im CO<sub>2</sub>-Strom. Entsprechend muss mehr Aufwand betrieben werden, um das Kohlendioxid zu trocknen und zu verdichten. Beide Faktoren wirken bei einer Anhebung des Kondensatordrucks positiv. Daher sinkt auch der Wirkungsgrad bei einer 25 prozentigen Steigerung des Drucks nur um knapp 0,3 %-Punkte.

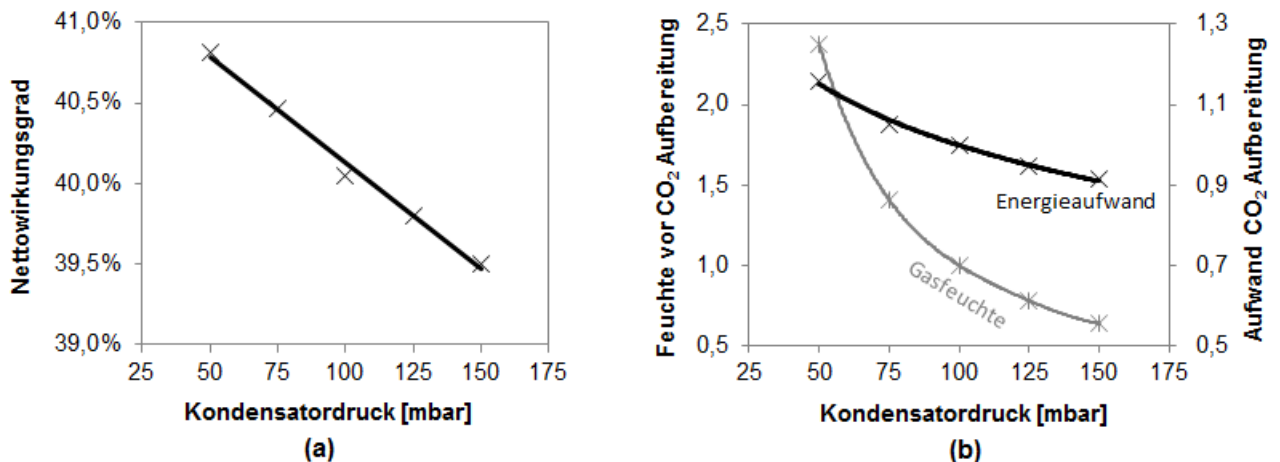


Abbildung 87: Einfluss des Kondensatordrucks auf Anlagenwirkungsgrad (a) und CO<sub>2</sub>-Aufbereitung (b).

Der Grund für die Druckerhöhung ist dabei nicht allein die pure Anwesenheit nicht kondensierbarer Bestandteile, welche den Kondensatordruck um deren Partialdrücke erhöht [Raindl 2010]. So wurde nachgewiesen [Sivalingam et al. 2003], dass durch Inertgasanteile auch die Wärmeübertragung im Kondensator deutlich abnimmt. Diese wird nicht, wie bei reinem Dampf, durch die Wärmeleitfähigkeit der flüssigen Phase bestimmt, sondern

vielmehr durch den Übergangswiderstand der Gasphase. Während beim Wasserdampf der Wärmeübergangswiderstand vernachlässigbar ist, so reichert sich bei Gegenwart von Inertgas, dieses in der Grenzschicht an und führt so zu signifikanten Wärme- und Stoffübergangswiderständen [Goldbrunner 2003]. Bei typischen Gaskonzentrationen von 30 bis 35 Vol.-%, vermindert sich die Wärmeübertragung so um rund 60% im Vergleich zu reinem Dampf [Sivalingam et al. 2003]. Damit steigt die notwendige Wärmeübertragungsfläche stark an, was zu höherem Druckverlust und steigenden Kosten führt. Daher werden bei der Rauchgaskondensation höhere Grädigkeiten  $\Gamma$  im Kondensator notwendig sein. Wie in Abbildung 88 (a) gezeigt, bedeutet dies im Vergleich zum Dampfkondensator höhere Kondensatordrücke bei gleichen Kühlwassertemperaturen ( $T_{KW}$ ).

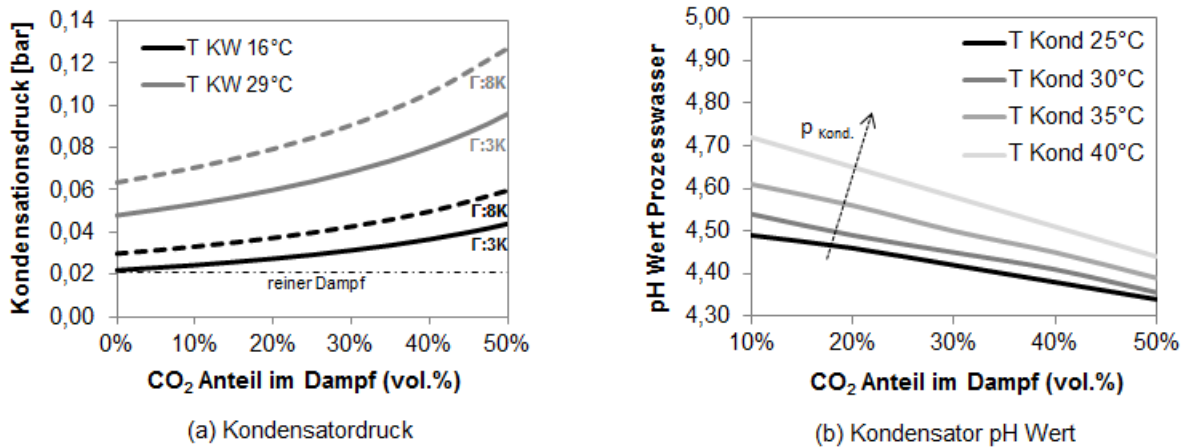


Abbildung 88: Verhalten des Kondensatordrucks (a) und des Kondensat pH-Werts (b) bei der Rauchgaskondensation (eigene Berechnung)

Außerdem wird aufgrund der hohen Konzentrationen von Kohlendioxid im Gas, dieses vermehrt im Prozesswasser gelöst, was zum Absinken des pH-Wertes führt. Ohne Neutralisierung sind so pH-Werte im Bereich von 4,4 bis 4,7 zu erwarten. Wie in Abbildung 88(b) ersichtlich, führt dabei eine höhere Kondensatortemperatur zu verminderter Lösung und damit zu einer Zunahme des pH-Wertes, während sich ein steigender CO<sub>2</sub>-Anteil gegenteilig auswirkt. Für die Auslegung eines solchen Systems, müssen demnach Vorkehrungen zur Korrosionsvermeidung getroffen werden. Die Rauchgaskondensation ist außerdem der erste Schritt zur Gewinnung von möglichst reinem CO<sub>2</sub>. Es wurde bereits gezeigt [Raindl 2010], dass hohe CO<sub>2</sub>-Reinheiten mit großem Aufbereitungsaufwand verbunden

sind und mehrstufige Kondensatorstufen auf verschiedenen Druckniveaus erfordern, um den Restdampfgehalt zu minimieren.

Allgemein muss zudem der Grad der Integration erwähnt werden. Trotz vergleichsweise einfacher Prozessstruktur muss das Druckverhältnis der Gasturbine so gewählt werden, dass die Turbinenaustrittstemperatur noch für die Dampferzeugung ausreicht und die Verdichterendtemperatur bei der Rezirkulierung nicht zu hoch wird. Der Grad der Rauchgasrezirkulierung stellt somit einen Freiheitsgrad im System dar, um schwankende Dampfmenngen auszuregeln und die Turbineneintrittstemperatur anzupassen.

### 6.4.3 Potentialabschätzung IGCC-Oxy

Wie erwähnt, ergibt die Simulation des **Oxy-I-Konzepts** für den mittleren Zeithorizont ein Nettowirkungsgradpotential von 40% bei moderaten, spezifischen CO<sub>2</sub>-Emissionen von rund 22,4 g/kWh. Damit weist das Konzept das bislang geringste thermodynamische Potential bei zugleich signifikanten Eingriffen in die Anlagentechnik auf. Daher werden nun ausgewählte Optimierungsschritte untersucht, um den Wirkungsgrad des Konzepts sukzessive zu steigern. Die Auswirkungen der verschiedenen Optimierungsschritte auf den Anlagenwirkungsgrad sind in Abbildung 89 dargestellt und werden im Folgenden diskutiert.

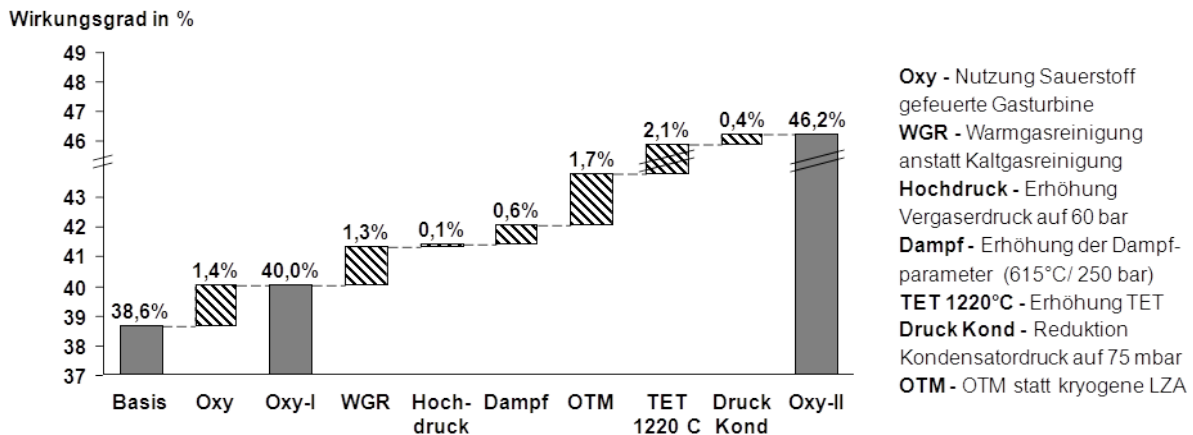


Abbildung 89: Potentialanalyse des Oxy-Konzepts

Im ersten Schritt wird das Temperaturniveau der Brenngaskonditionierung angehoben (**WGR**). Das heiße Rohgas wird in der Flüssigascheabscheidung von Partikeln, Metallen und Alkien befreit und anschließend mittels Wärmeübertrager auf rund 500°C abgekühlt. Dabei wird vorgewärmtes Speisewasser aus dem GUD-Kreislauf verdampft, überhitzt und



der erzeugte Hochdruckdampf der Dampfturbine zugegeben. Anschließend werden Halogenide chemisorptiv gebunden und das Rohgas mittels Zinkoxid entschwefelt. Das so gereinigte Brenngas weist immer noch Temperaturen um 500°C auf und wird direkt der Gasturbine zugeführt. Da bei der Kaltgasreinigung (Oxy-I) die Rohgasenthalpie auch zur Brenngasvorwärmung genutzt wurde, sinkt die Dampfproduktion in der Gasinsel, trotz geringerer nutzbarer Wärmemenge, im Vergleich nur um 6,4%. Aufgrund der vermiedenen ungewollten Absorption wertvoller Gasbestandteile in der Kaltgaswäsche, den verminderten Druckverlust und höheren Eintrittstemperatur, steigt die Bruttoleistung durch die Warmgasreinigung (**WGR**) um 2,8%. Da der Eigenbedarf durch die Zinkoxidregenerierung und dem damit verbundenen höheren Sauerstoffbedarf nur geringfügig ansteigt, verbessert sich auch die Nettoleistung des Prozesses um 3,2%. Das bedeutet einen Wirkungsgradgewinn gegenüber dem Konzept mit konventioneller Kaltgasreinigung um 1,3 %-Punkte auf 41,3%. Einer weiteren Temperaturerhöhung stehen die mangelnde Abscheideleistung der Gasreinigung und die Limitierung bei der Brenngaszuführung entgegen. Da die Rauchgaskondensation des Konzepts niedrige Temperaturen bedingt, muss das Brenngas soweit wie möglich entschwefelt werden, um die Bildung von Schwefelsäure zu vermeiden. Es wurde im vorhergehenden Kapitel gezeigt (Abbildung 88), dass bereits durch Lösung von Kohlendioxid der pH des Kondensates deutlich absinkt. Zusätzliche Schadstoffe wie Schwefel oder HCL würden die Korrosionsproblematik weiter verschärfen.

Anstelle des Temperaturniveaus wird daher der Systemdruck und damit der Vergaserdruck auf 60 bar erhöht (**Hochdruck**). Das Druckniveau ist für die gegenwärtige pneumatische Förderung zu hoch und bedarf neuartiger Lösungen, wie der bereits erwähnten Feststoffpumpe. In Abbildung 86 wurde gezeigt, dass eine Druckerhöhung einen positiven Effekt auf den Anlagenwirkungsgrad hat. Die entsprechende Simulation erreichte so auch einen Wirkungsgradanstieg um 0,1 %-Punkte. Dabei limitiert die Frischdampf Temperatur die optimale Ausnutzung des Gasturbinenabgases. Durch den erhöhten Druck im System kann nun der Dampf nicht mehr soweit entspannt werden und wird dementsprechend der Brennkammer mit höherer Temperatur zugeführt. Daher muss mehr Rauchgas rezirkuliert werden, was den Wasseranteil im Rauchgas erhöht. Durch das höhere Druckniveau der Brennkammer muss das Rauchgas mehr verdichtet werden, was mit einem Temperaturanstieg verbunden ist. Daher kann das Arbeitsmedium in der Hochdruckgasturbine nicht mehr soweit entspannt werden. Trotz eines Anstiegs des Brenngasdrucks sinkt sogar das Druckverhältnis über die Turbine. Im Oxy-Konzept geht demnach eine Druckerhöhung des Brenngases bei konstanter TET nicht mit einer Erhöhung des Druckverhältnisses einher. Der höhere Austrittsdruck führt zu höheren Austrittstemperaturen, welche im gegenwärtigen

tigen Frischdampfparameter nicht optimal genutzt werden können. Daher sollen diese in einer weiteren Variation (**Dampf**) auf 250 bar und rund 615°C angehoben werden. Nun wird sowohl im Rohgaswärmeübertrager als auch im AHDE des GUD überkritischer Dampf erzeugt und das Gasturbinenabgas unter Einhaltung der definierten Grädigkeit optimal ausgenutzt. Diese Maßnahme führte gegenüber dem Hochdruck-Fall zu einer Steigerung des Anlagenwirkungsgrades um rund 0,6 %-Punkt auf 42%. Dabei steigt die Leistungsabgabe der Dampfturbine um fast 27%. Allerdings ist diese Verbesserung auch den Synergien durch die Druckerhöhung geschuldet, da bei niedrigerem Systemdruck (WGR-Fall) und damit Turbinenaustrittstemperatur nur eine geringfügige Verbesserung (0,1 %-Punkte) durch die Anhebung der Frischdampfparameter erzielt werden konnte.

Aufgrund des hohen Sauerstoffbedarf, liegt besonders im Oxy-Konzept der Einsatz der membranbasierten Luftzerlegung (**OTM**) nahe. Dazu wird das OTM-Modul mit der Gasturbine gekoppelt. Nun wird anstatt des Sauerstoffs der Luftstrom für die OTM in der Gasturbine verdichtet. Die Druckluft wird anschließend durch die Produktströme vorgewärmt und durch Zugabe von etwas Brenngas auf die finale Temperatur von 850°C erhitzt. Der abgetrennte Sauerstoff wird intern verdichtet, vorgewärmt und direkt der Gasturbinenbrennkammer zugegeben. Die ausgelaugte Druckluft wird nach der Wärmerückgewinnung in einer Heißluftturbine entspannt. Da die Integration der OTM auf die Luftentnahme beschränkt ist, ändern sich die wesentlichen Parameter des GUD-Teils (Druckverhältnis und Rezirkulierungsrate) kaum. Allerdings sinkt aufgrund des verringerten Brenngasstroms und dem erhöhtem Verdichtungsaufwand (7,6 fache gegenüber Sauerstoff) die Bruttoleistung des GUD-Teils um 35,8%. Berücksichtigt man die Leistung der Heißluftturbine, so beträgt die Leistungsabnahme aber nur rund 7,5%. Entsprechend sinkt der Bruttowirkungsgrad des Konzepts auf 57,2%. Da aber aufgrund der Luftentnahme aus der Gasturbine der Eigenbedarf des Kraftwerks deutlich abnimmt (-36,7%), führt der Optimierungsschritt zu einem signifikanten Anstieg des Nettowirkungsgrades um rund 1,7 %-Punkte.

Auch für das Oxy-Konzept sollen abschließend konventionelle Optimierungsschritte untersucht werden. Da gemäß Abbildung 86 eine Druckerhöhung im System mit steigender Turbineneintrittstemperatur zunehmend positiv wirkt, wird die TET angehoben. Aufgrund des veränderten Arbeitsmediums und dem damit einhergehenden erhöhten Wärmeeintrag in die Gasturbinenschaufeln, wurde allerdings nur eine Eintrittstemperatur von 1220°C (ISO) (**TET 1220°C**) angenommen. Allein diese Anhebung führt zu einer Zunahme der Nettoleistung um 22,35 MW und damit zu einer Erhöhung des Anlagenwirkungsgrades um 2,1 %-Punkte. Aufgrund der höheren TET kann nun auch ein größeres Druckverhältnis über die Hochdruckgasturbine gewählt werden, ohne das die Turbinenaustrittstemperatur zu stark absinkt. So erhöht sich dieses von rund 10,9 (1120°C) auf

etwa 16.2 (1220°C). Zudem ist der Rezirkulierungsaufwand geringer, was zu einem reduziertem Wassergehalt (-2,6%) des Arbeitsmediums und damit thermischer Belastung in der Turbine führt.

Neben den Gasturbinen- und Frischdampfparametern ist der realisierbare Kondensatordruck die dritte charakteristische Größe eines GUD-Kreislaufs. Es wurde bereits dargelegt, dass der erzielbare Kondensatordruck bei der Rauchgaskondensation deutlich höher als bei Wasserdampf sein muss. Um eine Verbesserung dieses Parameters zu bewerten, wird angenommen, dass der Druck von 100 mbar auf 75 mbar abgesenkt werden kann. Im entsprechenden Konzept (**Druck Kond**) führte dies zu einem Anstieg der Leistung in der Niederdruckgasturbine. Allerdings steht dem gegenüber der erhöhte Aufwand für die CO<sub>2</sub>-Verdichtung, welches nun von einem geringeren Druckniveau aus komprimiert werden muss. In Summe führt die Druckabsenkung im Kondensator daher nur zu einem moderaten Wirkungsgradgewinn von knapp 0,4 %-Punkten.

In Summe ergibt sich für das langfristige Wirkungsgradpotential des **Oxy-II-Konzepts** ein Wert von 46,2%. Das entspricht einer Steigerung um 7,6 %-Punkte gegenüber dem Basisfall. Auch hier zeigt der große Unterschied im Wirkungsgradpotential (+6,2 %-Punkte) zwischen mittelfristigem (Oxy-I) und langfristigen Konzept (Oxy-II) die Vorteile der konsequenten Neuausrichtung des Kraftwerks auf zukünftige Technologien. Durch die nachgeschaltete Abtrennung steigt der CO<sub>2</sub>-Abtrennungsgrad auf über 97%, was zu spezifischen Restemissionen von 20,2 g/kWh führt. Trotz der beträchtlichen Reduktion im Vergleich zum Basisfall (-76%) erscheint der Wert vergleichsweise hoch. Grund dafür ist die direkte Vorwärmung der Druckluft in der OTM durch Brenngas. Das hier entstehende CO<sub>2</sub> wird nach der Entspannung in der Heißluftturbine an die Umgebung abgegeben und führt damit unweigerlich zu Emissionen in Höhe von rund 15,2 g/kWh. Wird demnach auf die kryogene Luftzerlegung zurückgegriffen, sinkt zwar der Wirkungsgrad etwas ab, allerdings steigt der Abtrennungsgrad aufgrund der vermiedenen Emissionsquelle auf fast 99%. Damit erreicht ein solches Oxy-Konzept spezifische CO<sub>2</sub>-Emissionen im Bereich von 7 g/kWh, was einen nahezu emissionsfreien Kraftwerksbetrieb ermöglicht. Allerdings ist die Aufbereitung des CO<sub>2</sub> in der vorliegenden Arbeit nicht detailliert betrachtet und in der Realität mit einem CO<sub>2</sub>-Schlupf verbunden. Daher würden die real erzielbaren spezifischen Emissionswerte derartiger Oxy-Konzepte höher ausfallen, als hier theoretisch ermittelt. Trotz der erhöhten CO<sub>2</sub>-Emission ist die Integration der OTM aus energetischer Sicht sehr vorteilhaft. Das Potential der Heißgasreinigung ist limitiert, da eine ausreichende Entschwefelung des Brenngases sichergestellt werden muss.

## 6.5 IGCC mit integrierter Brennstoffzelle

In Kapitel 5 wurde die hohe Abhängigkeit des IGCC-Wirkungsgrades von den erzielbaren Gasturbinenparametern deutlich. Trotz langjähriger Entwicklung und kontinuierlicher Steigerung der Effizienz, verursacht die Technologie durch die verlustbehaftete Energieumwandlung den größten exergetischen Verlustbeitrag (Kapitel 5.5). Der Einsatz alternativer Stromerzeugungstechnologien, wie Brennstoffzellen, wurde in der Literatur für klassische IGCC-Anlagen schon mehrfach vorgeschlagen. In der vorliegenden Arbeit wird speziell das Potential der Heißgasreinigung und die Adaption der Brennstoffzelle an die IGCC-Betriebsbedingungen (IGCC-BZ) untersucht.

### 6.5.1 Konzeptbeschreibung

Die Kombination aus IGCC-Kraftwerk und SOFC Brennstoffzelle wurde bislang vor allem für Konzepte ohne CO<sub>2</sub>-Abtrennung betrachtet. Hier wurde das unvollständig umgesetzte Brenngas anschließend mit der heißen Anodenabluft in einer Brennkammer umgesetzt und anschließend in einem AHDE genutzt. Im Falle eines Konzepts mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung muss das verbleibende Brenngas allerdings mit Sauerstoff umgesetzt werden, um dessen Verdünnung mit dem Luftstickstoff zu vermeiden. Hinsichtlich der Integration der SOFC ist sowohl ein Betrieb unter Druck sowie ein druckloser Betrieb möglich. Da der Druckbetrieb mit höherer mechanischer Belastung verbunden ist und zu Spannungen und Dichtigkeitsproblemen führen kann, soll mittelfristig zunächst der nahezu atmosphärische Betrieb angenommen werden. Dazu wird das erstellte SOFC-Modell in eine klassische Vergaserinsel mit der bereits bekannten Kaltgasreinigung integriert. Das heiße Vergasungsgas wird im Rohgaswärmeübertrager gekühlt, in einer Wasserwäsche gereinigt und anschließend via Hydrolysestufe und MDEA von Schwefelkomponenten befreit. Danach erfolgt eine Sättigung mit Heißwasser und die Vorwärmung auf 750°C. Da die SOFC nahezu bei Umgebungsdruck betrieben wird, muss das druckaufgeladene Brenngas vor Eintritt in die SOFC in einer Turbine entspannt werden. Zur Sicherstellung des notwendigen Wasserdampfgehalts im Gas wird einerseits MD-Sattdampf aus der Vergaserkühlung zugemischt und andererseits Anodenabgas rezirkuliert. Zur Vorwärmung des frischen Gases wird das heiße Anodenabgas genutzt, welches dadurch auf rund 500°C abgekühlt wird. Das Abgas wird anschließend mit Sauerstoff aus der kryogenen LZA verbrannt (Lambda 1,05) und das entstehende Rauchgas einem AHDE zugeführt. Aufgrund der Anodengasrezirkulierung und dem damit einhergehenden hohem Brennstoffumsatz in der SOFC, ist der Heizwert des Abgases gering und bedarf keiner weiteren Verdünnung bei dessen Nachverbrennung. Da das Rauchgas überwiegend aus Kohlendioxid und Wasserdampf besteht, kann nach der

Wärmerückgewinnung das Kohlendioxid durch Kondensation des Wasseranteils gewonnen und anschließend aufbereitet und verdichtet werden. Die Abluft der Kathode wird seinerseits zur Vorwärmung der neuen Luft genutzt und anschließend zur Energierückgewinnung entspannt. Da die Abluft nun immer noch Temperaturen über 200°C aufweist, kann noch ND-Dampf sowie das notwendige Heißwasser für die Brenngassättigung erzeugt werden. Der Luftüberschuss des Konzepts wird so gewählt, dass die Abluft die überschüssige freie Reaktionswärme abführen kann und keine zusätzliche externe Kühlung notwendig ist. Zudem treten sowohl Luft als auch Brenngas unterkühlt in die Brennstoffzelle ein. Um thermische Spannungen zu vermeiden, wird die maximale Differenz zur Betriebstemperatur auf 150°C begrenzt. Gemäß obiger Beschreibung kann das BZ-I-Konzept gemäß Abbildung 90 dargestellt werden.

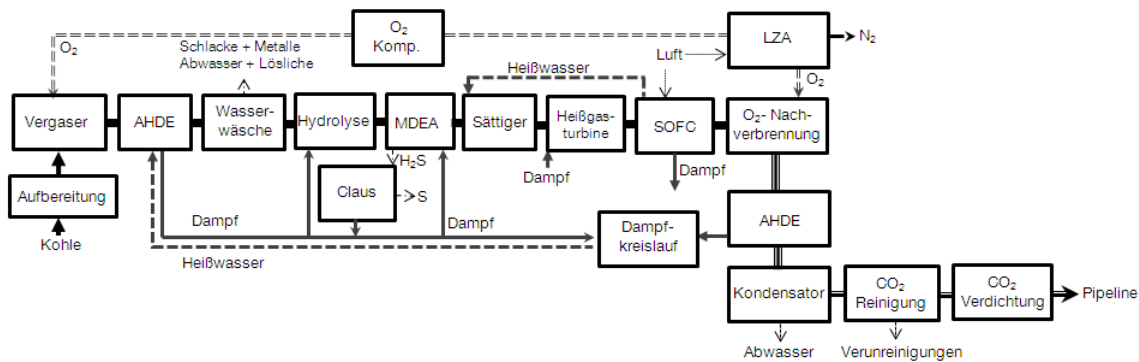


Abbildung 90: Schema der mittelfristigen Anlagenkonfiguration des BZ-I-Konzepts

Für die Ermittlung des langfristigen Potentials wird das BZ-Konzept an die Betriebsbedingungen des IGCC angepasst. Da für die klassische Gasreinigung das Rohgas zunächst stark abgekühlt und anschließend für die Umsetzung in der Brennstoffzelle wieder erwärmt werden muss, erscheint auch hier der Einsatz einer Warmgasreinigung grundsätzlich sinnvoll (**WGR**). Aufgrund der hohen Reinheitsanforderungen der Brennstoffzelle an das Brenngas, wird nur ein mittleres Temperaturniveau von 500°C angenommen. Hier sollten noch Halogene und insbesondere Schwefelverbindungen bis zu geringsten Konzentrationen adsorptiv abgetrennt werden können (siehe Tabelle 8). Zunächst werden Schlacke und metallische Verbindungen/Alkalien durch die bekannte Flüssigascheabscheidung abgetrennt. Anschließend erfolgt die Entschwefelung mittels ZnO. Außerdem wird in der Brennstoffzelle selbst, neben der Kühlung durch Luftüberschuss, nun noch eine zusätzliche externe Kühlung (überhitzter HD-Dampf) angenommen (**Externe Kühlung**). Da dies innerhalb der Zelle konstruktiv möglicherweise schwieriger zu realisieren ist, wird die Wärme aus

dem rezirkulierten Anodenabgas gewonnen. Damit ergibt sich eine größere Aufwärmspanne in der Brennstoffzelle. Um nun etwaige thermische Spannungen zu vermeiden, wird die Temperaturdifferenz auf maximal 300°C begrenzt. Da bereits in bestehenden Arbeiten [Grol et al. 2008, Grol 2009], bei druckaufgeladenen SOFC-Konzepten höhere Wirkungsgrade nachgewiesen wurden, soll im langfristigen Konzept BZ-II das Brenngas nach der Reinigung, direkt in der Brennstoffzelle umgesetzt werden (**Hochdruck**). Da nur ein geringer Druckverlust im Anodenkanal auftritt, kann das Anodenabgas mit Sauerstoff in einer Gasturbine verbrannt werden. Der Turbinenausstrittsdruck wird so gewählt, dass die notwendige Grädigkeit zur Erzeugung des überhitzten Frischdampfes eingehalten wird. Die CO<sub>2</sub>-Gewinnung aus dem Abgas sowie dessen Aufbereitung erfolgt analog dem Konzept BZ-I. Abschließend wird anstelle der kryogenen Luftzerlegung noch die OTM basierte Sauerstoffbereitstellung implementiert (**OTM**). Basierend auf der obigen Beschreibung kann die Struktur des langfristigen BZ-II-Konzepts gemäß Abbildung 91 dargestellt werden.

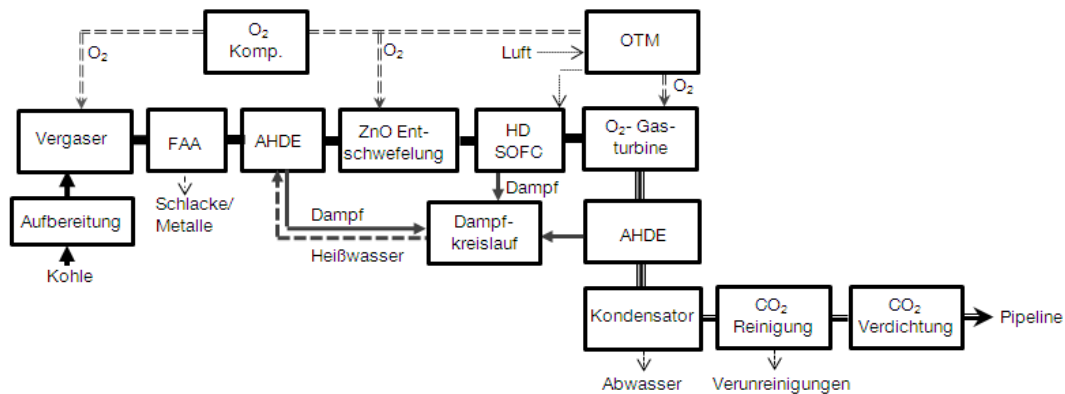


Abbildung 91: Schema der langfristigen Anlagenkonfiguration des BZ-II-Konzepts

### 6.5.2 Konzeptanalyse IGCC-BZ

Die Simulation des mittelfristigen BZ-I-Konzepts mit atmosphärischer SOFC und konventioneller Gasreinigung erzielte einen Bruttowirkungsgrad von 53,9%. Das entspricht einer Steigerung gegenüber dem Basisfall um 4,5 %-Punkte und verdeutlicht die verbesserte Brennstoffausnutzung des BZ-Konzepts. Da im vorliegenden Fall nur das Anodenrestgas mit Sauerstoff verbrannt wird, ist der Energiebedarf für die Luftzerlegung moderat. Zudem kann das Kohlendioxid nahe Umgebungsdruck aus dem Abgas gewonnen werden. Dadurch sinkt in Summe sogar der Eigenbedarf des BZ-I-Konzepts im Vergleich zum Basisfall um

rund 6%. Die Zusammensetzung ist in Abbildung 92 dargestellt. Die bessere Brennstoffnutzung bei moderaten Eigenbedarf führt zu einer Erhöhung des Nettowirkungsgrades um 5,1 %-Punkte gegenüber dem Basisfall auf 43,7%. Da das Kohlendioxid durch Abgaskondensation gewonnen wird, liegt zudem der CO<sub>2</sub>-Abtrennungsgrad mit 97,4% deutlich höher. Allerdings kommt es in der Brenngaskonditionierung und CO<sub>2</sub>-Aufbereitung zu einem CO<sub>2</sub>-Schlupf, weshalb sich trotz des hohen Wirkungsgrads spezifischen CO<sub>2</sub>-Restemissionen von 20,7 g/kWh ergeben.

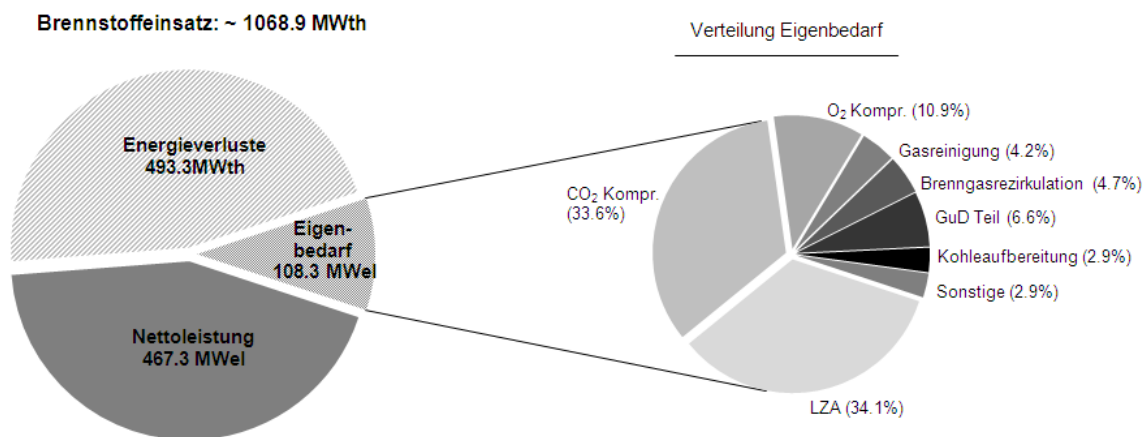


Abbildung 92: Energiebilanz des BZ-I-Konzepts

Im Gegensatz zu den bisherigen Kraftwerkskonzepten entstammen nun 58,1% der gesamten Bruttoleistung des Kraftwerks aus der Brennstoffzelle. Die Entspannung des Brenngases auf den geringen Betriebsdruck der SOFC trägt mit rund 11,6% zur Kraftwerksleistung bei. Da das Anodenabgas der Brennstoffzelle bei entsprechend geringem Druck vorliegt, entfällt die klassische Gasturbine und die Nachverbrennung wird in einer einfachen Brennkammer realisiert. Aufgrund der effizienten Wärmerückgewinnung des nachverbrannten Anodenabgases sowie der Einbindung des überhitzten Hochdruckdampfes aus der Rohgaskühlung der Gasinsel, erzeugt der konventionelle Dampfkreislauf immerhin 30,3% der Bruttoleistung. Letztlich stammt aber deutlich über die Hälfte der erzeugten Leistung aus der SOFC. Entsprechend groß ist der Einfluss der Brennstoffzelle sowie die unsicheren Randbedingungen auf den Wirkungsgrad der Gesamtanlage. Daher soll zunächst das Verhalten des betrachteten Konzepts bei einer Veränderung der Brennstoffzellenparameter aufgezeigt werden.

## Einfluss der Betriebsgrößen auf die Brennstoffzelle

Entscheidend für die Leistung der SOFC ist die erzielbare Zellspannung sowie der Brennstoffumsatz über die Zelle. Im BZ-I-Konzept wird ein Umsatz für die elektrochemische Umwandlung von 70% für den einmaligen Durchgang angenommen. Durch Rezirkulierung des Anodengases ergibt sich im konkreten Fall ein Gesamtumsatzgrad von 91%. Die Rezirkulierung des Anodenabgases wurde so gewählt, dass das geforderte  $\text{H}_2\text{O}$  zu  $\text{CO}$ -Verhältnis im Gas von mindestens 1,8 sichergestellt ist und beträgt im konkreten Fall 70%. Zur internen Kühlung der SOFC wurde eine Luftzahl von rund 6,7 eingestellt, womit der Luftnutzungsgrad bei etwa 15% liegt. Da durch die hohe Vergasungstemperatur kaum Kohlenwasserstoffe im Rohgas vorhanden sind, ist der Wärmebedarf durch interne Refomierungsreaktionen vernachlässigbar. Demzufolge muss mehr freie Reaktionswärme durch die Überschussluft abgeführt werden. Anhand der angenommenen Stromdichte von  $150 \text{ mA/cm}^2$  werden die auftretenden Spannungsverluste abgeschätzt (nach [Panopoulos et al. 2006]) wodurch sich eine Zellspannung von  $0,66\text{V}$  ergibt. Variiert man nun, bei sonst gleichen Randbedingungen, die Stromdichte, hat dies signifikante Auswirkungen auf die Leistung der SOFC und damit auf den erzielbaren Wirkungsgrad der Gesamtanlage.

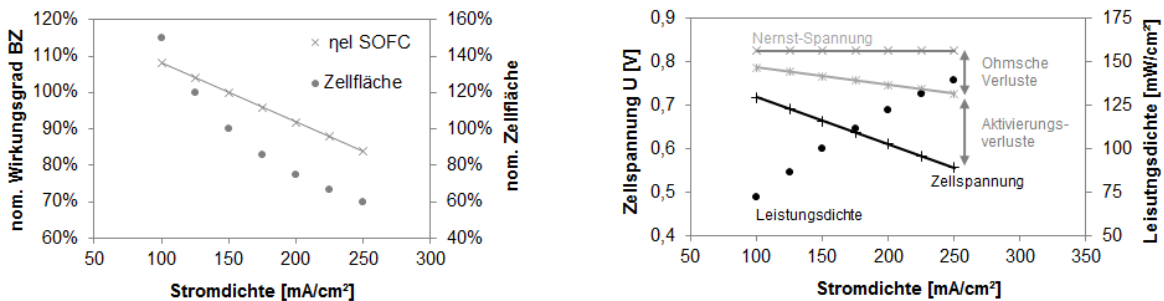


Abbildung 93: Einfluss der Stromdichte auf Wirkungsgrad (a) und Zellspannung (b)

Wie in Abbildung 93 (a) ersichtlich, sinkt mit zunehmender Stromdichte der erzielbare SOFC-Wirkungsgrad und damit zwangsläufig der Anlagenwirkungsgrad. Ein Betrieb bei niedrigen Stromdichten bedeutet aber bei sonst gleichem Brennstoffumsatz einen Anstieg der Zellfläche. Im konkreten Fall würde Senkung der Stromdichte um ein Drittel die benötigte Zellfläche um 50% erhöhen bzw. bei einer entsprechenden Erhöhung die Fläche um 25% reduzieren. Zudem stellt sich auch die Frage der praktischen Realisierung und baulichen Abmaße. Hier muss aus wirtschaftlicher Sicht ein Kompromiss zwischen erzielbarem Wirkungsgrad und Anlagenkosten getroffen werden. Grund für den Abfall der Leistung sind die ansteigenden Spannungsverluste (Abbildung 93 (b)) bei hohen Stromdichten und



die damit verbundene Reduzierung der Zellspannung. Besonders die Aktivierungsverluste nehmen deutlich zu. Bei einer weiteren Erhöhung nehmen zudem die in der Arbeit vernachlässigten Konzentrationsverluste signifikant zu. In Summe führt dies zu einer Abflachung der Leistungsdichte, welche bereits in Abbildung 93 (b) tendenziell erkennbar ist. Da die Verluste nicht experimentel ermittelt wurden, sondern gemäß der Literatur [Panopoulos et al. 2006, Doherty et al. 2009] abgeschätzt wurden, ergeben sich auch hier Unsicherheiten die einen Einfluss auf den ermittelten Wirkungsgrad des Modells haben.

Neben den bereits behandelten SOFC-Parametern sind Betriebstemperatur und -druck von großer Bedeutung. Erstere liegt gegenwärtig in einem Bereich von 800 bis 1000°C, welcher durch die Materialeigenschaften festgelegt ist. Dabei ist eine möglichst hohe Temperatur vorteilhaft für den Betrieb. Zwar sinkt mit steigender Temperatur die Nernstspannung, allerdings sinken die Verluste überproportional, weshalb im Modell ein Anstieg der resultierenden Zellspannung festzustellen ist. Dadurch steigt die erzielbare SOFC-Leistung, was bei sonst unveränderten Größen zu einem Anstieg des Gesamtwirkungsgrades führt. Eine Absenkung der Betriebstemperatur führt hingegen zu einem Anstieg der Spannungsverluste (insbesondere der Aktivierungsverluste). Dies führt zu einem starken Absinken der Zellspannung und des erzielbaren Wirkungsgrades. Damit sind bislang die SOFC-Brennstoffzellen auf diese hohen Betriebstemperaturen beschränkt, wenngleich die Forschung darauf abzielt, die gleiche Zellspannung auch bei niedrigeren Temperaturen zu ermöglichen.

Da neben der Temperatur auch der Betriebsdruck einen großen Einfluss hat, wird dieser zwischen 1 und 30 bar variiert (Abbildung 94). Da die Vergasung unter hohem Druck (25 bis 50 bar) stattfindet, ist der Brenngasdruck auf das Niveau der SOFC zu reduzieren. Dies kann bei niedrigen Betriebsdrücken durch eine Heißgasturbine realisiert werden, wodurch zusätzlich Energie gewonnen werden kann. Allerdings verdeutlicht der Verlauf des elektrischen Wirkungsgrades in Abhängigkeit des Betriebsdrucks (Abb. 95 (a)) klar den positiven Effekt des Drucks. So steigt der elektrische Wirkungsgrad von 41,2% bei einer atmosphärischen SOFC auf 50,3% und damit um rund 9 %-Punkte bei Anhebung des Betriebsdrucks auf 30 bar. Betrachtet man den Verlauf der Zellspannung so wird deutlich, dass diese mit dem Druck ansteigt. Der Druck führt zu einem Anstieg der Nernstspannung und Abnahme der Aktivierungsverluste. In Summe führt dies zu einer Erhöhung der erzielbaren Zellspannung, was sich im Wirkungsgradverlauf der SOFC widerspiegelt. Für das langfristige BZ-II-Konzept lässt sich daher der Einsatz einer druckgeladenen Brennstoffzelle ableiten, welche aus einer rein energetischen Sicht frei an den Vergaserdruck angepasst werden kann. Begrenzt wird der Druck aber durch mechanische Beanspruchung und der zunehmenden Neigung des Nickels der Anode zur Reoxidation

bei sehr hohen Sauerstoffpartialdrücken [Finkenrath 2005]. Der Betriebsdruck hat zudem Einfluss auf den Verdichtungsaufwand des Luftmassenstroms. Mit steigendem Betriebsdruck nimmt dieser ebenfalls zu und führt bei höheren Drücken zu einem Abflachen des Wirkungsgradanstiegs. Demnach ist der positive Effekt einer Druckerhöhung insbesondere im unteren Variationsbereich bis 10 bar am größten. Ab 20 bar sinkt der Druckeinfluss hingegen merklich ab und ist aus energetischer Sicht nur noch von geringerer Bedeutung.

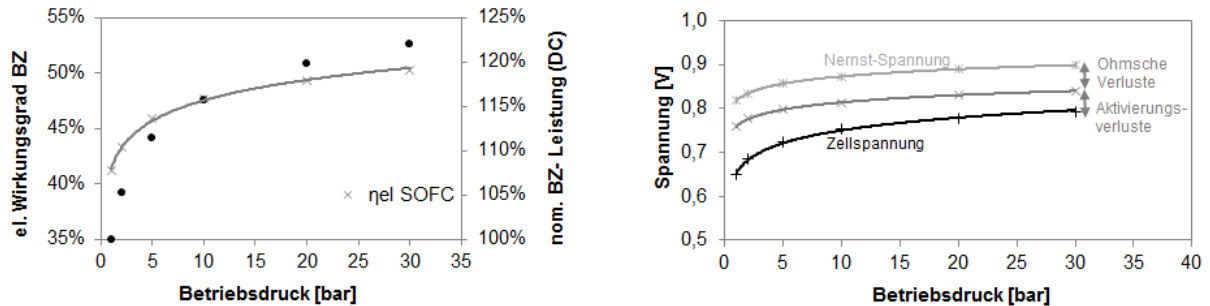


Abbildung 94: Einfluss des Betriebsdrucks auf BZ-Wirkungsgrad (a) und Zellspannung (b)

### Einfluss der SOFC-Parameter auf Anlagenwirkungsgrad

In den bisherigen Betrachtungen wurde der Einfluss ausgewählter Parameter auf die Brennstoffzelle und deren Leistungsfähigkeit betrachtet. Im folgenden Abschnitt soll der Einfluss des Brennstoffumsatzes und der erzielbaren Zellspannung auf die Gesamtanlage aufgezeigt werden. Der Gesamtumsatz ergibt sich durch die Festlegung des Umsatzes bei einmaligen Durchgang und der Rezirkulierungsrate. Trotz der Orientierung an Literaturwerten ist der resultierende Brennstoffumsatz in der SOFC nicht experimentell begründet. Daher kommt es zu Abweichungen, welche einen nicht zu vernachlässigenden Effekt auf den Anlagenwirkungsgrad haben, wie Abbildung 95 gezeigt.

Die Betrachtung zeigt einen linear ansteigenden Wirkungsgrad mit steigendem Brennstoffumsatz. Wird bei einem Umsatz von 75,5% noch ein Gesamtwirkungsgrad von rund 42% erreicht, steigt dieser bei einem Umsatz von 91% auf 43,7% (BZ-I). Daher gilt es möglichst viel der chemisch gebundenen Energie des Brenngases elektrochemisch zu wandeln. Je nach Umsatzgrad variiert der spezifische Heizwert des verbleibenden Anodenabgases. Geringe Umsätze führen zu sehr hohen Temperaturen in der Nachverbrennung, was eine Abgas-Rezirkulierung bedingt. Um die Aufkonzentration von Wasserdampf zu vermeiden

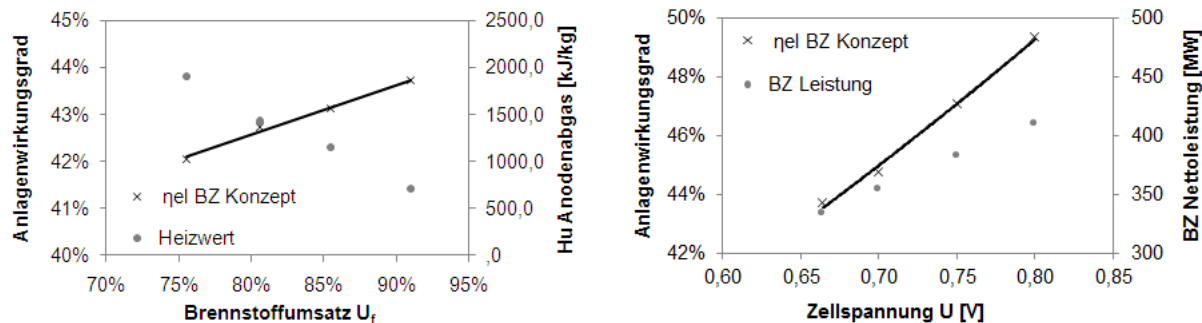


Abbildung 95: Einfluss des Brennstoffumsatzes und der Zellspannung auf den Anlagenwirkungsgrad (Stromdichte  $1500 \text{ A/m}^2$ ,  $1,3 \text{ bar}$  und  $900^\circ\text{C}$ )

und den Energiebedarf für die Rezirkulierung gering zu halten, wird dafür kaltes  $\text{CO}_2$  genutzt. Zudem muss mehr Sauerstoff bereitgestellt werden, was zu einem deutlichen Anstieg des damit einhergehenden Energiebedarfs führt.

Als weitere wesentliche Größe wird nun die erzielbare Zellspannung der Brennstoffzelle zwischen  $0,66$  und  $0,8\text{V}$  variiert. Im genutzten Modell wird dieser Wert über die Nernstspannung abzüglich der abgeschätzten Spannungsverluste ermittelt. Da die Verluste nicht empirisch bestimmt und zudem von Geometrie und Stoffeigenschaften abhängig sind, ist die ermittelte Zellspannung mit Unsicherheit behaftet. Wie in Abbildung 95 (b) ersichtlich, hat die Zellspannung einen großen Einfluss auf den Gesamtprozess. Ist es möglich die Zellspannung von  $0,664\text{V}$  auf  $0,8\text{V}$  zu erhöhen, so steigt der Wirkungsgrad des Konzepts um  $5,7 \text{ \%-Punkte}$  auf  $49,4\%$ . Da die Erhöhung der Zellspannung mit keiner Zunahme des Eigenbedarfs verbunden ist, kann die Nettoleistung des Kraftwerks im konkreten Fall um  $12,9\%$  gesteigert werden. Das BZ-Konzept reagiert demnach sehr sensitiv auf die angenommene Zellspannung. Daher sollten konkretere Betrachtungen auf experimentell gewonnenen Daten basieren.

### 6.5.3 Potentialabschätzung IGCC-BZ

Bereits bei der Analyse des BZ-I-Konzepts wird deutlich, welches Wirkungsgradpotential bereits mittelfristig durch Einsatz einer atmosphärischen Hochtemperaturbrennstoffzelle erschlossen werden kann. Die Simulation ergab ein Nettowirkungsgradpotential von  $43,7\%$  bei gleichzeitiger Reduzierung der spezifischen  $\text{CO}_2$ -Emissionen auf rund  $20,7 \text{ g/kWh}$ . Damit weist das BZ-I-Konzept ein Wirkungsgradpotential von  $5,1 \text{ \%-Punkte}$  gegenüber dem Basisfall auf. Trotzdem sollen nun weitere Optimierungsschritte untersucht werden, um das langfristige Potential der Kombination von Hochtemperaturbrennstoffzelle und

IGCC abschätzen zu können. Die ermittelten Ergebnisse hierzu sind in Abbildung 96 dargestellt und werden im folgenden Abschnitt diskutiert.

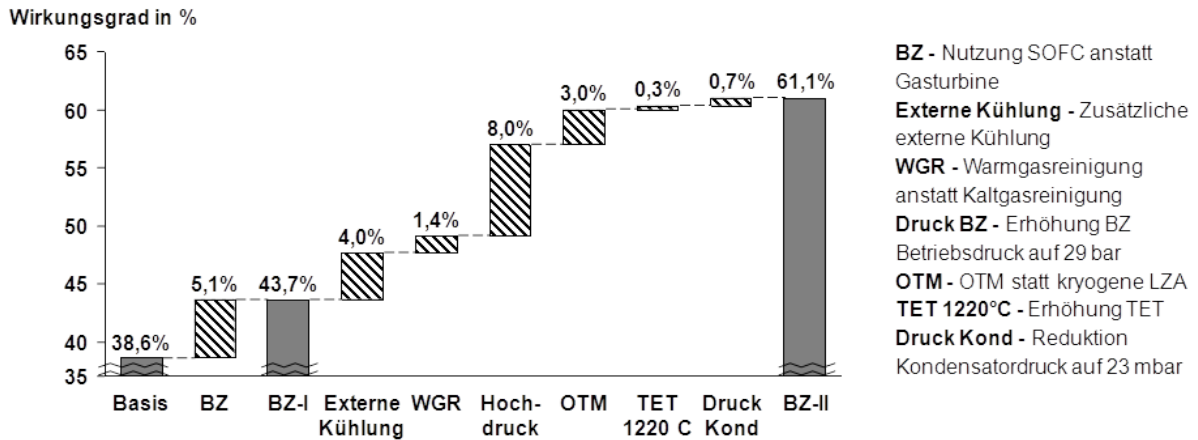


Abbildung 96: Potentialanalyse des IGCC-BZ-Konzepts

Im ersten Schritt soll zunächst, analog den vorhergehenden Konzepten, das Temperaturniveau der Brenngaskonditionierung angehoben werden. Sowohl die Vergasung als auch die Umsetzung des resultierenden Vergasungsgases in der SOFC werden bei hohen Temperaturen vollzogen. Die konventionelle Kaltgasreinigung erfordert aber eine starke Abkühlung des Gases was mit apparativem Aufwand (Wärmeverschiebungssystem) und bei der anschließenden Aufwärmung (Energieverluste) verbunden ist. Bei einer Warmgasreinigung müsste weniger Wärme verschoben und das Brenngas weniger vorgewärmt werden. Da in der Brennstoffzelle die Kühlung der Reaktionswärme durch Überschussluft realisiert wird, führt eine Erhöhung der Eintrittstemperatur des Anodengases zu einem erhöhten Kühlbedarf. Dies bedeutet mehr Verdichtungsaufwand und eine aufwändigere Wärmerückgewinnung in der Abluft. Aus diesem Grund konnte im BZ-I-Konzept keine signifikante Verbesserung des Wirkungsgrades bei Einsatz der Warmgasreinigung erzielt werden. Daher wurde zunächst die reine interne Kühlung (Überschussluft) der Brennstoffzelle gegen eine Kombination aus externer und interner Kühlung ersetzt. Im entsprechenden Konzept (**Externe Kühlung**) wird nun das rezirkulierte Anodengas zunächst gekühlt und dessen Abwärme zur Erzeugung von überhitztem Hochdruckdampf genutzt. Auf diese Weise kann ein apparativer Eingriff in die Brennstoffzelle selbst vermieden werden. Allerdings erhöht sich durch die Wärmenutzung der Druckverlust was einen erhöhten Rezirkulierungsaufwand (Verdichter) bedingt. Da sich auch die Dampfproduktion erhöht, steigt zudem der Energieaufwand für den Kondensator. In Summe führt das zu einem Anstieg des Eigen-

bedarfs um rund 4% gegenüber der Basiskonfiguration (BZ-I). Außerdem ergibt sich bei Kühlung des rezirkulierten Gasstroms eine niedrigere Mischungs- und damit Eintrittstemperatur für das Anodengas, wodurch die Temperaturdifferenz zur Betriebstemperatur ansteigt (maximal 300°C). Die Temperaturdifferenz ist damit bereits recht hoch, allerdings kommt es aufgrund der sehr geringen Methankonzentration im Gas kaum zu endothermen Reaktionen. Diese würden sonst zu lokalen Temperatursenken und damit zu erhöhter Materialbelastung führen. Durch Einsatz der externen Kühlung kann das Lambda der SOFC um 56% gesenkt werden, was die Nettoleistung der SOFC um 4,6% erhöht. Da sich die Dampfproduktion in der Gasinsel fast verdoppelt, kann die Leistung des Dampfkreislaufes um fast ein Viertel gesteigert werden. In Summe führt daher die zusätzliche externe Kühlung zu einem Anstieg des Nettowirkungsgrades um rund 4 %-Punkte gegenüber dem Konzept mit reiner internen Kühlung (BZ-I). Dies bedeutet auch eine Reduzierung der spezifischen CO<sub>2</sub>-Emissionen um 10,5% bei gleicher Abtrennungsrate.

Da mit der zusätzlichen externen Kühlung die Reaktionswärme besser genutzt werden kann, wird erneut die Warmgasreinigung implementiert (**WGR**). Aufgrund der hohen Reinheitsanforderungen an das Anodengas wird hier das maximale Temperaturniveau auf 500°C limitiert. Dadurch sollten Halogene und insbesondere die Schwefelverbindungen adsorptiv gebunden werden können. Alkalien und Metalle sollten bereits durch die Flüssigascheabscheidung auf ein verträgliches Maß reduziert worden sein. Sollte es zukünftig möglich sein, auf diese Weise eine ausreichende Gasreinheit sicherzustellen, wird das Anodengas mit 500°C der Brennstoffzelle zugeführt. Damit wird der SOFC mehr Wärme zugeführt, wodurch das rezirkulierte Anodenabgas deutlich stärker gekühlt werden kann bis die maximal zulässige Temperaturdifferenz von 300°C ausgeschöpft ist. Entsprechend kann die Dampfproduktion gesteigert werden, wodurch die Leistung des Dampfkreislaufes um 7,8% zunimmt. Da das Anodenrestgas ebenfalls mit höherer Temperatur nachverbrannt wird, kann auch im AHDE mehr Dampf erzeugt werden. In Summe führen die genannten Punkte zu einer Steigerung des Nettowirkungsgrad des Konzepts um 1,4 %-Punkte auf 49,1%. Das Potential der Warmgasreinigung zeigt sich bei dem Brennstoffzellenkonzept damit erst bei Einsatz der externen Kühlung. Da es bei der Warmgasreinigung zu keiner Lösung von CO<sub>2</sub> in wässrigen Medien kommt, wird der Kohlenstoffschlupf der Gaskonditionierung deutlich vermindert. Dies führt zu einer Steigerung der CO<sub>2</sub>-Abtrennungsrate auf nahezu 99% und bedeutet eine Reduzierung der spezifischen CO<sub>2</sub>-Emissionen auf 7,3 g/kWh. Damit werden diese um fast 92% gegenüber Basisfall gesenkt.

Wie in der Konzeptanalyse aufgezeigt, hat der Betriebsdruck der Brennstoffzelle einen beträchtlichen Einfluss auf deren Wirkungsgrad und damit auf die Effizienz des gesamten Kraftwerkes. Im Gegensatz zu anderen Studien wird die Brennstoffzelle im Bereich

des Vergaserdrucks betrieben. Berücksichtigt man noch einen Druckverlust in der Gaskonditionierung, ergibt sich ein deutlich höherer Betriebsdruck von rund 29 bar gegenüber den bisherigen 1,3 bar. Die Erhöhung der Partialdrücke führt dabei zu einem Anstieg der Nernstspannung um etwa 8%. Da sich die Aktivierungsverluste zusätzlich noch verringern, steigt die Zellspannung aber noch deutlicher um 18% von 0,67 auf 0,79V. Zwar steigt der Aufwand für die Luftverdichtung, allerdings verringert sich durch den höheren SOFC-Wirkungsgrad der Kühlbedarf und damit das Lambda um rund 34%. Somit überwiegt der positive Effekt der Erhöhung der Zellspannung deutlich und führt zu einer Steigerung der Nettoleistung der Brennstoffzelle von 21,3%. Da nun das noch heiße Brenngas direkt der Anode zugeführt wird, entfällt sowohl die Heißgasturbine als auch die Vorwärmung durch das Anodenabgas. Damit kann das Anodenabgas anschließend in einer sauerstoffgefeuerten Gasturbine nachverbrannt werden. Zur Temperaturbegrenzung (TET 1120°C ISO) muss, analog dem Oxy-Konzept, kaltes Rauchgas rezirkuliert werden. Letztlich erzielt das Konzept einen Nettowirkungsgrad von 57,1%, was einer Steigerung um fast 8 %-Punkte entspricht. Damit ist der Betriebsdruck die entscheidende Größe des BZ-Konzepts.

Als weitere Prozessvariation soll nun noch die Integration der membranbasierten Sauerstofferzeugung untersucht werden (**OTM**). Da sowohl die Brennstoffzelle als auch der OTM-Prozess bei ähnlichen Drücken und Temperaturen betrieben werden, ergeben sich grundsätzlich zwei Varianten der Integration. Entweder wird die Luft in der Brennstoffzelle genutzt und anschließend im OTM-Prozess oder umgekehrt. Im ersten Fall wird die eintretende Luft auf die notwendigen Betriebsparameter der SOFC verdichtet und erwärmt. Aufgrund des hohen Sauerstoffpartialdrucks ergibt sich eine hohe Nernst- wie Zellspannung und somit Leistung der SOFC. Allerdings sinkt der Sauerstoffanteil in der Abluft auf 12,6 Mol-%. Dies ist nachteilig für den folgenden OTM-Prozess. Dort wird die Luft zunächst mittels Erdgas auf 850°C erwärmt und anschließend aufgetrennt. Da die Abluft der SOFC bereits auf einem hohen Temperaturniveau ist, müssen hier nur geringe Erdgasmengen zugegeben werden. Um den theoretischen Abtrennungsgrad durch den geringeren Partialdruck der eintretenden Luft konstant zu halten, muss der permeatseitige Druck entsprechend leicht ins Vakuum (0,73 bar) abgesenkt werden. Das verbessert das O<sub>2</sub>-Partialdruckgefälle über die Membran und damit dessen Abtrennung, führt aber in der Sauerstoffverdichtung zu einem erhöhten Energiebedarf. Die praktische Abtrennungsrate wird dabei auf den festgelegten Maximalwert von 85% gesetzt, um die notwendige Menge an Sauerstoff, für die Gasinsel sowie die Nachverbrennung des Anodengas, erzeugen zu können. Trotzdem muss das Lambda in der Brennstoffzelle auf 2,24 erhöht werden, um die notwendige Luftmenge für den OTM-Prozess bereitzustellen. Damit erhöht sich der Verdichtungsaufwand und insbesondere der Kühllanteil der Luft, wodurch die Dampfpro-

duktion der externen Kühlung entsprechend sinkt. Da die ausgelaugte Luft sowohl eine hohe Temperatur und Druck aufweist, kann diese in einer Heißgasturbine entspannt werden. Die freiwerdende Energie kann zur Verdichtung der eintretenden Luft genutzt werden und deckt damit den Energiebedarf der Luftzerlegung fast vollständig. Dadurch kann der Eigenbedarf deutlich reduziert werden, was zu einer Steigerung des Nettowirkungsgrades um rund 2,8 %-Punkte auf etwa 59,9% führt. Da sich aber durch die OTM der CO<sub>2</sub>-Schlupf vergrößert, steigen trotz Effizienzsteigerung die spezifischen CO<sub>2</sub>-Emissionen auf rund 11,2 g/kWh.

In der zweiten Variante wird die Luft im OTM-Prozess verdichtet, gegen dessen Produkte erwärmt und vor Eintritt mit Erdgas auf die Betriebstemperatur (850°C) aufgeheizt. Da die Luft nun kälter zugeführt wird, muss hier entsprechend mehr Erdgas eingesetzt werden. Aufgrund des hohen Sauerstoffpartialdrucks kann nun ein höherer Permeatdruck (1,2 bar) eingestellt werden, was den Verdichtungsaufwand des Sauerstoffs reduziert. Die praktische Abtrennungsrate in der OTM wird nun so geregelt, dass eine ausreichende Kühlung in der Brennstoffzelle gewährleistet ist. Im konkreten Fall bedeutet dies eine praktische Abtrennungsrate von 44,6% um die maximale Temperaturdifferenz in der SOFC von 300°C einhalten zu können. Dadurch bleibt das  $\lambda$  bei 1,94 und es kann deutlich mehr Reaktionswärme über die externe Kühlung zur Dampfproduktion genutzt werden. Allerdings sinkt durch die Auslaugung in der OTM der Sauerstoffpartialdruck auf 13,6 Mol-%. Dies vermindert die Zellspannung der Brennstoffzelle (-2%) und damit die SOFC-Leistung. Allerdings wird die Luft nun auf einem erhöhten Temperaturniveau zur SOFC geleitet, weshalb dort die Abluft nicht mehr zur Vorwärmung eingesetzt und dadurch mit hoher Temperatur entspannt werden kann. Dies führt bei der Luftverdichtung in Summe zu einem Energieüberschuss und senkt den Eigenbedarf des Konzepts im Vergleich zur ersten Variante. In Summe führt dies zu einer leichten Wirkungsgradsteigerung auf 60,1%. Trotz des geringfügig höheren Wirkungsgrads muss im OTM-Prozess etwa die dreifache Menge an Erdgas eingesetzt werden, wodurch die spezifischen CO<sub>2</sub>-Emissionen auf 18,6 g/kWh ansteigen und damit fast auf dem Niveau des mittelfristigen Konzepts (BZ-I) liegen.

Abschließend soll auch hier auf das zusätzlich vorhandene, konventionelle Potential der GUD-Parameter hingewiesen werden. So kann durch Anhebung der Turbineneintrittstemperatur auf 1220°C (ISO) der Wirkungsgrad um weitere 0,3 %-Punkte angehoben werden (**TET 1220°C**). Die Absenkung des Kondensatordrucks auf 23 mbar (**Druck Kond**) führt sogar zu einer Steigerung von 0,7 %-Punkte. Damit kann für das BZ-II-Konzept ein langfristiges Wirkungsgradpotential von 61,1% abgeschätzt werden, bei spezifischen CO<sub>2</sub>-Restemissionen von 18,2 g/kWh.

## 7 Vergleich und Bewertung der Konzepte

Wie in Kapitel 6 aufgezeigt, weisen die zukünftigen IGCC-Konzepte teilweise beträchtliche Wirkungsgradpotentiale auf. Diese sollen für die beiden Zeithorizonte im folgenden Kapitel verglichen und bewertet werden. Zum besseren Überblick sind die ermittelten Prozessgrößen in Tabelle 26 zusammengefasst. Zunächst sollen deren Wirkungsgradpotentiale sowie die erzielbaren CO<sub>2</sub>-Abtrennungsgrade diskutiert werden. Abschließend erfolgt noch eine qualitative Bewertung hinsichtlich Flexibilität sowie abgeschätzten Forschungsbedarf für die Umsetzung der Konzepte.

Tabelle 26: Simulationsergebnisse der zukünftigen IGCC-Konzepte

	OTM	MR-I	CL-I	Oxy-I	BZ-I	MR-II	CL-II	Oxy-II	BZ-II
Bruttoleistung <sup>1</sup>	509,5	565,8	552,0	600,4	575,6	609,8	587,7	611,3	736,9
Gasturbine	297,8	350,5	207,2	600,4	66,8	348,1	226,3	611,3	123,2
Dampfturbine	211,7	215,3	344,9	-	174,6	261,3	361,3	-	192,4
Brennstoffzelle	-	-	-	-	334,1	-	-	-	421,3
Eigenbedarf <sup>1</sup>	64,7	122,3	117,8	172,3	108,3	101,34	77,2	117,1	69,8
Bruttowirkungsgrad	47,1%	52,9%	51,7%	56,2%	53,9%	57,1%	55,0%	57,2%	67,5%
Nettoleistung <sup>1</sup>	444,8	443,7	434,2	428,1	467,3	508,5	509,8	494,3	667,3
Wirkungsgrad	41,1%	41,6%	40,6%	40,0%	43,7%	47,6%	47,7%	46,2%	61,1%
CO <sub>2</sub> [g/kWh <sub>el</sub> ]	80,3	7,6	18,8	22,4	20,7	6,6	16,5	20,2	18,2
CO <sub>2</sub> -Abtrennung	90,2%	99,1%	97,8%	97,4%	97,4%	99,1%	97,7%	97,3%	96,7%

<sup>1</sup> Angaben in MW

### Energetisches Potential

In Kapitel 5 wurde zunächst das Potential des konventionellen IGCC-Prozesses mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung auf Basis der klassischen Kaltgasreinigung und kryogener Luftzerlegungsanlage abgeschätzt. Auffallend war die starke Abhängigkeit von der Steigerung der Turbineneintrittstemperatur, was aber die Entwicklung thermisch beständigerer Materialien erfordert. Das Wirkungspotential durch Prozessoptimierung ist hingegen begrenzt und bedingt zudem die Erhöhung des Integrationsgrades. Für die weitere Steigerung des Wirkungsgrades bedarf es demnach neuartiger Prozesse, wie sie in Kapitel 6 untersucht wurden. Zunächst soll das mittelfristige Potential dieser IGCC-Konzepte verglichen werden. Als mittelfristig wird dabei kein fester Zeithorizont bezeichnet, sondern vielmehr die erste Generation bzw. industrielle Umsetzung der vorgeschlagenen Konzepte. Dagegen bezeichnet das langfristige Potential eine Generation dieser Konzepte, welche bereits zahlreiche Optimierungs- und Anpassungsschritte erfahren haben. In der gesamten Betrachtung liegt



der Fokus klar auf dem Einsatz neuer Technologien und Prozessintegration und nicht auf der Variation der klassischen GUD-Parameter wie Turbineneintrittstemperatur oder Kondensatordruck. Es sei aber darauf hingewiesen, dass die Verbesserung dieser Größen weiteres Potential bietet und für die Konzepte im jeweiligen Abschnitt des Kapitels 6 betrachtet wurde.

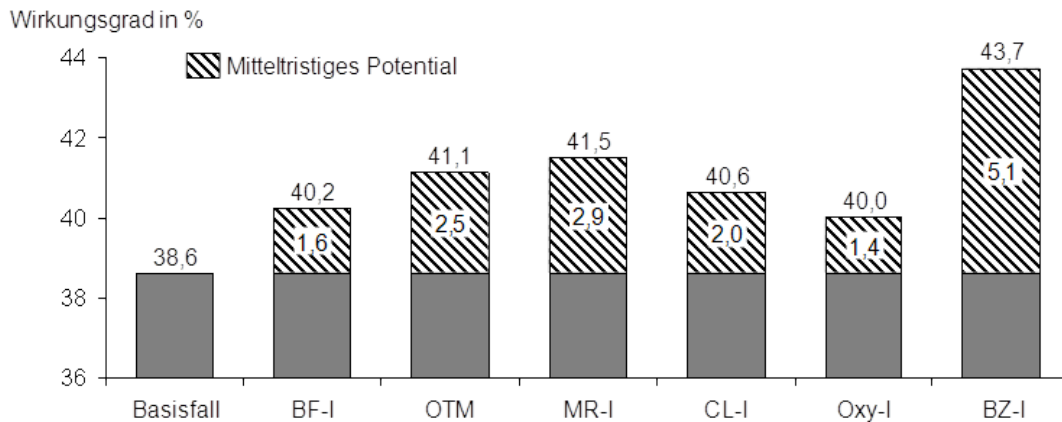


Abbildung 97: Mittelfristiges Wirkungsgradpotential der ausgewählten Konzepte

Wie in Abbildung 97 gezeigt, liegt das für den Basisfall (**BF-I**) durch Prozessoptimierung ermittelte Wirkungsgradpotential bei rund 1,6 %-Punkte. Dies ergibt sich insbesondere durch die luftseitige Integration der kryogenen Luftzerlegungsanlage mit der Gasturbine sowie durch Nutzung der Rohgasenthalpie zur Dampfgewinnung.

Der Einsatz der membranbasierten Luftzerlegung (**OTM**) erschließt ihr wirkliches Potential nur bei einer vollständigen Integration, sowohl luft- wie stickstoffseitig. Die Bereitstellung von Verdünnungstickstoff mit Sauerstoffkonzentrationen unter 2 Vol.-% stellt aufgrund des Abtrennungsprinzips (Partialdruckgefälle als Triebkraft) eine Herausforderung dar. Diese lässt sich durch zusätzliche Membranfläche, eine zweistufige Ausführung sowie einer Zwischenverdichtung begegnen. Alle Maßnahmen sind aber mit zusätzlichem, energetischem wie monetären Aufwand verbunden. Am effizientesten ist daher die Zumischung des Retentats zur Verbrennungsluft der Gasturbine in Verbindung mit einer reinen Wassersättigung des Brenngases. In diesem Fall lässt sich der Wirkungsgrad bereits um 2,1 %-Punkte steigern. In Kombination mit der Rohgaskühlung und CO-Konvertierung mit Kühler-Sättiger-Kreislauf ergeben sich Nettowirkungsgrade im Bereich von 41,1%, was eine Steigerung um 2,5 %-Punkte gegenüber dem Basisfall darstellt.

Im Falle der simultanen CO-Konvertierung und CO<sub>2</sub>-Abtrennung im Membranreaktor, erzielte das entsprechende IGCC-Konzept (**MR-I**) eine deutliche Wirkungsgradsteigerung

von 2,9 %-Punkte. Hier konnte durch Einsatz der Warmgasreinigung in Verbindung mit der verbesserten Rückgewinnung der Reaktionswärme (CO-Konvertierung) eine deutliche Steigerung der Bruttoleistung erreicht werden. Einen ähnlichen Anstieg der Nettoleistung verhinderte der ebenfalls gestiegene Eigenbedarf, insbesondere verursacht durch die zusätzliche Brenngasverdichtung vor der Gasturbine. In Summe zeigt das Konzept bereits mittelfristig klare thermodynamische Vorteile sowohl gegenüber dem Basisfall als auch im Vergleich zu den anderen gasturbinenbasierten IGCC-Konzepten.

Im Gegensatz dazu zeigten sowohl das **CL-I-Konzept** als auch die **Oxy-I** Variante mittelfristig nur ein begrenztes Potential von 2 bzw. 1,4 %-Punkten. Im ersten Fall (**CL-I**) konnte durch die neue Prozessführung die Bruttoleistung nur moderat erhöht werden, während der Eigenbedarf durch den erhöhten Sauerstoffverbrauch nicht gesenkt werden konnte. Zudem bedingt die konventionelle Kaltgasreinigung eine verlustbehaftete Wärmeverschiebung. Die mittelfristige Kombination aus klassischer IGCC-Gasinsel und dem Carbonate Looping Verfahren zur CO<sub>2</sub>-Abtrennung erscheint daher wenig vorteilhaft.

Im Fall des Oxyfuel Konzepts (**Oxy-I**) verhindert in erster Linie die Absenkung der Turbineneintrittstemperatur um 200°C deutlich höhere Anlagenwirkungsgrade. Aufgrund der Abgasrezirkulierung und Sauerstoffverbrennung besteht das Abgas zu rund 98% aus Kohlendioxid und Wasserdampf. Beide Stoffe haben hohe Wärmekapazitäten und sind als dreiatomige Moleküle signifikante Wärmestrahler. Damit steigt der Wärmeeintrag durch das Arbeitsmedium auch bei sonst gleichem Temperaturniveau, was zur erhöhten Materialbelastung in der Gasturbine führt. Es wird im mittelfristigen Konzept daher unterstellt, dass diese veränderte Zusammensetzung des Arbeitsmediums in der Gasturbine und der erhöhte Wärmeeintrag in die Schaufeln diese Absenkung notwendig machen. Zudem verursacht der beträchtliche Sauerstoffbedarf des Konzepts einen hohen Eigenbedarf, welches die Nettoleistung zusätzlich verringert. Vor diesem Hintergrund ist der vorgeschlagene sauerstoffgefeuerte IGCC-Prozess wenig aussichtsreich.

Die abschließend betrachtete Kombination aus IGCC und SOFC-Brennstoffzelle (**BZ-I**) zeigte das mit Abstand größte Wirkungsgradpotential. Durch Einsatz einer atmosphärischen SOFC mit entsprechender Abwärmenutzung konnte ein mittelfristiges Potential von 5,1 %-Punkten abgeschätzt werden. Bereits im Rahmen der Exergieanalyse (Kapitel 5.5) wurden die hohen Verluste der Gasturbine aufgezeigt. Diese verursacht mit 47,7% fast die Hälfte der inneren Exergieverluste im konventionellen IGCC (Basisfall). Entsprechend bedeutet die Substitution dieses Teilsystems, durch die effizientere Hochtemperaturbrennstoffzelle, eine deutliche Reduzierung der inneren Verluste und damit signifikante Verbesserung des Gesamtkraftwerks. Das **BZ-I-Konzept** ist damit, unter themodynamischen Gesichtspunkten, das aussichtsreichste der betrachteten Konzepte.

Während der mittelfristige Horizont das Potential der ersten Generation der betrachteten IGCC-Kraftwerkskonzepte analysiert, soll in der langfristigen Perspektive das erzielbare Wirkungsgradpotential durch konzeptspezifische Optimierung abgeschätzt werden. Da die OTM Technologie bereits im Pilotmaßstab existiert, wird diese nicht weiter für sich untersucht, sondern in die anderen Kraftwerkskonzepte integriert. Deren Wirkungsgradpotential ist in Abbildung 98 zusammengefasst und wird im Folgenden diskutiert.

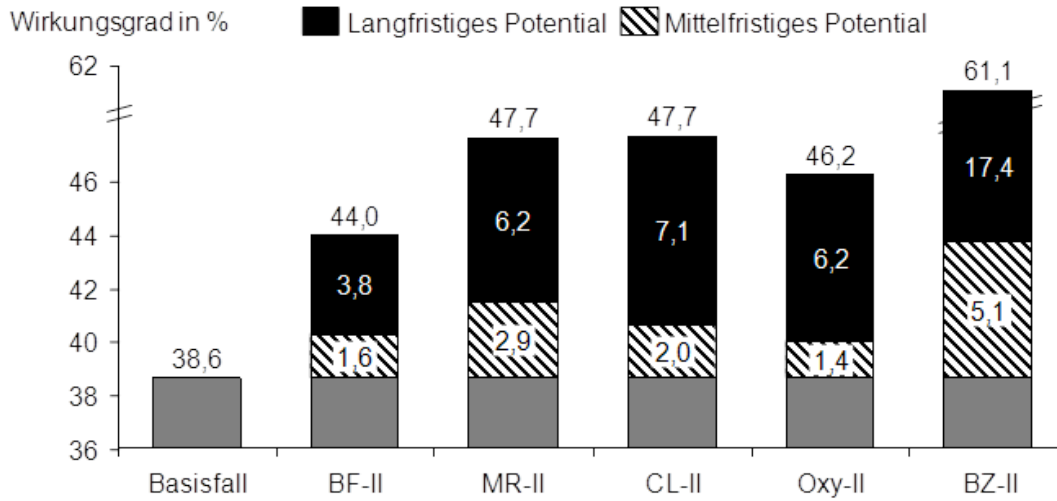


Abbildung 98: Langfristiges Wirkungsgradpotential der ausgewählten Konzepte

Im Falle des Basisfalls (**BF-II**) wurde für die Ermittlung des langfristigen Potentials lediglich eine Anhebung der Gasturbinenparameter unterstellt. Damit ist die Turbineneintrittstemperatur das wesentliche Optimierungskriterium und die Effizienz des Kraftwerks hochgradig von deren Weiterentwicklung abhängig. Das ermittelte Potential von 3,8 %-Punkten gegenüber dem mittelfristigen Konzept (BF-I) verlangt dabei nach einer beträchtlichen Anhebung der TET (ISO) auf 1600°C. Das bedeutet einen Aufschlag von rund 250°C gegenüber der gegenwärtigen Gasturbinengeneration, was auch auf lange Sicht als sehr ambitioniert einzuschätzen ist.

Im Falle des IGCC-Konzepts mit Membran-Shift Reaktor (**MR-II**) zeigt sich langfristig weiteres, signifikantes Optimierungspotential im Vergleich zum mittelfristigen Konzept (MR-I) in Höhe von 6,2 %-Punkte. Damit erscheinen Nettowirkungsgrade von 47,7% als möglich. Betrachtet man die verschiedenen Optimierungsschritte wird deutlich, dass das Potential durch eine Vielzahl kleiner Verbesserungen erzielt wird. Einzig die Implementierung der Heißgasreinigung führt zu einer deutlicheren Wirkungsgradsteigerung und zeigt die Notwendigkeit eines Membran-Shift-Reaktors mit hoher thermischer wie chemischer

Stabilität (Schwefelresistenz). Dies ist elementarer Bestandteil und damit Grundvoraussetzung für das aufgezeigte Wirkungsgradpotential des vorliegenden MR-Konzepts.

Im Gegensatz zum mittelfristigen Zeithorizont zeigt das Post-Combustion Konzept (**CL-II**) auf lange Sicht ebenfalls ein signifikantes Optimierungspotential. So konnte in der vorliegenden Betrachtung ein Nettowirkungsgrad von 47,7% erreicht werden, was einer Steigerung um 7,1 %-Punkte gegenüber dem CL-I Konzept bedeutet. Hier zeigt sich, dass eine schlichte Kombination neuer Prozesse und konventioneller Strukturen wenig aussichtsreich ist und eine entsprechende Adaption und Integration erforderlich ist. Im konkreten Fall bedeutet dies in erster Linie die Implementierung der Heißgasreinigung, die nachgeschaltete Sauergasentfernung aus dem Abgas der Gasturbine sowie die vollständige Integration des OTM-Prozesses zur Deckung des erhöhten Sauerstoffbedarfs.

Ein ähnliches Bild zeigt sich bei den Aussichten des Oxyfuel-Konzepts (**Oxy-II**). Auch hier steht dem geringen mittelfristigen, ein signifikantes langfristiges Wirkungsgradpotential von 46,2% gegenüber. Dies entspricht einer Steigerung um 6,2 %-Punkte und ist im Wesentlichen auf die Anhebung der Turbineneintrittstemperatur sowie die Nutzung des OTM-Prozesses zur Deckung des beträchtlichen Sauerstoffbedarfs zurückzuführen. Da in diesem Konzept der Gas- und Dampfkreislauf verschmelzen, ist das Konzept sehr von der erzielbaren TET abhängig und entsprechend sensitiv. Sollte trotz der erhöhten Wärmebelastung der Komponenten die TET des Basisfalls (1320°C ISO) erzielbar sein, läge der Wirkungsgrad des Konzepts im Bereich der beiden anderen Konzepte MR-II und CL-II.

Wie schon in der mittelfristigen Betrachtung nimmt das Brennstoffzellenkonzept (**BZ-II**) eine Sonderstellung ein. So konnte durch die beschriebenen Optimierungsmaßnahmen ein langfristiges Wirkungsgradpotential von 61,1% realisiert werden, was einer weiteren beträchtlichen Steigerung von 17,4 %-Punkten gegenüber dem mittelfristigem Konzept BZ-I entspricht. Die mit Abstand bedeutendsten Maßnahmen sind die externe Kühlung und der Druckbetrieb der Brennstoffzelle. Dabei steigert Erstere die Dampfproduktion bei gleichzeitiger Reduktion des notwendigen Luftüberschusses. Der Druckbetrieb hingegen führt zu einer Erhöhung der erzielbaren Zellspannung und dem Einsatz einer sauerstoffbetriebenen Gasturbine für die Nachverbrennung des Anodenabgases. Erwähnenswert ist auch, dass bereits eine der beiden Maßnahmen ausreicht, um den Wirkungsgrad des **BZ-I-Konzepts** über das langfristige Potential der anderen betrachteten IGCC-Konzepte (MR-II, CL-II bzw. Oxy-II) zu steigern. Aus energetischer Sicht ist damit die Kombination aus IGCC und SOFC langfristig allen anderen Kraftwerksvarianten überlegen.

## CO<sub>2</sub>-Reduktionspotential

Neben der energetischen Betrachtung ist bei CO<sub>2</sub>-armen Kraftwerken auch immer deren unvermeidliche Restemission an Kohlendioxid ein wesentliches Bewertungskriterium. Um die Effizienz des Kraftwerksprozesses zu berücksichtigen, werden die Emissionen auf die erzeugte Nettoleistung bezogen. Diese spezifischen CO<sub>2</sub>-Emission pro erzeugte Kilowattstunde sind für die betrachteten IGCC-Konzepte in Abbildung 99 zusammengestellt.

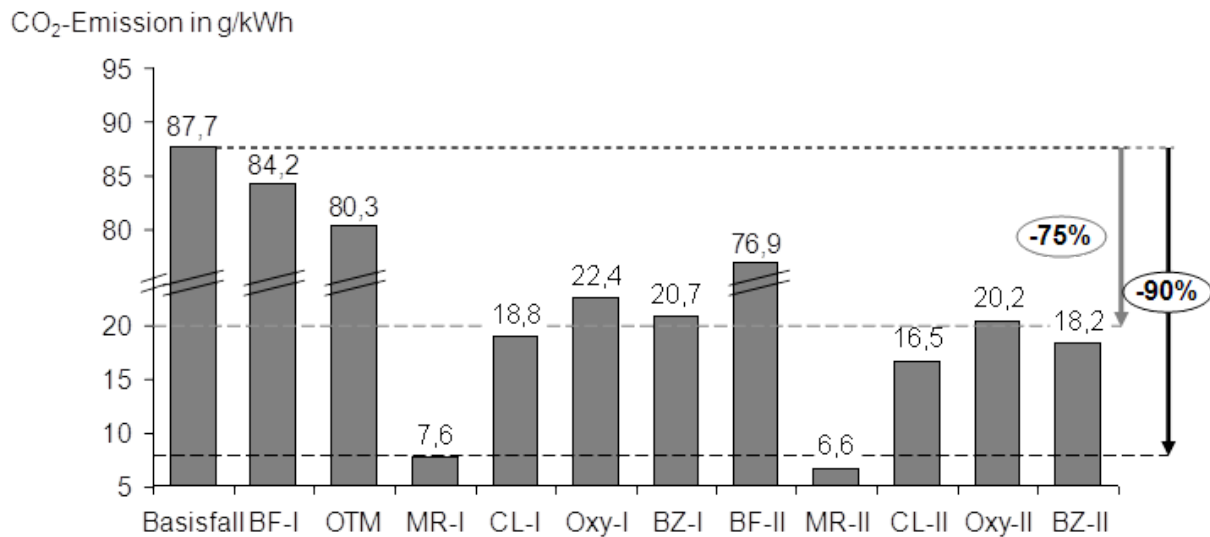


Abbildung 99: Übersicht zu den erzielbaren spezifischen CO<sub>2</sub>-Emissionen

Es zeigt sich, dass trotz 90 %-iger Abtrennungsrate die verbleibenden CO<sub>2</sub>-Emissionen, bei klassischer IGCC Struktur im Bereich von 87 g/kWh liegen und auch durch Steigerung der Kraftwerkseffizienz (**BF-I und II**) nur moderat um rund 10% gesenkt werden können. Die Steigerung der Abtrennungsrate ist ebenfalls auf maximal 93% begrenzt, womit die verbleibenden CO<sub>2</sub>-Restemission bei klassischen IGCC-Kraftwerken auch langfristig, je nach Brennstoff, im Bereich von 70 bis 90 g/kWh liegen werden. Auch der Einsatz der **OTM** bringt hier keine wesentliche Verbesserung. Zum einen bleibt die Limitierung der Abtrennungsrate der klassischen Kaltgasreinigung bestehen, zum anderen ist der Wirkungsgradgewinn mit einem erhöhten Kohlenstoffschlupf (direkte Luftvorwärmung vor der OTM) verbunden. Dadurch steigen die spezifischen Restemissionen sogar noch um rund 15% an.

Bei der Gewinnung des Kohlendioxids aus dem Abgasstrom wie es bei dem Post-Combustion Konzept (**CL-I**), dem Oxyfuel-Konzept (**Oxy-I**) sowie dem Brennstoffzellen Konzept (**BZ-I**) der Fall ist, können hingegen deutlich höhere Abtrennungsraten im Be-

reich von 97% erreicht werden. Dies führt zu verbleibenden spezifischen Emissionen von 18 bis 22 g/kWh und bedeutet eine beträchtliche Reduzierung im Vergleich zum Basisfall von 75 bis 80%. Begrenzt wird die Abtrennung dabei in erster Linie durch den Schlupf, während der Aufbereitung des Rohgases wie auch des CO<sub>2</sub>-Stroms selbst. Eine weitere Steigerung der Abtrennungsrate auf rund 99% konnte daher nur unter Verwendung der Warmgasreinigung im **MR-I-Konzept** erreicht werden. So wird durch die Vermeidung der Sauergaswäsche und Wassersättigung weniger CO<sub>2</sub> durch Prozesswasser ausgetragen. Zudem stellt die H<sub>2</sub>-Abtrennung sicher, dass alles CO<sub>2</sub> in der Gasphase für die Abtrennung erfasst wird. Auf diese Weise können die spezifischen CO<sub>2</sub>-Emissionen auf einen einstelligen Wert gesenkt werden, was einer Reduktion im Vergleich zum Basisfall von gut 90% entspricht.

Da auf lange Sicht in allen Konzepten die Warmgasreinigung zur Anwendungen kommt, sind deren Restemissionen auch grundsätzlich niedriger als in den mittelfristigen Varianten. Dabei weist erneut das Konzept mit Membranreaktor (MR-II) die niedrigste Emission pro erzeugter Kilowattstunde auf. Wenngleich auch die Emissionswerte der anderen zukünftigen Konzepte sinken, so ist die Abnahme mit rund 10% eher gering und vornehmlich durch die Erhöhung des Wirkungsgrades bedingt. Grund hierfür ist abermals der erhöhte Kohlenstoffschlupf durch Integration des OTM-Prozesses. Dieser erhöht zwar die Effizienz des Gesamtprozesses, aber negativerweise auch dessen spezifische CO<sub>2</sub>-Emissionen durch die direkte Luftvorwärmung vor der OTM. Da aber in allen drei Konzepten der Einsatz der OTM zu einer signifikanten Wirkungsgradsteigerung beiträgt, sollten diese noch vergleichsweise geringen Emissionswerte akzeptabel sein.

## **Flexibilität und Forschungsbedarf**

Abschließend sollen die betrachteten Konzepte noch hinsichtlich deren Flexibilität und notwendigen Forschungsbedarf bewertet werden. Dies ist sinnvoll, da die vorgeschlagenen IGCC-Konzepte durch den Einsatz zukünftiger Technologien, mit verschiedenen Realisierungshorizonten und gegenwärtigem Entwicklungsstand, nicht ohne weiteres vergleichbar sind. Daher wurde in Tabelle 27, ausgehend vom Stand der Technik (Kapitel 1) und den Auswirkungen der durchgeführten Optimierungsmaßnahmen (Kapitel 6), eine qualitative Bewertung für die einzelnen Konzepte durchgeführt.

Betrachtet man das Wirkungsgradpotential des **OTM-Konzepts**, so steht diesem vor allem der durch die Verflechtung mit der Gasturbine erhöhte Integrationsgrad entgegen. Dies könnte sich nachteilig auf die Anlagenverfügbarkeit auswirken, wenngleich der Prozess deutlich einfacher als die klassische kryogene Luftzerlegung ist und daher flexibler und

Tabelle 27: Qualitative Aspekte der zukünftigen IGCC-Konzepte

	OTM	MR-I	CL-I	Oxy-I	BZ-I	MR-II	CL-II	Oxy-II	BZ-II
Integration	↑	↓	⇒	⇒	↓	↓	↑↑	↑	↑↑
Systemeingriff	↓	⇒	⇒	↑	↑	⇒	⇒	⇒	↑
Forschungsbedarf	↓	↑	⇒	↑	↑	⇒	⇒	⇒	↑
Polygeneration*	ja	gut	nein	nein	nein	gut	nein	nein	nein

\*Grundsätzlich ist diese Option in allen Vergasungskraftwerken möglich, ein "nein" bedeutet daher, dass zusätzliche Komponenten (Shift) notwendig sind die kein Produkt angeboten werden kann

robuster sein sollte. Da bei der Nutzung der ausgelaugten Luft in der Gasturbine keine Brenngasverdünnung erfolgt, verändern sich die verbrennungstechnischen Eigenschaften des Gases gegenüber dem Basisfall deutlich. Dies wird möglicherweise zusätzliche Anpassungen der Gasturbine erforderlich machen. Da aber das Wirkungsgradpotential auch mit Brenngassättigung (Variante (d)), nur wenig niedriger ist (2,2 %-Punkten), erscheint diese Variante aussichtsreicher. Zwar erfordert die Bereitstellung von Verdünnungstickstoff einen erhöhten apparativen Aufwand (zweistufige Ausführung mit Zwischenverdichtung), was aber aufgrund der sonst einfachen Bauweise als weniger kritisch anzusehen ist, als ein Eingriff in die hochkomplexe und standardisierte Gasturbine. Da die OTM-Technologie bereits in Pilotanlagen untersucht und Demonstrationsanlagen in der Planung sind, beschränkt sich der Forschungsbedarf vornehmlich auf das Up-Scaling des Prozesses. Der damit verbundene Aufwand ist daher als vergleichsweise gering einzuschätzen.

Das **MR-Konzept** weist bereits mittelfristig ein hohes Wirkungsgradpotential bei zugleich geringsten CO<sub>2</sub>-Emissionen auf. Dieses wird dabei nicht durch eine Erhöhung des Integrationsgrades erreicht, sondern durch den Einsatz des Membran-Shift-Reaktors. Da das erzeugte Brenngas sich nicht allzu deutlich vom Basisfall unterscheidet, bestehen kaum Auswirkungen auf die Gasturbine. Größere Veränderungen beschränken sich demnach auf die Gasaufbereitung und allenfalls auf eine verstärkte Einbindung von Dampf aus der Gasinsel. Somit ist der Systemeingriff im Vergleich zu den anderen zukünftigen Konzepten moderat. Auch langfristig ändert sich wenig, da vornehmlich Parameter der Teilsysteme verbessert werden. Neben der effizienten Stromerzeugung bietet das Konzept auch noch sehr gute Möglichkeiten der gekoppelten Erzeugung von Wasserstoff. Damit bietet sich auch grundsätzlich die Möglichkeit zur Energiespeicherung in Zeiten geringem Strombedarfs. Allerdings ist der notwendige Forschungsbedarf für die Realisierung eines Membranreaktors unter den angenommenen Betriebsbedingungen und im industriellen Maßstab beträchtlich. Bisher existieren vornehmlich Laboranlagen und -teststände. Der Fokus der Arbeiten liegt gegenwärtig also noch im Bereich der Grundlagenforschung

und zielt auf die Bereitstellung von Membranwerkstoffen mit hoher Leistungsfähigkeit bei ausreichender Stabilität ab. Dabei stellen je nach Werkstoff die Beständigkeit gegen hohe Temperaturen, Wasserdampf, Schwefelverbindungen sowie den Wasserstoff selbst, Forschungsschwerpunkte dar. Ökonomische und fertigungstechnische Aspekte, sind bislang noch von untergeordneter Bedeutung, rücken aber zunehmend in den Fokus der Betrachtungen.

Das **CL-Konzept** muss hinsichtlich Integrationsgrad differenzierter betrachtet werden. So erreicht das Konzept mittelfristig nur geringe, langfristig hingegen deutliche Wirkungsgradsteigerungen. Zur Erschließung dieses Potentials, muss das Temperaturniveau der Gasreinigung angehoben werden. Die dafür notwendige Warmgasentschwefelung ist bislang noch nicht großtechnisch bewährt, der Prozess aber im Demonstrationsstadium und sollte mittelfristig einsetzbar sein. Zur Ausschöpfung des vollständigen Potentials, wäre aber der Einsatz der Flüssigascheabscheidung in Verbindung mit der nachträglichen Sauergasentfernung aus dem heißen Gasturbinenabgas notwendig. Im Falle der FAA existieren bislang nur Erfahrungen aus einer Pilotanlage. Hier gilt es die ausreichende Abtrennung von Alkalien und Metallverbindungen für reduzierende Atmosphären nachzuweisen und den Prozess auf die notwendige Größe zu skalieren. Darüber hinaus muss die Zeitstandsfestigkeit nachgewiesen und der Einfluss auf die Prozessdynamik quantifiziert werden. Die ausreichende Abtrennungsleistung der FAA ist Grundvoraussetzung für die Verbrennung des schwefelhaltigen Brenngases, aber nicht zwangsläufig ausreichend. Hier müsste noch untersucht werden, wie sich der Schwefel in Abwesenheit von Alkalien in der Gasturbine verhält. Bislang sind beide Spezies noch mit strikten Grenzwerten belegt, da sie in Kombination zu Korrosion führen. Der Carbonate Looping Prozess ist ebenfalls noch nicht großtechnisch bewährt, dürfte aber aufgrund des simplen Aufbaus mittelfristig realisierbar sein. Hier gilt es insbesondere die Festigkeit des Materials und Abtrennungsleistung nach mehreren Zyklen zu quantifizieren und zu steigern um den Sorbensbedarf zu minimieren. Auch die Einbindung des Schwefels sowie deren Auswirkung auf nachfolgende Prozesse bzw. Verwendung des Sorbens sollte hier betrachtet werden. Außerdem nutzt das langfristige Konzept den OTM-Prozess zur Deckung des Sauerstoffbedarfs. Hier gilt es neben dem bereits genannten Punkt des Up-Scalings, zusätzlich noch die Integration zu untersuchen. Der Integrationsgrad ist durch die Kopplung dreier Systeme sehr hoch und wird sich wohl zwangsläufig negativ auf die Dynamik sowie Verfügbarkeit eines solchen Kraftwerks auswirken. Dieser Aspekt ist ein wesentlicher Nachteil der IGCC-CL Konfiguration und sollte näher beleuchtet werden. Da das CL-Konzept keine Shiftstufe beinhaltet, ist nicht ohne weiteres der Polygeneration-Betrieb möglich und auch die chemische Speicherung begrenzt. Allerdings bietet die nachträgliche CO<sub>2</sub>-Abtrennung die Möglichkeit zu



Zeiten hoher Stromnachfrage, kurzzeitig die Abtrennungsrate sowie die Regeneration des Sorbens zu reduzieren. Damit sinkt der Strombedarf für Sauerstoffbereitstellung und CO<sub>2</sub>-Verdichtung und mehr Brenngas kann über die Gasturbine geleitet werden. Hier besteht also grundsätzlich eine gewisse Flexibilität, die näher untersucht werden sollte.

Da auch das ermittelte Wirkungsgradpotential des **Oxy-Konzepts** zu einem gewissen Teil auf der Warmgasentschwefelung und dem Einsatz der OTM-Technologie basiert, können die jeweiligen bisherigen Ausführungen auch bei diesem Konzept herangezogen werden. Allerdings ist das zentrale Element des Konzepts die Gasturbine. Sowohl die Nutzung von reinem Sauerstoff als Oxidationsmittel als auch die hohen Anteile von Wasserdampf und Kohlendioxid im Arbeitsmedium sind bislang nicht Stand der Technik. Hier gilt es zunächst die Auswirkungen beider Faktoren auf Anlagenverhalten und -material zu untersuchen. Langfristig sollten sich Untersuchungen auf die Modifikation von Standardturbinen konzentrieren, da die Entwicklung gänzlich neuer Turbinengeneration sehr kostenintensiv und bei begrenztem Marktpotential unwahrscheinlich ist. Im Bereich des Rauchgaskondensators ist allenfalls das Pilotstadium erreicht. Die Kondensation von Wasserdampf in Gegenwart signifikanter Inertgase wird teilweise noch im Labormaßstab erforscht. Hier sollte mittelfristig ebenfalls untersucht werden, inwieweit durch Modifikationen auf existierende Dampfkondensatoren zurückgegriffen werden könnte. Außerdem weist im Oxy-Konzept, durch die Rauchgasrezirkulation sowie Dampfzumischung, der GUD-Teil einen hohen Integrationsgrad auf. Das Verschmelzen des Gaskreislaufs mit dem Dampfkreislauf könnte sich tendenziell negativ auf die Dynamik des Prozesses auswirken. Daher sollte das dynamische Verhalten dieser GUD-Struktur näher untersucht werden, um Schlussfolgerungen zum Betrieb und Anfahren eines solchen Kraftwerktyps ableiten zu können. In Summe ist im Oxy-Konzept demnach die Unsicherheit hinsichtlich der angenommenen Komponenten sehr hoch und die Flexibilität wohl begrenzt.

Die Kombination aus IGCC und SOFC (**BZ-Konzept**) zeigte sowohl mittelfristig als auch langfristig die mit Abstand höchste Effizienz. Wesentliche Voraussetzung für die Realisierung des Konzepts ist natürlich die großtechnische Umsetzung der SOFC. Bislang existieren nur kleinere Einheiten bei vornehmlich atmosphärischem Betrieb. Das Up-Scaling und die Gasverteilung auf die einzelnen Stacks sind demnach noch nicht geklärt. Eine Herausforderung ist auch die Abdichtung der verschiedenen Komponenten zueinander. Eine Problematik, welche sich bei Druckbetrieb entsprechend noch verschärft. Auch führen die hohen Betriebstemperaturen und Gaskomponenten bislang noch zur Degradation der Werkstoffe, womit die Zeitstandsfestigkeit noch näher betrachtet werden muss. Da im Konzept kein reines Erdgas, sondern Kohlegas eingesetzt werden soll, ist der Punkt der Sauerstoffkonzentration im Anodengas von besonderer Bedeutung. Im Konzept wurde dieser

Umstand berücksichtigt, indem das Temperaturniveau bei rund 500°C liegt. Hier sollten die vorgestellten Methoden für eine ausreichende Gasreinheit sorgen können. Unter praktischen Gesichtspunkten sollte hier der Einfluss eines Brennstoffwechsels sowie Ansätze zur Regenerierung der Brennstoffzelle, im Falle von Gasdurchbrüchen, untersucht werden. Damit die Warmgasreinigung überhaupt signifikant zur Effizienzsteigerung beiträgt, muss die externe Kühlung implementiert werden. Bislang ist immer noch die interne Kühlung durch Luftüberschuss der Standard. Hier sollte zumindest langfristig eine Auskopplung der Wärme vollzogen werden, um diese zur Dampfgewinnung nutzen zu können. Da auch in diesem Konzept keine CO-Konvertierung stattfindet, sind sowohl die Integration chemischer Speicher als auch die Polygeneration-Option beschränkt. Zudem reagieren Brennstoffzellen sensibel auf Temperaturgradienten und sind anfällig für thermische Spannungen. Daher sollte das Konzept längere Anfahrzeiten aufweisen und bei kürzeren Unterbrechungen eine Warmhaltung der sensiblen Bereiche erforderlich machen. Die vollständige Integration der OTM führt außerdem zu einer deutlichen Steigerung der Komplexität des Kraftwerks und könnte sich negativ auf die Anlagenverfügbarkeit auswirken. Es ergeben sich demnach eine ganze Reihe von Herausforderungen um das vorgeschlagene Kraftwerkskonzept auch realisieren zu können. Entsprechend ist das BZ-Konzept zeitlich sicherlich noch weiter in der Zukunft anzusiedeln, wie die anderen behandelten IGCC-Konzepte.



## 8 Zusammenfassung und Ausblick

Die Energieversorgung befindet sich gegenwärtig in vielen Regionen der Welt im Wandel. Das über ein Jahrhundert aufgebaute System einer zentralen, auf fossilen Energieträgern basierten Erzeugung verschiebt sich zunehmend in Richtung einer dezentralen Struktur mit verstärkter Nutzung von regenerativen Energiequellen. Forciert wird das Ganze insbesondere durch die Anzeichen der Klimaerwärmung, den daraus hervorgegangenen politischen Vorgaben zur Reduzierung klimarelevanter Emissionen sowie einem veränderten Bewusstsein der Gesellschaft. Da diese Transformation eine beträchtliche finanzielle wie technische Herausforderung für die Gesellschaft darstellt, bedarf es eines angemessenen Zeitraumes für deren Umsetzung. Zudem wird der beträchtlich ansteigende Energiebedarf in aufstrebenden Nationen, wie auch die limitierten finanziellen Ressourcen in den Ländern der Dritten Welt, diese Transformation deutlich erschweren. Daher werden weltweit auch langfristig noch fossile Kraftwerke in großem Umfang Teil der Energieversorgung sein.

In der vorliegenden Arbeit wurden daher zukünftige Kraftwerkskonzepte untersucht, die trotz Einsatz von fossilen Brennstoff das entstehende  $\text{CO}_2$  nahezu vollständig abtrennen und zugleich möglichst effizient Strom erzeugen. Dabei lag der Fokus auf Vergasungskraftwerken (IGCC), da diese, im Vergleich zu Dampfkraftwerken, ein höheres Wirkungsgradpotential sowie bessere Flexibilität aufweisen und zudem eher für die dezentrale Ausführung geeignet sind. Ausgangspunkt der Betrachtungen bildet dabei das klassische IGCC nach Stand der Technik. Dafür wurde ein entsprechend konfiguriertes IGCC sowohl ohne als auch mit  $\text{CO}_2$ -Abtrennung simuliert und bewertet. Es zeigte sich, dass bei Einsatz von Steinkohle die IGCC-Technologie mit aktueller Gasturbinengeneration einen Nettowirkungsgrad von gut 50% erreichen kann. Trotz des hohen Wirkungsgrades ergeben sich  $\text{CO}_2$ -Emissionen von 672 g/kWh, wodurch ein entsprechendes Kraftwerk jährlich rund 2,4 Mio. Tonnen  $\text{CO}_2$  ausstößt. Neben den ökologischen Folgen, wurden in der Arbeit auch die wirtschaftlichen Auswirkungen auf die Stromgestehungskosten aufgezeigt. Hier verteuern die Emissionskosten den Strom um ein Drittel auf rund 81 €/MWh und können je nach Preisentwicklung der Zertifikate in der Größenordnung der Brennstoffkosten liegen. Somit steigen die Grenzkosten deutlich, was die Wettbewerbsfähigkeit des Kraftwerks beträchtlich senkt. Die zentrale Größe des Kraftwerks ist demnach der Wirkungsgrad, da durch diesen sowohl Brennstoff- als auch Emissionskosten gesenkt werden können.

Aufgrund der hohen Belastungen durch die Emissionskosten wurde das Kraftwerk anschließend mit einer konventionellen  $\text{CO}_2$ -Abtrennung von 90% simuliert. Dadurch konnten

die CO<sub>2</sub>-Emissionen auf 88 g/kWh reduziert werden. Allerdings verursacht die Abtrennung einen deutlichen Rückgang des Wirkungsgrades von 11,4 %-Punkte oder fast 23%. Es ergibt sich somit nur noch ein Nettowirkungsgrad von 38,6% was sowohl durch verstärkte thermische Verluste als auch einen deutlich gestiegenen Eigenbedarf begründet ist. Damit sinkt die erzielbare Nettoleistung bei zugleich steigenden Anlagenkosten durch den Einsatz zusätzlicher Komponenten. Dies hat zur Folge, dass die spezifischen Anlagenkosten abtrennungsbedingt um rund 30% ansteigen und damit die fixen Kosten zunehmen. Allerdings sinken, durch die vermiedenen Emissionskosten, die Grenzkosten um fast 24%, wodurch das Kraftwerk wettbewerbsfähiger wird. Da aber der Fixkostenblock höher ist, steigt der Einfluss der Anlagenauslastung um ausreichend Deckungsbeitrag zu erwirtschaften. Als Breakeven CO<sub>2</sub>-Zertifikatspreis, wurde mit den getroffenen Annahmen ein Barwert von rund 32 € je Tonne ermittelt. Ab diesem Preis liegen die Stromgestehungskosten also bei CO<sub>2</sub>-Abtrennung niedriger als ohne Abtrennung. Da durch den beträchtlichen Wirkungsgradverlust der Ressourcenverbrauch steigt, wurden in der Arbeit verschiedene Optimierungsschritte vollzogen, um das Potential dieses Kraftwerktyps abzuschätzen. Dabei wurde deutlich, dass die Effizienz des konventionellen IGCC in erster Linie von den Gasturbinenparametern abhängig ist (Potential 3,75 %-Punkte) und Prozessoptimierung nur begrenztes Potential (1,62 %-Punkte) zeigt. Zudem ist die CO<sub>2</sub>-Abtrennungsrate auf etwa 93% begrenzt. In Summe führt dies auch langfristig nur zu Wirkungsgraden im Bereich von 43% und Restemissionen von mindestens 60 g/kWh. Um zu verdeutlichen wo genau im IGCC-System die Verluste auftreten, wurde eine strukturierte Exergieanalyse durchgeführt. Dabei wurde für alle Komponenten der Grad der inneren Exergieverluste bestimmt sowie deren jeweiliger Verlustbeitrag zum Gesamtsystem. Es konnte nachgewiesen werden, dass die vier Systeme Gasturbine, Quenchvergaser, CO-Konvertierung und Luftzerlegung rund 80% der gesamten inneren Exergieverluste des IGCC verursachen. Ein Vergleich mit idealisierten Komponenten offenbarte zudem nur begrenztes Reduktionspotential für diese Systeme.

Ausgehend von diesen Erkenntnissen, wurden 5 zukünftige IGCC-Kraftwerkskonzepte vorgeschlagen, welche Technologien einsetzen und kombinieren, die sich derzeit noch in der Entwicklungs- oder Erprobungsphase befinden. Diese Konzepte wurden zunächst für einen mittelfristigen Zeithorizont betrachtet, um deren Potential bei möglichst geringen Auswirkungen auf den IGCC-Prozess zu bewerten. Anschließend wurde die Kraftwerksstruktur gänzlich auf das neue Konzept ausgerichtet und ambitioniertere Annahmen getroffen um das langfristige Potential abzuschätzen.

Mittelfristig zeigen dabei IGCC-Kraftwerke mit vollständig integrierter OTM basierter Luftzerlegung (2,5 %-Punkte) sowie Konzepte mit Membran-Shift-Reaktor (2,87 %-

Punkte) das höchste Wirkungsgradpotential, bei vertretbaren Eingriffen in die Anlagentechnik bzw. -struktur. Letztere erreicht durch die Warmgasreinigung und H<sub>2</sub>-Abtrennung geringste verbleibende spezifische CO<sub>2</sub>-Emissionen von rund 8 g/kWh. Dagegen erhöht der Einsatz der OTM, durch die direkte Luftvorwärmung mit Brenngas, tendenziell den Kohlendioxidschlupf und damit die Restemissionen. Die Varianten mit Post-Combustion Capture und Oxyfuel Ansatz erfordern hingegen signifikante Veränderungen in der Prozessstruktur und zeigen daher ohne weitere Adaption des Gesamtprozesses kein aussichtsreiches Potential. Bei konsequentem Umbau des klassischen IGCC-Prozesses in eine Kombination aus Brennstoffzelle mit AHDE (BZ-I) zeigt sich hingegen beträchtliches Wirkungsgradpotential (5,1 %-Punkte). Allerdings bestehen bei diesem Konzept auch die größten Unsicherheiten hinsichtlich der getroffenen Randbedingungen und Realisierbarkeit. Allgemein zeigt sich, dass die reine Integration neuer Technologien in möglichst klassische IGCC-Kraftwerke nur begrenzt zur Effizienzsteigerung führt. Allerdings konnten, mit Ausnahme des OTM-Konzepts, die CO<sub>2</sub>- Restemission, bedingt durch die gewählten alternativen Abtrennungsansätze, beträchtlich um 75 bis 90% gegenüber dem klassischen IGCC mit CO<sub>2</sub>-Abtrennung gesenkt werden.

Hinsichtlich des langfristig erzielbaren Wirkungsgradpotential erreichen sowohl das IGCC mit Membran-Shift-Reaktor (MR) als auch das Konzept mit Post-Combustion Capture via Carbonate Looping Prozess (CL) beide sehr hohe Nettowirkungsgrade um 47,7%. Dieser Wert ist aber stark von den jeweiligen zentralen Teilsystemen und deren Simulationsannahmen abhängig. Im ersten Fall (MR) ist die Realisierung eines leistungsfähigen Membranreaktor Voraussetzung, welcher zudem sowohl eine hohe thermische wie auch chemische Stabilität aufweist. Im CL-Konzept sind insbesondere der Carbonate Looping Prozess sowie die vollständige Integration des OTM-Prozesses zur Sauerstoffbereitstellung von zentraler Bedeutung. In beiden Fällen können zum gegenwärtigen Zeitpunkt keine Aussagen zur tatsächlichen Realisierbarkeit der angenommenen Komponenten bzw. Prozessannahmen getroffen werden. Die vorliegende Arbeit demonstriert aber deutlich die signifikanten Potentiale der Technologien und stellt wesentliche Anforderungen an die Systeme heraus. Während beim OTM-Prozess bereits kleinere Demoanlagen betrieben werden, konzentriert sich die Forschung beim Membranreaktor noch auf Grundlagen sowie Materialtests und wird allenfalls im Labormaßstab erprobt. Allerdings sollte das CL-Konzept aufgrund dessen hohem Integrationsgrad weniger flexibel im Betrieb sein und aus diesem Grund auch eine tendenziell geringere Verfügbarkeit aufweisen. Das Membranreaktorkonzept (MR) bietet hingegen grundsätzlich auch die Möglichkeit der gekoppelten Erzeugung von Strom und Wasserstoff. Dies erscheint insbesondere im Hinblick auf die Energiespeicherung ein wesentlicher Vorteil gegenüber den anderen IGCC-Konzepten zu

sein. Das Oxyfuel Konzept zeigt nur langfristig aussichtsreiches Wirkungsgradpotential von 46,24%. Dieses ist aber wiederum vornehmlich an die Integration des OTM-Prozess sowie die Gasturbinenparameter gebunden. Die Abhängigkeit des Konzepts von der erzielbaren Turbineneintrittstemperatur ist sogar noch höher als im konventionellen IGCC. Dazu kommt, dass das veränderte Arbeitsmedium und die Sauerstoffverbrennung signifikante Eingriffe in die Gasturbine erfordern. Zudem ist durch das Verschmelzen von Gas mit dem Dampfkreislauf und der Rauchgasrezirkulierung das System recht komplex. Das mit Abstand höchste Wirkungsgradpotential zeigt auch langfristig wieder die Kombination aus IGCC und Hochtemperaturbrennstoffzelle. Hier kann insbesondere durch den Druckbetrieb der SOFC und die teilweise externe Kühlung der Wirkungsgrad signifikant gesteigert werden. Bereits eine der beiden Maßnahmen reicht aus, um das Potential der anderen Konzepte zu übertreffen. In Kombination mit weiteren Optimierungsschritten sind so langfristig Wirkungsgrade von 61% erreichbar. Allerdings bedingt dies die Integration des OTM-Prozesses sowie eines beträchtlichen Entwicklungsaufwand um ein derartiges Kraftwerk zu realisieren.

Während das energetische Potential quantitativ bewertet wurde, konnten Flexibilität und der notwendige Forschungsbedarf der einzelnen Konzepte nur qualitativ betrachtet werden. Die Arbeit gibt damit einen Überblick über den Status und die notwendigen Anforderungen an diese zukünftigen Technologien, woraus sich weiterführende Untersuchungsschwerpunkte ableiten lassen. Bei den bereits weiter fortgeschrittenen Komponenten, wie dem OTM-Prozess oder der Warmgasreinigung, wurde der Funktionsnachweis bereits erbracht. Hier steht entsprechend das Up-Scaling vom Pilotmaßstab hin zur großtechnischen Anlage, sowie der Nachweis eines dauerhaften und leistungsfähigen Betriebs im Vordergrund. Im Bereich des Membranreaktors, der Sauerstoffgasturbine oder auch Brennstoffzelle ist oftmals noch Grundlagenforschung notwendig, welche experimentelle Anknüpfungspunkte für zukünftige Arbeiten offenbart. Diese liegen insbesondere im Bereich der thermischen wie chemischen Beständigkeit von Materialien, der Untersuchung katalytischer Reaktionssysteme unter realistischen Bedingungen sowie der konstruktiven Ausführung von Labor- bzw. Pilotanlagen. Daneben bieten vor allem die genauere Untersuchung der Dynamik der vorgeschlagenen Konzepte sowie zur Betriebsweise dieser Kraftwerke auf dem zunehmend volatilen Strommarkt weitere Anknüpfungspunkte für weiterführende theoretische Arbeiten.





## Literatur

- [Higman et al. 2008] Higman, C.; v.d. Burgt, M.; Gasification, 2nd Edition. Boston, USA, Gulf Professional Pub/Elsevier Science, 2008. ISBN: 978-0-7506-8528-3
- [Gumz 1950] Gumz, W.; Gas producers and blast furnaces - theory and methods of calculation. Wiley, New York, 1950.
- [Ogriseck 2006] Ogriseck, K.; Untersuchung von IGCC-Kraftwerkskonzepten mit Polygeneration und CO<sub>2</sub>-Abtrennung. Dissertation, Düsseldorf, VDI Verlag, 2006. ISBN: 3-18-354406-7
- [Supp 1990] Supp, E.; How to produce methanol from coal. Springer Verlag, Berlin/New York, 1990. ISBN: 9780387519234
- [Göttlicher 1999] Göttlicher, G.; Energetik der Kohlendioxidrückhaltung in Kraftwerken. Dissertation, VDI Verlag, Düsseldorf, 1999. ISBN: 3-18-342106-2
- [Korobov 2004] Korobov, D.; Untersuchung der Wirkungsgradpotentiale von IGCC-Kraftwerkskonzepten. Dissertation, Freiburger Forschungshefte, Freiberg, 2004. ISBN: 978-3-86012-205-1
- [Fratzscher 1986] Fratzscher, W.; Exergie. Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, 1986, ISBN: 3-211-95834-7
- [Bejan 1996] Bejan, A.; Thermal design and optimization. Wiley, New York, 1996, ISBN: 0-471-58467-3

- [Szargut et al. 2007] Szargut, J.; Morris, D.R.; Steward, F.R.: Exergy Analysis of Thermal, Chemical and Metallurgical Processes. New York, Hemisphere Publ. Corp., 1988. ISBN: 9780891165743
- [Dincer et al. 2007] Dincer, I; Rosen, M.; Exergy -Energy, Environment and Sustainable Development. Elsevier, 2007, ISBN-10: 0-08-044529-2.
- [vGoll 1998] Van Goll, W.: Thermodynamics of Chemical References for Exergy Analysis. Energy Conversion & Management 39(1998), 1719-1728.
- [Riedl 2007] Riedl, K.; Exergetische und Exergoökonomische Bewertung von Verfahren der Energie- und Stoffwandlung. Dissertation, 2007.
- [Zheng et al. 2002] Zheng, D.; Wu, X.: A Modified Environment-Reference-State Model of Exergy Functions. In: Proceedings of ECOS 2002, 1401-1408.
- [Woudstra 2001] Woudstra, T.; Woudstra, N.; Exergy analysis of hot gas clean-up in IGCC systems. Journal of the Institute of Energy, 68, pp 157-166, 1995.
- [Kim 2001] Kim, J.; Performance improvement of integrated coal gasification combined cycle by a new approach in exergy analysis. International Journal of Energy Research, 18(1), 2001.
- [Fiatschi 2002] Fiatschi, D.; Integrated gasifier combined cycle plant with integrated CO<sub>2</sub> H<sub>2</sub>S removal: Performance analysis, life cycle assessment and exergetic life cycle assessment. International Journal of Applied Thermodynamics, 5(1) 2002.

- [Gräbner 2010] Gräbner, M.; Project results of COORIVA – constructability investigations on a German Reference IGCC with CO<sub>2</sub> Capture for 2015. 4th Clean Coal Technology Conference, Dresden, 2010
- [Beysel 2009] Beysel, G.; ASU - Technology Improvements enabling enhanced and more efficient CCS 9th European Gasification Conference, Düsseldorf, 2009.
- [Kohl et al. 1997] Kohl, A.; Nielsen, R.; Gas Purification, 5th Edition. Gulf Publishing Company, Houston, USA, 1997, ISBN: 0-88415-220-0.
- [Kunze et al. 2009] Kunze, C. Spliethoff, H.; Simulation of a base case for future IGCC concepts with CO<sub>2</sub> capture. Power Plant Chemistry 11(12), 2009.
- [Tampa Electric 2002] Final Technical Report: Tampa Electric Polk Power Station IGCC Project, 2002
- [Elcogas] IGCC. Its actual application in Spain: ELCOGAS Puertollano.
- [Holt 2003] Holt, N.; Operating experience and improvement opportunities for coal based plants. Materials at high Temperatures 20, p 1-6. 2003.
- [Schingnitz et al. 2005] Schingnitz, M.; Mehlhouse, F.; The GSP Process- Entrained Flow Gasification of different Types of Coal. Clean Coal Technology Conference, Italien, 2005.
- [Grant 2009] Grant, B.; Hatfield 900 MW IGCC Power Station with CCS. 9th European Gasification Conference, Düsseldorf, 2009.

- [Pruschek et al. 1998] Zimmermann, G., Haupt, G., Oeljeklaus G., Pruschek R., Ullrich, N.; New design of IGCC for competitive power generation. Gasification Technologies Conference. USA, 1998.
- [Pruschek et al. 1998b] Zimmermann, G., Haupt, G., Göttlicher G., Pruschek R., IGCC as best option of CO<sub>2</sub> removal in fossil fuel power stations. Gasification Technologies Conference. USA, 1998,b.
- [Smith et.al. 2001] Smith, A.G; Klosek, J.; A review of air separation technologies and their intgration with energy conversion processes. Fuel Processing Technology 70, S. 115 - 134, 2001.
- [Springmann 1974] Springmann, H.; Auslegung moderner Tieftemperatur-Anlagen zur Gewinnung von Sauerstoff, Stickstoff und Edelgasen. Chemie-Ingenieur-Technik Nr. 21, 1974, S. 881 - 924.
- [Kloster 1999] Kloster, R.; Thermodynamische Analyse und Optimierung von Gas/Dampfturbinen-Kombi-Kraftwerken mit integrierter Kohlevergasung. Dissertation. VDI Verlag, Düsseldorf, 1999. ISBN: 3-18-340906-2
- [Boeddicker 1999] Boeddicker, D.; Thermodynamische Bewertung und energiewirtschaftliche Bewertung eines Kombi-Kraftwerks mit integrierter Kohlevergasung und CO<sub>2</sub> Rezyklierung. Dissertation. VDI Verlag, Düsseldorf, 1997. ISBN: 3-18-336806-4
- [Hausen et al. 1985] Hausen, H.; Linde, H.; Tieftemperaturtechnik, 2. Auflage, Springer Verlag, Heidelberg, 1985. ISBN: 3-540-13972-9.
- [Zorn 2009] Kompressor - Auslegungsrechnung der Fa. Linde, Pullach 2009.

- [Higman 2007] Higman, C.; CO<sub>2</sub> Capture - The IGCC Retrofit Conundrum. 2nd International Freiberg Conference on IGCC & Xtl Technologies, Freiberg, Deutschland, 2007.
- [Schmalfeld (Hrsg.) 2008] Schmalfeld, J.(Hrsg.), div. Autoren ; Die Veredlung und Umwandlung von Kohle. Deutsche Wissenschaftliche Gesellschaft für Erdöl, Erdgas und Kohle e.V., Hamburg, 2008. ISBN: 978-3-936418-88-0.
- [Lösche 2009] Persönliche Mitteilung und Auslegungsrechnung der Fa. Lösche, Düsseldorf 2009.
- [Schingnitz et al. 2005b] Schingnitz, M.; Mehlhose, F.; Mega-GSP Process - Entrained-flow gasification of coal, biomass and waste. International Freiberg Conference on IGCC & Xtl Technologies, Freiberg, Germany, 2005, b.
- [Koss et al. 2003] Koss, U.; Meyer, M.; Zero emission IGCC with Rectisol technology. Pittsburg Coal Conference, Pittsburgh, USA, 2003.
- [Chhoa 2005] Chhoa, T.; Shell gasification business in action. GTC Conference, San Francisco, USA, 2005.
- [Karg 2009] Karg, J.; IGCC experience and further development to meet CCS market needs. Coal-Gen Europe, Katowice, Polen, 2009
- [Chakma 1997] Chakma, A.; CO<sub>2</sub> capture processes - opportunities for improved energy efficiencies. Energy Conversion and Management, vo. 38, 1997, p 51-56.

- [SFG 2008] Persönliche Mitteilung und Auslegungsrechnung der Fa. Siemens, Siemens Fuel Gasification GmbH, Freiberg 2008.
- [Seume et al. 2010] Lechner, C.; Seume, J.; Stationäre Gasturbinen. Springer Verlag, Heidelberg, 2010, ISBN: 978-3-540-92787-7.
- [DIN 51857] DIN 51857; Berechnung von Brennwert, Heizwert, Dichte, relativer Dichte und Wobbeindex von Gasen und Gasgemischen. 1997.
- [Görner 2009] Görner, K.; Chancen und Grenzen CO<sub>2</sub> armer Kraftwerkstechnologien. CO<sub>2</sub>-Emissionen - Abscheidung und Speicherung bei Kohlekraftwerken. Bayern Innovativ Kooperationsforum, München, 2009.
- [Schneider 2009] Schneider, R.; CO<sub>2</sub>-Wäsche für den großtechnischen kommerziellen Einsatz. CO<sub>2</sub>-Emissionen - Abscheidung und Speicherung bei Kohlekraftwerken. Bayern Innovativ Kooperationsforum, München, 2009.
- [Sieder 2009] Sieder, G.; Optimierungswege für die post-combustion Technologie. CO<sub>2</sub>-Emissionen - Abscheidung und Speicherung bei Kohlekraftwerken. Bayern Innovativ Kooperationsforum, München, 2009.
- [Shimizu et al. 1999] Shimizu, T.; Hirama, T.; Hosoda, H.; Kitano, K.; Inagaki, M. and Tejima, K. A twin fluid-bed reactor for removal of CO<sub>2</sub> from combustion processes, Trans IChmE, 77, Part A, pp.62-68., 1999.
- [Abanades et al. 2005] Abanades, J.C.; Anthony, E.J.; Wang, J. and Okaney, J.E.; Fluidized bed combustion systems integrating CO<sub>2</sub> capture with CaO. Environ. Sci. Technol., 39, pp. 2861-2866, 2005.

- [Abanades et al. 2007] Abanades, J.C.; Grasa, G.; Alonso, M.; Rodriguez, N.; Anthony, E. J. and Romeo, L. M.: Cost structure of a postcombustion CO<sub>2</sub> capture system using CaO, *Environ. Sci. & Technol.*, 41, 5523-5527, 2007.
- [Abanades et al. 2009] Abanades, J.C.; Grasa, G.; Alonso, M.; Rodriguez, N.; Gonzalez, B.; Murillo, R.; Capturing CO<sub>2</sub> from combustion flue gases with carbonation calcination loop. Experimental results and process development. *Energy Procedia* 1, S. 1147-1154, 2009.
- [Sivalingam et al. 2009] Sivalingam, S.; Gleis, S.; Spliethoff, H.; Yrjas, P. and Hupa, M. Cyclic carbonation calcinations studies of limestone and dolomite for CO<sub>2</sub> separation from combustion flue gases. *Trans. ASME: J. of Engg. for Gas Turbine and Power*, 131, pp. ., 2009.
- [Hawthorne 2009] Hawthorne, C.; Trossmann, M.; Cifre, G.; Schuster, A.; Scheffknecht, G.; Simulation of the carbonate looping power cycle. GHGT 9 . *Energy Procedia* 1, S. 1387 - 1394, 2009.
- [Hawthorne 2010] Hawthorne, C.; Bidwe, A.R.; Holz, H.; Pfeifer, T.; Schuster, A.; Schlegel, D.; Scheffknecht, G.; Parametric Study on the CO<sub>2</sub> capture efficiency of the carbonate looping process in a 10 kW dual fluidized bed. *Proceedings of the 20th International Conference on Fluidized Bed Combustion*, S. 583- 589, 2010.
- [Ströhle et al. 2009] Ströhle, J.; Galloy, A.; Epple, B.; Feasibility study on the carbonate looping process for post-combustion CO<sub>2</sub> capture from coal fired power plants. GHGT 9 . *Energy Procedia* 1, S. 1313 - 1320, 2009.
- [Toftegaard et al. 2010] Toftegaard, M.B.; Brix, J.; Jensen, P.A.; Glarborg, P.; Jensen, A.D.; Oxy-fuel combustion of solid fuels. *Progress in Energy and Combustion Science* 36, S. 581 - 625, 2010.

- [Spliethoff 2010] Spliethoff, H.; Power generation from solid fuels. Springer Verlag Berlin, 2010, ISBN: 978-3-642-02855-7.
- [Klostermann et al. 2009] Klostermann, M.; Köpke, D.; Hermsdorf, C.; Mieske, K.; Kather, A.; Eggers, R.; Der steinkohlebefeuerte Oxy-fuel Prozess. 41. Kraftwerkstechnische Kolloquium, Dresden, Deutschland, 2009.
- [Sanz et al. 2010] Sanz, W.; Mayr, M.; Jericha, H.; Thermodynamic and economic evaluation of an IGCC plant based on the Graz cycle for CO<sub>2</sub> capture. Proceedings of the ASME Turbine Expo 2010, Glasgow, Großbritannien, 2010.
- [Lozza et al. 2009] Lozza, G.; Romano, M.; Giuffrida A.; Thermodynamic performance of IGCC with Oxy-combustion CO<sub>2</sub> capture. International conference on sustainable fossil fuels for future energy. Rom, Italien, 2009.
- [Herbert 1956] Herbert, W.; Das Rectisol Verfahren zur Reinigung von Druckgasen. Erdöl und Kohle Nr. 2, 1956, 77 - 81.
- [Hochgesand 1970] Hochgesand, G.; Rectisol and Purisol. European and Japanese Chemical Industrial Symposium Vol 62, 1970,S. 37 - 43.
- [Scholz et al. 2009] Scholz, M.; Payrhuber, K.; Wasserstoffverbrennung in hocheffizienten Gasturbinen für Vergasungsverfahren mit Kohlendioxid Abtrennung (CCS). 41. Kraftwerkstechnische Kolloquium, Dresden, Deutschland, 2009.



- [Krerestecioglu et al. 2009] Krerestecioglu, U.; Weiß, H.; Kirchner, L.; Stepwise extension of a gas cleanup for IGCC application. 3rd International Freiberg Conference on Xtl & IGCC, Dresden, Deutschland, 2009.
- [Altman et al. 2005] Altman, H.; Jentsch, N.; Das Oxyfuel- Verfahren in Braunkohlekraftwerken. Kooperationsforum Innovation konventionelle Kraftwerke. Nürnberg, 2005.
- [IEA 2004] IEA; Impact of impurities on CO<sub>2</sub> capture, transport and storage. Report number PH3/32, 2004.
- [Kuckhinrichs et al. 2010] Kuckshinrichs, W.; Peters, M.; et al.; Weltweite Innovationen bei der Entwicklung von CCS-Technologien und Möglichkeiten der Nutzung des Recyclings von CO<sub>2</sub>. Studie des BMWi. ISBN: 978-3-89336-617-0, 2010.
- [Castillo 2009] Castillo, R.; Technical evaluation of CO<sub>2</sub> compression and purification in CCS power plants. 3th Clean Coal Technology Conference, Dresden, 2009.
- [Burchhardt 2009] Burchhardt, U.; Experiences from commissioning and test operation of Vattenfall's Oxyfuel pilot plant. 1st International Oxyfuel Combustion Conference, Cottbus, Deutschland, 2009.
- [IPCC 2005] IPCC. Carbon dioxide capture and storage. Cambridge University Press, New York, USA, 2005, ISBN: 13-978-0-521-68551-1.
- [Kapfer 2005] Kapfer, M.; Ökologische und ökonomische Bewertung der geologischen CO<sub>2</sub> Speicherung als Klimaschutzmaßnahme in Österreich. Dissertation, Universität Graz und Wien, 2005.

- [Dynamis 2007] DYNAMIS; CO<sub>2</sub> quality recommendations. Final report, 2007.
- [Stein et al. 1999] Stein, V.E.; Richards, R.; Development of ceramic ion transport membranes for oxygen production. 7th Clean Coal Technology Conference Knoxville, USA, 1999.
- [Armstrong 2002] Armstrong, P.A.; Method for predicting performance of an ion transport membrane unit operation, Air Products and Chemicals inc., Pennsylvania, USA, 2002.
- [Seevam et al. 2008] Seevam, P.N.; Downie, M.J.; Race, J.M.; The next generation of CO<sub>2</sub> pipelines. IEA Summer School, Newcastle University, 2008.
- [Buschsieweke 2009] Buschsieweke, F.; ENCAP SP2 - Pre-Combustion capture technologies for different fuels. DeCarbit-CESAR CCS Workshop, Oslo, Norwegen, 2009.
- [vStein 2009] Persönliche Mitteilung der Fa. Air Products, 2009.
- [vStein et al. 2009] Stein, V.E.; Armstrong, P.; Foster, T.; Bennett, D.; ITM Oxygen: Taking the next step. Gasification Technologies, Colorado Springs, USA, 2009.
- [vStein et al. 2007] Stein, V.E.; Armstrong, P.; Foster, T.; New gas turbine integration options for ITM oxygen in gasification applications. Gasification Technologies, San Francisco, USA, 2007.
- [Melin et al. 2007] Melin, T.; Rautenbach, R.; Membranverfahren - Grundlagen der Modul- und Anlagenauslegung. 3. Auflage, Springer Verlag, 2007, ISBN: 3-540-00071-2.

- [Müller et al. 2009] Müller, M.; Pavone, D.; Rieger, M.; Abraham, R., Hot fuel gas cleaning in IGCC at gasification temperature. 3th Clean Coal Technology Conference, Dresden, 2009.
- [Smid et al. 2006] Smid, J.; Hsiau, S.; Peng, C.Y.; Lee, H.T; Hot gas cleanip:Pilot testing of moving bed filters. Filtration and Separation, 2006, No. 43, S. 21-24.
- [Korens et al. 2002] Korens, N.; Simbeck, D.R.; Wilhelm, D.J.; Process screening analysis of alternative gas treating and sufur removal for gasification. Final Report, Mountain View, USA, 2002.
- [Escobar et al. 2008] Escobar, I.; Oleschko, H.; Wolf, K.J.; Müller, M.; Alkali removal from hot flue gas by solid sorbents in pressurized pulverized coal combustion. Power Technology 180, 2008, S. 51-56.
- [Escobar 2007] Escobar, I.C.; Einbindung von Alkalimetallen bei der Druckkohlenstaubfeuerung. Dissertation, RWTH Aachen, 2007.
- [Förster et al. 2005] Förster, M.; Neumann, F.; Pavone, D.; Telöken, R.; Pressurized Pulverized Coal Combustion (PPCC): Motivation, State of Development and Perspectives. Conference on Clean Coal Technologies, Castiadas, Italien, 2005.
- [Westermann et al. 2005] Westermann, T.; Melin, T.; Membranreaktoren, Chemie Ingenieur Technik Vo. 77, N. 11, 2005.
- [Dittmeyer et al. 2005] Dittmeyer, R.; Huang, Y.; Membranreaktor für die heterogen katalysierte Dehydrierung von Propan zu Propen auf der Basis von

Sintermetall- Verbundmembranen. Schlussbericht, Karl-Winnacker-Institut der DECHEMA e.V., 2005.

- [Julbe et al. 2001] Julbe, A.; Farrusseng, D.; Guizard, C.; Porous ceramic membranes for catalytic reactors - overview and new ideas. *Journal of Membrane Science* 181, S. 2-30, 2001.
- [Coronas et al. 1999] Coronas, J.; Santamaria, J.; Catalytic reactors based on porous ceramic membranes. *Catalysis today* 51, S. 377- 389, 1999.
- [Dolan et al. 2010] Dolan, M.; Harris, D.; Donelson, R.; Dave, Narendra; Performance and Economics of a planar WGS membrane reactor for coal gasification applications. 4th International Freiberg Conference on IGCC & XtL Technologies, Dresden, Germany, 2010.
- [Ciocco et al. 2007] Ciocco, M.V.; Iyoha, O.; Enick, R.M.; Killmeyer, R.P.; High temperature water gas shift membrane reactor study. DEO/NETL Report, 2007.
- [Uemiya et al. 1991] Uemiya, S.; Sato, N.; Ando, H.; Kikuchi, E.; The water gas shift reaction assisted by a palladium membrane reactor. *Ind. Eng. Chem. Res.* 30, S. 585-589, 1991.
- [Burggraaf et al. 1996] Burggraaf, A.J.; Cot, L.; Fundamentals of inorganic membrane science and technology. *Membrane Science and Technology Series 4*, Elsevier, Amsterdam, 1996, ISBN: 0-444-81877-4.
- [Sammells et al. 2006] Sammells, A.; Mundschau, M.V. (Edit.); Nonporous inorganic membranes for chemical processing. Wiley-VCH Verlag, Weinheim, 2006, ISBN: 3-527-31342-7.

- [Lu et al. 2007] Lu, G.Q. et.al.; Inorganic membranes for hydrogen production and purification: A critical review and perspective. *J. of Colloid and Interface Science* 314, S. 589-603, 2007.
- [Caro et al. 2007] Caro, J.; Noack, M.; Kölsch, P.; Schäfer, R.; Zeolite membranes - state of their development and perspective. *Microporous and Mesoporous Materials* 38, S. 3-24, 2000.
- [Kluiters 2004] Kluiters, S.C.A.; Status review on membranes systems for hydrogen separation. Intermediate report EU project MIGREYD, 2004.
- [Balachandran et al. 2008] Balachandran, U. et.al.; Development of dense ceramic membranes for hydrogen separation. Project Status NETL, 2008.
- [Schwartz 2004] Schwartz, M.; Novel composite membranes for hydrogen separation in gasification processes in vision 21 energy plants. ITN Energy Systems, Final technical report, 2004.
- [Doong et al. 2006] Doong, S.; Ong, E.; Atroshenko, M.; Lau, F.; Roberts, M.; a novel membrane reactor for direct hydrogen production from coal. Gas Technology Institute, Final technical report, 2006.
- [Bradford 1933] Bradford, B.W.; The water-gas reaction in low pressure explosions. *Journal of Chemical Society*, S. 1557-63, 1933.
- [Graven et al. 1954] Graven, W.M.; Long, J.F.; Kinetics and mechanisms of the two opposing reactions of the equilibrium  $\text{CO} + \text{H}_2\text{O} = \text{CO}_2 + \text{H}_2$ . *Journal of American Chemical Society*, Vol. 76, 1954, S. 2602 - 2607.

- [Bustamante 2004] Bustamante, F.; The high temperature, high pressure homogeneous water gas shift reaction in membrane reactor. Dissertation, University Pittsburgh, 2004.
- [Smith et al. 2010] Smith, B.; Loganathan, M.; Shantha, M.S.; International Journal of Chemical Reactor Engineering, Vol. 8 , Berkeley Electronic Press, 2010, ISBN: 1542-6580.
- [Tingey 1966] Tingey, G.; Kinetics of the water gas equilibrium reaction . I The reaction of carbon dioxide with hydrogen. Journal of Physical Chemistry, Vol. 70, Nu. 5, S. 1406-1412, 1966.
- [Mitchell 1998] Mitchell, S.C.; Hot gas cleanup of sulphur, nitrogen, minor and trace elements. IEA Coal research, 1998, ISBN: 92-9029-317-9.
- [Lokurlo 1999] Lokurlo, A.; Simulation der Oxid-keramischen Brennstoffzellen " SOFC" mit nachgeschalteten Gas-und Dampfturbinen-Kombi-Anlagen für verschiedene Brenngase. Fortschritt- Berichte VDI, Reihe 6: Energietechnik, Band 425, Düsseldorf, Deutschland, 1999.
- [Epsilon 2011] Stoffdatenbank Epsilon Professional, Version 9.
- [Frank 2009] Nadine, Frank; Umsetzung von Kohlenwasserstoffen in SOFCs. Dissertation, TU München, 2009.
- [Singhal 2000] Singhal, S.; Advances in solid oxide fuel cell technology. Solid State Ionics 135, 2000, S. 305–313.

- [Veyo 1998] Veyo, S. E.; Evaluation of fuel impurity effects on SOFC performance, Final technical report, Westinghouse SOFC Power Generation, Pittsburgh, USA, 1998.
- [Wojcik 1998] Wojcik, A. et al.: Ammonia as a fuel in solid oxide fuel cells, Journal of Power Sources, 2003, 118, S. 342-348.
- [Finkenrath et al. 2005] Finkenrath, M.: Simulation und Analyse des dynamischen Verhaltens von Kraftwerken mit oxidkeramischer Brennstoffzelle (SOFC). Forschungszentrum Jülich, Reihe Energietechnik, IV , 2005.
- [de Haart et al. 1996] De Haart, L.; Hauber, T.; Mayer K.; Stimming, U.: Electrochemical Performance of an Anode supported Planar SOFC System. Proceedings of the 2nd European SOFC Forum, Oslo, 1996, S. 229-235.
- [Blum et al. 2005] Blum L.; Meulenberg W.; Nabielek, H.; Steinberger-Wilckens R.: Worldwide SOFC Technology Overview and Benchmark, International Journal of Applied Ceramic Technology 2, 2005, S. 482-492.
- [Groß et al. 1993] Groß, F.; Riensche, E.; Reiter, K.: SOFC-Anlagenkonzepte, Zusammenfassung von Ergebnissen, Siemenschrift, 1993.
- [Konstantin 2009] Konstantin, P.; Praxisbuch der Energiewirtschaft. Springer Verlag Berlin, 2009, ISBN: 978-3-540-78591-0.
- [RWE 2009] Persönliche Mitteilung der Fa. RWE AG, 2009.
- [Rode 2004] Rode, H.; Entwicklungslinien der Braunkohlekraftwerkstechnik. Dissertation, Universität Duisburg-Essen, 2004.

- [Zuideveld 2005] Zuideveld, P.L.; Shell Coal Gasification process using low rank coal. Gasification Technologies Conference, San Francisco, USA, 2005.
- [Karg 2000] Karg, J.; Haupt, G.; Zimmermann, G.; Optimized IGCC cycles for future applications. Gasification Technologies Conference, San Francisco, USA, 2000.
- [Strauß 2006] Strauß, K.; Kraftwerkstechnik. 5.Auflage. Springer Verlag Berlin, 2006, ISBN: 3-540-29666-2.
- [Schramek (Hrsg.) 2006] Schramek, E.R. (HRSG); Taschenbuch für Heizung und Klimatechnik. 73 Auflage, Pldenburg Industrieverlag München,2007, ISBN: 3-8356-3104-7.
- [Roth] Roth, M.; Optimiertes “Kaltes Ende”.
- [UBA 2001] Umweltbundesamt. Referenzdokument über die Besten Verfügbaren Techniken bei industriellen Kühlsystemen, Zusammenfassung in deutscher Übersetzung, Berlin 2001.
- [vStein et al. 2002] Stein, V.E.; Juwono, E.; Demetri, E.P.; The impact of ITM oxygen on economics for coal based IGCC. 27th International Technical Conference on Coal Utilization & Fuel Systems, Clearwater, USA, 2002.
- [Jericha et al. 2008] Jericha, H.; Sanz, W.; Göttlich, E.; Neumayer, F.; Design details of a 600 MW Graz Cycle thermal power plant for CO<sub>2</sub> capture. ASME Turbo Expo, Berlin, Deutschland, 2008.



- [Sanz et al. 2004] Sanz, W.; Jericha, H.; Moser, M.; Heitmeir, F.; Thermodynamic and economic investigation of an improved Graz Cycle power plant. ASME Turbo Expo, Wien, Österreich, 2004.
- [Mac et al. 2007] Mac A., S.; Biebuyck, C.; Anderson, R.; Pronske, K.; Coal based oxy fuel system evaluation and combustor development. 2nd International Freiberg Conference on IGCC & XtL Technologies, Freiberg, 2007.
- [Rezvani et al. 2009] Rezvani, S.; Huang, Y.; McIlveen-Wright, D.; Hewitt, N.; Deb Mondol, J.; Comparative assessment of coal fired IGCC systems with CO<sub>2</sub> capture using physical absorption, membrane reactors and chemical looping. Fuel, vol 88, S. 2463-2472, 2009.
- [Ku et al. 2011] Ku A.Y.; Kulkarni, R.; Shistler, R.; Wei W.; Membrane performance requirements for carbon dioxide capture using hydrogen-selective membranes in integrated gasification combined cycle (IGCC) power plants. J. of Membrane Science, vol 367, S. 233-239, 2011.
- [DOE 2010] DOE; World Gasification Database 2010.
- [Cube et al. 1997] Cube, H.L.; Steimle, F.; Lotz, H.; Kunis, J.; Lehrbuch der Kältetechnik. C.F. Müller Verlag, 1997, ISBN: 3788075090.
- [Jungnickel et al. 1980] Jungnickel, H.; Agsten, iR.; Kraus, W.E.; Grundlagen der Kältetechnik, VEB Verlag Technik, Berlin, 1980, ISBN: 3341008063.
- [Preliceanu et al. 2007] Preliceanu, A.; Kabbalo, H.P.; Krestecioglu, U.; Linde Rectisol wash process. 2nd International Freiberg Conference in IGCC & XtL Technologies, Freiberg, 2007.

- [Raddings et al. 2009] Raddings, T.; Jones, R.; Schilz, M.; Gas turbine flexibility for low carbon fuels. IChemE Gasrification 9, Düsseldorf, Deutschland, 2009.
- [Horazek 2008] Persönliche Mitteilung Fa. Siemens 2008
- [Ratliff et al. 2007] Ratliff, P.; Garbett, P.; Fischer, W.; SGT5-8000H - Größerer Kundennutzen durch die neue Gasturbine von Siemens. Sonderdruck VGB PowerTech, 2007.
- [Siemens 2010] Siemens Broschüre: The SGT5-8000H - tried, tested and trusted. Siemens AG, 2010.
- [v.Holthoon 2009] v.Holthoon, E.; Technology and operational experience-the Shell perspective. 9th European Gasification Conference, 2009.
- [DOE 2000] Wabash River Coal Gasification Repowering Project,” Final Technical Report to U.S. DOE, Office of Fossil Energy, National Energy Technology Laboratory, August 2000.
- [Ratafia-Brownl et al. 2002] Ratafia-Brown, J.A.; Manfredo, L.M.; Hoffmann, J.W.; Ramezan, M.; Stiegel, G.J.; An environmental assessment of IGCC power systems. 19th Pittsburgh coal conference, Pittsburgh, USA, 2002.
- [Thompson et al. 2002] Thompson, D.; Argent, B.B.; Prediction of the distribution of trace elements between the product streams of the Prenflo gasifier and comparison with reported data, Fuel 81, S. 555-570, 2002.

- [Harris et al. 2010] Ilyushechkin, A.; Roberts, D.; Harris, D.; Riley, K.; Trace elements behaviour during entrained flow gasification. 4th Interational Freiberg Concerfence in IGCC % XtL Technologies, Dresden, Deutschland, 2010.
- [Font et al. 2005] Font, O.; Querol, X.; Huggins, F.E.; Chimenos, J.M.; Fernandez, A.I.; Burgos, S.; Garica-Pene, F.; Specification of major and selected trace elements in IGCC fly ash, Fuel 84, S.1344-1371, 2005.
- [Vrachnos et al. 2004] Vrachnos, A.; Voutsas, E.; Magoulas, K.; Lygeros, A.; Thermodynamics of acid gas - MDEA- water systems. Ind. Eng. Chem. Res. 43, S. 2798 - 2804, 2004.
- [Burr] Burr, B.; Lyddon, L.; A comparison of physical solvents for acid gas removal. Bryan Research & Engineering Inc., Texas, USA.
- [COORIVA 2009] COORIVA Endbericht: Baubarkeitsuntersuchungen für ein IGCC Referenzkraftwerk ab 2015 für Braun- und Steinkohle mit CO<sub>2</sub>-Rückhaltung. Arbeitspaket 2 des COORETEC Forschungsinitiative, 2009.
- [Renzenbrink et al. 2009] Renzenbrink, W.; Ewers, J.; Keller, D.; Wolf, J.; Large Scale CCS Demonstration - Status and Outlook of RWE's 450 MW IGCC CCS Power Plant. Clean Coal Technology Conference, Dresden, Deutschland, Mai 2009.
- [DOE 2007] DOE/Netl; Cost and performance baseline for fossil energy plants, Final Report, USA, 2007.

- [Grol 2009] Grol, E.; Technical assessment of an Integrated Gasification Fuel Cell Combined Cycle with carbon capture. *Energy Procedia* 1, S. 4307-4313, 2009.
- [Grol et al. 2008] Grol, E.; Keairns, D.; Newby, D.; Integrated Gasification Fuel Cell (IGFC) Systems Studies. 9th Annual SECA Workshop, 2008.
- [Spallina et al. 2010] Spallina, V.; Romano, M.; Campanari, S.; Lozza, G.; A SOFC based Integrated Gasification Fuel Cell Cycle with CO<sub>2</sub> capture. *ASME Turbo Expo 2010*, Glasgow, Großbritannien, 2010.
- [BP 2011] BP; *Energy Outlook 2030*, 2011.
- [IPCC 2007] IPCC Fourth Assessment Report (AR4) . *Climate Change 2007: Mitigation of Climate Change*.
- [Bieber 2011] Bieber, M.; Messmethoden zur Untersuchung der Kohlenstoffablagung an nickelhaltigen SOFC-Anoden beim Betrieb mit Methan. *Dissertation TU München*, 2011.
- [Panopoulos et al. 2006] Panopoulos, K.; Fryda, L.; Karl, J.; Poulou, S.; Kakraks, E.; High temperature solid oxide fuel cell integrated with novel allothermal biomass gasification. Part 1: Modeling and feasibility study. *Journal of Power Sources*, 159, 2006, S. 570 - 585.
- [Huberg 2009] Huberg, R.; *Modeling of a IGFC System*. RES, Iceland, 2009.
- [Powers et al. 2009] Powers, J.D.; Brouwer, J.; Li, M.; Samuelson, G.S.; SOFC modeling for IGFC system analysis. 10th Annual SECA Workshop, Pittsburgh, 2009.

- [Sivalingam et al. 2003] Sivalingam, S.; Raindl, M.; Gleis, S.; Spliethoff, H.; Condensation analysis of water vapour in the presence of inert gas for the CO<sub>2</sub> capture. 9th Intern. Conference on Energy for a Clean Environment. Povia de Varim, Portugal, 2007.
- [Goldbrunner 2003] Goldbrunner, M.; Lokale Phänomene bei der Kondensation von Dampf in Anwesenheit eines nichtkondensierbaren Gases. Doktorarbeit, TU München, VDI Verlag, Düsseldorf, 2003, ISBN: 3-18-314219-8.
- [Raindl 2010] Raindl, M.; Rauchgaskondensation in Oxyfuel-Kraftwerken: Wärme- und Stoffübergangsmessungen sowie experimentelle Validierung eines effizienten KondensationsKonzepts. Dissertation, Tü München, 2010.
- [Schingnitz 2008] Persönliche Mitteilung Fa. Siemens, 2008.
- [Winkler 2002] Winkler, W.; Brennstoffzellenanlagen. Springer Verlag, Deutschland, 2002, ISBN: 3-540-42832-1.
- [Minh 2005] Minh, N.; Solid oxide fuel cell hybrid system for distributed power generation. Progress Report, Torrance, USA, 2005.
- [Stiller et al. 2003] Stiller, C.; Mathisen, O.; Seljebo, S.; Bolland, O.; Karoliussen, H.; Thorud, B.; Simulation-based comparison of combined SOFC/GT cycles with flat-plate and tubular fuel models. Fuel Cell Seminar 2003, Miami, USA.

- [Chan et al. 2002] Chan, S.H.; Low C.F.; Ding, O.L.; Energy and exergy analysis of simple solid-oxide fuel-cell power systems. *J. of Power Sources*, S. 188-200, 2002.
- [Zhang et al. 2005] Zhang, W.; Croiset, E.; Douglas, P.L.; Fowler, M.W.; Entchev, E.; Simulation of a tubular solid oxide fuel cell stack using Aspen Plus unit operation models. *Energy Conversion and Management* 46, S. 181-196, 2005.
- [Doherty et al. 2009] Doherty, W.; Reynolds, A.; Kennedy, D.; Modelling and simulation of a biomass gasification solid oxide fuel cell combined heat and power plant using Aspen Plus. 22nd International Conference on Efficiency, Cost, Optimization, Simulation and Environmental Impact of Energy Systems, Brasilien, 2009.
- [Rienschke et al. 1999] Rienschke, E.; et.al.: Conversion of natural gas into CO-rich syngases. Proceedings of the natural gas conversion symposium, Oslo, Norwegen, 1999.
- [Finkenrath 2005] Finkenrath, M.; Simulation und Analyse des dynamischen Verhaltens von Kraftwerken mit oxidkeramischer Brennstoffzelle (SOFC). Dissertation, FZ Jülich, 2005.
- [Miao et al. 2010] Miao, H.; et.al.; Effects of coal syngas major compositions on Ni/YSZ anode-supported solid oxide fuel cells. *J. of Power Sources* 195, S. 2230-2235, 2010.
- [EG&G 2004] EG&G Technical Services Inc.; Fuel Cell Handbook. 7th Edition. U.S. Department of Energy. DE-AM26-99RT40575, USA, 2004.

- [Kunze et al. 2011] Kunze, C.; Riedl, K.; Spliethoff, K.; Structurd exergy analysis of an IGCC plant with carbon capture. *Energy*, 36(3), S. 1480 - 1487, 2011.
- [Wöhe et al. 2010] Wöhe, G.; Döring, U.; Einführung in die Allgemeine Betriebswirtschaftslehre. 24. Auflage, Vahlen, 2010, ISBN 978-3-8006-3795-9.
- [Erdmann et al. 2010] Erdmann, G.; Zweifel, P.; Energieökonomik. 2. Auflage, Springer Verlag, 2010, ISBN: 978-3-642-12778-6.
- [Baehr et al. 2009] Baehr, H.D.; Kabelac, S.; Thermodynamik: Grundlagen und technische Anwendung. 14. Auflage, Springer Verlag, 2009, ISBN: 978-3-642-00555-8.
- [Erlach et al. 2010] Erlach, B.; Schmidt, M.; Tsatsaronis, G.; Comparison of carbon capture IGCC with pre-combustion decarbonisation and with chemical-looping combustion. *Energy*, Elsevier, 2010.
- [Howarth et al. 2011] Howarth, R.W.; Santoro, R.; Ingraffea, A.; Methane and the greenhouse-gas footprint of natural gas from shale formationsraft, Conrwell University, Springer Verlag, Climatic Change, 2011.