

Technische Universität München

LEHRSTUHL FÜR ENERGIESYSTEME

**Rauchgaskondensation in Oxyfuel-Kraftwerken:
Wärme- und Stoffübergangsmessungen sowie
experimentelle Validierung eines effizienten
Kondensationskonzepts**

Markus Raindl

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. Harald Klein

Prüfer der Dissertation: 1. Univ.-Prof. Dr.-Ing. habil. Hartmut Spliethoff

2. Univ.-Prof. Dr.-Ing. Thomas Sattelmayer

3. Univ.-Prof. Dr.-Ing. Dr.-Ing. E.h. Franz Mayinger

Die Dissertation wurde am 26.08.2010 bei der Technischen Universität München eingereicht und durch die Fakultät für Maschinenwesen am 06.12.2010 angenommen.

*„If you do what you've always done, you'll
get what you always got.“*

(Samuel Langhorne Clemens alias Mark Twain)

Danksagung

Der wesentliche Teil der vorliegenden Arbeit entstand während meiner vierjährigen Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Lehrstuhl für Energiesysteme der Technischen Universität München.

Meinem Doktorvater, Herrn Prof. Dr.-Ing. habil. H. Spliethoff, danke ich für das mir entgegengebrachte Vertrauen, die wohlwollende Förderung und die Geduld während der Entstehungsphase.

Für die Unterstützung bei den bürokratischen Herausforderungen bedanke ich mich besonders bei den Damen des Lehrstuhl-Sekretariats, Frau Brigitte Demmel, Frau Elfriede Matzner und Frau Xiaolu Pei.

Den Herren Professoren Dr.-Ing. Thomas Sattelmayer und Dr.-Ing. Dr.-Ing. E.h. Franz Mayinger danke ich für die freundliche Übernahme der Koreferate und Herrn Prof. Dr.-Ing. Harald Klein für den Vorsitz bei der mündlichen Prüfung.

Einen gebührenden Teil des Erfolgs dieser Arbeit verbinde ich mit all jenen, die mich nachhaltig inspiriert haben - insbesondere sind dies die Herren Josef Schmid, Prof. Dr.-Ing. Dr.-Ing. E.h. Franz Mayinger, Dr.-Ing. Sotirios Karellas, Prof. Dr.-Ing. Jürgen Karl sowie Frau Dipl.-Vw. Anja Hönig. Und einen weiteren Teil mit all jenen, die mich tatkräftig unterstützt haben. Dazu zählen die Werkstatt des Lehrstuhls für Energiesysteme, Herr Dipl.-Ing. Udo Glückert vom Lehrstuhl für Thermodynamik, die Studenten und Studentinnen, die als HiWis, Diplomanden oder Semestranden im Rahmen dieser Arbeit tätig waren und meinen diskussionsfreudigen Kollegen und Kolleginnen. Meinen herzlichen Dank dafür.

Ein besonderer Dank an dieser Stelle gilt außerdem meiner Verlobten, die mich mit Leidenschaft, Verständnis und Geduld während der Entstehungsphase, sowie beim Feinschliff der Arbeit unterstützt hat.

Nicht zuletzt bedanke ich mich bei den Geldgebern des Forschungsprojekts DE 5, welches ein Teilprojekt von KW21, Phase 1 war und im Rahmen dessen diese Arbeit entstand.

Friedrichshafen, 24. Januar 2011

Kurzfassung

Die Kondensation von Wasserdampf-Kohlendioxidgemischen in Oxyfuel-Kondensatoren unterscheidet sich wesentlich von der Kondensation mit reinem Wasserdampf: Kondensatordruck und Restgasanteil nehmen deutlich zu, Wärme- und Stoffübergang nehmen ab und es kommt zur Nebelbildung durch Übersättigung.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden deshalb zunächst die optimalen Betriebsparameterbereiche für Oxyfuel-Kondensatoren berechnet. Anschließend wurden Messungen zu Wärme- und Stoffübergang mit Wasserdampf-Kohlendioxidgemischen an einer horizontalen, querüberströmten Rohrgeometrie durchgeführt, um verschiedene Berechnungstheorien zu validieren. Anhand dieser Ergebnisse konnte ein neues, effizientes Kondensationskonzept zur Reduzierung der Nebelbildung entwickelt werden, das in den abschließenden Messungen an einem Laborkondensatormodell hervorragende Ergebnisse hinsichtlich Nebelreduzierung und Kondensationswirkung zeigte.

Abstract

Condensation of a steam-inert gas mixture in an Oxyfuel condenser differs significantly from condensation of pure steam: condenser pressure and rest gas content increase dramatically, heat- and mass transfer coefficients are lower and oversaturation of the steam-inert gas mixture yields to fog formation.

In the context of this thesis, therefore, at first the optimal ranges of working parameters for Oxyfuel processes calculated. In the following some heat flux measurements were carried out on a horizontal, crossflow pipe to validate various heat- and mass transfer theories. Building on these results a new, efficient condensation concept was developed to reduce fog formation. The final results of the measurements with a laboratory model show great performance regarding fog reduction and condensation efficiency.

Inhaltsverzeichnis

Nomenklatur	I
1 Einleitung	1
1.1 Hintergrund und Problemstellung	1
1.2 Aufgabenstellung	2
1.3 Gliederung der Arbeit	3
2 Theoretische Grundlagen	4
2.1 Oxyfuel-Kondensator	4
2.2 Eigenschaften der Partialkondensation	5
3 Stand von Wissenschaft und Technik	7
3.1 Wissenschaft	7
3.1.1 Berechnung der Wärme- und Stoffübertragungskoeffizienten	7
3.1.2 Stand der experimentellen Validierung für hohe Inertgasanteile	12
3.1.3 Auslegungsmethoden für Kühler-Kondensatoren	13
3.1.4 Nebelbildung	15
3.1.5 Gasabsorption	19
3.2 Technik	20
3.2.1 Kondensationstechnik	20
3.2.2 Absaugtechnik	24
3.3 Folgerungen für eigene Arbeit	25
3.3.1 Arbeitsbereich des Oxyfuel-Kondensators	26
3.3.2 Validierung der Wärme- und Stoffübergangstheorien	26
3.3.3 Konzept für einen Oxyfuel-Kondensator	26
4 Ermittlung der Kondensatorparameter	28
4.1 Auswahl der Oxyfuel-Prozesse	28
4.2 Betrachtete Betriebsparameter des Kondensators	29
4.3 Simulations- und Modulentwicklungsumgebung	31
4.4 Modellierung des Kondensatormodells	31
4.5 Berechnung der Stoffdaten	33
4.6 Aufbau der simulierten Oxyfuel-Prozesse	34
4.6.1 Verflüssigungskonzept	35
4.6.2 CES Cycle	35

4.6.3	S-Graz Cycle	36
4.7	Diskussion der Berechnungsergebnisse	37
4.7.1	Ein- und Austrittsparameter der Simulation	37
4.7.2	Kondensatordruck	39
4.7.3	Restdampfgehalt	42
4.7.4	Grädigkeit	44
4.7.5	Druckverlust	46
4.7.6	Kühlwassereintrittstemperatur	49
4.7.7	Kennfeld- und Sensitivitätsanalyse	50
4.7.8	Kondensatorparameter	53
5	Messungen zum Wärme- und Stoffübergang	54
5.1	Anforderungen an den Versuchsaufbau	54
5.2	Wahl des Messkonzepts	54
5.3	Aufbau und Funktion der Versuchsanlage	57
5.4	Betriebsparameterbereich der Versuchsanlage	60
5.5	Bestimmung der Messunsicherheit nach DIN 1319	60
5.5.1	Grundlegende Zusammenhänge im Überblick	61
5.5.2	Vorgehensweise	62
5.5.3	Abschätzung des Messwertes	62
5.5.4	Abschätzung einer Messabweichung	63
5.5.5	Vollständiges Messergebnis	64
5.6	Bestimmung der systematischen Messunsicherheit der Messstrecke	65
5.6.1	Temperaturmessung	65
5.6.2	Massenstrommessung	67
5.6.3	Messung der Gasgeschwindigkeit	68
5.7	Berechnung des Wärmestroms und der Messabweichung aus den Messdaten	70
5.7.1	Kühlwasser-Methode	70
5.7.2	Wand-Wand-Methode	71
5.7.3	Validierung der Wärmestrommessung	73
5.8	Validierung der Wärme- und Stoffübergangstheorie	74
6	Kondensationskonzept	78
6.1	Kondensationsmethode	78
6.2	Kondensationskonzept für Oxyfuel-Prozesse	79
6.3	Anforderungen an den Versuchsaufbau	84
6.4	Wahl des Messkonzepts	84
6.5	Aufbau und Funktion der Versuchsanlage	87
6.6	Bestimmung der systematischen Messunsicherheit nach DIN 1319	90
6.6.1	Temperaturmessung	90
6.6.2	Druckmessung	92

6.6.3	Taupunktmessung	93
6.6.4	Massenstrommessung	96
6.6.5	pH-Wert Messung	97
6.7	Verarbeitung der Messdaten	97
6.7.1	Restdampfgehalt	97
6.7.2	Nebelanteil	98
6.7.3	pH-Wert Berechnung	100
6.8	Definition der Kondensatorkennzahl	101
6.9	Diskussion der Messergebnisse	102
6.9.1	Rahmenbedingungen der Messung	102
6.9.2	Restdampfgehalt	103
6.9.3	Nebelgehalt	104
6.9.4	Abscheidegrad	107
6.9.5	Kondensatorkennzahl	108
6.9.6	Messung des pH-Werts	111
7	Zusammenfassung	114
	Literaturverzeichnis	117
A	Informationen zur Simulation	127
A.1	Kondensator- und Iterationsparameter	127
A.2	Neue Stoffdatenbasis für die Simulation	128
A.3	Simulationsbild des CES-Prozesses	128
A.4	Simulationsbild des S-Graz Cycles	130
B	Berechnungsnachweise	132
B.1	Berechnung der logarithmisch gemittelten Temperaturdifferenz	132
B.2	Kritische Übersättigung	133
B.3	Temperaturprofil eines Mantelthermoelements	134
C	Weitere Details zu Messergebnissen	137
C.1	Auswertung der gemessenen und berechneten Wärmeströme	137
C.2	Ergebnisse der Wärmestrommessungen	138

Nomenklatur

Lateinische Buchstaben

Symbol	Einheit	Bedeutung
a	$[\frac{m^2}{s}], [-]$	Temperaturleitfähigkeit, dimensionsloses Teilungsverhältnis
A	$[m^2]$	Fläche
c	$[\frac{mol}{m^3}]$	molare Dichte
b	$[-], [-]$	dimensionsloses Teilungsverhältnis, dimensionsloser Mittelwert
c	$[\frac{mol}{l}]$	molare Konzentration
c_p	$[\frac{J}{kgK}]$	spezifische Wärmekapazität bei konstantem Druck
c_{f0}	$[-]$	Widerstandsbeiwert
d	$[m]$	Durchmesser
D	$[\frac{m^2}{s}]$	Diffusionskoeffizient
$f_{a,l,f}$	$[-]$	laminarer Anordnungsfaktor
$f_{a,t,f}$	$[-]$	turbulenter Anordnungsfaktor
$f_{z,l,i}$	$[-]$	laminarer Korrekturfaktor
$f_{z,t,i}$	$[-]$	turbulenter Korrekturfaktor
H	$[bar]$	Henry-Koeffizient
k	$[\frac{W}{m^2K}]$	Wärmedurchgangskoeffizient
K	$[-], [-]$	Korrekturfaktor, Konstante, Kondensatorkennzahl
l	$[m]$	(charakteristische) Länge
m	$[kg], [-]$	Masse, Anzahl Einflussgrößen
\dot{m}	$[\frac{kg}{s}]$	Massenstrom
n	$[-]$	Anzahl
\dot{n}	$[\frac{mol}{sm^2}]$	Stoffstromdichte
N	$[-]$	Anzahl pro bezogene Einheit
p	$[bar]$	Druck
P	$[W]$	Leistung
pH	$[-]$	potentia Hydrogenii (lat. Kraft des Wasserstoffs)
pK	$[-]$	negativer dekadischer Logarithmus der Säurekonstanten K_s
\dot{q}	$[\frac{W}{m^2}]$	Wärmestromdichte
\dot{Q}	$[W]$	Wärmestrom
r	$[m]$	Radius
r^2	$[-]$	Bestimmtheitsmaß
R_m	$[\frac{J}{molK}]$	universelle Gaskonstante mit $R_m = 8,314510$

Symbol	Einheit	Bedeutung
s	$[m], [-]$	Abstand, Sensitivität
S	$[-]$	Sättigung
t	$[s]$	Zeit
T	$[K]$	Temperatur
TIT	$[K]$	Turbineneintrittstemperatur
u	z.B. $[m]$	Messunsicherheit
v	$[\frac{m}{s}]$, z.B. $[m]$	Geschwindigkeit, Messgröße
x	$[m], [-]$, z.B. $[m]$	karthesische Ortskoordinate, Variable, Schätzer
X	$[-]$, z.B. $[m]$	Beladung, Parameter
y	$[m], [-]$	kartesische Ortskoordinate, Variable
Δh_v	$[\frac{J}{kg}]$	Verdampfungsenthalpie
z	z.B. $[^{\circ}C]$	Wert eines Parameters

Griechische Buchstaben

Symbol	Einheit	Bedeutung
α	$[\frac{W}{m^2K}]$	Wärmeübergangskoeffizient
β	$[\frac{m}{s}]$	Stoffübergangskoeffizient
Δ	$[-]$	Differenz
ϵ	$[-]$, $[-]$	Rezirkulationsrate, Expansionszahl
ϕ	$[-]$	Profilmfaktor
γ	$[\frac{mol}{mol}]$	Molanteil
λ	$[\frac{W}{mK}]$, $[-]$	Wärmeleitfähigkeit, Verbrennungsluftverhältnis
μ	z.B. $[m]$	Erwartungswert
ν	$[\frac{m^2}{s}]$	kinematische Viskosität
θ	$[-]$	dimensionslose Temperatur
ρ	$[\frac{kg}{m^3}]$	Dichte
ν	z.B. $[m]$	Standardabweichung
ξ	$[\frac{kg}{kg}]$	Massenanteil
ω	$[-]$	Konzentrationsverhältnis
Ω	$[-]$	Abscheidegrad
η	$[\frac{kg}{ms}]$, $[-]$	dynamische Viskosität, Wirkungsgrad
ψ	$[-]$	Aufreinigungsfaktor
ζ	$[-]$	Druckverlustbeiwert

Indizes

Symbol	Bedeutung
<i>a</i>	Außenseite
<i>abso</i>	absorbiert
<i>A</i>	Austritt
<i>AB</i>	binär
<i>D</i>	Wasserdampf
<i>DDK</i>	Direktkontaktkondensator
<i>diff</i>	Diffusion
<i>E</i>	Eintritt
<i>f</i>	fühlbar
<i>F</i>	Kondensatfilm, Phasengrenze
<i>G</i>	Gemisch, einseitiger Stoffaustausch
<i>Ges</i>	gesamt
<i>Gr</i>	Grädigkeit
<i>i</i>	Laufindex, Stoff, Innenseite
<i>IG</i>	Inertgas
<i>j</i>	Laufindex
<i>kond</i>	Kondensation
<i>konv</i>	Konvektion
<i>korr</i>	korrigiert
<i>K</i>	Kondensat, Kondensator
<i>KW</i>	Kühlwasser
<i>l</i>	latent, längsorientiert, laminar
<i>Log</i>	Logarithmisch
<i>M</i>	Messung
<i>min</i>	minimal
<i>max</i>	maximal
<i>N</i>	aus Wasserdampf gebildeter Nebel, Wärmeübergang, Normal
<i>NB</i>	Normblende
<i>OK</i>	Oberflächenkondensator
<i>q</i>	querorientiert
<i>rel</i>	relativ
<i>R</i>	Rohr
<i>Rez</i>	Rezirkulation
<i>s</i>	Säure
<i>stat</i>	statisch
<i>sys</i>	systematisch
<i>S</i>	Stoffübergang

Symbol	Bedeutung
t	turbulent
th	theoretisch
Tr	Tropfen
V	Verdichter
W	Wand
zuf	zufällig
0	äquimolarer Stoffaustausch, Ruhezustand
∞	theoretisch gegen Unendlich laufend

Kopfzeiger

Symbol	Bedeutung
S	gesättigt
\bar{x}	Mittelwert von x , x steht für eine beliebige Variable
*	abgewandelt

Dimensionslose Kennzahlen

Symbol	Bedeutung
$Ec = \frac{v^2}{c_p \Delta T}$	Eckert-Zahl
$Fo = \frac{at}{l^2}$	Fourier-Zahl
$K_{geo} = \frac{d_a}{l}$	Geometriekonstante im Fall eines Rohrs
$Le = a/D_{AB}$	Lewis-Zahl
$Nu = \frac{\alpha l}{\lambda}$	Nusselt-Zahl
$Pr = \frac{\nu}{a} = \frac{\eta c_p}{\lambda}$	Prandtl-Zahl
$Re = \frac{vl}{\nu}$	Reynolds-Zahl
$Sc = \frac{\nu}{D}$	Schmidt-Zahl
$Sh = \frac{\beta l}{D}$	Nusselt-Zahl

Kapitel 1

Einleitung

1.1 Hintergrund und Problemstellung

Der vierte Weltklima-Bericht des Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC) von 2007 [SQM⁺07] weist einen sehr wahrscheinlichen Zusammenhang zwischen dem Anstieg der globalen Oberflächentemperatur und der vom Menschen verursachten, steigenden Treibhausgaskonzentration in der Atmosphäre aus. In Projektionen dieses Berichts wird von einem, vom Treibhausgasausstoß abhängigen, Temperaturanstieg von weiteren 1,1 bis 6,4 °C ausgegangen. Außerdem wird, wie auch schon in dem von STERN verfassten Bericht [Ste06], vor den politischen, den volkswirtschaftlichen Auswirkungen und den Folgen für die Umwelt gewarnt. So schätzt STERN die jährlichen volkswirtschaftlichen Kosten im Falle des Nichthandelns auf bis zu 20 % des weltweiten Bruttoinlandprodukts ein. Um einen weiteren Temperaturanstieg zu vermeiden nennt STERN ein Kohlendioxidreduktionsziel von mindestens -25 % bis zum Jahre 2050.

Ein wesentliches Instrument solch ein ehrgeiziges Ziel zu erreichen, stellt der im Jahre 2005 europaweit eingeführte Emissionszertifikatehandel dar. Für bestimmte Emittentengruppen, wie z.B. die Kraftwerksindustrie, entstehen hierdurch Kosten je Tonne Kohlendioxid, die in die Atmosphäre freigesetzt wird. Die Internationale Energie Agentur (IEA) schätzt die Grenzkosten der Vermeidung auf etwa 35 €/t_{CO₂} [BGKT08], d.h. ab dieser Preishöhe werden Kraftwerke mit Kohlendioxidabscheidung wirtschaftlich interessant. Zu diesen gehört neben der Pre- und Post-Combustion-Technologie auch die Oxyfuel-Technologie (s. Abbildung 1.1). Sie basiert auf einem Kraftwerksprozess, welcher reinen

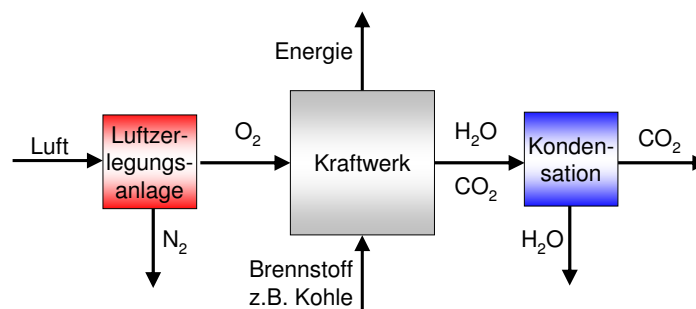


Abbildung 1.1: Prinzip eines Oxyfuel-Kraftwerks

Sauerstoff für die Verbrennung verwendet, sodass das Rauchgas im Wesentlichen aus einem Wasserdampf-Kohlendioxid-Gemisch besteht. Durch die Kondensation des Rauchgaswasserdampfs in einem Kondensationsprozess kann das Kohlendioxid abgetrennt und über weitere Prozessschritte der Speicherung zugeführt werden. Die technologischen Herausforderungen eines Oxyfuel-Kraftwerks liegen neben dem Verbrennungs- insbesondere im Kondensationskonzept.

Durch den hohen Anteil an nicht kondensierendem CO_2 im Rauchgas, der im Laufe der Kondensation des Wasserdampfs bis auf über 96 Massen-% ansteigt, verändern sich wesentliche Kondensatorparameter im Vergleich zu einem Dampfkondensator. Der steigende Inertgasanteil im Kondensator erhöht den Kondensatordruck, reduziert den Wärme- und Stoffübergang und führt im Falle wasserlöslicher Inertgase, wie z.B. Kohlendioxid, zu saurem Kondensat, wodurch wiederum die Werkstoffauswahl einschränkt wird. Hinzu kommt, wie KAUFMANN und MANTHEY in [Kau99] und [Man00] beschreiben, die Problematik der Aerosolbildung im Kondensator. Die Bildungsursache der nur 2-3 μm großen Tröpfchen ist, ähnlich der der Nebelbildung in der Natur, die Übersättigung des Wasserdampf-Inertgasgemischs bei gleichzeitiger Anwesenheit von Kondensationskeimen. Laut KAUFMANN sinkt die Abscheideeffizienz des Kondensators dadurch deutlich. So zeigen seine Messungen, dass bis zu 20 % des entstehenden Kondensats in Form von Nebel den Kondensator über die Absaugung verlassen. Die Nebeltröpfchen verdunsten im Verdichter und erhöhen dadurch sowohl den energetischen als auch den apparativen Aufwand bei der weiteren Verflüssigung des Kohlendioxids. Folgen sind eine Verringerung des Anlagenwirkungsgrads, sowie ein Anstieg der Investitions- und Betriebskosten.

Für die Entwicklung eines für die Oxyfuel-Technologie geeigneten Kondensators ergeben sich aus den bisherigen Kenntnissen folgende Fragestellungen:

1. Was sind die wesentlichen Betriebsparameter eines Oxyfuel-Kondensators und wo liegen deren optimale Bereiche?
2. Wie sieht ein geeignetes Kondensationskonzept zur effizienten Abscheidung von Kohlendioxid aus dem Rauchgasgemisch eines Oxyfuel-Prozesses aus?
3. Welche Wärme- und Stoffübertragungstheorie eignet sich am Besten für die Beschreibung der Partialkondensation eines Wasserdampf-Kohlendioxid-Gemischs?

1.2 Aufgabenstellung

Ziel dieser Arbeit ist es, ein Kondensationskonzept aufzustellen, welches gegenüber einem konventionellen Konzept in einem Oxyfuel-Prozess deutliche Verbesserungen hinsichtlich der Kondensationseffizienz bringt. Hieraus ergeben sich folgende Einzelaufgaben:

1. Untersuchung des Standes von Wissenschaft und Technik zur Rauchgaskondensation und Kondensation von Wasserdampf in Anwesenheit von Inertgasen hinsichtlich Kondensations- und Absaugtechnik und Nebelvermeidung

2. Ermittlung der optimalen Betriebsparameter eines Oxyfuel-Kondensators bei ausgewählten Oxyfuel-Prozessen mittels Kreislaufrechnungen
3. Aufstellen eines geeigneten Kondensationskonzepts, welches die Nebelbildung reduziert und die Kondensatorfläche im Vergleich zu konventionellen Kondensationskonzepten effizienter nutzt
4. Experimentelle Validierung von Wärme- und Stoffübertragungsmodellen für die Kondensation von Wasserdampf in Anwesenheit von Kohlendioxid
5. Nachweis der Tauglichkeit des gewählten Kondensationskonzeptes im Labormaßstab

1.3 Gliederung der Arbeit

In Kapitel 2 werden die theoretischen Grundlagen für die betrachteten Prozesse einschließlich der Rauchgaskondensation geschaffen. Der Stand von Wissenschaft und Technik wird hinsichtlich geeigneter Kondensationskonzepte und Berechnungsmodelle für den Wärme- und Stofftransport in Kapitel 3 beleuchtet. In Kapitel 4 werden die optimalen Betriebsparameter von Oxyfuel-Kondensatoren ermittelt, welche für die späteren Messungen zum Wärme- und Stoffübergang bzw. zum Kondensationskonzept benötigt werden. Dies geschieht im Rahmen von Kreislaufrechnungen geeigneter Oxyfuel-Prozesse, in denen die Kondensatorparameter hinsichtlich ihrer Wirkung auf den Nettowirkungsgrad des Prozesses untersucht werden. Diese Daten fließen anschließend in die Messungen ein.

Der experimentelle Teil beginnt mit den Messungen zum Wärme- und Stoffübergang bei der Kondensation von Wasserdampf in Anwesenheit von Kohlendioxid oder Stickstoff (Kapitel 5). Dabei wird ein möglichst breites Band an vorkommenden, quantitativen Gaszusammensetzungen und Gasgeschwindigkeiten abgedeckt um verschiedene Theorien zur Auslegung derartiger Kondensatoren validieren zu können. In Kapitel 6 wird das Kondensationskonzept vorgestellt, welches für Oxyfuel-Prozesse geeignet ist und eine effiziente Abscheidung des Kohlendioxids ermöglicht. Weiter werden darin die Tauglichkeit des Kondensationskonzepts und die bereits erwähnten Phänomene untersucht, wie sie bei der Rauchgaskondensation mit sehr hohen Kohlendioxidgehalten vorkommen. Im abschließenden Kapitel 7 werden die wichtigsten Erkenntnisse aus dieser Arbeit zusammenfassend auf den Punkt gebracht.

Kapitel 2

Theoretische Grundlagen

Durch die Abscheidung des Luftstickstoffs vor der Verbrennung (s. Abbildung 1.1) nimmt die Kohlendioxidkonzentration im Rauchgas des Oxyfuel-Prozesses stark zu. Folglich besteht das Restgas nach der anschließenden Kondensation im Wesentlichen nur noch aus Kohlendioxid. Weitere, wenn auch sehr viel geringere Anteile, werden durch im Brennstoff gebundene Bestandteile, wie z.B. Schwefel, durch die Luftzerlegungsanlage (Restgase wie Argon, Stickstoff) und durch den für eine vollständige Oxidation notwendigen Sauerstoffüberschuss eingebracht. Was sich dadurch für den Kondensator verändert wird nachfolgend erläutert.

2.1 Oxyfuel-Kondensator

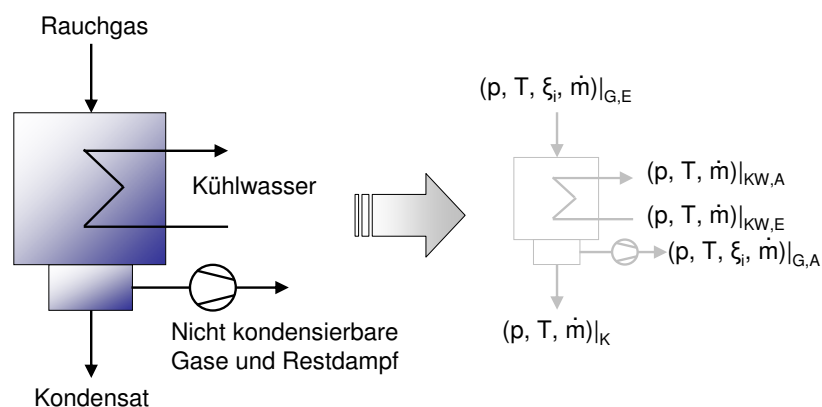


Abbildung 2.1: Der Oxyfuel-Kondensator

Im Oxyfuel-Kondensator wird der Dampfanteil des Rauchgases bis auf einen Restdampfanteil, welcher als Auslegungsgröße für den Kondensator dient, auskondensiert. Gleichzeitig wird dabei das Gasgemisch bis auf die jeweilige Sättigungstemperatur des Dampfes T_D^S abgekühlt, weshalb man auch von Kühler-Kondensatoren spricht. Die nicht kondensierbaren Bestandteile konzentrieren sich durch die Abnahme des Dampfanteils auf und müssen folglich aus dem Kondensator entfernt werden. Einerseits weil sie den Dampf auf dem Weg

zur Kühlfläche behindern und dadurch den Wärme- und Stoffübergang reduzieren, andererseits um den Kondensatordruck konstant halten zu können. Das aus dem Kondensator abgeführte Gasgemisch, auch Magergas genannt, beinhaltet wiederum einen Restdampfanteil solange nicht unterhalb des Eispunktes abgekühlt wird. Das wasserdampfhaltige Rest- oder Magergas wird anschließend in einer Trocknung weiter aufkonzentriert, von Restbestandteilen wie Schwefel gereinigt und schließlich wird der so erreichte hohe Kohlendioxidanteil kryogen oder über eine Verdichtung verflüssigt [KHK⁺06].

2.2 Eigenschaften der Partialkondensation

Die Partialkondensation, d.h. die Kondensation von Dampf in Anwesenheit nicht kondensierbarer Gase (Inertgase), unterscheidet sich deutlich von der Kondensation von reinem Dampf. Dampf kondensiert an einer Fläche, deren Temperatur unterhalb der lokalen Sät-

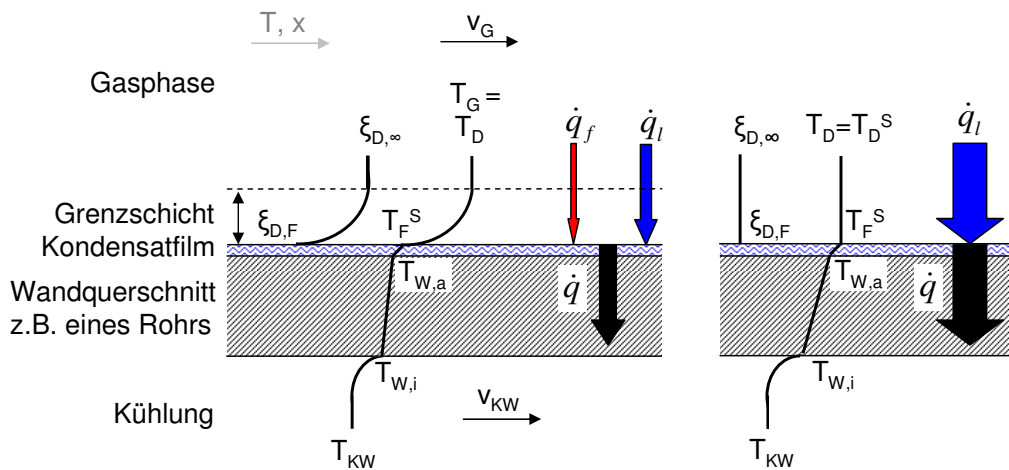


Abbildung 2.2: Konzentrations- und Temperaturprofile bei Kondensation an einer gekühlten Fläche (Platte, Rohr, usw.) mit (links) und ohne (rechts) Inertgas

tigungstemperatur des Dampfes T_D^S liegt. Während dieses Phasenwechsels erhöht sich die Dichte um einen Faktor von 10^3 bis 10^4 , wodurch ein (zusätzlicher) freier Konvektionsstrom zur Phasengrenze entsteht. Infolge des Wandkontakts wird das gebildete Kondensat weiter unterkühlt - es kann weiterer Dampf kondensieren. Die Unterkühlung wird dabei durch den Wärmedurchgang in der flüssigen Phase und durch die Wandtemperatur nach unten begrenzt.

Die Vorgänge in den drei Phasen - Konvektion in der Gasphase, Kondensation an der Phasengrenzschicht und die anschließende Wärmeleitung und Konvektion in der flüssigen Phase - bestimmen den thermischen Widerstand. Bei reinem Dampf gibt es zwar noch einen Anteil Wärmeleitung in der Dampfphase, dessen treibende Temperaturdifferenz beträgt aber nur wenige hundertstel Grad Celsius, weshalb man diesen oberhalb von Sättigungsdrücken von 0,01 bar vernachlässigen kann [KBM81]. Dies wiederum bedeutet, dass

der Anteil der Dampfdiffusion zur Gasphase aufgrund von Konzentrationsunterschieden ebenfalls vernachlässigbar sein muss. Folglich liegt der dominierende Wärmewiderstand, außer bei großer Überhitzung, in der flüssigen Phase [BS94].

Kondensiert Dampf in Anwesenheit von Inertgas, verlagert sich der dominierende thermische Widerstand infolge sich an der Phasengrenzschicht aufkonzentrierender, nicht kondensierbarer Gase (z.B. N_2 , CO_2 , usw.) in die Gasphase. Gleichzeitig beginnt aufgrund des Konzentrationsanstiegs senkrecht zur Kondensationsoberfläche eine Rückdiffusion dieser Inertgase - es stellt sich bei stationären Bedingungen ein stabiles Konzentrationsprofil ein (s. Abbildung 2.2).

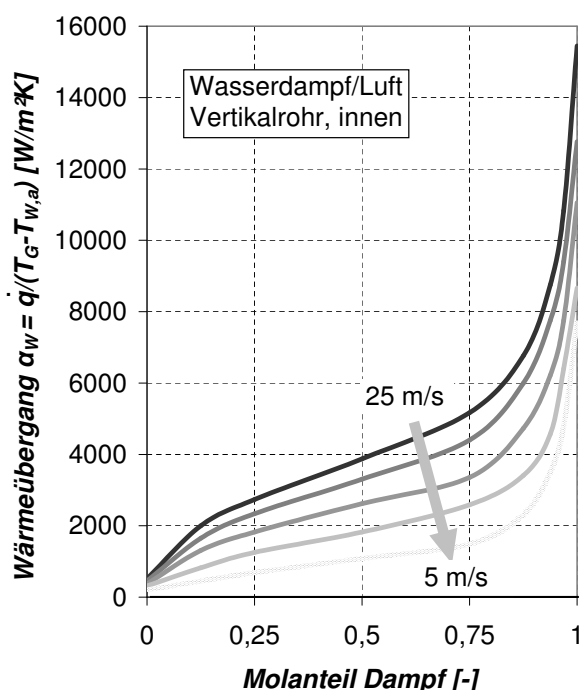


Abbildung 2.3: Wärmeübergang an der Wand über dem Dampfgehalt bei verschiedenen Strömungsgeschwindigkeiten

Da der Gesamtdruck konstant bleibt, bedeutet die zur Phasengrenzschicht hin zunehmende Inertgaskonzentration nach dem Gesetz von Dalton eine Abnahme der Dampfkonzentration. An der Phasengrenze selbst kann wegen der Kondensation ein thermodynamisches Gleichgewicht angenommen werden [BS94], folglich nimmt auch die Temperatur des Dampfes innerhalb der Grenzschicht ab (s. Abbildung 2.2). Dadurch entstehen zwei zusätzliche Widerstände in der Grenzschicht der Gasphase: ein Wärmewiderstand aufgrund der Temperaturdifferenz sowie ein Stoffübergangswiderstand aufgrund der Konzentrationsdifferenz. Die Auswirkungen auf den Wärmeübergang zeigen die experimentellen Untersuchungen von RENKER [Ren55] an einem vertikalen, innen durchströmten und gekühlten Rohr mit Wasserdampf-Luft-Gemischen (s. Abbildung 2.3).

Kapitel 3

Stand von Wissenschaft und Technik

Ziel dieses Kapitels ist den Forschungsbedarf bezüglich der Partialkondensation von Wasserdampf-Kohlendioxid-Gemischen zu ermitteln. Dazu wird der Stand von Wissenschaft und Technik untersucht und mit den Zielen aus Kapitel 1.2 verglichen und anschließend der Forschungsbedarf abgeleitet.

3.1 Wissenschaft

Die Kondensation von Wasserdampf in Anwesenheit nicht kondensierbarer Gase, wie es in Oxyfuel-Kondensatoren der Fall ist, ist ein vielschichtiger Vorgang welcher Kenntnisse zu Temperatur-, Geschwindigkeits- und Konzentrationsprofilen erfordert um den Wärme- und Stoffübergang zu beschreiben (s. auch Abbildung 3.5). Darüber hinaus sind Kenntnisse zu verwendeten Kühloberflächengeometrien und zur Strömungsführung notwendig. Ein weiterer das Wärmeübertragungsproblem beeinflussender Punkt, der hier erörtert werden muss, ist die Technologie der Inertgas- oder Kohlendioxidabsaugung. Nicht zuletzt soll auch der Stand der Wissenschaft im Bereich der Nebelbildung in Kühler-Kondensatoren dargestellt werden.

3.1.1 Berechnung der Wärme- und Stoffübertragungskoeffizienten

Basis für die Berechnung sind die Übergangskoeffizienten α und β , die die Proportionalitätskonstanten des Wärme- und Stoffflusses darstellen und neben dem Potentialunterschied (Temperatur- oder Konzentrationsgradient) für die Beschreibung der Partialkondensation (s. Abbildung 3.5) essentiell sind.

Mit der Einführung der Ähnlichkeitstheorie in die Wärmelehre durch WILHELM NUSSELT¹ wurde eine wesentliche Erleichterung zur Berechnung der beiden Übergangskoeffizienten geschaffen. So kann z.B. mit Hilfe der Nusselt-Zahl (Nu) der Wärmeübergang α

¹Wilhelm Nusselt war unter anderem Ordinarius des Lehrstuhls für Theoretische Maschinenlehre der TU München (1925-1951). Er wurde bekannt durch seine Messungen zur Wärmeleitfähigkeit von Isoliermaterialien, der Nusselt'schen Wasserhauttheorie, durch Beiträge zur Analogie von Wärme- und Stoffübergang und vor allem durch die Einführung der Ähnlichkeitstheorie in die Wärmelehre.

im Fall der hier interessierenden, erzwungenen Konvektion als Funktion von

$$Nu := \frac{\alpha \cdot l}{\lambda} = f(Re, Pr, K_{geo}) \quad (3.1)$$

dargestellt werden [BSL07].² Hierbei ist l die charakteristische Länge und λ der Wärmeleitkoeffizient der betrachteten Phase. Die Reynolds- (Re) und Prandtl-Zahl (Pr) stellen hierbei die unabhängigen Variablen dar, während die dimensionslose Geometrie Kennzahl (Bsp. umströmtes Rohr $K_{geo} = d_a/L$) eine abhängige Größe ist. Das entspricht einer Reduktion der unabhängigen Variablen von sieben ($l, v, \rho, \eta, \Delta T, \lambda$ und c_p) auf zwei, was nicht nur die Berechnung sondern auch die experimentelle Validierung von α erleichtert. Ist m beispielsweise die Anzahl der Einflussgrößen und n die Anzahl der Variationen pro Parameter, dann ist n^m die Anzahl der Einzelversuche. Für den Fall $n = 4$ und $m = 7$ ergäben sich $4^7 = 16384$, bei Verwendung der Dimensionsanalyse aber nur $4^3 = 64$ bzw. für den Fall einer deutlichen Unterschreitung der Schallgeschwindigkeit $4^2 = 16$ notwendige Versuche.

Der Stoffübergang wird mittels der nach THOMAS KILGORE SHERWOOD³ benannten Sherwood-Zahl (Sh)

$$Sh := \frac{\beta \cdot l}{D} = f(Re, Sc, K_{geo}) \quad (3.2)$$

berechnet, wobei β der Stoffübergangskoeffizient, l die charakteristische Länge und D der Diffusionskoeffizient ist. Der ähnliche Aufbau von Sherwood- und Nusselt-Zahl beruht auf der Analogie für den Wärme- und Stoffübergang bei äquimolaren Prozessen.

Allerdings müssen sowohl Nusselt- als auch Sherwood-Zahl im Fall der Partialkondensation korrigiert werden, da es sich um einen einseitigen Stoffaustausch handelt. Der zusätz-

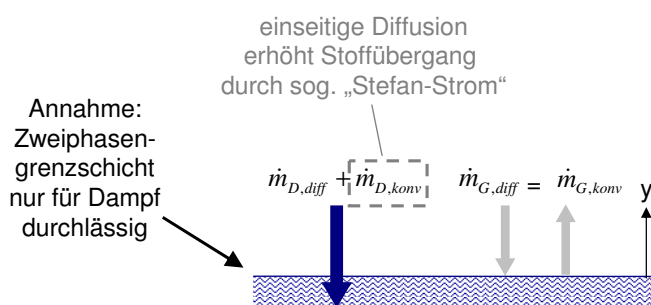


Abbildung 3.1: Einseitige Diffusion am Beispiel der Partialkondensation

liche Konvektionsstrom, der sogenannte Stefan-Strom (s. Abbildung 3.1), des einseitigen

²Für schallnahe liegende Strömungen oder Strömungen mit einem starken Geschwindigkeitsgradienten gilt $Nu = f(Re, Pr, Ec, K_{geo})$ [BSL07].

³THOMAS KILGORE SHERWOOD wurde von WARREN K. LEWIS am Massachusetts Institute of Technology (MIT) promoviert und wurde durch seine Arbeiten zum Stoffübergang strömender Fluide bekannt.

Stoffaustauschs führt zu einem verstärkten Stoffübergang, wodurch sich Temperatur-, Konzentrationsfelder und Grenzschichtdicke stark verändern. Um dem gerecht zu werden wurden Korrekturfaktoren eingeführt, wie z.B. von ACKERMANN [Ack37] und STEFAN [Ste71] für die Filmtheorie. Zur Unterscheidung werden die für den äquimolaren Stoffaustausch gültigen Nu - und Sh -Zahlen mit der Zahl Null indiziert

$$\begin{aligned} Nu_0 &= \frac{\alpha_0 d_A}{\lambda_G} \\ Sh_0 &= \frac{\beta_0 d_A}{D}, \end{aligned} \quad (3.3)$$

die korrigierten dagegen mit einem „G“

$$\begin{aligned} Nu_G &= Nu_0 \cdot K_N = \frac{\alpha_G d_A}{\lambda_G} \\ Sh_G &= Sh_0 \cdot K_S = \frac{\beta_G d_A}{D}. \end{aligned} \quad (3.4)$$

Die Nusselt- und Sherwood-Zahlen für den äquimolaren Wärme- und Stoffaustausch werden nach bekannten Korrelationen berechnet. Für eine typische Wärmeübertragungsgeometrie in Kondensatoren, wie dem horizontalen, quer überströmten Kühlrohr schlägt GNIELINSKI [Gni75] folgende Kombination verschiedener Korrelationen vor:

$$\begin{aligned} Nu_{0,lam} &= 0,664 \sqrt[3]{Pr} \sqrt{Re} \\ Nu_{0,turb} &= \frac{0,037 Re^{0,8} Pr}{1 + 2,443 Re^{-0,1} (Pr^{2/3} - 1)} \\ Nu_0 &= 0,3 + \sqrt{Nu_{0,lam}^2 + Nu_{0,turb}^2}, \end{aligned} \quad (3.5)$$

deren Gültigkeitsbereiche bei $1 \leq Re \leq 10^6$, $0,7 \leq Sc \leq 7 \cdot 10^4$ und $0,7 < Pr < 600$ liegen.

Durch den Austausch der Prandtl-Zahl durch die Schmidt-Zahl in (3.5) und der Nusselt-Zahl durch die Sherwood-Zahl erhält man die Gleichungen für den Stoffübergang. Möglich wird das durch die Analogie von Wärme- und Stofftransport bei äquimolaren Austauschprozessen mit Gasen, wie sie schon 1922 von LEWIS in [Lew22] nachgewiesen wurde.

Die Berechnung der Korrekturfaktoren K_S und K_N ist wiederum abhängig von dem zugrunde liegenden, physikalischen Modell der Partialkondensation. Die drei bekanntesten Modelle⁴ sind:

1. die Filmtheorie,
2. die Grenzschichttheorie und
3. die Penetrationstheorie.

⁴Einen guten Überblick über die genannten Theorien geben BIRD, STEWART und LIGHTFOOT in [BSL07].

Die ersten beiden beinhalten eine Theorie zu den Profilen von Temperatur, Konzentration und Geschwindigkeit, wobei sie dafür unterschiedliche Annahmen machen. So geht die Filmtheorie z.B. von eindimensionalen, stationären und linearen Profilen aus (s. Abbildung 3.2), während die Grenzschichttheorie ebenfalls lineare, stationäre, zusätzlich aber zweidimensionale Profile beinhaltet. Allgemein genügt jedoch für viele Fälle aufgrund der Haupteinflussrichtung senkrecht zur Phasengrenzschicht (s. Abbildung 3.1) eine eindimensionale Betrachtung - d.h. die Filmtheorie. Die Penetrationstheorie von HIGBIE [Hig35]

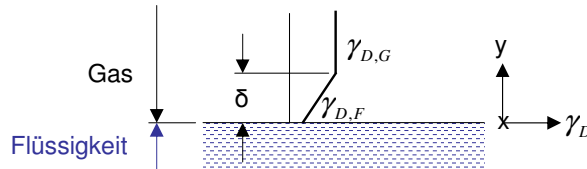


Abbildung 3.2: Konzentrationsprofil von Dampf bei der Partialkondensation nach Vorstellung der Filmtheorie

basiert auf der Idee, dass der Stoffaustausch von der Kontaktzeit abhängt, wodurch die Form der Profile zeitabhängig wird. Dies kann z.B. bei der Kondensation von Dampfblasen in einem Kühlmedium Sinn machen, da dieser Prozess stark instationär ist. Allerdings ist die Berechnung aufwendig und kommt deshalb nur selten zur Anwendung. Tabelle 3.1 fasst die Korrekturfaktoren der genannten Theorien zusammen.

Tabelle 3.1: Korrekturfaktoren von Film-, Grenzschicht- und Penetrationstheorie nach [BSL07]

Theorie	K	Profilmfaktor ϕ_S	Profilmfaktor ϕ_N
Filmtheorie	$\frac{\phi}{e^\phi - 1}$	$\ln \left(\frac{\gamma_{D,F} - \gamma_{D,\infty}}{1 - \gamma_{D,F}} + 1 \right)$	$\ln \left(\frac{\dot{n}_{D,F} \tilde{c}_{p,D} (T_F - T_\infty)}{\dot{q}} + 1 \right)$
Penetrationstheorie	$\frac{\exp(-\phi^2/\pi)}{1 + \operatorname{erf}(\phi/\sqrt{\pi})}$	$\sqrt{\pi} \cdot \frac{\dot{n}_{D,F}}{c} \sqrt{\frac{t}{D_{AB}}}$	$\sqrt{\pi} \cdot \frac{\dot{n}_{D,F}}{c} \sqrt{\frac{t}{\alpha_0}}$
Grenzschichttheorie*	$1 - \frac{b(e^\phi - 1)}{1 + b(e^\phi - 1)}$	$\ln \left(\frac{\gamma_{D,F} - \gamma_{D,\infty}}{1 - \gamma_{D,F}} + 1 \right)$	$\ln \left(\frac{\dot{n}_{D,F} \tilde{c}_{p,D} (T_F - T_\infty)}{\dot{q}} + 1 \right)$

* Vereinfachter Ansatz nach [Mer59] und [PS63] mit $b = -0,092 \ln(\Lambda) + 0,73$ und $\Lambda = Sc$ für K_S oder $\Lambda = Pr$ für K_N im Bereich $\Lambda = [0, 1; 2]$ mit einer Genauigkeit von $\pm 1,5\%$

Wie Abbildung 3.3 zeigt, werden für den Bereich der Partialkondensation mit der Filmtheorie die niedrigsten Korrekturwerte für (3.4) berechnet. Die wesentlich vereinfachte Berechnungsweise der Grenzschichttheorie nach [Mer59] und [PS63] prognostiziert speziell für niedrige Schmidt-Zahlen deutlich höhere Werte, wohingegen die Penetrationstheorie bezüglich der Korrekturwerte zwischen der Film- und Grenzschichttheorie liegt.

Die Grenzschichttheorie erlaubt im Gegensatz zur Filmtheorie aufgrund der mehrachsigen Betrachtung auch die Modellierung einer turbulenten Grenzschicht, z.B. durch einen

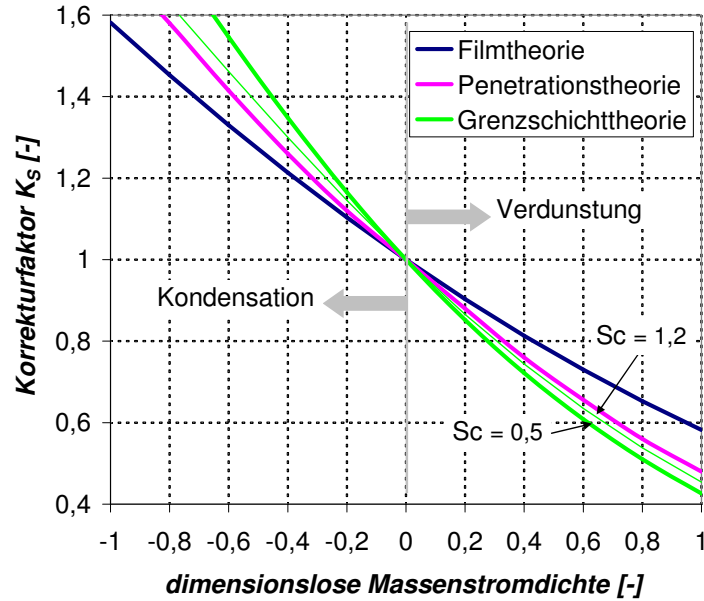


Abbildung 3.3: Korrekturfaktor K_S (sog. Stefan-Korrektur) über der dimensionslosen Massenstromdichte nach Abbildung 3.1 und Tabelle 3.1

k- ϵ -Modellansatz. Neben z.B. KREBS [Kre84] und ODENTHAL [Ode83], die die turbulente Grenzschicht bei Partialkondensation in Rohren untersuchten, beeinflussten die Berechnungen zur turbulenten Grenzschicht an einer ebenen Platte von SPARROW et al. [SMS67] und KINNEY und SPARROW [KS70] weitere Arbeiten. Zu diesen gehören die Arbeiten von ROSE [Ros80] (horizontale, längsangeströmte Platte und quer umströmtes, horizontales Rohr) und NOZU et al. [NOIH92] (horizontal durchströmtes, konzentrisches Doppelrohr). Einen Überblick der Korrekturwerte für die Sherwood-Zahl gibt Tabelle 3.2. Durch Austausch von Sh_0 mit Nu_0 und Schmidt-Zahl mit Prandtl-Zahl können hier die korrigierten Nusselt-Zahlen berechnet werden.

Tabelle 3.2: Korrekturfaktoren für die Sherwood-Zahl versch. Autoren

Autor	K_S
ROSE [Ros80]	$\left(\left[1 + 2, 28Sc^{1/3} \left(\frac{1}{\omega} - 1 \right) \right]^{1/2} - 1 \right) \frac{0,5Re^{1/2}}{\left(1 - \frac{1}{\omega} \right) Sh_0}$
NOZU et al. [NOIH92]	$\frac{1}{1 + \frac{0,5v_K}{v_G c_{f0}} Sc} + \frac{0,92v_K Re Sc}{v_G Sh_0}$

* Mit dem Widerstandsbeiwert $c_{f0} = 1 / (3,64 \log Re - 3,28)^2$ nach PETUKHOV [Pet70] und dem Konzentrationsverhältnis $\omega = \xi_{CO_2, \infty} / \xi_{CO_2, F}$

NOZU et al. fanden für ihre Korrekturgleichung (s. Tabelle 3.2) eine gute Übereinstimmung ($\Delta K_S < 4\%$) mit den „exakten“ Ergebnissen der Berechnungen der Grenzschichtgleichungen von KINNEY und SPARROW. ROSE verglich seine berechneten Wärmeströme

mit denen von MILLS et al. [MTC76], wobei es sich um die Kondensation eines Dampf-Inertgas-Gemischs an einem horizontalen, quer überströmten Kühlrohr mit Inertgasmassenanteilen von $\xi_{IG} < 0,08 \frac{kg}{kg}$ und Gemischgeschwindigkeiten von $v_G < 1 \frac{m}{s}$ handelte. Die Abweichungen des Wärmestroms \dot{q} zwischen den Messungen und der Berechnung von ROSE lagen bei $\Delta\dot{q} < 11\%$. Da die überprüften Bereiche bezüglich des Massenanteils des Inertgases und der freien Strömungsgeschwindigkeit für Oxyfuel-Kondensatoren unzureichend sind, müssen obige Gleichungen darüber hinaus noch validiert werden. Hierzu wird im nächsten Kapitel ein Überblick über experimentelle Arbeiten im Bereich der Kondensation von Wasserdampf in Anwesenheit von Inertgasen gegeben.

3.1.2 Stand der experimentellen Validierung für hohe Inertgasanteile

In Oxyfuel-Kondensatoren soll der Dampfgehalt auf sehr niedrige Werte kondensiert werden, um möglichst reines Kohlendioxid zu erhalten. Welche Inertgasgehalte dabei realistisch erscheinen soll folgendes Beispiel zeigen: die gemittelte Kühlwassertemperatur an der Absaugstelle des Kondensators soll 22 °C und die Grädigkeit 4 °C betragen. Dadurch erhält man eine gesättigte Dampftemperatur von 26 °C, die einem Partialdruck von 0,034 bar entspricht [SSG81]. Für einen Kondensatordruck von 1 bar erhält man mit dem Gesetz von Dalton (s. Gleichung 4.3) einen Dampfanteil in der Absaugung von 0,014 kg/kg, für den Fall eines Kondensatordrucks von 0,1 bar dagegen 0,171 kg/kg. Die Inertgasgehalte ξ_{IG} können also unabhängig von den Eingangswerten des Oxyfuel-Kondensators Ausgangswerte von über 98 Massen-% erreichen.

Tabelle 3.3: Arbeiten zur Partialkondensation an horizontalen Geometrien

Quelle	Geometrie, Anströmung	Dampf-Gas-Gemisch	Prozessparameter
MILLS [MTC76]	Rohr, quer	$H_2O/Luft$	$0 < \xi_{IG} \leq 0,08$ $0,3 < v_G \leq 1,0$
SCHRADER [Sch66]	Rohr, längs	H_2O/N_2	$0 < \xi_{IG} \leq 0,46$ $0,9 < v_G \leq 4,9$
LEE [LR84]	Rohr, quer	$H_2O/Luft,$ $/N_2$	$0 < \xi_{IG} \leq 0,32$ $0,3 < v_G \leq 26,0$
BERMANN [Ber69]	Rohr, quer	$H_2O/Luft$	$0 < \xi_{IG} \leq 0,51$ $0,7 < v_G \leq 24,0$
SHAH [SW83]	Rohr, quer	$Methanol/CO_2,$ $/N_2, /R_{12}$	$0 < \xi_{IG} \leq 0,32$ $2000 < Re_G \leq 6000$
WU [WV06]	Rohr, quer	$H_2O/Luft$ H_2O/N_2	$0 < \xi_{IG} \leq 0,20$ $8,2 < v_G \leq 38,0$

Für eine zuverlässige und ausreichend genaue Berechnung der Wärme- und Stoffüber-

tragungskoeffizienten an den Wärmeübertragungsflächen in Oxyfuel-Kondensatoren wird eine verifizierte Berechnungsgrundlage benötigt. Die Validierung findet sinnigerweise mit Messdaten statt, die unter auslegungähnlichen Bedingungen erstellt wurden. Tabelle 3.3 fasst die experimentellen Arbeiten auf dem Gebiet der Partialkondensation an horizontalen Geometrien zusammen. Die darin abgedeckten Gasgeschwindigkeiten v_G erstrecken sich von 0 bis 38 m/s, die Inertgaskonzentrationen ξ_{IG} der Kernströmung reichen von 0 bis 0,51 kg/kg.

3.1.3 Auslegungsmethoden für Kühler-Kondensatoren

Die Schwierigkeit bei der Auslegung von Kühler-Kondensatoren liegt in der starken Änderung der Stoff- und Temperaturwerte durch die Kondensation und Kühlung des Gas-Dampf-Gemischs. Da sich der Wärme- und Stoffübergang dadurch ebenfalls ändert, führen einfache Ansätze zur Auslegung von Wärmeübertragern, die eine Mittelung der Temperaturdifferenz vorsehen - wie z.B. die Methode der logarithmisch gemittelten Temperaturdifferenz - zu größeren Fehlberechnungen (s. Anhang B.1). Darauf wiesen COLBURN und HOUGEN schon 1941 hin und veröffentlichten in [CE41] erstmals ein Verfahren der abschnittswisen, temperaturgestuften Berechnung von Kühler-Kondensatoren. Die damit berechneten Temperaturprofile von Gas-Dampf- und Kühlmedium entlang des Kühler-Kondensators fanden COLBURN und HOUGEN in guter Übereinstimmung mit deren eigenen Messungen.

Seitdem wurde eine Vielzahl an weiteren, vereinfachenden Berechnungskonzepten entwickelt, wie z.B. von SILVER [Sil47], BELL [BG72] und MCNAUGHT [McN79]. ROETZEL und SPANG [RS94] empfehlen zur Auslegung von Wärmeübertragern die Methode der mittleren Temperaturdifferenz sowie die Zellenmethode (s. Abbildung 3.4) von GADDIS und SCHLÜNDER aus [GS75] und [GS78], wobei die Methode der mittleren Temperaturdifferenz, wie oben beschrieben, für Kühler-Kondensatoren nicht empfohlen werden kann.

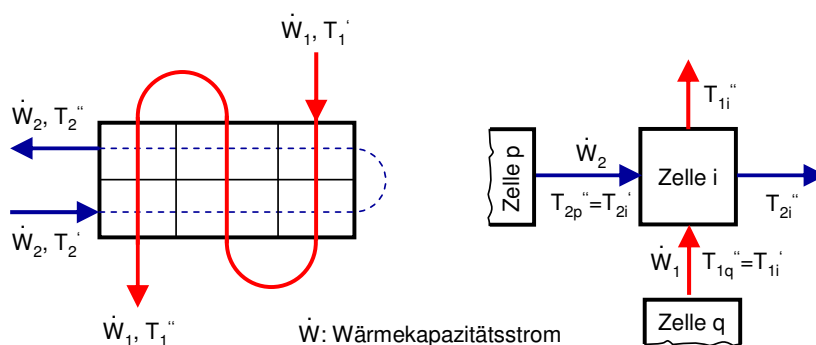


Abbildung 3.4: Zellenmethode nach GADDIS und SCHLÜNDER in Anlehnung an [RS94]

Vorteil der Zellenmethode ist generell, dass der Benutzer die Anzahl der Zellen und das

Berechnungsnetz festlegt, wodurch sich Aufwand und Genauigkeit flexibel anpassen lassen. Weiterhin bestehen im Gegensatz zur Methode der mittleren Temperaturdifferenz keine Einschränkungen in der Anwendung auf bestimmte Strömungsformen, die idealerweise nur bei Gleich- und Gegenstromapparaten angewendet wird.

Alternativ dazu gibt es außerdem numerische Ansätze wie das Differenzenverfahren: Diese sind nach ROETZEL und SPANG aufgrund ihrer stark vom Modell abhängigen Güte, der damit verbundenen Unsicherheit und des vergleichbar hohen Aufwands jedoch nur in Einzelfällen zur Auslegung empfehlenswert.

Die Berechnung des übertragenen Wärmestroms pro betrachteten Abschnitt am Kühler-Kondensator soll hier anhand des Beispiels von Abbildung 3.5 dargestellt werden. Der bei der Partialkondensation eines Wasserdampf-Kohlendioxid-Gemischs innerhalb eines Rohrabschnitts $\Delta A = d_a \pi \Delta l$ eines quer angeströmten, horizontalen Rohrs an das Kühl-

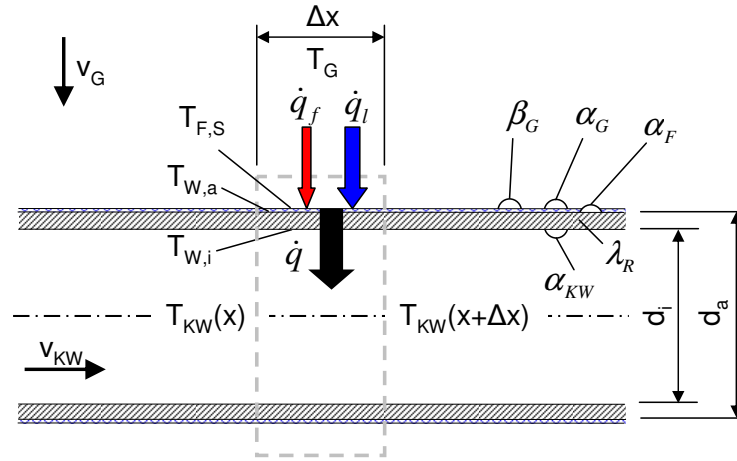


Abbildung 3.5: Energiebilanz am Kühlerrohr

wasser übertragene Wärmestrom berechnet sich nach

$$\Delta \dot{Q}_{KW}(x + \Delta x) = \dot{m}_{KW} c_{p,KW} (T_{KW}(x + \Delta x) - T_{KW}(x)) \quad (3.6)$$

und

$$\Delta \dot{Q}_{KW}(x + \Delta x) = \dot{q}(x + \frac{\Delta x}{2}) d_a \pi \Delta x = \left(\dot{q}_f(x + \frac{\Delta x}{2}) + \dot{q}_l(x + \frac{\Delta x}{2}) \right) d_a \pi \Delta x, \quad (3.7)$$

wobei die in Abbildung 3.5 nicht eingezeichneten Parameter \dot{m}_{KW} den Kühlwassermassenstrom, $c_{p,KW}$ die spezifische Wärmekapazität des Kühlwassers und \dot{Q}_{KW} den übertragenen Wärmestrom darstellen. Die fühlbare Wärmestromdichte aufgrund des Temperaturgradienten über der Grenzschicht berechnet sich nach

$$\dot{q}_f(x + \frac{\Delta x}{2}) = \alpha_G \left(T_G - T_F^S(x + \frac{\Delta x}{2}) \right), \quad (3.8)$$

die latente Wärmestromdichte aus der Wasserdampfkondensation nach

$$\dot{q}_l(x + \frac{\Delta x}{2}) = \frac{\dot{m}_{D,kond}}{A} \Delta h_V, \quad (3.9)$$

wobei die Verdampfungsenthalpie Δh_V für $T_F^S(x + \frac{\Delta x}{2})$ berechnet wird. Der Kondensatmassenstrom $\dot{m}_{D,kond}$ lässt sich nach [ED59] aus $\dot{m}_{D,kond} = \dot{m}_{D,kond} + \rho_G v_G$ und dem Fick'schen Gesetz unter der Voraussetzung, dass kein Inertgas in die flüssige Phase aufgenommen wird, herleiten und wie folgt angeben

$$\dot{m}_{D,kond}(x + \frac{\Delta x}{2}) = \beta_G \rho_G \ln\left(\frac{1 - \gamma_{D,F}}{1 - \gamma_{D,\infty}}\right). \quad (3.10)$$

Zur Lösung des Gleichungssystems müssen die beiden Widerstandskoeffizienten sowie die Temperatur der Phasengrenze T_F^S iterativ bestimmt werden. Als Randbedingung dafür dient der vom Kondensat ans Kühlwasser übertragene Wärmestrom

$$\Delta \dot{Q}_{KW}(x + \frac{\Delta x}{2}) = k_F(x + \frac{\Delta x}{2}) d_a \pi \Delta x \left(T_F^S(x + \frac{\Delta x}{2}) - T_{KW}(x + \frac{\Delta x}{2}) \right) \quad (3.11)$$

mit

$$k_F(x + \frac{\Delta x}{2}) = \frac{1}{\frac{1}{\alpha_F(x + \frac{\Delta x}{2}) d_a/2} + \frac{\ln\left(\frac{d_a}{d_i}\right)}{\lambda_R} + \frac{1}{d_i/2 \alpha_{KW}(x + \frac{\Delta x}{2})}}. \quad (3.12)$$

Die Widerstandskoeffizienten ergeben sich aus den Bedingungen der Grenzschichten von Temperatur, Geschwindigkeit und Stoffkonzentration senkrecht zur Phasengrenze und werden mit der Nusselt- und Sherwood-Zahl nach (3.4) für den Wärme- und Stoffübergang berechnet (s. Kapitel 3.1.1).

3.1.4 Nebelbildung

Der Herbstnebel über den Feldern hat die gleiche Ursache wie der Nebel in Kühler-Kondensatoren: eine Übersättigung des Gas-Dampf-Gemischs. Was den morgendlichen Spaziergang im Nebel so geheimnisvoll macht, verringert in Kühler-Kondensatoren die Trennungseffizienz bezüglich des Gas-Dampf-Gemischs, da sich die Tröpfchen mit Durchmessern von 2-3 μm ⁵ nur schwer an den Kondensatorflächen niederschlagen lassen. KAUFMANN weist in [Kau99] darauf hin, dass der Nebelanteil am Ende des Kondensators über 20 Massen-% des gesamten Kondensats betragen und damit die Abscheideeffizienz des Kühler-Kondensators drastisch reduzieren kann. Um das Problem zu umgehen gibt es zwei Möglichkeiten: Nebel vermeiden oder nachträglich abscheiden.

Ehe diese Lösungsstrategien näher diskutiert werden, seien hier zunächst die notwendigen Bedingungen für die Bildung des Nebels erläutert. Die erste notwendige Bedingung ist die Übersättigung des Gas/Dampf-Gemischs. Hierfür kommen folgende Vorgänge in Frage:

⁵Laut Messdaten eines Versuchsaufbaus zur Bestimmung des Nebelanteils in Kühler-Kondensatoren [Kau99].

- starke Temperaturabsenkung,
- Mischung mit einem zweiten Gasgemisch⁶ mit deutlich unterschiedlicher Temperatur,
- plötzliche Druckabsenkung und
- durch Absorptionswärme hervorgerufene Verdunstung.

Die Übersättigung berechnet sich aus dem Verhältnis von tatsächlichem Dampfdruck p_D zu theoretischem Dampfgehalt bei Sättigung p_D^S

$$S = \frac{p_D}{p_D^S} = \frac{\gamma_D p_K}{p_D^S}, \quad (3.13)$$

ist allein aber noch kein Auslöser für Nebelbildung. Hierzu braucht es Kondensationskeime an denen sich Dampfmo­leküle anlagern. Im Falle einer höheren Zahl von sich anlagernden als sich lösenden Dampfmo­lekülen liegt ein stabiles Tropfenwachstum vor, Nebel bildet sich. Dieser Vorgang läuft solange bis wieder ein thermisches Gleichgewicht erreicht wird, d.h. die Übersättigung abgebaut ist. Hinsichtlich der Keimbildung gibt es zwei Arten: die homogene und die heterogene Keimbildung. Ein guter Überblick über die Berechnungsmethoden zu Keimbildungsrate, Koagulation und Tropfenwachstum findet sich z.B. in [CG02] und [Man00].

Die *homogene Keimbildung* entsteht nach HAEP [Hae00] bei Übersättigungen mit Werten von 2 bis 6 (s. Anhang B.2), wobei man hier von einer kritischen Übersättigung S_{krit} spricht. Ist diese erreicht, verbinden sich fortan mehr Dampfmo­leküle zu Tröpfchen als sich Dampfmo­leküle aus den Molekülverbänden lösen - ein herrscht ein stabiles Tropfenwachstum. Für das Verständnis, wie es in einem Kühler-Kondensator zur Übersättigung kommen kann, eignet sich besonders das Beladungs-Temperatur oder, in Kurzform, das X-T-Diagramm. Dieses kann mit den in den Kapiteln 3.1.1 und 3.1.3 vorgestellten Gleichungen berechnet werden, wobei MANTHEY in [Man00] im Falle der Filmtheorie eine gute Übereinstimmung mit seinen Messungen fand. Wesentlich weniger Berechnungsaufwand bietet jedoch ein von COLBURN und EDISON [CE41] entwickeltes, vereinfachtes und mit dennoch ausreichender Genauigkeit ausgestattetes⁷ Modell, das nachfolgend vorgestellt wird (s. Abbildung 3.6). Die von der Temperatur abhängige Beladung $X(T)$ berechnet sich nach

$$X(T_G) = X_S(T_F) + (X_E - X_S(T_F)) \left(\frac{T_G - T_F}{T_{G,E} - T_F} \right)^{Le^{-2/3}}, \quad (3.14)$$

wobei X_S die Beladung bei Sättigung, X_E die Beladung im Eintritt und Le die Lewis-Zahl bedeuten. Die dafür notwendige Annahme einer konstanten Kondensationstemperatur T_F lässt sich am besten erfüllen, wenn nur ein Teilabschnitt der Kühlfläche im Oxyfuel-Kondensator betrachtet und der Index E auf den Austritt des jeweils vorherigen Abschnitts

⁶Z.B. dampfhaltiges Rauchgas mit viel kälterer Außenluft: führt zur Schwadbildung.

⁷Vgl. [Man00]

bzw. den Kondensatoreintritt bezogen wird. Für die Beladung im Sättigungszustand eines Gasgemischs, bestehend aus Dampf und einem nicht kondensierenden Gas, gilt

$$X_S(T_F) = \frac{\xi_D(T_F)}{1 - \xi_D(T_F)}. \quad (3.15)$$

Aus der Lewis'schen Beziehung folgt für die Lewis-Zahl $Le = \frac{a}{D_{AB}}$

$$Le^m = \frac{\lambda \beta_G}{D_{AB} \alpha_G} \left(\frac{Sc}{Pr} \right)^m, \quad (3.16)$$

wobei m , laut [BS94], einen Wert von etwa $1/3$ annimmt⁸. Des Weiteren bedeuten a die dimensionslose Temperaturleitfähigkeit und D_{AB} der binäre Diffusionskoeffizient. Die Lewis-Zahl in Gleichung (3.16) stellt die Intensität der Stoffübertragung zur der der Wärmetragung ins Verhältnis und wächst im Verlauf zwischen Ein- und Austritt des Kondensators durch die Zunahme des nicht kondensierenden Anteils. Sie wird wegen der Analogie von Wärme- und Stoffübertragung im Wesentlichen von den Stoffeigenschaften des Dampf-Gas-Gemischs bestimmt, folglich wird der Verlauf der Beladung $X(T_G)$ von X_E und T_F bzw. indirekt über die Kühlwassertemperatur T_{KW} und dem lokalen Wärme- und Stoffübergang bestimmt.

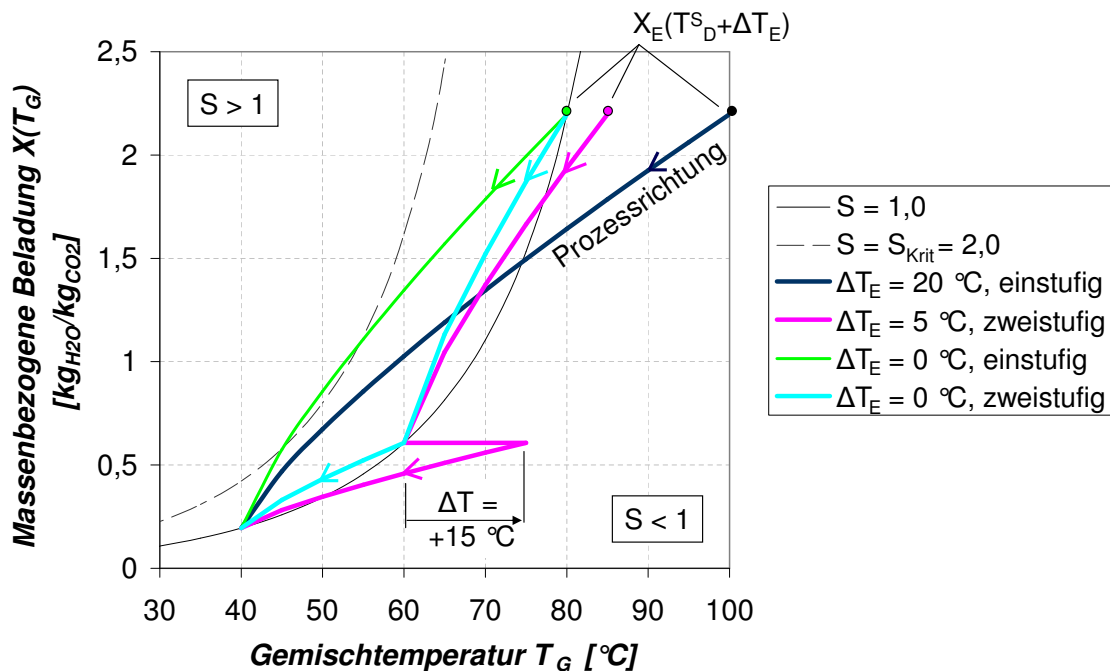


Abbildung 3.6: Prozessverlauf verschiedener Kühl- und Kondensationsstrategien und die Sättigungslinien für $S = 1$ und $S = 2$, aufgetragen über Beladung und Temperatur des Gas-Dampf-Gemischs

⁸Nach [Kri92] für laminare Grenzschichten gültig, für turbulente wird $m = 0,42$ empfohlen.

Abbildung 3.6 zeigt verschiedene, mit (3.14) berechnete Kühl- und Kondensationsstrategien für ein Wasserdampf-Kohlendioxid-Gemisch. Allen gemeinsam ist die zu erzielende Kondensationstemperatur $T_F = 40 \text{ °C}$ und die Beladung am Kondensatoreintritt von $X(T_{G,E}) = 2,2 \text{ kg/kg}$ ($\xi_{D,E} = 0,68$), sie unterscheiden sich aber in der anfänglichen Überhitzung um ΔT_E und in der Anzahl der verschiedenen Kühlwassertemperaturen. Wird z.B. schon die erste Rohrreihe im Kondensator mit einer Kühlwassertemperatur von etwa 28 °C gekühlt ($T_F \approx 40 \text{ °C}$), wird nach (3.14) die kritische Sättigung überschritten und somit die homogene Keimbildung angeregt (s. Prozessweg $\Delta T_E = 0 \text{ °C}$, *einstufig*). Eine geringfügige Unterschreitung von S_{krit} ließe sich durch eine Überhitzung des Gas-Dampf-Gemischs vor Eintritt in diese Rohrreihe um 20 °C erreichen, wie der Prozessweg $\Delta T_E = 20 \text{ °C}$, *einstufig* zeigt. Werden die von KAUFMANN in [Kau99] empfohlenen 20 K Temperaturdifferenz zwischen Gemisch- und Kondensationstemperatur eingehalten, kann der Abstand zur kritischen Übersättigung deutlich vergrößert werden, wie die letzten beiden Prozesspfade $\Delta T_E = 5 \text{ °C}$, *zweistufig* und $\Delta T_E = 0 \text{ °C}$, *zweistufig* zeigen.

Für die Praxis der Nebelvermeidung bei *homogener Keimbildung* empfiehlt sich aus obigem eine mehrstufige Kühlung mit verschiedenen Kühlwassertemperaturen zur Einhaltung der maximalen, lokalen Temperaturdifferenz von 20 K . Dies vergrößert den Bedarf an Wärmeübertragungsfläche erheblich, wenn dennoch dieselbe Reinheit des nicht kondensierbaren Gases erreicht werden soll.

Die *heterogene Keimbildung* entsteht durch Fremdpartikel, sogenannte Primärkeime im Submikrobereich, die als Kondensationskeime dienen. Das können z.B. Feinstäube oder Aerosole sein. Im Gegensatz zur *homogenen Nebelbildung* genügen hier laut MANTHEY schon Sättigungsgrade von $S < 1$ um stabiles Tropfenwachstum zu generieren. Ein gutes Beispiel hierzu ist der Nebel in der Luft, der durch die darin enthaltenen Partikel bei $S_{krit} \approx 1$ entsteht. Dabei gilt: je mehr Primärkeime vorhanden sind, desto stabiler ist das Tropfenwachstum für die Nebelbildung.

Die Vermeidung von Nebel bei Rauchgasen mit Primärpartikeln ist nach KAUFMANN nicht möglich, was [Ste72] vollständig und [Man00] eingeschränkt⁹ bestätigt. KAUFMANN und MANTHEY betonen jedoch die Möglichkeit einer deutlichen Reduktion bzw. vollständigen Vermeidung durch kontrolliertes Abkühlen und Kondensieren. Verbleibende Aerosole und Nebeltröpfchen können außerdem durch Tropfenabscheider abgeschieden werden. Jedoch muss hier auf andere Abscheidungstechnologien, wie z.B. Sprühdüsenabscheider, Venturiwäscher, Rotationswäscher oder Nasselektrofilter zurückgegriffen werden, da sich mechanische Filter durch feste Partikel zusetzen können. Weitere Möglichkeiten der Nebelvermeidung bzw. -reduzierung werden in Kapitel 3.2.1 aufgeführt.

⁹[Man00] verweist auf die Möglichkeit der vollständigen Vermeidung von heterogen gebildetem Nebel für Gas-Dampf-Gemische mit Lewis-Zahlen von $Le < 1$, weil dadurch $\frac{d^2 X}{dT_G^2} > 0$ und somit der Abstand von $X(T_G)$ zur Nebelgrenzlinie begünstigt wird.

3.1.5 Gasabsorption

Die Antriebskraft für die Absorption (lat.: *absorbere*, verschlingen) von Gas in Kondensat ist die Löslichkeit, aufgrund derer Gas in Flüssigkeit diffundiert. Gleichzeitig diffundiert Gas auch wieder aus der Flüssigkeit. Im Gleichgewichtspunkt, wenn die sogenannte „Sättigungskonzentration“ erreicht ist, sind beide Diffusionsströme gleich groß - es herrscht ein dynamisches Gleichgewicht. Findet keine chemische Reaktion statt, so lässt sich die Sättigungskonzentration über das Henry'sche Gesetz

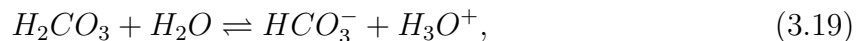
$$p_i = H_i \cdot \gamma_i \quad (3.17)$$

berechnen, wobei p_i der Partialdruck des Gases i über der Flüssigkeit, H_i die Henry-Konstante bzw. der fiktive Dampfdruck des gelösten Gases im flüssigen Zustand und γ_i der Molanteil des Gases in der Flüssigkeit ist. Werte für Henry-Konstanten zur Berechnung der gelösten Gaskonzentration durch Gasabsorption finden sich z.B. in [LB76].

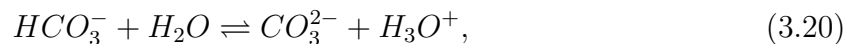
Neben der beschriebenen physikalischen kann es, abhängig vom Absorbat, zu einer chemischen Absorption kommen. Beim System H_2O/CO_2 begegnet uns letzteres im Alltag bei kohlensäurehaltigem Mineralwasser. Hier lassen sich beide Löslichkeitsphänomene durch die aufsteigenden Kohlendioxidgasblasen und den nach dem Öffnen säuerlichen, mit zunehmender Zeit mehr und mehr Leitungswasser ähnlichen, Geschmack beobachten. Bei Oxyfuel-Kondensatoren spielt dieses System wegen der Kohlensäurebildung H_2CO_3 eine wichtige Rolle für die Werkstoffwahl im Kondensator. Sie entsteht durch die Reaktion



Der Schwerpunkt des Reaktionsgleichgewichts liegt laut RIEDEL auf der linken Seite, der Anhydridseite, da sich nur etwa 0,2 Mol-% Kohlensäure bilden (vgl. [Rie99]). Da es sich bei (3.18) um eine zweiprotonige Säure handelt, muss es noch zwei Dissoziationsstufen zur Abgabe der H^+ -Ionen (Protonen) geben:



d.h. dem Zerfall der Kohlensäure in das Hydrogencarbonat-Ion HCO_3^- und



dem anschließenden Zerfall in das Carbonat-Ion CO_3^{2-} , womit das „Säure-Basen-Gleichgewicht“ $HA + H_2O \rightleftharpoons A^- + H_3O^+$ erreicht ist ($HA \equiv$ Säure, $A^- \equiv$ Base). Laut RIEDEL ergibt sich aus den einzelnen Säurekonstanten K_S nach dem Massenwirkungsgesetz¹⁰

$$K_s = \frac{c(H_3O^+) \cdot c(A^-)}{c(HA)} \quad (3.21)$$

¹⁰Die Konzentration des Wassers $c(H_2O)$ wird K_s zugerechnet, da deren Änderung gegenüber den anderen Konzentrationen vernachlässigbar ist.

ein mittlerer pK_s -Wert von 6,4 (mit $pK_s = -\lg K_s$), womit es sich um eine schwache Säure handelt.

Der pH-Wert einer Säure berechnet sich weiterhin aus dem negativen dekadischen Logarithmus der Oximionenkonzentration - also der Konzentration an protoniertem Wasser H_3O^+ . Im Falle schwacher Säuren gilt allerdings die Näherungsgleichung

$$pH = 0,5 \left(pK_s - \lg c_{HA} \left[\frac{l}{mol} \right] \right), \quad (3.22)$$

wobei c_{HA} in $\left[\frac{mol}{l} \right]$ angegeben wird. Da die Löslichkeit von Kohlendioxid in Wasser neben dem Kohlendioxidpartialdruck auch von der Temperatur des Absorbens (hier Wasser) abhängt, ist folglich auch der pH-Wert eine Funktion dieser beiden Parameter. Des Weiteren wird die Löslichkeit und somit der pH-Wert ganz wesentlich von der Konzentration an Protonendonatoren oder -akzeptoren beeinflusst, d.h. von anderen Säuren und Basen, die z.B. durch in Wasser lösliche Schwefeloxide gebildet werden.

3.2 Technik

Seit dem ersten von JAMES WATT im Jahre 1769 für die Verbesserung der einfachwirkenden Niederdruck-Dampfmaschine entwickelten Kondensator, wurde die Technologie der Kondensation immer wieder verbessert und deren Einsatzgebiet weit über die Dampfmaschine hinaus erweitert. Heute gibt es neben den reinen Dampf-, auch Brüden- und Rauchgaskondensatoren sowie Rektifikations- und Destillationsanlagen [Mer80] für die Trennung von Mehrstoffgemischen.

Stellt die Oxyfuel-Kondensationstechnologie hier nun eine Neuerung in der Kondensationstechnik an sich dar? Nein und ja! Nein, weil die notwendigen Techniken der Kondensation der Dampfkomponente und die Beseitigung der nicht kondensierbaren Gase aus dem Kondensator bereits verwendet werden - z.B. in Dampfkondensatoren, die im Unterdruck bei bis zu 40 mbar [Asc78] arbeiten. Allerdings stellen die Anforderungen an Oxyfuel-Kondensatoren eine Erweiterung des Bisherigen dar, weshalb diese Frage auch mit ja beantwortet werden kann. Hierauf wird im Folgenden eingegangen.

3.2.1 Kondensationstechnik

Um Dampf bzw. mehrere Dämpfe zu kondensieren werden zwei Arten der Kondensation eingesetzt: die *Misch- oder Einspritzkondensation* [CG02], welche auch *Direktkontaktkondensation* genannt wird, und die *Oberflächenkondensation*. Erstere bringt Dampf- und Kühlmedium in direkten Kontakt, wobei der Dampf am Kühlmedium, das in Form von Tropfen, Fallfilmen oder Flüssigkeitsschichten vorliegt [KB87], kondensiert (s. Abbildung 3.7). Nach KOPP [Kop65] und CELATA et al. [CCDF91] werden z.B. in Einspritzkondensatoren (Tropfendurchmesser von 0,32-2,80 mm) bei der Kondensation von reinem Dampf lokale Wärmeübergänge von bis zu $\alpha_F = 100 \text{ kW m}^{-2} \text{ K}^{-1}$ erreicht. Nach CELATA

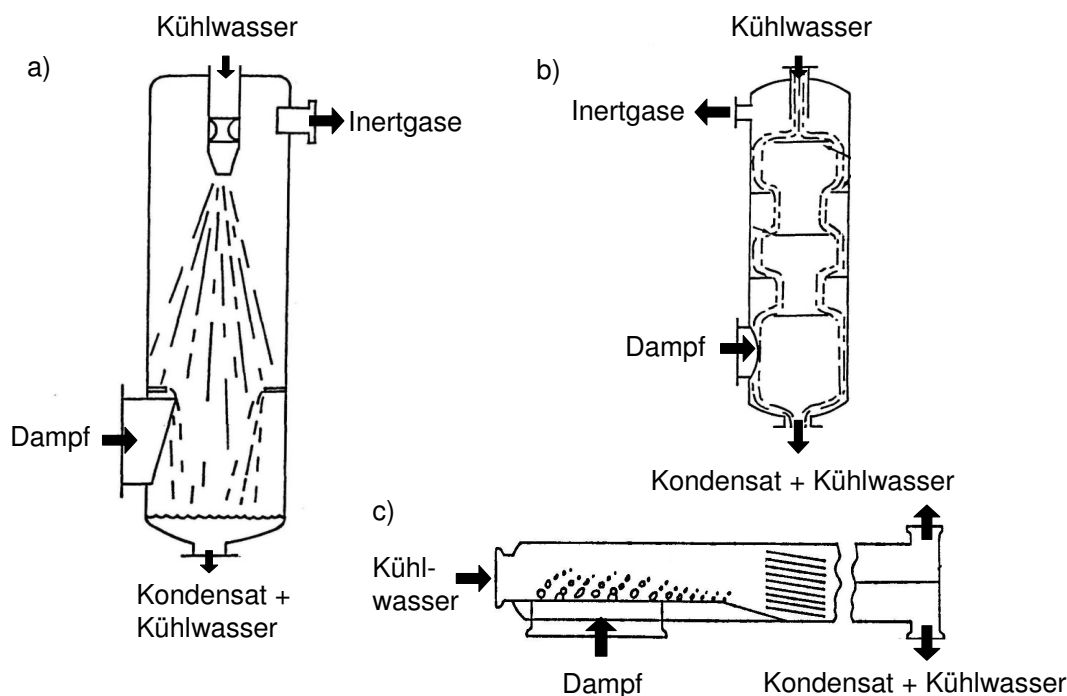


Abbildung 3.7: Verschiedene Formen der Direktkontaktkondensation: a) Einspritz-, b) Fallfilm- und c) Blasenkondensator aus KREITH und BOEHM [KB87]

et al. hängt dieser Wert stark von der jeweiligen Tropfengeschwindigkeit ab. So werden für Tropfen mit einem Durchmesser von 0,32 mm bei 2 m/s ca. $20 \text{ kWm}^{-2}\text{K}^{-1}$ und bei 8 m/s die erwähnten Spitzenwerte erreicht. Allerdings sind dies Spitzenwerte für reinen Dampf, die mit zunehmender Verweilzeit der Tropfen und zunehmendem Inertgasanteil drastisch reduziert werden. Ein Vergleich des Wärmeübergangs α_F bei querangeströmten Rohren mit Messungen von FUJII et al. [FHO79], die bei Gasgeschwindigkeiten von 0,6-80 m/s erreicht wurden, zeigen geringere α_F -Werte von $3,5\text{-}68 \text{ kWm}^{-2}\text{K}^{-1}$. Im Hinblick auf die Anzahl der thermischen Widerstände, wie sie in Abbildung 3.5 dargestellt sind, lässt sich ableiten, dass bei diesen α_F -Werten für die Oberflächenkondensation deutlich geringere Wärmedurchgangswerte erreicht werden als für die Direktkontaktkondensation. Ein Vergleich der beiden Wärmedurchgangszahlen bei Vernachlässigung des gasseitigen Wärmeübergangs (gültig für die reine Dampfkondensation) zeigt, warum die k -Werte bei Oberflächen geringer sein müssen: Für den Wärmedurchgang bei Oberflächenkondensation k_{OK} an einer Rohrgeometrie gilt

$$k_{OK} = \frac{1}{\frac{1}{\alpha_F d_a/2} + \frac{\ln\left(\frac{d_a}{d_i}\right)}{\lambda_R} + \frac{1}{d_i/2\alpha_{KW}}}, \quad (3.23)$$

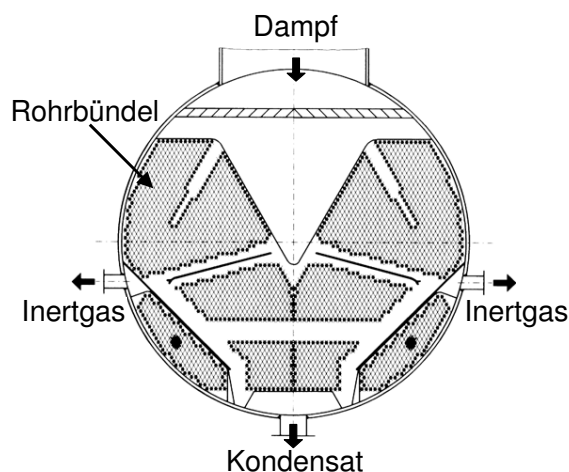


Abbildung 3.8: Seitenansicht eines Vakuum-Oberflächenkondensators mit waagerechten Rohrbündeln aus [CG02]

während für den Wärmedurchgang der Direktkontaktkondensation k_{DDK} an einem ideal durchmischten Tropfen

$$k_{DDK} = \frac{1}{\frac{1}{\alpha_F r_{Tr}^2}} \quad (3.24)$$

erfüllt ist. Es bedeuten α_F der Wärmeübergang vom Fluid auf die Wand bzw. vom Fluid auf Fluid, d_a bzw. d_i der äußere bzw. der innere Durchmesser des Rohrs, λ_R der Wärmeleitkoeffizient des Rohrs, α_{KW} der Wärmeübergang von der Wand auf das Kühlmedium und r_{Tr} der Tropfenradius. Folglich wird auch der übertragbare spezifische Wärmestrom

$$\dot{q} = k (T_F - T_{KW}) \quad (3.25)$$

der Oberflächenkondensatoren nicht an den der Direktkontaktkondensatoren heranreichen, wenn das treibende Temperaturgefälle nicht ausgleichend wirkt. Aus Gleichung (3.25) und dem Vergleich von Gleichung (3.23) mit (3.24) lassen sich einige Vorteile der Direktkontaktkondensatoren gegenüber der Oberflächenkondensatoren ableiten (siehe auch [CG02]):

- hohe spezifische Wärmeübertragungsflächen möglich
- niedrigere Investitionskosten
- unempfindlich gegen Verschmutzung
- einfachere Wartung
- geringerer Kühlwasserbedarf
- höhere Betriebssicherheit

Allerdings setzt die Direktkontaktkondensatoren-Technik eine Vermischbarkeit von Kühlmittel und Kondensat voraus. Dies ist der entscheidende Grund, warum sich mit zunehmenden Anforderungen an die Wasserqualität des Wasserdampfkreislaufs die Oberflächenkondensatoren in Dampfkraftwerken durchgesetzt haben.

Diesen Nachteil versucht das sogenannte HELLER-Verfahren [For67] durch eine Kreislaufführung des Kondensats zu umgehen: ein Vielfaches des pro Zeiteinheit anfallenden Kondensats wird hierbei durch einen Rückkühler wieder auf Eintrittstemperaturen gekühlt und kann damit als Kühlmittel in den Kondensator eingebracht werden. Die Nachteile dieses Verfahrens sind die hohen Investitionskosten in den Rückkühler, der im besten Fall als indirekter flüssig-flüssig- oder als indirekter flüssig-gasförmig-Kühler ausgeführt werden kann, sowie die Gasabsorption im Kondensat, die die Grädigkeit erhöht und den Wärmeübergang reduziert.

Im Falle einer Nebelvermeidungsstrategie stellt der sehr gute Wärmeübergang der Direktkontaktkondensation in Kühler-Kondensatoren paradoxerweise einen zusätzlichen Nachteil dar, da ein hoher Wärmeübergang die Übersättigung des Gas-Dampf-Gemischs beschleunigt und damit die Nebelbildung fördert (s. Kapitel 3.1.4). Bei einer nachträglichen Nebelabscheidung kann eine zusätzliche Förderung der Übersättigung durch eine hoch eingestellte Temperaturdifferenz zwischen Kühl- und Dampfmedium dagegen sinnvoll sein. Dadurch steigt die Nebelwahrscheinlichkeit und damit auch das Tropfenwachstum durch Kondensation und Koagulation [Man00].¹¹

Zur Vermeidung von Nebel in Kühler-Kondensatoren gibt es zahlreiche Patente und Entwicklungen. Eine davon ist das von KAUFMANN [Kau99] entwickelte Verfahren zur sicheren Unterdrückung der Nebelbildung in Oberflächenkondensatoren. Dieses basiert auf der von COLBURN und EDISON [CE41] erstmals umgesetzten Idee der Zwischenüberhitzung im Kühler-Kondensator und wurde Anfang 2008 durch die Kühni AG für die Schweiz und Lichtenstein patentiert (Patent-Nr. CH 696 874 A5, Prinzipdarstellung s. Abbildung 3.9). Bei etwas geringerem Wärmeübertragungsflächenverbrauch kann durch eine temperaturgestufte Kühlung die Temperaturdifferenz unter die von KAUFMANN empfohlenen $\Delta T < 20$ K abgesenkt werden (s. MANTHEY [Man00]). Ein ähnliches Verfahren entwickelte FRIEDHLEM (Patent-Nr. EP 160 240 1) bei dem das heiße Rauchgas mit dem Magergas indirekt vorgekühlt und dann in zwei Temperaturstufen (mit externer Zwischenheizung) gekühlt und kondensiert wird. All diese Verfahren beruhen auf der Idee, dass durch konstantes Einhalten von $S < S_{krit}$ die Nebelbildung unterbunden wird.

Einen anderen Weg im Umgang mit der Nebelbildung in Kühler-Kondensatoren geht ein Vorschlag aus [Alt06] für das Oxyfuel-Pilotkraftwerk am Standort „Schwarze Pumpe“ der Firma Trema Verfahrenstechnik GmbH. Hier wird das mit Primärpartikeln (Feinstaub) beladene Rauchgas in einem Direktkontaktkondensator getrocknet und anschließend mittels eines Rotationsabscheiders von Aerosolen und Partikeln befreit. Durch die geeignete

¹¹Z.B. durch kinematische Koagulation. Dabei vereinigen sich zwei Tropfen, die aufgrund ihrer unterschiedlichen Tropfengeschwindigkeiten zusammenstoßen.

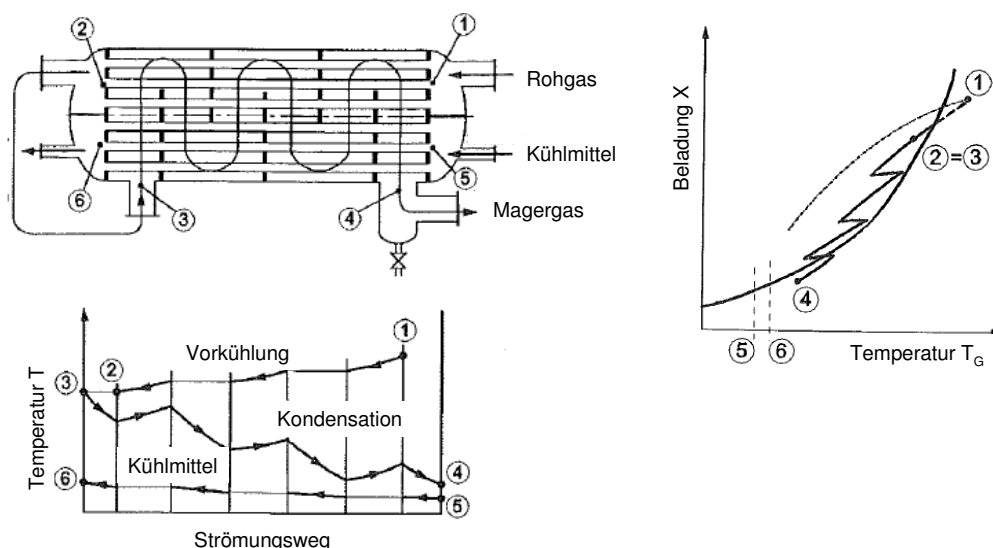


Abbildung 3.9: Verfahrensvorschlag zur Vermeidung von Nebelbildung in Oberflächenkondensatoren durch regenerative Zwischenüberhitzung nach KAUFMANN aus [Kau99]

Wahl der Waschflüssigkeit des Rotationsabscheiders sollen ebenfalls sehr hohe Abscheideraten für SO_2 und SO_3 erreicht werden um Rauchgastrocknung und Nassentschwefelung kombinieren zu können (vgl. [AJ05] und Patent-Nr. DE 10 2004 061 729 A1).

Die chemische Absorption von Gasen wie CO_2 , SO_2 und SO_3 führt zur Bildung von Säuren im Kondensat. Nach OSAKABE et al. [OYIO03] resultieren hierdurch pH-Werte im Kondensat von 3,5-6,1, wobei der pH-Wert mit steigendem Stöchiometrieverhältnis der Verbrennungsluft (Stöchiometrieverhältnis der Messungen von 1,09-1,37) stark abfällt. D.h. je höher die Gaskonzentration, desto geringer der pH-Wert des Kondensats. Dies führt insbesondere bei Oxyfuel-Rauchgasen durch den Wegfall des Stickstoffanteils und den dadurch höheren Anteil von zur Säurebildung beitragenden Gasen zu einem weiteren Abfall des pH-Werts im Kondensat. Auf den Wärmeübertragungsflächen in Oberflächenkondensatoren kommt es dann zur Korrosion, welche aber durch säurebeständige Materialien wie z.B. Inconell Alloy 622, Diabon oder Schutzschichten aus z.B. Email von 225-700 μm Dicke unterbunden werden kann. Eine weitere bzw. zusätzliche Lösung bietet das Patent mit der Nr. DE 322 206 9 von BUSCHULTE, welches auf Verdünnung und Benetzung der Wärmeübertragungsflächen durch Kondensat setzt. Die Durchströmung des Kondensators mit Rauchgas von unten nach oben und die Rezirkulierung von Kondensat über die Wärmeübertragungsflächen sollen dies garantieren.

3.2.2 Absaugtechnik

Zur Entfernung der nicht kondensierbaren Gasbestandteile wird der Kühler-Kondensator entweder im Überdruck (vgl. Umgebung) zur Entlüftung oder im Unterdruck zur Absau-

gung gefahren. Bei der Oxyfuel-Technik ist ersteres wegen der gezielten CO_2 -Abscheidung wenig sinnvoll. Im Falle von Vakuum-Dampfkondensatoren werden meist mit Dampf oder Kondensat betriebene Treibstrahlpumpen eingesetzt, da diese eine hohe Betriebssicherheit und eine Saugleistung von bis zu $2 \cdot 10^6 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ aufweisen. Wasserstrahlpumpen haben dabei den etwas höheren Wirkungsgrad, liegen aber dennoch bei vergleichsweise niedrigen, Werten von maximal 30 % [Bög00]. Daneben werden Wasserringpumpen mit Saugleistungen im Bereich von bis zu $10^4 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ und Drehkolbenpumpen mit einer Saugleistung bis zu $300 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ pro Pumpe zur Entfernung von Inertgasen verwendet.

Neben der Frage, welche Art von Pumpe für die Entfernung der Inertgase in Abhängigkeit von Saugleistung, Saugdruck und Medium gewählt werden soll, ist die Frage, an welcher Stelle im Kühler-Kondensator abgesaugt werden soll, von sehr hoher Bedeutung. Die Antwort darauf hat einen wesentlichen Einfluss auf Kondensationsleistung und Reinheit des abgesaugten Gases. Üblicherweise wird, wie in Abbildung 3.8 zeigt wird, am „kalten Ende“ des Kondensators abgesaugt, da dort die Sattedampf Temperatur am geringsten und infolge dessen der Inertgasanteil am größten ist.

Eine interessante Arbeit zu diesem Thema verfasste GRANT [Gra69]. Darin verglich er vier Absaugpositionen¹² in einem Rohrbündel-Wasserdampfkondensator bezüglich des spezifischen Wärmestroms $\dot{q} = \dot{Q}/A$ bei einem Kondensatordruck von $p_K = 0,169 \text{ bar}$ und einer Grädigkeit von $\Delta T_{Gr} = 16,6 \text{ K}$. Generell folgerte er aus den Ergebnissen, dass jegliche Ansammlungen von Inertgasen vermieden werden sollten, was durch adäquate Strömungsgeschwindigkeiten im gesamten Rohrbündel erreicht werden kann. In der Praxis setzt man hierzu Dampfassen und Leitbleche ein, die den Dampf effizient auf die einzelnen Rohrbündelteile verteilen sollen (s. Abbildung 3.8). Die Messungen zeigten jedoch einen starken Einfluss der Absaugposition auf \dot{q} . So ergab sich z.B. bei einer Inertgaskonzentration von 60 Massen-%, in der Absaugung ein \dot{q} für Pos. 4 von ca. 10 kW m^{-2} , für Pos. 3 und Pos. 2 von $45\text{-}50 \text{ kW m}^{-2}$ und für Pos. 1 von ca. 64 kW m^{-2} . Wie zu erwarten ist, sank \dot{q} mit zunehmender Inertgaskonzentration generell bei allen Absaugpositionen. Die Differenzen der Steigungen im Bereich zwischen 10 und 60 Massen-% sind allerdings immens: während bei Pos. 1 nur knapp 10 % Rückgang festzustellen ist, fällt \dot{q} bei Pos. 2 schon um 27 % und bei Pos. 4 laut GRANT sogar um 83 %.

3.3 Folgerungen für eigene Arbeit

Die in Kapitel 1.2 genannten Aufgaben und der sich daraus ergebende Forschungsbedarf können nun mit Hilfe dem in Kapitel 3.1 und 3.2 vorgestellten Wissensstand genauer spezifiziert werden.

¹²Orientierung im Rohrbündel: Pos. 1 Mitte mit verteilten Absauglöchern, Pos. 2 Mitte mit einer Absaugstelle auf Kühlwassereintrittsseite, Pos. 3 Mitte mit einer Absaugstelle auf Kühlwasseraustrittsseite und Pos. 4 seitlich an der kältesten Stelle mit einer Absaugstelle.

3.3.1 Arbeitsbereich des Oxyfuel-Kondensators

Wie in Kapitel 4.1 gezeigt werden soll, gibt es eine Vielzahl interessanter, infrage kommender Oxyfuel-Prozesse, die zum Teil sehr unterschiedliche Anforderungen an einen Oxyfuel-Kondensator stellen. Diese zu ermitteln und im Einzelnen zu quantifizieren ist eine weitere Aufgabe. Für die Umsetzung werden Kreislaufrechnungen mit ausgewählten Oxyfuel-Prozessen durchgeführt, die folgende Ziele verfolgen:

1. Analyse des Prozessverhaltens hinsichtlich des Nettowirkungsgrads in Abhängigkeit der Betriebsparameter des Kühler-Kondensators. Ziel ist es die relevanten Betriebsparameterbereiche festlegen zu können, die unter anderem für die Messungen des Wärme- und Stoffübergangs zu beachten sind.
2. Entwicklung eines Kohlendioxid-Abscheidesystems, mit dem CO_2 -Reinheiten > 90 Vol.-% (vgl. [Alt06] und [AJ05]) erreichbar sind.

Die Umsetzung der genannten Ziele mittels Kreislaufrechnungen sowie deren Ergebnisse werden in Kapitel 4 dokumentiert.

3.3.2 Validierung der Wärme- und Stoffübergangstheorien

Wie in Kapitel 3.1.1 gezeigt werden konnte, gibt es einige verifizierte Theorien zur Beschreibung des Wärme- und Stoffübergangs bei der Kondensation von Dampf in Anwesenheit nicht kondensierbarer Gase. Aus der Übersicht über Messungen zur Partialkondensation (s. Tabelle 3.3) geht hervor, dass der Inertgaskonzentrationsbereich von mehr als 51 Massen-% und die Übertragbarkeit der Theorien auf Wasserdampf-Kohlendioxid-Gemische bisher noch nicht validiert wurde. Somit lassen sich folgende Ziele definieren:

1. Durchführung von Messungen zum Wärme- und Stoffübergang im festgelegten Betriebsparameterbereich interessierender Oxyfuel-Prozesse
2. Validierung der Wärme- und Stoffübergangstheorien mit den experimentellen Ergebnissen für den genannten Betriebsparameterbereich

Eine ausführliche Beschreibung der Versuchsanlage für die Wärmestrommessungen, die Beschreibung der Datenaufbereitung und die Validierungsergebnisse finden sich in Kapitel 5.

3.3.3 Konzept für einen Oxyfuel-Kondensator

Die Abscheidung des Kohlendioxids durch die Kondensation des Rauchgaswasserdampfs bringt einige Herausforderungen mit sich: ein mit zunehmendem Inertgasanteil sich abschwächender Wärme- und Stoffübergang (s. Kapitel 3.1.1), eine die Trennungseffizienz reduzierende Nebelbildung (s. Kapitel 3.1.4), ein durch Kohlendioxidabsorption saures

Kondensat (s. Kapitel 3.1.5) und die Frage nach der idealen Absaugtechnik für ein möglichst reines Kohlendioxid aus dem Oxyfuel-Kondensator (s. Kapitel 3.2.2). Eine weitere Herausforderung wird es sein, einen möglichst hohen Prozesswirkungsgrad durch den Oxyfuel-Kondensator zu ermöglichen, d.h. seine Betriebsparameter so zu wählen, dass die Effizienz der Kondensation und des Oxyfuel-Prozesses ein bestmögliches Ergebnis liefern. Das bedeutet, es muss ein Kondensationskonzept entwickelt werden, dass:

1. die Abscheidung des Kohlendioxids mit möglichst hoher Reinheit ermöglicht,
2. einen Lösungsansatz für die Nebelproblematik bietet,
3. hohe Nettowirkungsgrade des Prozesses fördert und
4. eine Lösungsstrategie zur Minderung der Korrosionsproblematik durch saures Kondensat im Kondensator beinhaltet.

Das Konzept wird in Kapitel 6 ausführlich vorgestellt und einer kritischen experimentellen Untersuchung und Bewertung unterzogen.

Kapitel 4

Ermittlung der Kondensatorparameter

Im Unterschied zu konventionellen Dampfkondensatoren arbeiten Oxyfuel-Kondensatoren wegen des hohen Anteils an nicht kondensierbaren Gasen unter geänderten Randbedingungen. So nimmt der Kondensatordruck um den Partialdruck der nicht kondensierbaren Gase zu, der Wärme- und Stoffübergang mit zunehmendem Inertgasanteil dagegen ab [CH34]. Dies sind keine idealen Voraussetzungen für eine stofflich effiziente Trennung von Wasserdampf und Kohlendioxid bzw. für einen hohen Wirkungsgrad des Gesamtprozesses.

Ziel dieses Kapitels ist daher die Untersuchung der wesentlichen Betriebsparameter des Oxyfuel-Kondensators sowie die Ermittlung ihrer optimalen Bereiche. Mit Hilfe des Kreislaufrechenprogramms IPSEpro der Firma SimTech (Graz)¹ werden hierzu geeignete Prozesse aufgebaut und mittels Parametervariationen hinsichtlich ihrer Auswirkungen auf den Nettowirkungsgrad des Prozesses untersucht. Um den Untersuchungsaufwand bei der Kreislaufrechnung staffeln zu können wird der Kondensator im Wärmeschaltplan der Oxyfuel-Kreislaufrechnung zunächst als *Black Box* angesehen. In einem weiteren Schritt werden dann mit den berechneten Ein- und Ausgangsgrößen weitere, detailliertere Untersuchungen des Kondensatorinneren angestellt. Hieraus ergeben sich schließlich die Betriebsparameter des Kondensators, welche als Basis für die nachfolgende Recherche nach geeigneten Kondensatorkonzepten in den betrachteten Oxyfuel-Prozessen dienen.

4.1 Auswahl der Oxyfuel-Prozesse

Die verschiedenen Oxyfuel-Schaltungsvorschläge können im Wesentlichen in zwei Gruppen eingeteilt werden: in solche, die das Rauchgas oder Bestandteile daraus als Arbeitsmedium nutzen und solche, in denen dieses nach der Wärmeübertragung lediglich der Reinigung und CO_2 -Abscheidung zugeführt wird. Kraftwerksprozesse wie der **klassische Dampfkraftprozess mit anschließender CO_2 -Abscheidung und Speicherung** (engl. Carbon Capture and Storage (CCS)) gehören zur letzten Gruppe. Bei ersterer handelt es sich dagegen meist um Oxyfuel-Prozesse, die mit hohen Brennkammerdrücken arbeiten um zusätzliche mechanische Energie aus der entsprechend höheren thermischen Energie

¹IPSEpro ist ein grafisches, stationär rechnendes Kreislaufrechenprogramm, bestehend aus einzelnen Modulen, die über den sogenannten „Model Development Kit (MDK)“ beliebig erweitert, neu aufgebaut oder verändert werden können.

zu erhalten. Teilweise verwenden diese auch den Wasserdampf aus dem Rauchgas als Arbeitsmedium. Hierzu gehören:

- der **Clean Energy Systems Cycle (CES Cycle)** der Firma Clean Energy Systems, Inc. aus Rancho Cordova (CA, USA) [AMV⁺08]. Das Arbeitsmedium des Hochdruckkreises (ein Joule-Prozess) ist ein H_2O/CO_2 -Gemisch das bis zu ca. 95 Massen-% aus Wasserdampf besteht. Im Niederdruckkreis wird ein Clausius-Rankine Prozess betrieben (s. Kapitel 4.6.2).
- der **Matiant Cycle**, ein an der Universität de Liège von P. Mathieu entwickelter Oxyfuel-Prozess der sowohl ein angereichertes CO_2/H_2O -Gemisch, als auch einen Wasser-Dampf-Kreislauf beinhaltet [Mat03]. Hierzu werden eine Vielzahl an verschiedenen Kreislaufschaltungen veröffentlicht - angefangen vom E-Matiant Cycle, der einen regenerativen CO_2/O_2 -Ericsson-Kreisprozess nachbildet, über den CC-Matiant Cycle, der eine Kombination eines Joule- und Clausius-Rankine Prozesses darstellt, bis zu einem FC-Matiant Cycle, der den E-Matiant mit einer Hochtemperatur-Brennstoffzelle (engl. Solid Oxide Fuel Cell (SOFC)) verbindet.
- der **Advanced Zero Emission Power Plant (AZEP) Prozess** [YGSE03]. Der Vergleichsprozess ist wie beim CES Cycle eine Kombination aus Joule-Brayton und Clausius-Rankine Prozess. Hier wird allerdings der Sauerstoff nicht kryogen gewonnen, sondern über die sauerstoffleitende Membrane einer SOFC, welche die Wärme indirekt auf den Joule-Prozess überträgt.
- der **S-Graz Cycle** [SJM04] welcher dem CES Cycle ähnelt. Dieser führt neben überhitztem Wasserdampf zusätzlich einen Teil des Rauchgases in die Brennkammer zur Regulierung der Verbrennungstemperatur zurück, wodurch der Dampfanteil des Rauchgases nun mehr bei ca. 77 Massen-% liegt (s. Kapitel 4.6.3).

Wie eingangs erwähnt sind für die Wahl der in der Kreislaufrechnung einzusetzenden Prozesse jene interessant, die einen Oberflächenkondensator zur Abtrennung des Kohlendioxids benötigen bzw. erlauben. Derartige Prozesse kennzeichnen sich zum Einen durch ein partikelfreies oder nur sehr gering mit Partikeln beladenes Rauchgas und zum Anderen durch die Anforderung, dass Kühl- und Dampfmedium nicht vermischt werden dürfen.

Die für die Simulation interessanten Oxyfuel-Prozesse sind demnach der CES-, der CC-Matiant- und der S-Graz Cycle (s. Tabelle 4.1), wobei wegen des Aufwands und der Ähnlichkeit der Oxyfuel-Kondensatorfunktion von S-Graz Cycle und CC-Matiant-Cycle (s. Tabelle 4.1) nur der CES- und der S-Graz-Prozess simuliert werden.

4.2 Betrachtete Betriebsparameter des Kondensators

Im Unterschied zu den Betriebsparametern zur Auslegung eines Dampfkondensators sind bei einem Oxyfuel-Kondensator zusätzliche Parameter notwendig. Diese dienen der Be-

Tabelle 4.1: Aggregatzustand des eingesetzten Brennstoffs und Kondensatoraufgaben der aufgeführten Oxyfuel-Prozesse

Oxyfuel-Prozess	Aggregatzustand des Brennstoffs	Aufgabe des Oxyfuel-Kondensators neben der CO_2 -Abscheidung
Oxy-Kohle	fest	evtl. mit integrierter Entschwefelung [AJ05]
CES Cycle	gasförmig	Gewinnung Arbeitsmedium und zugleich Abhitzedampferzeuger
CC-Matiant Cycle	gasförmig	Gewinnung Arbeitsmedium
AZEP	gasförmig	-
S-Graz Cycle	gasförmig	Gewinnung Arbeitsmedium

rechnung der lokalen Gemischzusammensetzung am gaseitigen Ein- und Austritt des Kondensators. Abbildung 2.1 zeigt schematisch den Oxyfuel-Kondensator mit den ein- und austretenden Strömen und Parametern für Rauchgas, Magergas, Kühlwasser und Kondensat. Mit den entsprechenden Massenströmen, Massenanteilen, Temperaturen und Drücken lassen sich die globalen Energie- und Massenbilanzen für den Oxyfuel-Kondensator aufstellen und lösen.

Für die Berechnung des Wärmedurchgangs und der für die Übertragung der sensiblen und latenten Wärme notwendigen Fläche muss ein geeignetes Wärme- und Stoffübergangsmodell - mit den entsprechenden Geometrien des Wärmeübertragers - angewendet werden. Als Beispiel sei hier der VDI-Wärmeatlas [CG02] genannt, der für die Berechnung der einzelnen Wärmeübergänge, Druckverluste und Stoffeigenschaften entsprechende Berechnungsempfehlungen anbietet. Unter der Annahme, dass beim gaseitigen Ein- und Austritt des Kondensators ein thermodynamisches Gleichgewicht vorliegt, lassen sich die für die weitere Untersuchung essentiellen Parameter auf jene beschränken, die die Reinheit des abgeschiedenen Kohlendioxids, die Kondensatorkosten und den Wirkungsgrad des gesamten Prozesses beeinflussen (s. Tabelle 4.2).

Nicht betrachtet werden die Betriebsparameter Nebelgehalt $\xi_{N,A}$ und logarithmische Temperaturdifferenz ΔT_{log} des Oxyfuel-Kondensators. Ersterer wird vernachlässigt, da er von der lokalen Sättigung des Wasserdampf-Kohlendioxid-Gemischs abhängt, welche wiederum auf der unbekanntenen lokalen Wärme- und Stoffübertragung basiert (Stichwort: „Black Box“). Auf die logarithmisch gemittelte Temperaturdifferenz wird verzichtet, da der Ansatz

$$\dot{Q} = kA\Delta T_{Log} \quad (4.1)$$

nur bei konstanten Wandtemperaturen der Kühlrohre und Gegen- oder Gleichstromapparaten gültig ist und damit nur abschnittsweise eingesetzt werden könnte (Beweisführung s. B.1).

Tabelle 4.2: Zu untersuchende Betriebsparameter des Kondensators

Betriebsparameter	Abkürzung	Einheit
Kondensatordruck	$p_{K,E}$	[bar]
Druckverlust über dem Kondensator	Δp_K	[bar]
Grädigkeit	ΔT_{Gr}	[°C]
Kühlwassereintrittstemperatur	$\Delta T_{KW,E}$	[°C]
Dampfgehalt im gaseitigen Kondensatoraustritt	$\xi_{D,A}$	$\left[\frac{kg}{kg}\right]$

4.3 Simulations- und Modulentwicklungsumgebung

Aus den am Markt erhältlichen Programmen für eine stationäre Simulation von Kreislaufprozessen wurde, wie schon erwähnt, das Programm IPSEpro der Firma SimTech ausgewählt. IPSEpro besteht unter anderem aus einer Simulations- und einer Entwicklungsumgebung, dem PSE (Process Simulation Environment) und dem MDK (Model Development Kit). Die Simulationsumgebung hat einen Fließbildeditor, in dem Komponenten, wie z.B. Turbinen, mit anderen Komponenten verbunden und zu Kreisprozessen aufgebaut werden können. MDK stellt eine Entwicklungsumgebung dar, in der die Komponenten einer Bibliothek verändert, gelöscht oder neu erstellt werden können. Diese bietet eine hohe Flexibilität bezüglich des Detaillierungsgrades der Komponenten sowie des Einsatzgebiets generell.

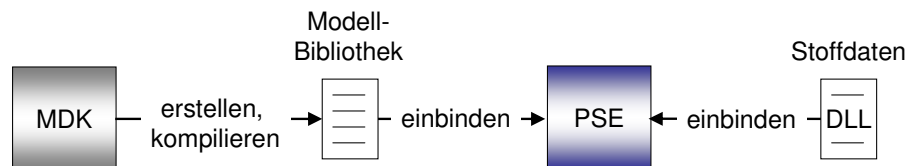


Abbildung 4.1: Aufbau von IPSEpro mit PSE und MDK

4.4 Modellierung des Kondensatormodells

Um die Auswirkungen der gewählten Betriebsparameter (s. Kapitel 4.2) eines Oxyfuel-Kondensators zu untersuchen und zu den Kondensatorkosten und dem Nettowirkungsgrad der Anlage in Bezug setzen zu können, muss das eingesetzte Berechnungsmodul zweierlei Funktionen erfüllen. Die Kondensatorparameter müssen sowohl als abhängige als auch als unabhängige Größen verwendet werden können. Hierfür wurde ein Kondensatormodell mit waagrecht liegenden Rohrbündeln erdacht, welches Rohrreihe für Rohrreihe die Abkühlung des Rauchgases sowie, die Kondensation des Rauchgaswasserdampfes berechnet.

Dies geschieht iterativ solange bis eine bestimmte Wärmeübertragerfläche (der sog. Leistungsmodus) bzw. ein bestimmter Restdampfgehalt des Rauchgases (der sog. Auslegungsmodus) erreicht ist. IPSEpro erlaubt aufgrund des simultan arbeitenden Gleichungslösers

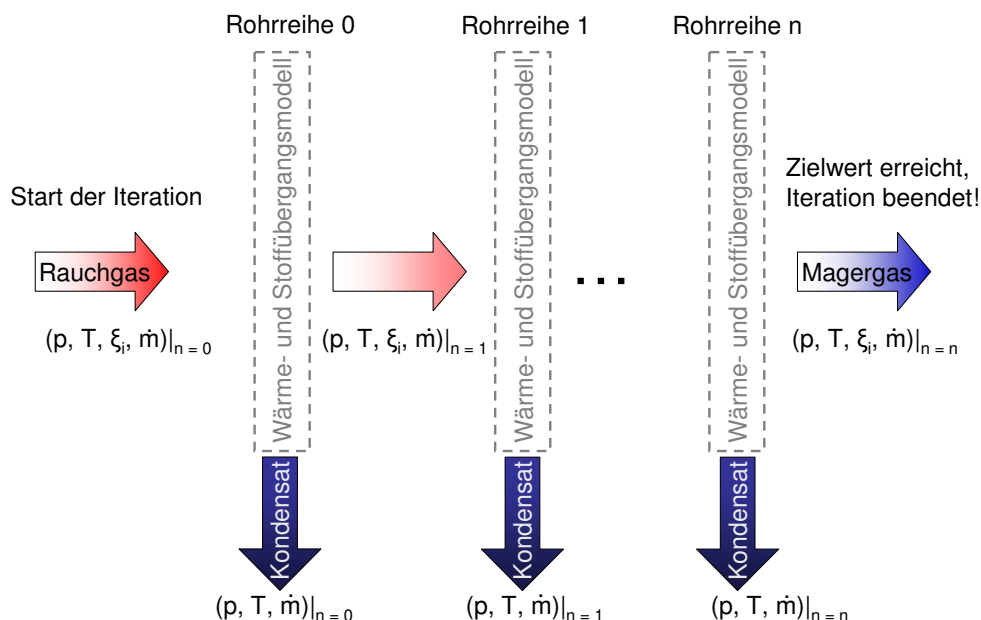


Abbildung 4.2: Berechnungsalgorithmus des Kondensatormodells

keine iterativen Berechnungen in den Einzelmodulen, weshalb obiges Berechnungsverfahren nicht in der Umgebung von IPSEpro stattfinden kann. Gelöst werden konnte dieses Problem durch eine Auslagerung der Berechnung des Kondensators in eine sogenannte Dynamic Link Library (DLL), die mit Hilfe eines C-Compilers (hier Microsoft Visual C++) erstellt wurde. Die DLL wird im Kondensatorberechnungsmodul mittels eines Funktionsaufrufes mit Parameterübergabe gestartet und gibt nach der Berechnung in der DLL die entsprechenden Werte zurück. Diese werden vom Gleichungslöser in IPSEpro wiederum zur Lösung des Gleichungssystems der Kreislaufrechnung verwendet.

In der Umgebung von IPSEpro werden im Kondensatormodell sowohl Strömungs- als auch geometrische Parameter des Kondensators festgelegt. Weiterhin gibt es darin Kondensatorparameter die, abhängig vom Betriebsmodus (Auslegungs- oder Leistungsbetrieb), mit in die Berechnung einbezogen, in beiden Fällen jedoch ebenfalls festgelegt werden müssen (s. Tabelle A.1).

Mit Hilfe des Wärme- und Stofftransportmodells der Filmtheorie (s. Kapitel 3), der vordefinierten Parameter und den Eingangsdaten für Massenstrom, Zusammensetzung, Temperatur und Druck können die Austrittsdaten für jede Rohrreihe und damit für den Kondensator insgesamt berechnet werden.

4.5 Berechnung der Stoffdaten

Die in IPSEpro berechneten, physikalischen Eigenschaften von Gasen oder Gasgemischen basieren auf Polynomen, die aus den Stoffwertetabellen von CHASE [Cha85] abgeleitet wurden. Die Gültigkeit dieser Polynome bezüglich Temperatur und Druck reicht von -30 °C bis über 5000 °C und von $0,1^{-6}\text{ bar}$ bis 35 bar . Ausnahmen bilden hier Argon (bis 20 bar) und Schwefeldioxid (bis 10 bar). Die Zustandsdaten von Wasser und Wasserdampf werden nach den Gleichungen der IFC-67 [Sch69] berechnet, wobei Mischungen von Gas und Wasser oder Wasserdampf dann nicht mehr erlaubt sind. Mit dieser Berechnungsbasis kann die Simulation von Oxyfuel-Prozessen demnach nicht umgesetzt werden.

Um die Anforderungen zur Berechnung der physikalischen Eigenschaften der Gase und Gasgemische zu erfüllen wurde ein neues Stoffdatenberechnungskonzept entwickelt. Dieses setzt sich zusammen aus einer eigens erstellten Stoffdatenbibliothek für Kohlendioxid nach SPAN [Spa93], der vorhandenen Bibliothek für Wasser und Wasserdampf nach SCHMIDT [Sch69] und nach den bereits vorhandenen Stoffdaten für die restlichen Gase (s. Tabelle A.2). Die Berechnung der Mischungseigenschaften der Gase erfolgt über das „Gesetz der Idealen Mischung“ (s. Abbildung 4.3).

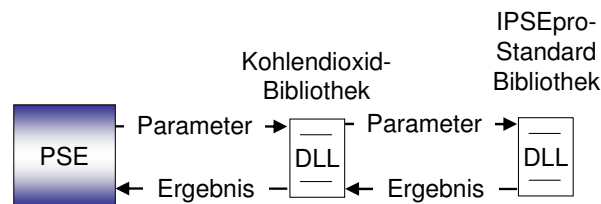


Abbildung 4.3: Neue Kommunikationsstruktur für die Berechnung der Stoffeigenschaften

Die Genauigkeit der erstellten Stoffdatenbibliothek wurde im Rahmen dieser Arbeit zusammen mit der Gleichung von LI, JI und YAN [LJY06], der PENG ROBINSON Gleichung nach PAULUS und PENONCELLO [PP06] und der LEMMON-JACOBSON Fundamentalgleichung [LJ99] anhand gemessener Mischungsenthalpien von Wasserdampf-Kohlendioxidmischungen (s. Tabelle 4.3) verglichen. Wie die Ergebnisse des Vergleichs in Tabelle 4.4

Tabelle 4.3: Übersicht der experimentellen Messungen zu H_2O/CO_2 -Gemischen

Quelle	Druck [bar]	Temperatur [°C]	Kohlendioxidanteil $\left[\frac{kg}{kg}\right]$
[PT88]	1 - 100	125 - 225	0,7 - 0,9
[WLS86]	10 - 100	175 - 640	0,71
[WLS86]	50	275 - 375	0,62 - 85
[SW84]	1	90 - 119	0,55 - 0,79

zeigen, wird dadurch eine sehr gute Übereinstimmung mit den Messdaten erreicht. Die

größten Abweichungen von der Messung zeigt die Berechnungsmethode von LI, JI und YAN, obwohl diese eigens für Gemische aus H_2O und CO_2 erstellt wurde. Mit ein Grund für die höchste Abweichung könnte jedoch die geringe Anzahl an stoffspezifischen Parametern in der Berechnung sein. Das neue Berechnungskonzept für IPSEpro beinhaltet pro Stoff etwa 50 Parameter und kann dadurch sehr viel genauer durch Regression an Messwerte angepasst werden. PAULUS und PENONCELLO modifizierten die von PENG

Tabelle 4.4: Abweichung in der Mischungsenthalpie zwischen Messung und Rechnung

Berechnungsmethode	Standardabweichung [%]	max. Abweichung [%]
Neues Konzept für IPSEpro	1,05	4,0
PAULUS, PENONCELLO	3,86	25
LI, JI und YAN	5,59	19
LEMMON und JACOBSON	1,03	4,5

und ROBINSON entwickelte Gleichung [PR76] um den Mischungsansatz von LEMMON und JACOBSON, welcher im Gegensatz zum Konzept von LI, JI und YAN nicht auf der Redlich-Kwong Zustandsgleichung [RK49] basiert. Zwar konnte dadurch die Genauigkeit der Gleichung erhöht werden, aber auch hier scheint die geringe Anzahl an stoffspezifischen Parametern eine Einschränkung darzustellen.

Das interessanteste Ergebnis der Studie lässt sich aus dem Vergleich zwischen dem neuen, hier eingesetzten Berechnungskonzept und dem Ansatz von LEMMON-JACOBSON ableiten. Beide Konzepte verwenden die Berechnungsmethode von SPAN für Kohlendioxid und die von WAGNER bzw. SCHMIDT für Wasserdampf. Darüber hinaus werden jedoch bei LEMMON und JACOBSON Mischungsenthalpien berechnet, die beim neuen Berechnungskonzept nicht zum Tragen kommen. Dennoch liegen die Abweichungen zwischen Rechnung und Messung auf einem ähnlichen Niveau.

Es konnte somit gezeigt werden, dass das hier eingesetzte Berechnungskonzept für die physikalischen Eigenschaften des Gemischs von H_2O und CO_2 eine effiziente Lösung für einen großen Parameterbereich darstellt.

4.6 Aufbau der simulierten Oxyfuel-Prozesse

In 4.1 fiel die Wahl der zu untersuchenden Oxyfuel-Prozesse auf den CES Prozess und den S-Graz Cycle, die hier neben dem Verflüssigungskonzept des Kohlendioxids in ihrer Ausführung in IPSEpro vorgestellt werden.

4.6.1 Verflüssigungskonzept

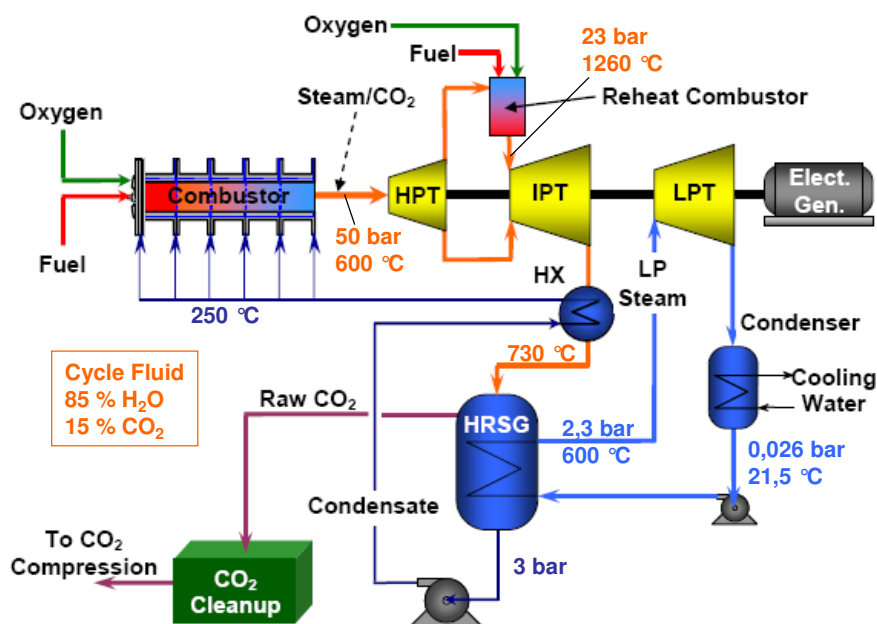
Nach MERSMANN [Mer80] werden Gase über Kondensation, Absorption, Extrahierung und Rektifizierung in ihren flüssigen Aggregatzustand überführt. Neben diesen thermischen Verfahren gibt es noch chemische und mechanische Techniken zur Gasverflüssigung. Um den energetischen Aufwand der Verflüssigung zu minimieren sind auch Kombinationen verschiedener Technologien möglich (vgl. KATHER et al. [KHK⁺06] und [KKH⁺06]). Für die Verflüssigung des Kohlendioxids sprechen nach KATHER et al. wegen ihres geringen spezifischen Energieverbrauchs vor allem die Verdichtung und kryogene Verflüssigung mit $0,11-0,16 \text{ kWhkg}^{-1}$.

Für die Kreislaufberechnungen dieser Arbeit wurde ein mechanisches Verflüssigungskonzept erdacht, das aus mehreren, gekoppelten Kondensations-Verdichter-Modulen besteht. Grund für den mehrstufigen Aufbau ist nicht nur die Verringerung des spezifischen Energieaufwands durch die Zwischenkühlung, sondern auch der Vorteil der steigenden Sättigungstemperatur des Dampfes und die damit mögliche weitere Kondensation. Mit dem Gesetz von Dalton (4.3) lässt dies leicht nachvollziehen. Als Beispiel betrage der Dampfanteil nach der ersten Stufe noch 6 Massen-%, was bei einem Kondensatordruck von 0,2 bar einer Sättigungstemperatur von 22,4 °C entspricht. Nach der Verdichtung auf z.B. 7 bar steigt diese durch die Zunahme des Partialdrucks des Wasserdampfes auf 98,1 °C, womit sich der Dampfgehalt im nächsten Kondensator ($T_{KW,E} = 20 \text{ °C}$) bei einer Grädigkeit von 15 °C auf 0,3 Massen-% reduzieren lässt.

4.6.2 CES Cycle

Der CES Cycle [AMV⁺08] ist ein Oxyfuel-Prozess in dem der Kondensator das Arbeitsmedium H_2O aus dem Rauchgas wiedergewinnt. Gleichzeitig ist der Kondensator integraler Bestandteil des Abhitzedampferzeugers, weshalb er dem eines Gas- und Dampfturbinenprozesses sehr ähnlich ist (s. Abbildung 4.4). Die Brennkammer wird bei 50-100 bar betrieben, wobei die 500-600 °C heißen Rauchgase anschließend über eine Hochdruckturbinen (HPT) auf etwa 23 bar entspannt werden. Mittels einer Zwischenerhitzung werden diese dann erhitzt, sodass sie mit 1150-1260 °C in die Mitteldruckturbine (IPT) eintreten. Nach der Entspannung der Rauchgase auf etwa 3 bar werden diese im Abhitzedampferzeuger bis auf den Taupunkt abgekühlt, anschließend wird der Wasseranteil auskondensiert. Dabei wird dem angekoppelten Wasserdampf-Kreislauf Wärme zugeführt, wobei nach [HAP⁺05] Frischdampfparameter von 1,6 bar und 356 °C erreicht werden. Der Dampf im Wasserdampf-Kreislauf wird auf Kühlwassertemperatur-abhängige 30-40 mbar entspannt und kondensiert. Das Kohlendioxid aus dem Rauchgas wird nach dem Oxyfuel-Kondensator der Verflüssigung, das Kondensat hingegen der Brennkammer zur Kühlung zugeführt, nachdem es auf 250 °C erwärmt und auf Brennkammerdruck gebracht wurde.

Die Schwankungsbreite des Nettowirkungsgrades, wie er von verschiedenen Autoren gesehen wird, ist sehr hoch. Hauptgrund hierfür sind die Annahmen für die umsetzbare


 Abbildung 4.4: CES Prozess in Anlehnung an [AMV⁺08]

Turbinentechnologie. Das Spektrum der Wirkungsgrade beginnt bei 30 % (s. [AMV⁺08]), geht über häufiger zu findende 38-45 % (s. z.B. [HAP⁺05] und [GCH06]) bis hin zu über 50 % in [MBP⁺03].

Der in der Simulation verwendete Wärmeschaltplan ist an jenen aus Abbildung 4.4 angelehnt, allerdings wurde bei der Parametrierung in einigen Punkten von [AMV⁺08] abgewichen. So musste der Brennkammerdruck wegen der Gültigkeit einiger Gas-Stoffwertetabellen auf 50 bar² statt 150 bar begrenzt werden, weiterhin wurde die Turbineneintrittstemperatur der Mitteldruckturbine wegen des sehr hohen Dampfgehalts von knapp 85 Ma.-% auf 945 °C reduziert. Beides führt zu einem reduzierten Nettowirkungsgrad des Prozesses (vgl. Beispiel mit höherer Turbineneintrittstemperatur A.3), ändert aber nichts am grundsätzlichen, qualitativen Verhalten der Kondensatorparameter.

4.6.3 S-Graz Cycle

Anders als beim CES Prozess wird der Kondensator des S-Graz Cycle [SJM⁺H04] nicht nur zur Abtrennung des Kohlendioxids bzw. zur Rückgewinnung des Arbeitsmediums H_2O gebraucht, sondern dient auch als „Kaltes Ende“ und hat dadurch eine wichtige Bedeutung für den Wirkungsgrad des Prozesses (Carnotwirkungsgrad!). Der Wärmeschaltplan des S-Graz Cycles ist, wie der des CES-Prozesses, eine Art Gas- und Dampfturbinenprozess. Wie Abbildung 4.5 zeigt, findet die Brennkammerkühlung hier allerdings über die Eindüsung von Dampf und Rauchgas statt. Die Brennkammer, die bei 40 bar betrieben

²Für die Simulation wurden die Berechnungsgrenzen der Gleichungen für die Stoffwerte von N_2 , O_2 und CH_4 von 35 auf 50 bar erweitert.

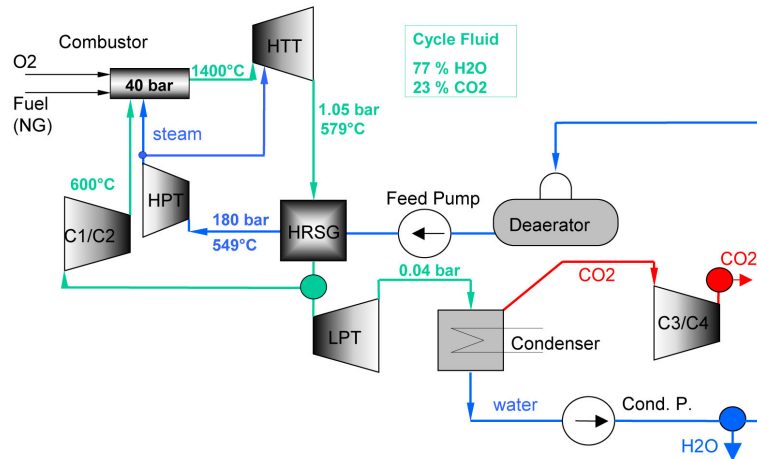


Abbildung 4.5: S-Graz Cycle aus [SJMHO4]

wird, entlässt das Rauchgas mit 1400 °C in die Hochtemperaturturbine (HTT), wo es bis auf ca. 1 bar entspannt wird. Anschließend wird es im Abhitzedampferzeuger enthitzt und in der Niederdruckturbine (LPT) wiederum auf Kondensatordruck entspannt. Dieser trennt die kondensierbaren von den nicht kondensierbaren Bestandteilen, wobei ein Teil der nicht kondensierbaren Gase der weiteren Verflüssigung zugeführt wird. Das entstehende Kondensat wird schließlich über den Abhitzedampferzeuger bei 180 bar verdampft, überhitzt und in die Brennkammer injiziert. Der nicht der Verflüssigung zugeführte Teil des Rauchgases wird, wie auch ein Teil des erzeugten Dampfes, der Brennkammer über die Verdichterstufen (C1/C2) zur Kühlung zugeführt.

Im Wärmeschaltplan der Simulationsoberfläche (s. A.4) wird der gesamte Dampfmassestrom der Brennkammer zugeführt, zudem werden die Rauchgase nicht wie in [SJMHO4] bei 0,04 bar sondern bei geringstens 0,21 bar kondensiert. Die Begründung hierzu findet sich in den Kapiteln 4.7.2 und 4.7.3.

4.7 Diskussion der Berechnungsergebnisse

Die in Kapitel 4.6.2 und 4.6.3 vorgestellten und im Kreislaufrechenprogramm IPSEpro abgebildeten Oxyfuel-Prozesse wurden hinsichtlich der in Tabelle 4.2 aufgeführten Kondensatorparameter und ihrer Auswirkungen auf Wirkungsgrad und Kondensatorverhalten untersucht. Im Folgenden werden die Rahmenbedingungen der Simulation wie auch die Ergebnisse der Kreislaufrechnungen dargestellt und diskutiert.

4.7.1 Ein- und Austrittsparameter der Simulation

Für die Vergleichbarkeit der Rechenergebnisse (Nettowirkungsgrad und Betriebsparameter des Oxyfuel-Kondensators) sind die Eintrittsbedingungen für Brennstoff, Oxidator und

Wasserdampfgehalt im gereinigten Rauchgas festzulegen (s. Tabelle 4.5). Druck und Temperatur der jeweiligen Brennkammer wurden bereits in Kapitel 4.6.3 und 4.6.2 erwähnt.

Tabelle 4.5: Konstante Ein- und Austrittsparameter der Simulation

Medium	p [bar]	T [°C]	H_2O [Ma.-%]	CO_2 [Ma.-%]	O_2 [Ma.-%]	N_2 [Ma.-%]	CH_4 [Ma.-%]
Oxidator*	1,5	15	0	0	99,0	1,0	0
Brennstoff	1,5	15	0	0	0	0	91,3**
Rauchgas S-Graz	***	***	75,0	24,2	0,4	0,4	0
Rauchgas CES	***	***	84,3	15,0	0,4	0,2	0
gereinigtes RG S-Graz	100	60	0,9	96,0	1,7	1,4	0
gereinigtes RG CES	100	60	0,9	96,6	1,0	1,4	0

* spezifischer Energieaufwand für die Bereitstellung liegt für die Berechnung des Nettowirkungsgrads bei 856,8 kJ/kg

** Rest Ethan mit 1,8 Ma.-% und Propan mit 6,9 Ma.-%

*** Je nach Parametereinstellung

Ein Vergleich der Konzentrationen aus den Oxyfuel-Prozessen in Tabelle 4.5 mit den Speichergrenzwerten für Lagerstätten von Kohlendioxid von Statoil (vgl. [AJ05]) für die Enhanced Oil Recovery (EOR) zeigt, dass die zulässigen Werte für CO_2 -Anteil $> 90,0$ Vol.-% mit umgerechnet 93 Vol.-% und 94 Vol.-%, sowie $N_2 < 4,0$ Vol.-% mit jeweils 2 Vol.-% sehr gut eingehalten werden. Nur im Falle des Sauerstoffs wird die Vorgabe von 0,01 Vol.-% mit 2 Vol.-% und 1 Vol.-% deutlich verfehlt.

Für die Einhaltung der Konzentrationsgrenzwerte für den Transport des flüssigen Kohlendioxids, wie z.B. bei der CO_2 -Pipeline Trinity (USA) (vgl. [AJ05]), müsste zusätzlicher Aufwand betrieben werden. Die Einhaltung des Anteils für Wasserdampf und Kohlendioxid von kleiner 0,06 Vol.-% und größer 95 Vol.-% kann durch eine Erhöhung des Betriebsdrucks der letzten Kondensationsstufe von 45 bar auf 70 bar erreicht werden. Damit sind weniger als 0,06 Vol.-% Wasserdampfanteil und mehr als 95 Vol.-% Kohlendioxidanteil mit beiden Prozessen erreichbar, wobei die Grädigkeit bei einer Kühlwassertemperatur von $T_{KW} = 20$ °C dann bei $\Delta T_{Gr} < 9$ °C liegt. Wie die Simulation zeigt, hat dies durch einen Umbau der Verflüssigungsstrecke einen positiven Einfluss auf den Nettowirkungsgrad des Prozesses. Dieser wird allerdings durch eine knapp 1 % größere Gesamtkondensationsfläche erkauft (s. Anhang A.2).

Folglich müssen für die nicht kondensierbaren Gasbestandteile wie Stickstoff, Sauerstoff, usw. weitere Reinigungsverfahren vorgesehen werden, um deren Anteile unter die geforderten Grenzwerte von 0,001-0,002 Vol.-% zu bringen.

4.7.2 Kondensatordruck

CARNOT beschrieb in seiner bekanntesten Arbeit „Réflexions sur la puissance motrice du feu“ einen theoretischen Prozess um die maximal freisetzbare Energie einer Dampfmaschine berechnen zu können. Der darin entwickelte Wirkungsgrad, der nach ihm benannt wurde,

$$\eta_{Carnot} = 1 - \frac{\bar{T}_A}{\bar{T}_E} \quad (4.2)$$

sagt aus: Je niedriger die mittlere Temperatur der Wärmeabfuhr \bar{T}_A aus dem Prozess, desto höher die maximal freisetzbare mechanische Arbeit oder Leistung. Bei reinem Dampf im Kondensator besteht aufgrund der Kondensation zwischen der Temperatur und dem Druck im Kondensator ein eindeutiger Zusammenhang, das thermodynamische Gleichgewicht des Dampfes. Mit dem Gesetz von Dalton gilt für den Kondensatordruck

$$p_K = \sum_{i=1}^n p_i, \quad (4.3)$$

der für den Fall reinen Wasserdampfes, also $n = 1$

$$p_K = p_D^S(T_D^S) \quad (4.4)$$

beträgt und zugleich auch den kleinsten, in Abhängigkeit von T_D^S erreichbaren, Kondensatordruck darstellt. Beim Rauchgaskondensator erhöhen die vorhandenen, nicht kondensierbaren Gase wie CO_2 , O_2 , N_2 , usw. den Kondensatordruck p_K um deren Partialdrücke (s. Gleichung (4.3)). Auch im Falle der Rauchgaskondensation stellt der $p_{D,A}^S = p_D^S(T_D^S = \bar{T}_{KW} + \Delta T_{Gr})$ ein unteres Limit für $\xi_{D,A} \rightarrow 1$ dar. Das bedeutet, dass der Restdampfgehalt eine Funktion des Kondensatordrucks, der Kühlwassertemperatur und der Grädigkeit ist. Der Formelzusammenhang kann unter nachfolgenden Annahmen aus dem Gesetz der idealen Mischung hergeleitet werden:

1. Der Dampf ist im Rauchgaskondensator jederzeit gesättigt
2. Die Gaszusammensetzung kann abschnittsweise als homogen angesehen werden
3. Das Rauchgas kann als Idealgas angesehen werden, dessen Mischungseigenschaften nach dem Gesetz der idealen Mischung beschrieben werden
4. Es findet Kondensation statt
5. Das Magergas wird von der kältesten Stelle im Kondensator abgezogen

Punkt 1 wird bei ausreichender Kühlleistung im Rauchgaskondensator, Punkt 2 dagegen durch ausreichende Turbulenz in der Rauchgasströmung erreicht. Zudem sind wie in Kapitel 4.4 gezeigt wurde, die Abweichungen für Punkt 3 kleiner als 4 %. Der funktionale Zusammenhang zwischen Kondensatordruck und Restdampfgehalt lässt sich aus den Bedingungen der kältesten Stelle im Kondensator herleiten. Nach [SM92] wird der Massenanteil eines Gases in einer Gasmischung mit

$$\xi_i = \gamma_i \frac{M_i}{\sum \gamma_j M_j} \quad (4.5)$$

berechnet. Mit Hilfe des Molanteils $\gamma_i = p_i/p$, der Molmasse $M = R_m/R$ und der Molmasse des Gemischs $R_G = \sum \xi_j R_j$ kann nach dem kleinstmöglichen $p = p_{K,min}$ aufgelöst werden, welches sich in Abhängigkeit von $p_{D,min}^S (T_D^S = T_{KW,E} + \Delta T_{Gr})$ und $\xi_{D,A}$ berechnet als:

$$p_{K,min} = \frac{p_{D,min}^S}{\xi_{D,A}} \cdot \frac{\sum \xi_j R_j}{R_D}. \quad (4.6)$$

Beschränkt man sich bei der Rauchgaszusammensetzung auf die wesentlichen Komponenten Wasserdampf und Kohlendioxid, lässt sich obige Gleichung folgendermaßen angeben

$$p_{K,min} = \frac{p_{D,min}^S}{\xi_{D,A}} \cdot \frac{\xi_{D,A} R_D + (1 - \xi_{D,A}) R_{CO_2}}{R_D}. \quad (4.7)$$

In den Grenzen läuft der Kondensatordruck für $\xi_{D,A} \rightarrow 1$ gegen den kleinsten Wasserdampfpartialdruck und für $\xi_{D,A} \rightarrow 0$ gegen ∞ . Dazwischen wird der Kondensatordruck durch die Kühlwassertemperatur, die Grädigkeit und den Restdampfgehalt bestimmt. Eine anschauliche Darstellung hierzu zeigt Abbildung 4.6. Um den für Dampfkondensatoren typischen Kondensatordruck von 40 mbar in einem Rauchgaskondensator zu erreichen, muss für eine mittlere Kühlwassertemperatur von z.B. 10 °C und eine Grädigkeit von 2 °C ein Restdampfgehalt von etwa 18 Massen-% bzw. für eine mittlere Kühlwassertemperatur von 20 °C ein Restdampfgehalt von etwa 43 Massen-% akzeptiert werden (s. Abbildung 4.6).

Um dennoch einen Wirkungsgrad-günstigen, geringen Kondensatordruck bei gleichzeitig hoher CO_2 -Reinheit fahren zu können, empfiehlt sich die Kondensation in jeweils im Betriebsdruck zunehmenden Stufen. Mit steigendem Kondensatordruck steigt entsprechend auch die Sättigungstemperatur des Dampfs an, wodurch weiterer Dampf aus dem Magergas kondensiert werden kann. Beim S-Graz Cycle bedeutet das z.B. bei 0,2 bar und einer Grädigkeit von 2 °C einen Restdampfgehalt der 1. Kondensationsstufe von ca. 6 Massen-%. In den weiteren Kondensationsstufen bei 2, 6, 10 und 45 bar wird der Dampfgehalt bis auf Werte deutlich unter 0,1 Massen-% kondensiert. Für den CES-Prozess wurde abweichend von [AMV⁺08] für die nachfolgenden Berechnungen das Druckverhältnis der ersten Turbine auf $\pi = 2,17$, der Druck der Zwischenüberhitzung auf 23 bar und die Turbineneintrittstemperatur auf 945 °C eingestellt. Gründe hierfür sind:

- Begrenzung des Drucks auf 50 bar durch die verwendete Stoffdatenbank

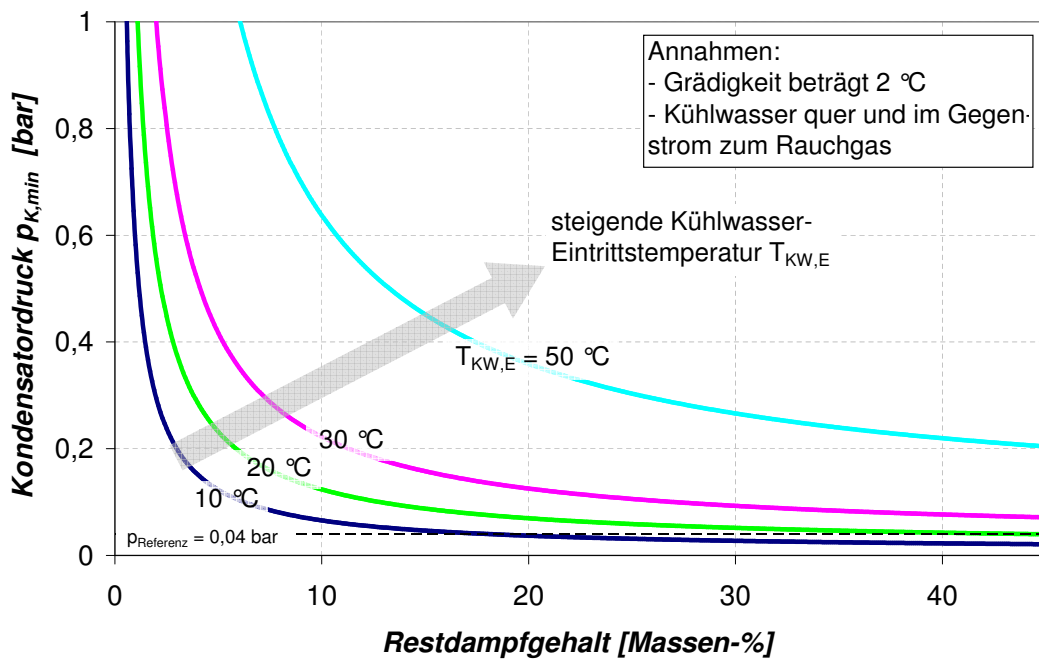


Abbildung 4.6: Kondensatordruck in Abhängigkeit von Kühlwassertemperatur und Restdampfgehalt nach (4.7)

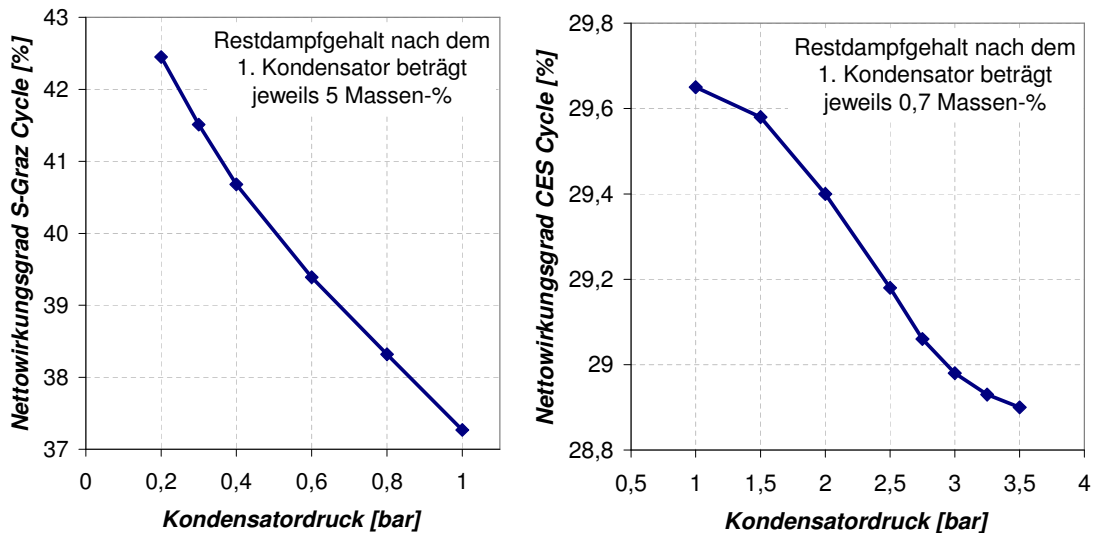


Abbildung 4.7: Berechneter Nettowirkungsgrad von S-Graz Cycle und CES Prozess über dem jeweiligen Kondensatordruck der 1. Kondensationsstufe

- Erreichbarkeit typischer Eintrittstemperaturen für die Mitteldruckturbine (IPT)
- Teilweise Kompensation des Wirkungsgradverlusts durch Anhebung des Drucks

Abbildung 4.7 zeigt den Einfluss des Kondensatordrucks auf den Nettowirkungsgrad von S-Graz Cycle und CES Prozess. Beide Prozesse zeigen eine, wenn auch unterschiedlich ausgeprägte, Sensitivität auf den Kondensatordruck der 1. Kondensationsstufe. Diese ist beim S-Graz Cycle mit 6,5 %-Punkten/bar deutlich höher als beim CES-Cycle mit 0,32 %-Punkten/bar. Grundsätzlich zeigt sich aber auch bei der Rauchgaskondensation: je geringer der Kondensatordruck, d.h. je geringer \overline{T}_A , desto größer der Nettowirkungsgrad der betrachteten Prozesse, wobei die untere Grenze des Kondensatordrucks durch die Kühlwassertemperatur sowie die Grädigkeit in Verbindung mit dem gewünschten Restdampfgehalt (4.7) beachtet werden muss. Der Einfluss des Restdampfgehalts auf den Wirkungsgrad wird im nächsten Unterpunkt diskutiert.

4.7.3 Restdampfgehalt

Der Restdampfgehalt (s. Abbildung 2.1) ist der massenbezogene Dampfgehalt $\xi_{D,A}$ im abgeschiedenen Magergas. Gelten die Annahmen aus Kapitel 4.7.2, so entspricht der Wasserdampfanteil im Magergas genau dem Wasserdampfanteil an der kältesten Stelle im Kondensator. Dieser kann durch Umstellung von (4.7) berechnet werden. Zur Vermeidung einer impliziten Gleichung empfiehlt sich hier eine Berechnung über die Molmassen und Molgewichte (s. Kapitel 4.7.2). Für eine beliebige Anzahl an Gasen lautet die Gleichung

$$\xi_{D,A} = \frac{p_{D,A}}{p_K} \cdot \frac{M_D}{\sum \gamma_j M_j}, \quad (4.8)$$

für das Stoffpaar Wasserdampf-Kohlendioxid dagegen

$$\xi_{D,A} = \frac{p_{D,A}}{p_K} \cdot \frac{M_D}{\gamma_{D,A} M_D + (1 - \gamma_{D,A}) M_{CO_2}}. \quad (4.9)$$

Nach (4.8) nimmt der Restdampfgehalt für steigende Kondensatordrücke p_K und kleine Wasserdampfpartialdrücke in der Absaugung $p_{D,A}$ ab - die Reinheit des Kohlendioxids steigt. Dieses Verhältnis verdeutlicht die Notwendigkeit einer mehrstufigen Kondensation zur Erreichung einer hohen Kohlendioxidreinheit.

Abbildungen 4.8 und 4.9 zeigen außerdem eine teilweise sehr hohe Sensitivität des Nettowirkungsgrads des Oxyfuel-Prozesses auf den Restdampfgehalt, was vor allem an der Höhe der zu leistenden Verdichterarbeit liegt. Diese hängt wiederum direkt von der Höhe des Massenstroms an angesaugtem Gemisch ab ($P_V = \dot{m}_{G,A} \Delta h$). Die Brennkammeraustrittstemperatur der ersten Brennkammer wird bei konstantem λ über den Massenstrom Wasser in die Brennkammer geregelt. Damit ist aber auch der Massenstrom im Clausius-Rankine Prozessteil festgelegt, wodurch der maximale Restdampfgehalt bei ca. 12,5 Massen-% ($p_K = 3$ bar) liegt (s. Abbildung 4.8). Dampfgehalte darüber reduzieren die aus dem Rauchgas abführbare Wärmemenge unter den Sollwert, der für die

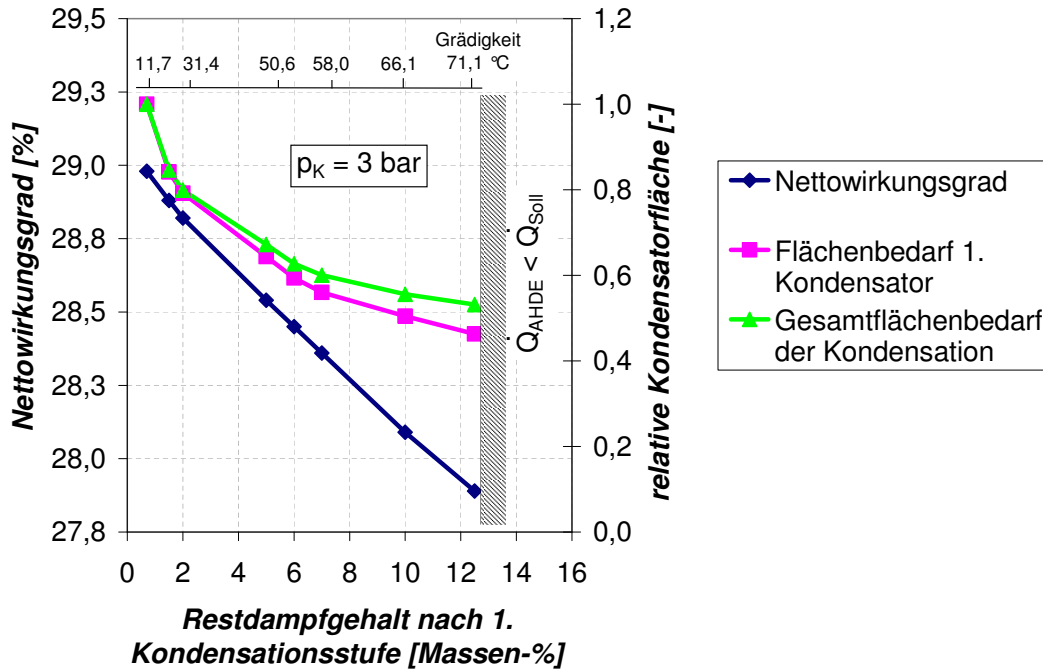


Abbildung 4.8: Nettowirkungsgrad über Restdampfgehalt - CES-Prozess

Einhaltung der Turbineneintrittstemperatur ($TIT_{LPT} = 600 \text{ °C}$ bei $\lambda = \text{konst.}$) notwendig wäre. Generell ist die Grädigkeit der 1. Kondensationsstufe der begrenzende Faktor für den Wirkungsgrad, wenn die Kühlwassereintrittstemperatur einmal festgelegt ist (s. Abbildungen 4.8 und 4.9). Für Grädigkeit und Restdampfgehalt gilt: je kleiner, desto höher der Nettowirkungsgrad des Prozesses. Diese Erkenntnisse bestätigen den eingangs aufgezeigten Zusammenhang von Carnot in (4.2). Folglich muss der Restdampfgehalt der ersten Kondensationsstufe für eine wirkungsgradoptimale Auslegung des Prozesses in der Priorisierung noch vor dem Wärmeübertragungsflächenbedarf stehen. Dieser hängt wiederum vom umgesetzten Wärme- und Stoffübergang, der zur Verfügung stehenden Übertragungsfläche und dem Kondensatordruck ab, wohingegen sich der optimale Restdampfgehalt der 1. Kondensationsstufe mit Hilfe von (4.9) und

$$p_D = p_{D,min}^S = p_D(T_D^S = T_{KW,E} + \Delta T_{Gr}) \quad (4.10)$$

berechnen lässt.

Ein interessanter Zusammenhang ergibt sich zudem zwischen dem Restdampfgehalt und dem Bedarf an Wärmeübertragungsfläche im Rauchgaskondensator bei gegebenem Kondensatordruck (s. z.B. Abbildung 4.9). Dort kann ein starker Rückgang der notwendigen Wärmeübertragungsfläche bei zunehmendem Restdampfgehalt beachtet werden. Dieser Zusammenhang, der aus der vereinfachten Beziehung $kA\Delta T = \dot{m}\Delta h$ abgeleitet werden kann, besagt, dass der Kondensations- und Kühlflächenbedarf für abnehmende Restdampfgehalte durch die zunehmende zu übertragende Wärmeleistung (linear wegen

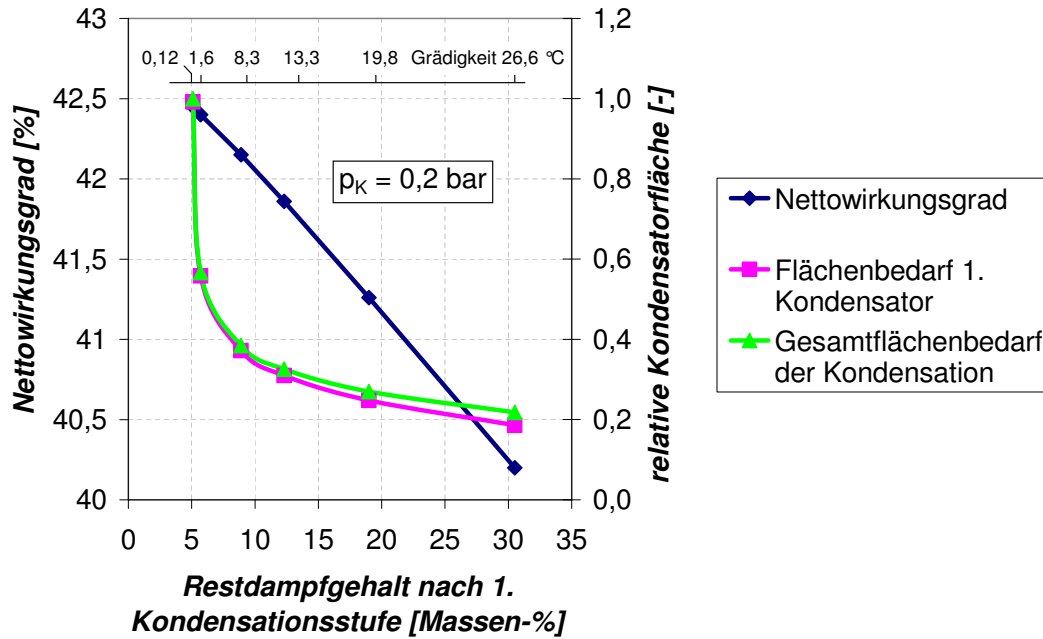


Abbildung 4.9: Nettowirkungsgrad über Restdampfgehalt - S-Graz Cycle

$A \propto \dot{m}_K \Delta h_V$) bzw. die gleichzeitig zunehmende Grädigkeit (Exponentialanteil wegen $A \propto \left(\frac{\dot{Q}_{Ges}}{\sum k_i \cdot \Delta T_{Log,i}} \right)$) ansteigt.

Aufgrund dieses Verhaltens der Wärmeübertragungsfläche bezüglich des Restdampfgehalts ist es von besonderer Bedeutung, diese möglichst exakt berechnen zu können. Die Grundlagen dafür werden mit den Messungen zum Wärme- und Stofftransport für Wasserdampf-Kohlendioxid-Gemisch in Kapitel 5 validiert.

4.7.4 Grädigkeit

Die Grädigkeit ist die kleinste, lokale Temperaturdifferenz zwischen Rauchgas $T_{G,x}$ und Kühlwasser $T_{KW,x}$

$$\Delta T_{Gr} = T_{G,x} - T_{KW,x}. \quad (4.11)$$

Sie hat wegen

$$A_{Ges} = \frac{\dot{Q}_{Ges}}{\sum k_i \frac{(T_{G,i} - T_{KW,E,i}) - (T_{G,i} - T_{KW,A,i})}{\ln \left(\frac{T_{G,i} - T_{KW,E,i}}{T_{G,i} - T_{KW,A,i}} \right)}} \quad (4.12)$$

mit $i = n$ (n ist Anzahl der Rohrreihen) einen exponentiellen Einfluss auf die Wärmeübertragungsfläche des Rauchgaskondensators und damit einen großen Hebel auf dessen Kosten. Ein gutes Beispiel dazu zeigt Abbildung 4.9, wo sich die Grädigkeit zwischen 0,12 und 26,6 °C bewegt. Üblicherweise werden für Dampfkondensatoren Grädigkeiten

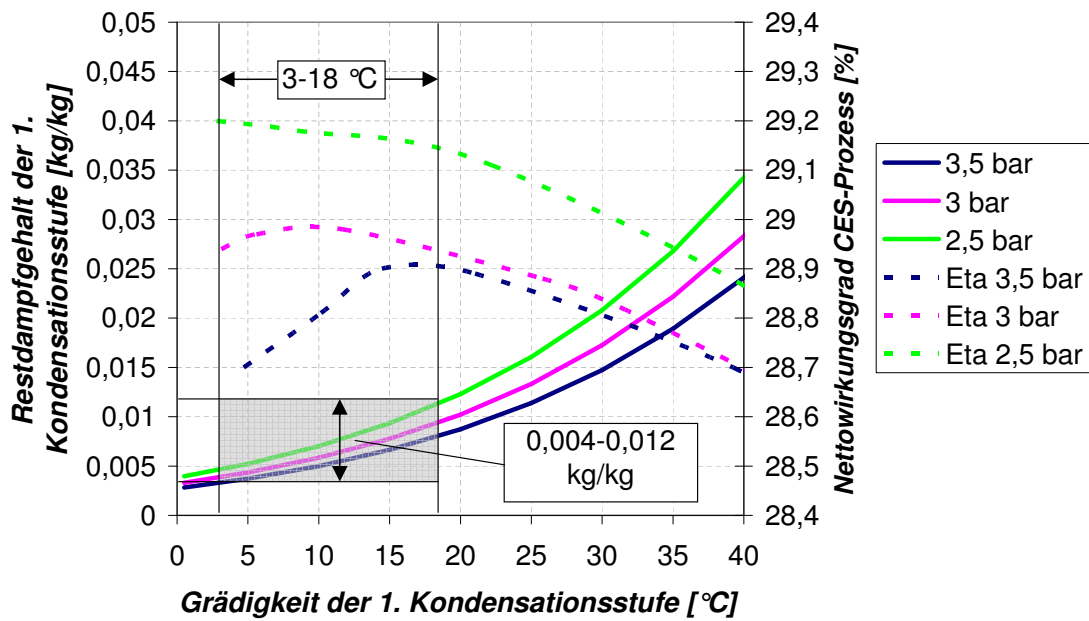


Abbildung 4.10: Berechneter Restdampfgehalt und Nettowirkungsgrad über der Grädigkeit beim CES-Prozess

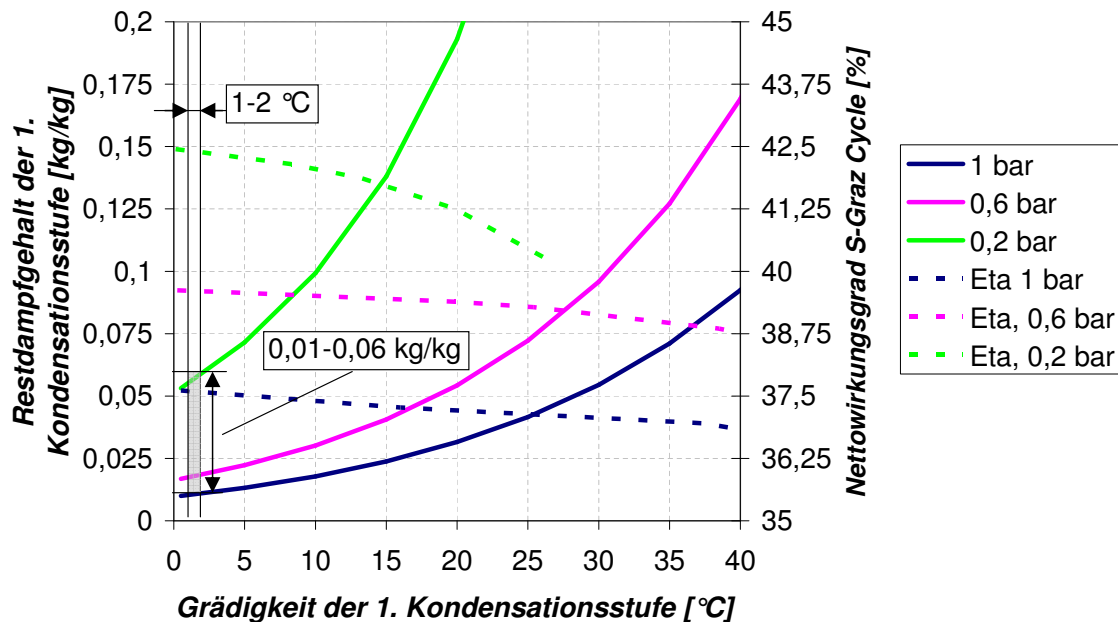


Abbildung 4.11: Berechneter Restdampfgehalt und Nettowirkungsgrad über der Grädigkeit beim S-Graz Cycle

von 1-2 °C in der Auslegung angestrebt, da damit ein guter Kompromiss zwischen Flächenbedarf und geringem Kondensatordruck erreicht wird. Gilt dies aber auch für einen Oxyfuel-Kondensator?

Wie in den vorangegangenen Berechnungsbeispielen wird auch in Abbildung 4.10 und 4.11 nur die Sensitivität des Kondensatorparameters der ersten Kondensationsstufe untersucht. Das Ergebnis der Grädigkeit ist sehr unterschiedlich: während beim CES Prozess mit Grädigkeiten von bis zu 14 °C höchste Wirkungsgrade erreicht werden, müssen diese beim S-Graz Cycle kleiner als 2,5 °C sein, dass der Prozesswirkungsgrad gegen sein Maximum konvergiert. Mit (4.8) und (4.10) lässt sich dieser Zusammenhang erklären: Daraus geht hervor, dass $\xi_{D,A} \propto \frac{\Delta T_{Gr}}{p_K}$, d.h. eine sinkende Grädigkeit reduziert den Restdampfgehalt bei gegebenem Kondensatordruck wirkungsgradförderlich.

4.7.5 Druckverlust

Druckverluste entstehen sowohl auf der Seite des Kühlmediums als auch auf der Rauchgasseite des Kondensators. Insbesondere der Druckverlust des Rauchgases $\Delta p_K = \Delta p_G$ übt einen erheblichen Einfluss auf den Nettowirkungsgrad der Oxyfuel-Prozesse aus. Er setzt sich, unter Vernachlässigung des geodätischen Druckverlusts, aus dem Reibungsdruckverlust an der Rohroberfläche und dem Impulsdruckverlust durch Dichteänderung im Rauchgas zusammen [CG02]:

$$\Delta p_K = p_{K,E} - p_{K,A} = \sum \left(\zeta_i N_R \frac{\rho_i v_i^2}{2} + (\rho v_G^2)_{i,A} - (\rho v_G^2)_{i,E} \right) \quad (4.13)$$

wobei der Index i mit $i = 1, 2, \dots, n$ für die fortlaufende Nummerierung der Rohrreihen im Kondensator steht. Um den Einfluss des Druckverlusts nach (4.13) diskutieren zu können müssen zunächst die geometrischen Randbedingungen geklärt werden. Aus dem

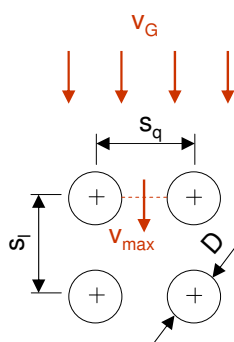


Abbildung 4.12: Geometrie eines fluchtenden Rohrbündels in Anlehnung an [CG02]

horizontalen Rohrabstand des Rohrbündels s_q (Querteilung), dem vertikalen Rohrabstand s_l (Längsteilung) und der Rauchgasgeschwindigkeit v_G werden die dimensionslosen Teilungsverhältnisse a und b sowie die Strömungsgeschwindigkeit am engsten Querschnitt

v_{max} berechnet

$$a = \frac{s_q}{D}, \quad b = \frac{s_l}{D} \quad \text{und} \quad v_{max} = \frac{a}{a-1} v_G. \quad (4.14)$$

Somit lautet die Reynoldszahl des Rauchgases an der Rohrreihe i $Re_i = v_{G,i} d_a / \nu_i$.

Diese beeinflusst wesentlich den Druckverlustbeiwert ζ_i und wird für die hier betrachtete fluchtende Rohranordnung nach

$$\zeta_i = \zeta_{l,i} f_{z,l,i} + (\zeta_{t,i} f_{z,t,i} + \zeta_{n,t,i}) \left(1 - \exp\left(\frac{-Re_i + 1000}{2000}\right) \right) \quad (4.15)$$

berechnet. Durch Messungen belegt sind in (4.15) nach [CG02] für Reynolds-Zahlen von 1 bis $3 \cdot 10^5$ und für eine Rohrreihenanzahl $N_R \geq 5$ der laminare Druckverlustbeiwert

$$\zeta_{l,i} = \frac{f_{a,l,f}}{Re_i}, \quad (4.16)$$

wobei der laminare Anordnungsfaktor

$$f_{a,l,f} = \frac{280\pi \left((b^{0,5} - 0,6)^2 + 0,75 \right)}{(4ab - \pi) a^{1,6}} \quad (4.17)$$

beträgt. Weiterhin gilt für den laminaren Korrekturfaktor

$$f_{z,l,i} = \left(\frac{\eta_W}{\eta} \right) \left(\frac{0,57}{\left(\left(\frac{4ab}{\pi} - 1 \right) Re_i \right)^{0,25}} \right) \quad (4.18)$$

und für den turbulenten Druckverlustbeiwert

$$\zeta_{t,i} = \frac{f_{a,t,f}}{Re_i^{0,1(b/a)}}. \quad (4.19)$$

Der turbulente Anordnungsfaktor folgt zudem aus

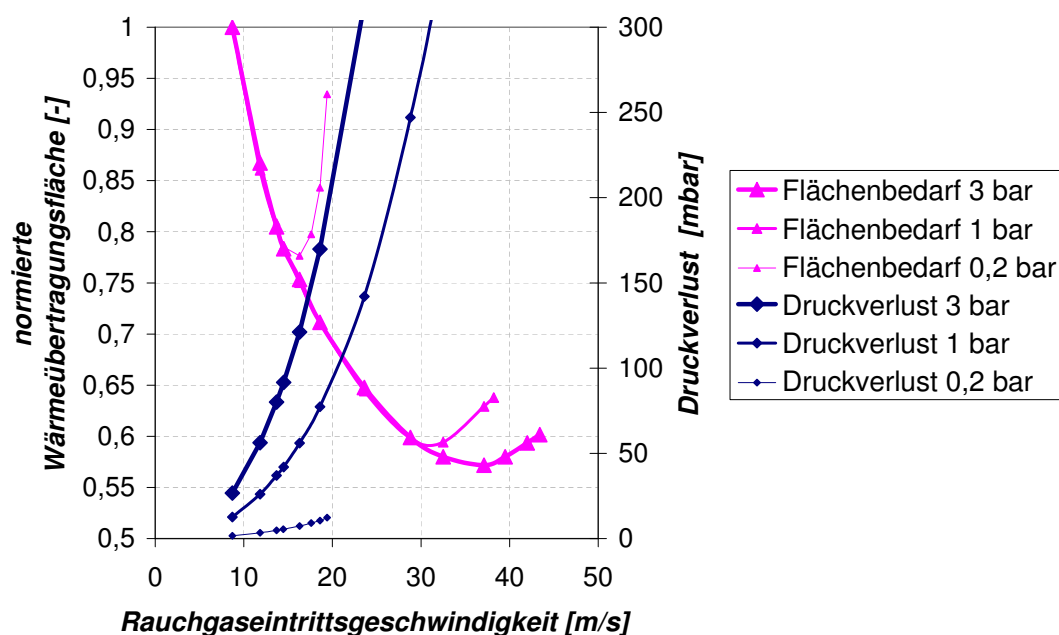
$$f_{a,t,f} = \left(0,22 + 1,2 \frac{\left(1 - \frac{0,94}{b} \right)^{0,6}}{\left(a - 0,85 \right)^{1,3}} \right) \cdot 10^{0,47(b/a-1,5)} + (0,03(a-1)(b-1)), \quad (4.20)$$

der turbulente Korrekturfaktor aus

$$f_{z,t,i} = \left(\frac{\eta_W}{\eta} \right)^{0,14}. \quad (4.21)$$

Der Druckverlustbeiwert $\zeta_{n,t,i} = \zeta_o (1/N_R - 1/10)$ mit $\zeta_o = 1/a^2$ wird in der Simulation stets = 0 gesetzt, da $N_R \geq 10$.

Weiterhin wurde der Eintrittswasserdampfgehalt $\xi_{D,E} = 0,75$ sowie die Kühlwasser-eintrittstemperatur $T_{KW,E} = 20$ °C für die Simulation des Druckverlusts in Abhängigkeit der Rauchgaseintrittsgeschwindigkeit (s. Abbildung 4.13) für alle Kondensatordrücke



Abbildungung 4.13: Berechneter normierter Flächenbedarf und Druckverlust über der Rauchgaseintrittsgeschwindigkeit beim jeweiligen Kondensatordruck

(0,2; 1; 3 bar) konstant gehalten. Der Restdampfgehalt lag in allen Berechnungsfällen bei $\xi_{D,A} = 0,05 \pm 0,01$. Die Verläufe von Druckverlust und Flächenbedarf sind wegen der zunehmenden Rauchgasgeschwindigkeit durch die durch den Druckverlust reduzierte Rauchgastemperatur begrenzt (Gesetz von Dalton!), wodurch der Zielrestdampfgehalt nicht mehr erreicht werden konnte, da die Grädigkeit vorher gegen Null laufen würde.

Interessant ist hierbei, dass durch eine Steigerung der Rauchgasgeschwindigkeit die Wärmeübertragungsfläche im Bereich von 0 bis 40 m/s zunächst abnimmt, dann jedoch wieder zunimmt. Das sich ergebende Minimum der Wärmeübertragungsfläche bezüglich der Rauchgaseintrittsgeschwindigkeit beruht auf der Abnahme des Totaldrucks und der damit einhergehenden Abnahme der Sättigungstemperatur des Rauchgases. Wie aus (4.1) ersichtlich, gibt es neben der Wärmeübertragungsfläche zwei weitere Einflüsse auf die übertragene Wärmeleistung: den Wärmedurchgangskoeffizienten k und das treibende Temperaturgefälle ΔT . Das Minimum in der Wärmeübertragungsfläche ist folglich auf ΔT zurückzuführen, da der Einfluss des abnehmenden treibenden Temperaturgefälles zwischen Rauchgas und Kühlmedium ab der Grenzgeschwindigkeit stärker wiegt als die Zunahme des Wärmedurchgangs durch die Erhöhung der Rauchgasgeschwindigkeit.

Soll nun das Minimum des Flächenbedarfs erreicht werden, müssten bei einem Kondensatordruck von 0,2 bar ca. 4 %, bei 1 bar ca. 25 % und bei 3 bar bereits rund 38 % an Druckverlust, bezogen auf den Totaldruck im Kondensator, akzeptiert werden. In Anbetracht der nicht unerheblichen Nettowirkungsgradverluste von bis zu 1,5 %-Punkten

(Bsp. CES Prozess mit 3 bar) erscheint dies jedoch schnell kontraproduktiv. Für eine kostenoptimale Auslegung der Wärmeübertragungsfläche unter Einbeziehung des Prozess-Nettowirkungsgrads ist folglich eine sehr genaue Kenntnis des Wärme- und Stoffübergangs in Abhängigkeit der Rauchgasgeschwindigkeit vonnöten. Des Weiteren spielt die Qualität der Prozesssimulation eine wichtige Rolle.

Damit die Totaldruckverluste weniger als 5 % des Kondensatorsdrucks betragen, muss die Rauchgaseintrittsgeschwindigkeit $v_{G,E}$ bei Werten kleiner 15-18 m/s gewählt werden (s. Abbildung 4.13).

4.7.6 Kühlwassereintrittstemperatur

Die Kühlwassereintrittstemperatur $T_{KW,E}$ ist die Temperatur des Kühlwassers bei Eintritt in den Rauchgaskondensator. Beim S-Graz Cycle ist diese ein freier Parameter welcher über die Rückkühlung (z.B. Nasskühlturm) eingeregelt wird. Beim CES-Prozess hat die Rückkühlung über die Unterkühlung im Niederdruckkreis hingegen nur einen indirekten Einfluss auf die Eintrittstemperatur und wird daher für diesen Prozess nicht weiter untersucht. Die Temperaturbandbreite für die Untersuchungen beim S-Graz Cycle liegt

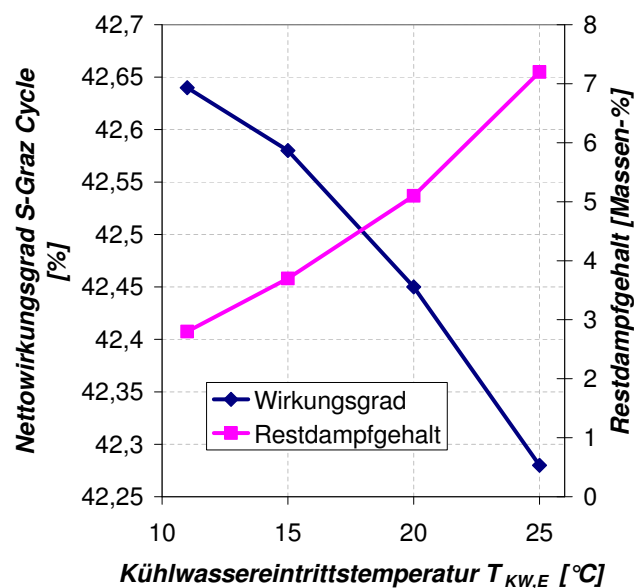


Abbildung 4.14: Nettowirkungsgrad und Restdampfgehalt über der Kühlwassereintrittstemperatur am Beispiel des S-Graz Cycle (Kühlzonenbreite ≈ 10 °C, $p_K = 0,2$ bar, $A = konst.$)

zwischen 12-25 °C, was der typischen Bandbreite bei konventionellen Rückkühlern (z.B. indirekte Flusswasserkühlung, indirekter Trockenkühlturm, indirekter und direkter Nasskühlturm, usw.) in unseren Breitengraden entspricht.

Nach (4.10) und (4.6) ist diese proportional zum Restdampfgehalt (s. Abbildung 4.6)

sowie zum kleinsten erreichbaren Kondensatordruck (s. Abbildung 4.6) und hat damit einen indirekten Einfluss auf den Nettowirkungsgrad (s. Abbildungen 4.9 und 4.11).

Bleiben Kondensatordruck und -fläche bei sinkender Kühlwassereintrittstemperatur konstant, reagiert folglich der Restdampfgehalt als verbleibende freie Variable. Das Ergebnis spiegelt Abbildung 4.14 wieder. Darin führt eine geringere $T_{KW,E}$ zu einem geringeren Restdampfgehalt und infolge dessen zu einem höheren Nettowirkungsgrad des Prozesses. Dies macht einmal mehr deutlich, wie wichtig die einzelnen, den Restdampfgehalt beeinflussenden Parameter sind.

Abgesehen davon ergibt sich hieraus auch die interessante Frage, um wie viel der Nettowirkungsgrad abfallen würde wenn die Kühlwassereintrittstemperatur aufgrund äußerer Bedingungen der Rückkühlung von 12 auf 25 °C anstiege. Die Beantwortung dieser und weiterer Fragen ermöglichen die Ergebnisse des nachfolgenden Kapitels.

4.7.7 Kennfeld- und Sensitivitätsanalyse

Das Ergebnis der Kennfeldanalyse ist ein funktionaler Zusammenhang zwischen allen interessierenden Parametern und dem entsprechenden Kennwert eines Systems. In unserem Fall ist der interessierende Kennwert der Nettowirkungsgrad, die Einflussparameter sind hingegen die Kondensatorbetriebsparameter der beiden untersuchten Oxyfuel-Prozesse. Der Vorteil der Kennfeldanalyse ist hierbei vor allem in der einfachen Anwendung und dem geringeren Aufwand im Vergleich zur Simulation zu sehen.

Die Sensitivitätsanalyse, die mit oben geschaffenem Werkzeug erstellt wird, ist zudem ein weiteres wichtiges Instrument im Entwicklungsprozess, da sie wichtige Entscheidungen über Priorisierung sowie Einsatz von Personal, Zeit und Finanzmitteln beeinflusst. Beides zusammen bildet auch in dieser Arbeit den Ausgangspunkt für die Entwicklung eines geeigneten Kondensatorkonzepts, welches die besonderen Anforderungen von Oxyfuel-Prozessen berücksichtigt.

Für die Berechnung des Kennfelds wird auf eine einfache lineare Regression zurück gegriffen, wie sie z.B. von RADE in [RW97] beschrieben wird. Grundlage hierfür sind die Ergebnisse der vorangegangenen Untersuchungen aus Kapitel 4.7.2 bis 4.7.6. Zunächst gilt es nun, die unabhängigen Parameter des Systems herauszufiltern, was entweder durch eine aufwendige teilmathematische Analyse ("Homing-in-Technik" nach SHAININ, vgl. [Noa87]) oder, wenn möglich, über die Analyse der beschreibenden Gleichungen erfolgen kann. In unserem Fall ist die zweite Alternative die bessere, da sich mit den Gleichungen (4.9) und (4.10) ein direkter funktionaler Zusammenhang zwischen Grädigkeit ΔT_{Gr} , Kühlwassereintrittstemperatur $T_{KW,E}$ und Restdampfgehalt $\xi_{D,A}$ herstellen lässt, welcher Grädigkeit und Kühlwassereintrittstemperatur als Parameter in der Regressionsanalyse überflüssig macht. Somit lässt sich der Nettowirkungsgrad folgendermaßen angeben

$$\eta = f(p_K, \Delta p_G, \xi_{D,A}), \quad (4.22)$$

wobei die Regressionsgerade in linearer Form spezifiziert wird

$$y = b_0 + b_1x_1 + b_2x_2 + b_3x_3 + u. \quad (4.23)$$

b_0 ist hierbei der Mittelwert aller dafür herangezogenen, berechneten Nettowirkungsgrade, die Koeffizienten b_1 bis b_3 beschreiben dagegen den Einfluss der gewählten Kondensatorparameter, wobei für x_1 , x_2 und $x_3 \in [-1, 1]$ gilt. Der Koeffizient u stellt den Fehler der Regression dar. Die Normierungsregel für den Übergang vom einheitenbehafteten Kondensatorparameter X nach x lautet

$$x = \frac{X - \left(\frac{X_{max} - X_{min}}{2}\right) - X_{min}}{\frac{X_{max} - X_{min}}{2}}. \quad (4.24)$$

Die Intervalle $[X_{min}; X_{max}]$ werden hierbei für jeden Oxyfuel-Prozess definiert und befinden sich in Tabelle 4.6, während Tabelle 4.7 die Ergebnisse der Regressionsanalyse für (4.23) aufzeigt. Zur Bewertung der Qualität des Regressionspolynoms wird das Bestimm-

Tabelle 4.6: Kondensatorparameterintervalle der Regressionsanalyse (Gültigkeitsbereich)

Prozess	X	X_{min}	X_{max}	Einheit
CES Prozess	p_K	1	3	[bar]
	Δp_G	0	33	[%]*
	$\xi_{D,A}$	0	10	[Ma.-%]
S-Graz Cycle	p_K	0,2	1,0	[bar]
	Δp_G	0	33	[%]*
	$\xi_{D,A}$	0	30	[Ma.-%]

* Bezogen auf p_K

heitsmaß

$$r^2 = \frac{\sum (y - \bar{y})^2}{\sum (y_i - \bar{y})^2} \quad (4.25)$$

herangezogen. Hierbei ist y_i der Wert des Nettowirkungsgrads an der Stelle x_i des Parameters X , y das Regressionspolynom durch die berechneten Punkte und \bar{y} der Mittelwert der berechneten Nettowirkungsgrade y_i . Das Bestimmtheitsmaß ist demnach ein Maß für die Qualität des berechneten Polynoms. Ist $r^2 = 1$ gilt $y = y_i$, für die Fälle $r^2 \rightarrow 0$ geht der funktionale Zusammenhang zwischen dem Nettowirkungsgrad aus der Simulation und dem Regressionspolynom gegen Null. Die Abweichung u zwischen Regressions- und Simulationsergebnis bezüglich des berechneten Nettowirkungsgrads liegt mit den in Tabelle 4.7 und 4.6 angegebenen Koeffizienten bzw. Intervallen für den S-Graz Cycle bei $u \in [-2, 6; 2, 9]$ % und für den CES Prozess bei $u \in [-1, 9; 1, 8]$ %.

Für die abschließende Analyse wird die Sensitivität eines Kondensatorbetriebsparameters folgendermaßen definiert

$$s = \frac{\Delta X}{\Delta \eta}, \quad (4.26)$$

Tabelle 4.7: Koeffizienten der Regressionsgeraden für das Nettowirkungsgradkennfeld

Koeffizient	S-Graz Cycle	CES Cycle
b_0	38,4975	28,375
b_1	-2,5525	0,2225
b_2	-0,22	-0,5425
b_3	-0,133867188	-0,5775
r^2	0,855	0,995

wobei X für einen Parameter aus Tabelle 4.2 steht. Aufgrund der eher linearen Zusammenhänge beim Nettowirkungsgrad $\eta = f(X)$ kann $s = konst.$ angenommen werden, was zudem durch die Werte von r^2 in Tabelle 4.8 relativ gut bestätigt wird. Mit Hilfe

 Tabelle 4.8: Sensitivität s bezüglich der Kondensatorparameter aus Tabelle 4.2

Prozess	X	s	Einheit	r^2	untersuchter Bereich	Einheit
S-Graz	$p_{K,E}$	-0,15	[bar/%-Pkt]	0,9887	0,2-1,0	[bar]
	Δp_G^*	-71	[mbar/%-Pkt]	0,9959	0-66	[mbar]
	ΔT_{Gr}^*	-13,2	[°C/%-Pkt]	0,9209	0,1-26,6	[°C]
	$\xi_{D,A}^*$	-11,2	[Mas.-%/%-Pkt]	0,9993	5,1-30,5	[Mas.-%]
	$T_{KW,E}^*$	-38,5	[°C/%-Pkt]	0,9709	11-25	[°C]
CES**	$p_{K,E}$	-0,33	[bar/%-Pkt]	0,9793	1,0-3,5	[bar]
	Δp_G^{***}	-2500	[mbar/%-Pkt]	0,9983	0-1000	[mbar]
	ΔT_{Gr}^{***}	-66,7	[°C/%-Pkt]	0,8896	0,6-71,2	[°C]
	$\xi_{D,A}^{***}$	-8,1	[Mas.-%/%-Pkt]	0,9977	0,4-12,5	[Mas.-%]

* bei $p_{K,E} = 0,2$ bar

** $T_{KW,E}$ ist ein bedingter Parameter, deshalb nicht untersucht

*** bei $p_{K,E} = 3$ bar

von Tabelle 4.8 kann schließlich die Frage des letzten Absatzes aus Kapitel 4.7.6 beantwortet werden. Hierfür muss jedoch zunächst der neue Kondensatordruck p_K bei einer Erhöhung der Kühlwassereintrittstemperatur von z.B. 18 auf 25 °C berechnet werden. Bei gleicher Grädigkeit und gleichem Restdampfgehalt ergibt sich mit Hilfe der Wasserdampf tabel und (4.9) eine Erhöhung des Kondensatordrucks von 0,2 auf 0,31 bar. Die Berechnung des Nettowirkungsgrads mittels der Regression ergibt für den Ausgangspunkt $\eta(0,2;0;5,5) = 41,6$ und liegt mit -2 % Abweichung zum Simulationswert innerhalb der genannten Genauigkeit der Regression. Für den neuen Kondensatordruck ergibt sich ein Nettowirkungsgrad von $\eta(0,31;0;5,5) = 40,9$, d.h. ein Verlust von 0,7 %-Punkten.

Eine weitere Frage die sich in diesem Zusammenhang stellt ist, wie sich die Nebelbildung auf den Nettowirkungsgrad auswirken würde. Nachdem KAUFMANN [Kau99] in seinen Messungen bis zu 20 Massen-% des Kondensats als Nebel vorliegen sah, würde unser Szenario den Restdampfgehalt von 5 auf 35 Massen-% erhöhen. Dies liegt außerhalb des Gültigkeitsbereiches, weshalb von einer Erhöhung auf 30 Massen-% ausgegangen wird. Als Effekt lässt sich festhalten, dass der Nettowirkungsgrad des S-Graz Cycles dadurch von $\eta(0, 2; 0; 5, 5) = 41, 6$ auf $\eta(0, 2; 0; 30) = 41, 1$, d.h. um 0,5 %-Punkte sinkt. Im Falle des CES Prozesses würde die Nebelbildung den Nettowirkungsgrad von $\eta(3; 0; 5) = 29, 2$, auch bei einem Anstieg auf nur 10 Massen-%, um über einen halben Prozentpunkt auf $\eta(3; 0; 10) = 28, 6$ senken. Zwar würde der Nebel durch seine Verdunstung wie eine interne Zwischenkühlung im Verdichter wirken, wäre aber aufgrund des zusätzlichen Massenstroms schon bei der nächsten Stufe ein Nachteil. Als Fazit bleibt somit, dass die Nebelbildung im Sinne eines optimalen Wirkungsgrads kurativ oder präventiv angegangen werden muss.

4.7.8 Kondensatorparameter

Aus den Erkenntnissen von Kapitel 3 und 4 lassen sich die für die Messungen zum Wärme- und Stoffübergang (Kapitel 5) und die Kondensationskonzeptstudie (Kapitel 6) notwendigen Kondensatorparameter sowie deren sinnvolle Bereiche zusammenfassen.

Tabelle 4.9: Kondensatorparameter und -bereiche nach Priorität geordnet

Priorität	X	Bereich	Einheit	Kapitel
1	ξ_D	0,05-0,8	[kg/kg]	4.7.3, 4.7.1
2	ξ_N	0-0,3	[kg/kg]	4.7.7, 3.1.4
3	p_K	0,2-3,5	[bar]	4.7.2
4	v_G	2-18	[m/s]	4.7.5

Die Optima bezüglich des Prozesswirkungsgrads werden bei geringen Restdampfgehalten und Kondensatordrücken, geringsten Nebelanteilen und moderaten Strömungsgeschwindigkeiten bei Kondensatoreintritt von kleiner 15-18 m/s des 1. Kondensators erreicht. Dies gilt grundsätzlich auch für die weiteren 3 oder mehr Kondensationsstufen, jedoch sollten deren Kondensatordrücke jeweils ein Kompromiss aus Verdichter- und anschließend rekuperierbarer Wärmeleistung sein.

Kapitel 5

Messungen zum Wärme- und Stoffübergang

In diesem Kapitel werden Versuchsstand, Messtechnik, Auswertungsmethodik, Messunsicherheitsanalyse und Messergebnisse der Wärmestrommessungen erläutert. Die Messungen fanden an einer in Kühler-Kondensatoren häufig verwendeten Wärmetauschergeometrie, dem waagerechten, querüberströmten Rohr, statt. Zweck der Wärmestrommessungen ist es, für Inertgasgehalte bis über 90 Massen-%, eine Validierungsbasis für den Wärme- und Stoffübergang (s. Kapitel 3.1.1) an der Zweiphasengrenzschicht bei der Kondensation von Dampf aus Dampf-Inertgas-Gemischen zu schaffen.

5.1 Anforderungen an den Versuchsaufbau

Die Messstrecke der Versuchsanlage soll ein möglichst realitätsnahes Abbild des Wärmeübertragerteilstücks eines Oxyfuel-Kondensators darstellen und dabei so flexibel einstellbar sein, dass die Bedingungen von Kondensatorein- bis -austritt abgebildet und vermessen werden können. Den Berechnungen von Kapitel 4 zufolge liegen die interessanten Parameterbereiche¹ (s. Tabelle 4.9) für

1. den Dampfgehalt ξ_D bei etwa 5-80 Massen-%,
2. den Kondensatordruck p_K bei 0,2-3,5 bar und
3. für die Strömungsgeschwindigkeit v_G bei etwa 2-18 m/s.

5.2 Wahl des Messkonzepts

Folgendes Beispiel verdeutlicht, weshalb es sich lohnt sich über die Methode einer Messaufgabe intensiv Gedanken zu machen. Es soll mit Hilfe eines Feststoffs oder einer Flüssigkeit eine Temperatur gemessen werden. Während der Feststoff sich aufgrund der Erwärmung

¹Messungen zur Nebelbildung finden sich in Kapitel 6.

in drei Raumrichtungen ausdehnt, kann die Flüssigkeit über eine Form auf eine Raumrichtung begrenzt werden. Bei gleicher Volumenänderung führt dies bei entsprechend kleiner Querschnittsfläche des Flüssigkeitsbehältnisses zu einer vielfach größeren messbaren Änderung. Verwendet man als Ausgangsbasis z.B. einen Würfel mit Kantenlänge a , ergibt sich $\Delta h_{Fluessig} = 3\Delta a_{Fest} + \frac{3}{a}\Delta a_{Fest}^2 + \frac{1}{a^2}\Delta a_{Fest}^3$, d.h. die Änderung der Flüssigkeitssäule ist mindestens dreimal und im Falle $a = \Delta a$ sogar siebenmal so groß wie Δa_{Fest} . So einleuchtend obiges Beispiel ist, so wichtig ist das Prinzip auf abstrahierter Ebene: die gesuchte Größe wird bestenfalls mit dem sensibelsten Mechanismus im physikalisch-mathematischen System gemessen.

Zur Messung der zentralen Größe im Wärme- und Stofftransportsystem, d.h. der übertragenen Wärmestromdichte \dot{q} , lassen sich vier wesentliche Messkonzepte aufstellen, die im Folgenden kurz dargestellt und verglichen werden (vgl. hierzu Abbildung 3.5):

1. Temperaturmessungen in der Gasphase und der äußeren Rohrwandoberfläche [MRD89] liefern über $\dot{q} = k\Delta T$ die übertragene Wärmestromdichte (*Gasphase-Wand-Methode*)
2. Messung von Temperatur- und Konzentrationsverlauf über der Zweiphasengrenzschicht [Chr08], die über $q_l = \dot{m}_{D,kond}\Delta h_V/A = \beta_G\rho_G \ln\left(\frac{1-\gamma_{D,F}}{1-\gamma_{D,\infty}}\right)\Delta h_V/A$ (vgl. (3.10)) und die Lewisbeziehung (3.16) ebenfalls zur übertragenen Wärmestromdichte $\dot{q} = \dot{q}_l + \dot{q}_f$ führen (*Konzentrations-Methode*)
3. Temperaturmessungen über der Rohrwand [WV06] liefern über $\dot{q} = \lambda_R/(r_a \ln(\frac{r_a}{r_i}))\Delta T$ die Wärmestromdichte (*Wand-Wand-Methode*)
4. Temperatur- und Geschwindigkeitsmessungen im Kühlmedium [LR84] liefern über $\dot{q} = \dot{Q}/A = \dot{m}c_p\Delta T/A$ die übertragene Wärmestromdichte (*Kühlwasser-Methode*)

Als Vergleichskriterium wird die Messsensitivität

$$s_M = \frac{z}{\Delta z_{min}} \quad (5.1)$$

in Abhängigkeit von \dot{q} herangezogen. Dabei ist z der Wert des wichtigsten, gemessenen Parameters und Δz_{min} die kleinste sicher erfassbare Änderung des Parameters. Im Falle der Temperaturmessung wurde $\Delta z_{min} = 1 \text{ }^\circ\text{C}$ gewählt, für die Konzentrationsmessung mittels der Ramanspektroskopie wurde Δz_{min} dagegen so gesetzt, dass die von KARL [Kar97] angegebene, kleinste Messunsicherheit für den kombinierten Wärme- und Stoffübergang von 5 % eingehalten werden konnte. Letzteres gilt laut KARL nur für den Bereich von 100-300 $\frac{\text{W}}{\text{m}^2\text{K}}$, in den übrigen Bereichen weisen die Messwerte eine Messunsicherheit von bis zu 40 % auf. Der spezifische Wärmestrom in Abbildung 5.1 ist nach der Filmtheorie (s. Kapitel 3.1.1) berechnet und gilt für den Fall der Partialkondensation an einem quer überströmten Kühlrohr mit einem Wasserdampf-Kohlendioxid-Gemisch. Die Parameter der Berechnung entstammen den Betriebsparametern eines S-Graz Cycle Oxyfuel-Kondensators mit $p_K = 0,2 \text{ bar}$, $\xi_{D,E} = 0,75$ und $\xi_{D,A} = 0,05$ (s. Kapitel 4).

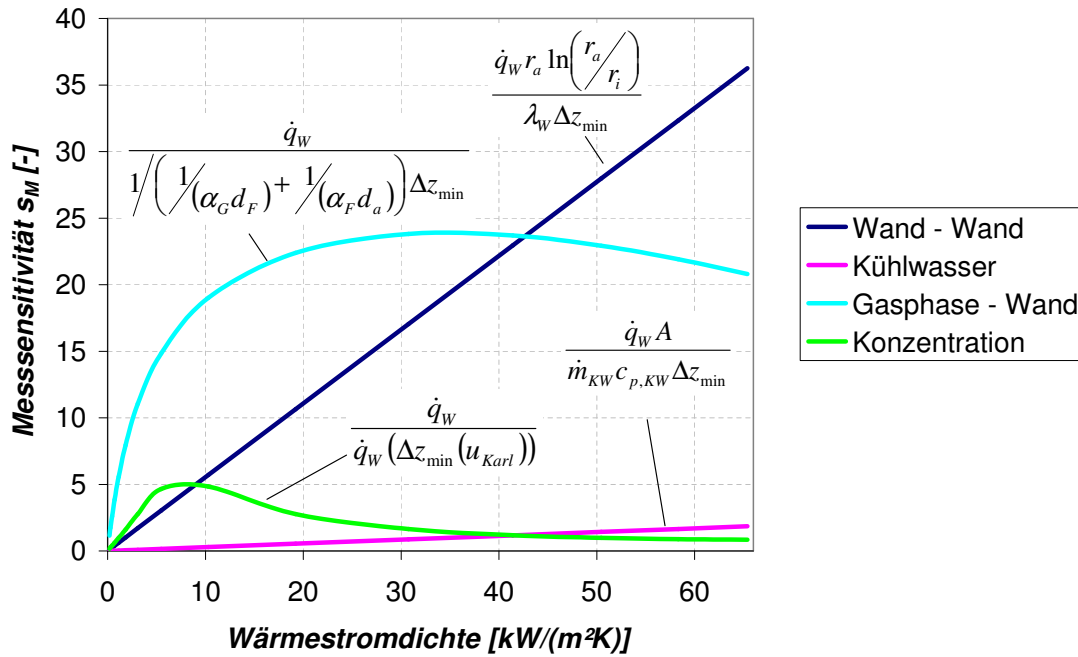


Abbildung 5.1: Messsensitivität s_M in Abhängigkeit von Wandwärmestromdichte und Messmethode (Berechnungen nach der Filmtheorie)

Die *Gasphase-Wand*-Methode erreicht überragend hohe Werte für s_M , hat aber den Nachteil, dass die darin enthaltene Temperatur der Zweiphasengrenzschicht (s. Abbildung 3.5) gemessen oder sinnvoll geschätzt werden muss. Des Weiteren sind für die Berechnung der Nusselt-Zahlen zusätzliche Zustandsdaten des Strömungs-, Druck- und Temperaturfeldes erforderlich, die in Abbildung 5.1 nicht berücksichtigt wurden. Der Charme dieser Methode ist allgemein eher theoretischer Natur, da die praktische Umsetzung gerade im Falle der erzwungenen Konvektion mit Phasenwandlung eine messtechnische Herausforderung für die Bestimmung von Wärme- und Stoffübertragung darstellt. Für die Validierung vorhandener Berechnungstheorien ist dieser Aufwand jedoch nicht zielführend.

Der besondere Reiz der Methode der *Konzentrationsmessung* liegt sowohl in der Messung der Grenzschichtprofile zur Bestimmung des Wärme- und Stoffübergangs als auch in der direkten Bestimmung des Nebelanteils und der -tröpfchengröße (vgl. [Chr08]). Mit Hilfe ramanspektroskopischer Messungen kann zudem die Filmtemperatur aus der temperaturabhängigen Form des Emissionsbands des Kondensats berechnet werden (s. [LCH79]). Laut KARL ist die Messunsicherheit des kombinierten Wärmeübergangs bei Grenzschichtdicken $\delta < 2$ mm allerdings sehr hoch. Die Grenzschichtdicken der angestrebten Messung ergeben nach der Filmtheorie (s. Abbildung 3.2) Werte von $\bar{\delta} = c_G D_{AB} / \dot{n}_{D,Kond} \ln\left(\frac{1-\gamma_{D,F}}{1-\gamma_{D,\infty}}\right)$ (vgl. [BSL07]), d.h. $\bar{\delta} = [1; 2, 2]$ mm, weshalb auch diese Methode den Aufwand nicht gerecht wird.

Mit nur einem zu messenden Parameter und einer über weite Teile sehr guten Messen-

sitivität hebt sich die *Wand-Wand-Methode* positiv von den beiden vorigen ab und wird deshalb zur Messmethode erster Wahl. Aufgrund ihres einfachen Aufbaus nicht weniger interessant, aber mit einer deutlich geringeren Messsensitivität ausgestattet, ergänzt die *Kühlwasser-Methode* als redundante Messtechnik das Messkonzept. Beide Methoden sind durch

$$\dot{Q}_{KW} = \dot{m}_{KW} c_{p,KW} \Delta T_{KW} = \dot{q}_W A = (\dot{q}_f + \dot{q}_l) A, \quad (5.2)$$

verbunden (s. Abbildung 3.5), sodass über die Gleichungen (3.8) und (3.10) ein funktionaler Bezug zu Nu_G und Sh_G hergestellt werden kann. Um die Wandwärmestromdichte als Validierungsbasis verwenden zu können müssen neben den Parametern $\Delta \bar{T}_{W,a/i}$, $\Delta \bar{T}_{KW,E/A}$ und \dot{m}_{KW} für die Beschreibung der Messbedingungen jedoch zusätzlich v_G , T_G , p_{KW} und p_G gemessen werden.

5.3 Aufbau und Funktion der Versuchsanlage

Der isolierte Druckbehälter (10) der Versuchsanlage (s. Abbildung 5.2) sowie Teile der Regel- und Steuereinheit wurden für Messungen bereits von KARL [Kar97], GOLDBRUNNER [Gol03] und CHRIST [Chr08] verwendet. Um deren Versuchsapparatur für diese Arbeit nutzen zu können, wurde ein Strömungskonzept mit interner Umwälzung ausgearbeitet, in dessen Zentrum sich das querliegende, gekühlte Rohr befindet. Basis des Strömungskonzepts ist ein mit Öffnungen versehenes Impellerrohr (13), welches am oberen Deckel des Druckbehälters koaxial befestigt ist. Darin befindet sich ein Impeller (15)², der über eine radial und axial gelagerte Welle mit einer luftbetriebenen Radialturbine (16) verbunden ist. Die dafür notwendige Antriebsluft entstammt einer Druckluftquelle (18) und wird über eine Düse eingespeist. Um den Drallanteil des so beschleunigten Gasgemischs im Impellerrohr auf ein Minimum zu reduzieren wurden ca. 5 cm hohe Leitbleche (14) parallel zur Strömungsrichtung eingebaut.

Das Gasgemisch umströmt anschließend von oben kommend die Messzone (6) und wird dort abgekühlt, wobei ein Teil des Wasserdampfs kondensiert. Der dabei anfallende latente und fühlbare Wärmestrom wird über das Kühlmedium abgeführt. Bei der nachfolgenden Umkehrung der Gasgemisch-Strömung nach oben wird diese bis zur Erreichung des thermischen Gleichgewichts wieder mit frischem Dampf aus dem Poolwasser (7) angereichert. Verantwortlich hierfür sind zwei Regelgrößen: die Gasgemischtemperatur (21) und der Druck (20) im Druckbehälter. Als Regelstrecke dafür dienen zum Einen die Poolwasserheizung (8), die als Verdampferheizung fungiert, und zum Anderen der Druckminderer, der den Gasvordruck der Inertgasspeicher (9) in Verbindung mit dem Abblasventil des Absaugrohrs (17) auf Behälterdruck entspannt.

Um ein neues Gemisch einzustellen wird die Gasgemischtemperatur über die Poolheizung entsprechend eingeregelt. Basis für die dafür notwendige Berechnung sind das Gesetz von Dalton (4.3) und das Gesetz der idealen Gasmischung. Nachfolgende Formel gilt für

²Höchsttemperatur im Dauerbetrieb laut Hersteller: 80 °C, kurzzeitig bis zu 100 °C.

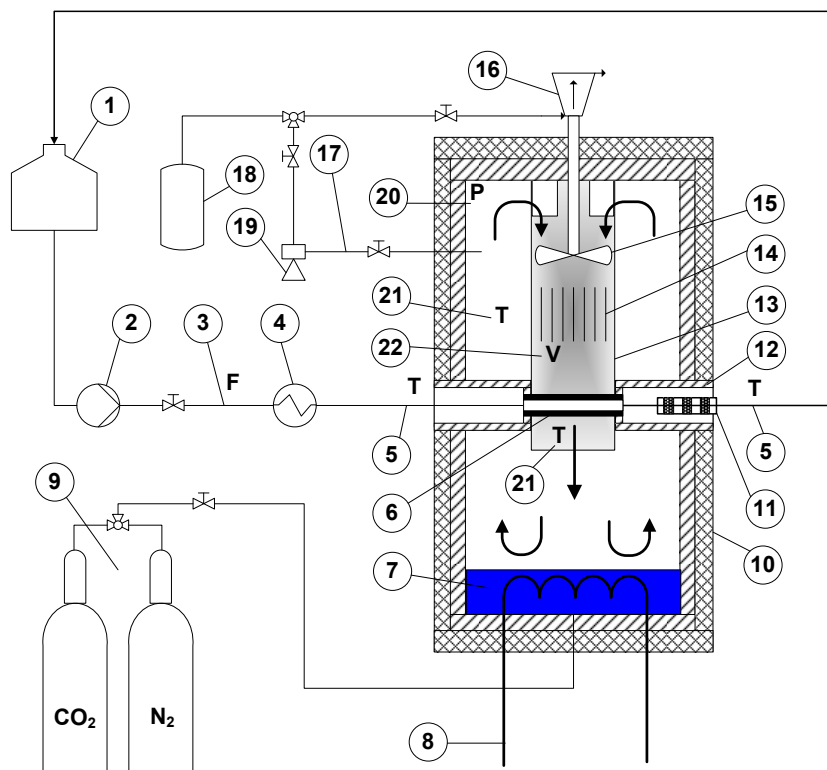


Abbildung 5.2: Prinzipieller Aufbau der Versuchsanlage zur Messung von Wärmeströmen bei der Partialkondensation von Wasserdampf-Inertgas-Gemischen, bestehend aus (1) Kühlwasserspeicher, (2) Kühlwasserpumpe, (3) Kühlwassergeschwindigkeitssensor, (4) regulierbare Kühlwasserheizung, (5) Temperatursensor, (6) Messrohr zur Wärmestrommessung, (7) deionisiertes Wasser, (8) temperaturgeregelte Poolheizung, (9) Inertgasspeicher, (10) isolierter Druckbehälter, (11) Durchmischungszone, (12) Koaxialisolationsrohr, (13) Impellerrohr, (14) Leitbleche, (15) Impeller, (16) Radialturbine, (17) Absaugrohr, (18) Druckluftquelle, (19) Gasstrahlpumpe, (20) Drucksensor, (21) Temperatursensor, (22) Geschwindigkeitssensoren

den molaren Wasserdampfanteil eines Gasgemischs aus Wasserdampf und Kohlendioxid: $\gamma_D = p_D^S / (p_D^S + p_{CO_2})$. Um den Druck im Druckbehälter (20) konstant halten zu können ist eine Neueinstellung des Inertgasdrucks notwendig. Dies geschieht bei sinkender Dampftemperatur durch eine entsprechende Erhöhung des Inertgasdrucks oder, im umgekehrten Fall, durch das Öffnen des Abblasventils im Absaugrohr (17). Die darauf folgende Gass-trahlpumpe (19) wird zur Druckregulierung bei Messungen im Unterdruck bzw. für die schnellere Fremdgasentfernung vor Beginn einer Messung eingesetzt.

Die Geschwindigkeitsmessung (22) erfolgt über ein Prandtl'sches Staurohr und ein Heißfilmanemometer. Die Prandtlsonde liefert die Druckdifferenz Δp_G zwischen Gesamtdruck und kinetischem Druck. Diese und die aus Temperatur- (21) und Druckwert (20) berechnete Dichte $\rho_G = \sum \rho_i = \rho_i / \xi_i$ (vgl. [SM92]) führen über die Druckgleichung von Bernoulli zur Strömungsgeschwindigkeit $v_G = \sqrt{2\Delta p_G / \rho_G}$ im Impellerrohr (13). Die Prandtlsonde wird über ein Schrägrohrmanometer manuell ausgelesen und liefert deshalb nur punktuelle Messwerte. Das Heißfilmanemometer ergänzt diese mit zeitaufgelösten Messwerten, womit die Konstanz der eingestellten Strömungsgeschwindigkeit kontrolliert wird.

Die vom Messrohr (6) aufgenommene Wärme wird auf den Kühlkreislauf übertragen, welcher wiederum durch die Kühlwasserpumpe (2) angetrieben wird. Die daraus resultierende Erwärmung des Kühlwasserspeichers (1) während einer Messung beträgt im Mittel 0,14 °C/h. Damit sich das Kühlwasser nur innerhalb der Messzone erwärmt, sind Zu- und Ablauf der Messzone durch koaxial positionierte Isolationsrohre (12) weitestgehend von äußeren Einflüssen entkoppelt. Der Ablauf ist zusätzlich durch eine reflektierende Wärmeisolationsschicht bis auf Höhe der Temperaturmessstelle ummantelt.

Mit Hilfe der Temperaturmessung von $T_{KW,E}$ und $T_{KW,A}$ und der Strömungsgeschwindigkeitsmessung (3) wird der auf das Kühlwasser übertragene Wärmestrom ein zweites Mal berechnet. Für eine möglichst flache, radiale Temperaturverteilung, die für eine fehlerminimale Einpunkt-Messung notwendig ist, sorgen drei Turbulenzgitter in der Durchmischungszone (11). Am Eintritt ist dies nicht notwendig, da es sich um eine voll ausgebildete turbulente Strömung ($Re > Re_K$) handelt, deren radiales Temperaturprofil ebenfalls voll ausgebildet und somit relativ flach ist.

Die Messzone (6) besteht aus einem Edelstahlrohr mit einem Außendurchmesser von $d_a = 24$ mm, einem Innendurchmesser von $d_i = 12$ mm und einer Länge von $l_R = 89$ mm und ist zwischen den beiden Koaxialisolationsrohren (s. Abbildung 5.2) radial und axial gelagert. Wegen der Korrosionsgefahr durch die Kohlensäurebildung wurde als Rohrmaterial ein X5CrNi1810 (1.4301) verwendet. In das Wärmestrommessrohr sind sechs 0,5 mm starke Mantel-Thermoelemente vom Typ K je 1,0 mm tief in die Messrohroberfläche eingelötet. Die Verteilung und Position der Thermoelemente im Messrohr ist in Abbildung 5.4 zu sehen.

5.4 Betriebsparameterbereich der Versuchsanlage

Die Versuchsanlage leistet in folgenden Betriebsparameterbereichen eine einwandfreie Funktion:

- **Druckbehälterdruck:** Der Radialwellendichtring der Impellerantriebswelle (15) wird bei hohen Drehzahlen und $p_\infty - 0,2 < p_G < p_\infty + 0,3$ messbar durchlässig, weshalb der Druckabfall gegenüber der Umgebung für eine zuverlässige Messung auf $p_G \in [p_\infty - 0,1; p_\infty + 0,1]$ bar eingeschränkt wird.
- **Gasgeschwindigkeit:** Die Obergrenze wird durch die Antriebsleistung der Radialturbine (16) vorgegeben, die Untergrenze durch die freie Konvektionsgeschwindigkeit durch Kondensation. Aufgrund dessen wurde der Betriebsbereich der Gasgeschwindigkeit auf $v_G \in [2; 10]$ m/s festgelegt.
- **Gemischzusammensetzung:** Die Zusammensetzung von Wasserdampf und Inertgas (Kohlendioxid oder Stickstoff) wird nur durch die Temperaturbelastbarkeit des faserverstärkten Kunststoff-Impellers (15) auf 100 °C beschränkt. Somit werden unter Berücksichtigung des zulässigen Druckbereichs und ohne Trockenlegung der Anlage Dampfgehalte von $\xi_D \in [0,1; 1] \frac{kg}{kg}$ möglich.

Die festgelegten Betriebsbereiche sind bei allen Parametern kleiner als die in Kapitel 5.1 gestellten Anforderungen von $p_G \in [0,2; 3,5]$ bar bzw. $v_G \in [2; 18]$ m/s und $\xi_D \in [0,05; 0,8] \frac{kg}{kg}$. Dies schränkt den Validierungsbereich generell etwas ein, nicht aber das Ziel der Validierung der Wärme- und Stoffübertragungstheorie an sich, da gerade bei Dampfgehalten von $\xi_D < 0,7$ ein Mangel an Messdaten für die Validierung herrscht (s. Tabelle 3.3). Weiterhin nimmt für viele Kühler-Kondensatorbauformen die Strömungsgeschwindigkeit aufgrund der Kondensation stetig ab, womit die wichtigen Validierungsbereiche für v_G und ξ_D zufriedenstellend abgedeckt werden.

5.5 Bestimmung der Messunsicherheit nach DIN 1319

Wärme- und Stoffübergänge lassen sich, anders als z.B. die Distanz zwischen zwei Punkten, nicht direkt messen. Es bedarf vielmehr einer physikalisch-mathematischen Modellfunktion der Form $Y = f(X_1, \dots, X_m)$, $i = 1, 2, \dots, m$ (vgl. hierzu DIN 1319-3 Kapitel 6.1.2). Die m Eingangsgrößen X_i stellen hierbei die „wahren“, direkt oder indirekt messbaren, Modellparameter dar. In der Realität sind diese jedoch aus den Daten zu schätzen, weshalb X_i durch den Schätzer x_i abgebildet wird. Da einige Messgrößen X_i , wie z.B. die Temperatur T_F , in der Modellgleichung mehrmals vorkommen oder wiederum mit anderen Größen (z.B. der Strömungsgeschwindigkeit v_G) korrelieren können, kommt es zu gegenseitigen Abhängigkeiten. Somit sind jedoch auch die x_i bzw. die Messunsicherheiten $u(x_i)$ korreliert, was wiederum die Gesamtmessunsicherheit $u(y)$ beeinflusst. Das nach

dem Mathematiker CARL FRIEDRICH GAUSS benannte *Gauß'sche Fehlerfortpflanzungsgesetz*, das zur Berechnung der Messunsicherheiten in der Literatur oftmals verwendet wird

$$u(y) = \sqrt{\left(\frac{\partial f}{\partial x_1}u(x_1)\right)^2 + \left(\frac{\partial f}{\partial x_2}u(x_2)\right)^2 + \dots + \left(\frac{\partial f}{\partial x_n}u(x_n)\right)^2}, \quad (5.3)$$

setzt allerdings Unabhängigkeit der Messgrößen und ihrer Messunsicherheiten voraus. Außerdem müssen die Messunsicherheiten $u(x_i)$ Fehler zufälliger Art sein. Beides wird bei Wärmestrommessungen jedoch nur teilweise erfüllt, weshalb es zur Beurteilung der Messunsicherheit in (5.3) einer Ergänzung bedarf, die eventuellen Querkorrelationen Rechnung trägt.

5.5.1 Grundlegende Zusammenhänge im Überblick

Zur Bestimmung der Messunsicherheit greift diese Arbeit daher auf das Konzept der DIN 1319 „Grundlagen der Messtechnik“ zurück, das mögliche Korrelationen in den Fehlern bei der Berechnung berücksichtigt. Die DIN 1319 wird seit 1942 herausgegeben und stellt die deutsche Norm zum Thema Messtechnik dar. Die aktuelle Version basiert auf einem ähnlichen Konzept wie der 1993 herausgegebene ISO/BIPM-Leitfaden „*Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement*“ (GUM), von dem es mit der DIN V ENV 13005 „*Leitfaden zur Angabe der Unsicherheit beim Messen*“ eine deutsche Vornorm gibt. Die formale Basis dieses Konzepts ist in Abbildung 5.3 dargestellt.

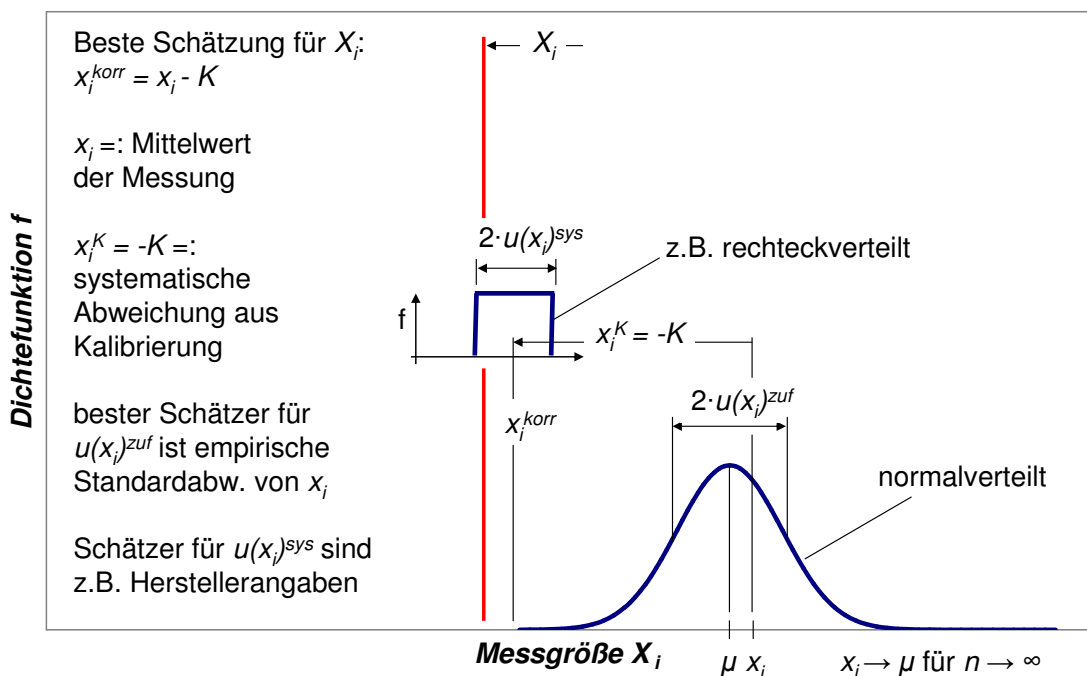


Abbildung 5.3: Zusammenhang zwischen Messwert und -abweichung nach DIN 1319-3

In Abbildung 5.3 werden zufällige und bekannte systematische Messabweichungen berücksichtigt. Zufällige Messfehler haben die Eigenschaft, dass sie mit gleicher Häufigkeit positive wie negative Abweichungen erzeugen. Systematische Messabweichungen hingegen sind in Amplitude, Vorzeichen und Zeitpunkt ihres Auftretens teilweise bekannt und immer reproduzierbar. Der verbleibende, nicht bekannte Anteil der systematischen Messabweichung kann den zufälligen Messabweichungen zugerechnet werden, setzt aber eine sorgfältige Arbeitsweise und eine sehr gute Kenntnis über die Messung voraus. Nicht berücksichtigt werden grobe Messabweichungen die z.B. durch Übertragungsfehler des Bedieners entstehen. Diese müssen, sofern sie identifizierbar sind, bezüglich der Auswertung außen vor bleiben.

5.5.2 Vorgehensweise

Die DIN 1319-3 schlägt generell vier Schritte für die Messunsicherheitsbestimmung vor. Jedoch zeigte sich in der Praxis, dass ein ganz wesentlicher, zusätzlicher Schritt vorangestellt werden sollte, womit sich folgende Abfolge festhalten lässt:

1. **Sammeln der Kenntnisse über die Messung und die Eingangsgrößen.** Diese können Ergebnisse direkter Messungen, Erfahrungswerte, Werte aus Kalibrierscheinen, Herstellerangaben oder Literaturwerte sein.
2. **Aufstellen der Modellgleichung,** die die Messgröße Y mit den Eingangsgrößen X_i in einen funktionalen Zusammenhang bringt.
3. **Vorbereitung der gegebenen Messwerte und Daten** für die Berechnung der Schätzwerte x_i und $u(x_i)$ unter Einbezug aller in 1. gesammelten Kenntnisse.
4. **Berechnen des Messergebnisses und der Messunsicherheit** mit den in 3. aufbereiteten Daten.
5. **Angabe des vollständigen Messergebnisses der Ergebnisgröße y .**

Nachfolgend werden die wichtigsten, zur Bearbeitung obiger Punkte notwendigen Basisgleichungen aufgestellt um die Schätzer des in der DIN 1319 aufgestellten Konzepts zu berechnen.

5.5.3 Abschätzung des Messwertes

Die in Kapitel 5.5.1 angesprochene symmetrische Häufigkeit der zufälligen Messabweichungen der x_i wird über eine Standardnormalverteilung $f(\mu, \sigma)$ erfasst. Der Erwartungswert μ wird hierbei aus dem arithmetischen Mittel der Grundgesamtheit der Messpunkte $v_{i,j}$ ($j \in (1, \dots, n)$) geschätzt und gilt deshalb auch als Abschätzung für die Eingangsgröße X_i

$$x_i = \bar{v}_i = \frac{1}{n} \sum_{j=1}^n v_{i,j}, \quad (5.4)$$

wobei für Anzahl der Messpunkte $n \rightarrow \infty$ gilt, dass $\bar{v}_i = \mu$. Der so geschätzte Messwert x_i ist das *unberichtigte Messergebnis* der Untersuchung.

5.5.4 Abschätzung einer Messabweichung

Die Messabweichung $u(x_i)$ einer Größe x_i setzt sich im Allgemeinen aus einem zufälligen und einem unbekanntem, systematischen Anteil zusammen (s. Abbildung 5.3). Die zufällige Messabweichung $u(x_i)^{zuf}$ wird mit der empirischen Standardabweichung s

$$u(x_i)^{zuf} = s(\bar{v}_i) = \sqrt{\frac{1}{n(n-1)} \sum_{j=1}^n (v_{i,j} - \bar{v}_i)^2} \quad (5.5)$$

berechnet. D.h., je größer die Anzahl der Messpunkte $v_{i,j}$, bzw. je größer n , desto kleiner die zufällige Messabweichung $u(x_i)^{zuf}$.

Die *systematische Messabweichung* unterteilt sich nach DIN 1319-1 in einen bekannten und einen unbekanntem Anteil. Der bekannte Anteil wird über x_i^K erfasst und, wie aus Abbildung 5.3 ersichtlich, dem Schätzer x_i zugerechnet. Er entspricht der negativen Korrektur K_i

$$x_i^K = -K_i, \quad (5.6)$$

womit die unberichtigte Größe x_i mit

$$x_i^{korr} = x_i - K \quad (5.7)$$

berichtigt wird. Sollte die systematische Messabweichung über eine Messung hinweg nicht konstant sein und in den Grenzen a und b variieren, so gilt

$$x_i^K = \frac{a+b}{2}. \quad (5.8)$$

Der tatsächlich unbekanntem Anteil wird der systematischen Messunsicherheit $u(x_i^K) = u(x_i)^{sys}$ zugeschrieben, wobei die DIN 1319 verschiedene Ansätze zur Berechnung derselben vorschlägt. Einer der gebräuchlichsten ist hierbei

$$u(x_i)^{sys} = \frac{b-a}{\sqrt{12}}, \quad (5.9)$$

der sich aus der empirischen Varianz s^2 einer Rechteckverteilung mit der Dichtefunktion $f(x) = \frac{1}{b-a}$ herleiten lässt (s. DIN 1319).

Der zufällige $u(x_i)^{zuf}$ sowie der systematische Anteil $u(x_i)^{sys}$ der Messunsicherheit der Messgröße x_i werden ungeachtet der zugrunde liegenden Verteilungen schließlich mit folgendem Ansatz zusammengefasst:

$$u(x_i) = \sqrt{(u(x_i)^{zuf})^2 + (u(x_i)^{sys})^2}, \quad (5.10)$$

d.h. die kombinierte bzw. gesamte Messunsicherheit von x_i wird jeweils von dem größeren Anteil dominiert. Im Betrag ist $u(x_i)$ jedoch immer kleiner als die Summe der beiden Messunsicherheiten.

Wie bereits erwähnt kann es zu Abhängigkeiten zwischen den Eingangsgrößen X_i ($i = 1, \dots, m$) kommen, sodass auch die Messunsicherheiten $u(x_i)$ korreliert sind. Gemeinsame Komponenten der Unsicherheiten werden daher mittels der Kovarianz

$$u(x_i, x_k) = \frac{1}{n(n-1)} \sum_{j=1}^n (v_{i,j} - \bar{v}_i)(v_{k,j} - \bar{v}_k), \quad (5.11)$$

berechnet, wobei $i \neq k$ und $i, k = 1, \dots, m$.

5.5.5 Vollständiges Messergebnis

Der Aufwand für die Berechnung des vollständigen Messergebnisses hängt wesentlich von der Korrelation der Eingangsgrößen X_i ab. Nach DIN 1319-4 gelten Eingangsgrößen als unkorreliert, wenn:

1. sie nicht gemeinsam, sondern in verschiedenen, unabhängigen Versuchen gemessen wurden
2. sie Ergebnisgrößen unterschiedlicher, früherer Auswertungen sind, die nicht gemeinsam durchgeführt wurden
3. für den Korrelationskoeffizient r gilt: $r \approx 0$
4. die Messunsicherheit der Eingangsgröße vernachlässigt werden kann
5. keinerlei Information über eine Korrelation vorliegt.

Die Berücksichtigung der Korrelation in den Eingangsgrößen kann daher sowohl zu einer Vergrößerung als auch zu einer Verkleinerung der berechneten, gesamten Messunsicherheit $u(y)$ führen. Treffen 1., 2., 4. und 5. nicht zu, muss der Korrelationskoeffizient

$$r(x_i, x_k) = \frac{u(x_i, x_k)}{u(x_i)u(x_k)} \quad (5.12)$$

zur Prüfung der Korrelation zweier Schätzer x_i und x_k berechnet werden. Die Kovarianz der Mittelwerte in (5.12) berechnet sich nach (5.11), die im Falle von mehr als zwei Messgrößen mit der Kovarianzmatrix

$$u(x_i, x_k) = \begin{pmatrix} u(x_1, x_1) & \dots & u(x_1, x_k) \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ u(x_i, x_1) & \dots & u(x_i, x_k) \end{pmatrix} \quad (5.13)$$

berechnet wird. Die Messabweichungen $u(x_i)$ und $u(x_k)$ im Nenner von (5.12) werden nach (5.5), (5.9) und (5.10) berechnet. Als Ergebnis ergibt sich der Korrelationskoeffizient $r \in [-1; 1]$ welcher im Falle perfekter Korrelation $r = \pm 1$ einen linearen Zusammenhang mit positiver respektive negativer Steigung zwischen den beiden Schätzern angibt. Ist

$r = 0$ gibt es zwischen den beiden Schätzern keine Korrelation. Für die Messabweichung von $y = f(x_1, \dots, x_m)$ folgt unter Berücksichtigung der Korrelationen der x_i

$$\begin{aligned} u(y) &= \sqrt{\sum_{i,k=1}^m \frac{\partial f}{\partial x_i} \frac{\partial f}{\partial x_k} u(x_i, x_k)} = \\ &= \sqrt{\sum_{i=1}^m \left(\frac{\partial f}{\partial x_i}\right)^2 u(x_i)^2 + 2 \sum_{i=1}^{m-1} \sum_{k=i+1}^m \frac{\partial f}{\partial x_i} \frac{\partial f}{\partial x_k} u(x_i, x_k)}, \end{aligned} \quad (5.14)$$

analog zum unkorrelierten Fall in (5.3). Ein sehr eleganter Weg zur Berechnung von (5.14) kann über die Jacobimatrix der Modellfunktion $J_f = \left(\frac{\partial f}{\partial x_1}, \dots, \frac{\partial f}{\partial x_m}\right)$ eingeschlagen werden

$$u(y)^2 = J_f u(x_i, x_k) J_f^T. \quad (5.15)$$

Wurzelziehen ergibt die gesuchte Größe $u(y) = \sqrt{u(y)^2}$, womit das vollständige Messergebnis als

$$Y = y \pm u(y) \quad (5.16)$$

angegeben werden kann. Zertifizierungs- und Prüfstellen wie die Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB) oder der Deutsche Kalibrierdienst (DKD) verwenden oftmals eine um den Faktor k erweiterte Messunsicherheit $Y = y \pm U(y)$ mit $U = ku(y)$ und $k \in [2; 3]$ bzw. eine auf dem Vertrauens- oder Konfidenzintervall beruhende Angabe von Y mit $Y = y \pm tu(y)$, wobei $t = t(n)$ die t -Verteilung (Student-Faktor) ist (s. z.B. [AVHe91]).

5.6 Bestimmung der systematischen Messunsicherheit der Messstrecke

Basis für die Bestimmung des übertragenen Wärmestroms in obigem Versuchsstand sind die Messdaten aus der in Kapitel 5.2 beschriebenen Kühlwasser- und der *Wand-Wand-Methode*. Analog zu den Ausführungen des vorherigen Abschnitts werden in diesem Teil der Arbeit die systematischen Messunsicherheiten der Messstrecke bestimmt. Die Herangehensweise sowie die Ergebnisangabe sind weitestgehend an die DIN 1319 [Ne95] und die Richtlinien des Deutschen Kalibrierdienstes [DK00] und [DK98] angelehnt.

5.6.1 Temperaturmessung

Bei den am Versuchsstand eingesetzten Temperatursensoren handelt es sich (bei (5) und (6) zusätzlich jeweils chargengleich) um Mantel-Thermoelemente vom Typ K, Klasse 1 nach DIN EN 60584-1 mit den Durchmessern 0,5 mm und 1 mm. Der Mantel besteht aus nicht rostendem NiCr15Fe (Inconel) und wird durch MgO oder Al_2O_3 von den beiden Thermodrähten (NiCr-Ni) isoliert. Die nach DIN EN 60584-2 sogenannte „maximale Grenzabweichung“ dieser Thermoelemente beträgt für den Bereich von -40 °C bis 375 °C weniger als $u(T)^{sys} = \pm 1,5$ °C.

Hinzu kommen zu dieser Grenzabweichung noch Temperaturabweichungen durch Wärmeleitung im Sensor, Temperaturabhängigkeit des Isolationswiderstands des Mantels, die Thermospannungsänderung aufgrund von Verformung sowie der Einfluss von Ausgleichsleitung und Referenzstellentemperatur. Folglich kann die Bestimmung der Gesamtgrenzabweichung bzw. des systematischen Fehlers nur mit der kompletten Messkette durchgeführt werden. Zu dieser gehören Mantelthermoelement, Ausgleichsleitung, Datenerfassungstechnik und Signalverarbeitung. Durch eine geschickte Planung kann jedoch insbesondere der Einfluss der Wärmeleitung deutlich minimiert werden. Dabei spielen Einbaulage (möglichst isotherm!) und Eintauchtiefe des Thermoelements eine bedeutende Rolle (vgl. [Kla00], [Nau07] [DK98] und Anhang B.3). Abbildung 5.4 zeigt den Einbau einiger Thermoelemente.

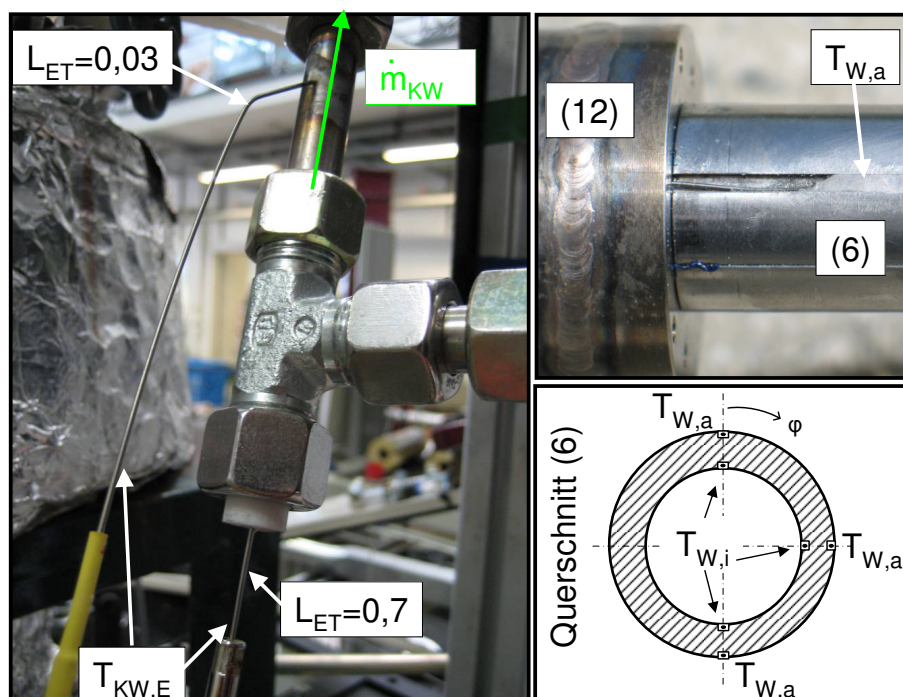


Abbildung 5.4: Einbaumethode der Thermoelemente für (5) und (6)

Da die Thermospannung eines Thermoelements vom Typ K zwischen $0\text{ }^{\circ}\text{C}$ und $100\text{ }^{\circ}\text{C}$ annähernd linear verläuft (vgl. DIN 584), ist die Fixpunktkalibrierung mit zwei Vergleichstemperaturen sowohl notwendig als auch hinreichend. Die Vergleichstemperaturen sind Eis- und Siedepunkt von Wasser, welche bei bekanntem Druck dem thermischen Gleichgewichtspunkt entsprechende Temperaturen besitzen. Mit Hilfe der Kalibrierfunktion wird der Wert der Messung x_i korrigiert. Nachfolgend (s. Tabelle 5.1) sind die Ergebnisse der Kalibrierung zusammengefasst. Diese sind Basis für die Kalibrierfunktionen zur Korrektur der Messwerte: $x_i^{korr} = x_i - K_i$ (s. (5.7)).

Die restlichen Thermoelemente mussten nach der Kalibrierung an ihrem Messort eingelötet werden, weshalb bei diesen auf die Korrektur über der bekannten, systemati-

Tabelle 5.1: Ergebnisse der Thermoelementkalibrierung (5) (70 Messpunkte)

Thermoel.	x_i [°C]	T_{Vgl} [°C]	ΔT [°C]	$u(x_i)^{zuf}$ [°C]	$-K_i$ [°C]
$T_{KW,E}$	98,031*	98,262	0,180	0,020	
$T_{KW,E}$	-0,034	0,01	0,034	0,016	+0,0014 T_M + 0,0444
$T_{KW,A}$	98,114*	98,262	0,148	0,031	
$T_{KW,A}$	0,007	0,01	-0,007	0,011	+0,0015 T_M + 0,0026

* Einfluss der Wärmeleitung im Thermoelement: $\Delta T = 0,255$ °C

schen Messunsicherheit durch Kalibrierfunktionen verzichtet wird. Alternativ werden die Messdaten eines Anfahrvorganges nach einem 48-stündigen Stillstand der Anlage für einen Vergleich herangezogen um folgende Annahmen treffen zu können: $K_i = 0$ und $u(x_i)^{sys} = (a + b)/2$, wobei a und b aus dem Vergleich heraus festzulegende Grenzen sind. Da die Messwerte von (5) (deren Kalibrierfunktionen ja bekannt sind) darin einbezogen waren, kann aus deren korrigiertem Messwert $T_{KW,E/A}^{kor} = T_{Vgl} = 18,849$ °C ($u(T_{KW,E/A})^{zuf} = 0,010$ °C), dem Mittelwert aller anderen 100 Messwerte von (6), (8) und (21) und den entsprechenden Messunsicherheiten sowohl relativ als auch absolut eine gesicherte Annahme gebildet werden (s. Tabelle 5.2).

Tabelle 5.2: Vergleich der Temperaturmesswerte der Thermoelemente (6), (8) und (21) mit den korrigierten Messwerten der Kühlwasserthermoelemente (5) (je 10 Messpunkte)

Messort	$u(x_i)^{zuf}$ [°C]	x_i [°C]	$\Delta T = T_{Vgl} - x_i$ [°C]
Messrohr (6)	0,007	18,836	-0,013
Gasatmosphäre (21)	0,011	18,875	0,026
Poolheizung (8)	0,015	18,850	-0,001

Aus den Daten von Tabelle 5.1 und 5.2 wird folgende Annahme abgeleitet: $u(x_i)^{sys} \leq \frac{a+b}{2} = 0,2$ °C (Rechteckverteilung). Die Erweiterung der Gültigkeit dieser Annahme bis in die Grenzen des Messbereichs nachfolgender Messungen wird in Kapitel 5.7.3 bestätigt.

5.6.2 Massenstrommessung

Basis für die Berechnung des Kühlwassermassenstroms ist folgende Gleichung:

$$\dot{m}_{KW} = \rho_{KW} v_{KW} A = \rho_{KW} \dot{V}_{KW}. \quad (5.17)$$

Die Strömungsgeschwindigkeit v_{KW} wird über einen Flügelradsensor gemessen, dessen Drehfrequenz ist proportional zum Volumenstrom $\dot{V}_{KW} = v_{KW} A$. Dieser lässt sich sehr genau über die Wägung $\dot{V}_{KW} = \frac{\Delta m_{KW}}{\Delta t \cdot \rho_{KW}}$ kalibrieren. Unter der Voraussetzung, dass ρ_{KW}

konstant ist, kann dieser Ansatz mit ρ_{KW} erweitert werden um $\dot{m}_{KW} = \frac{\Delta m_{KW}}{\Delta t}$ zu erhalten. Diese Größe kann dann direkt für die entsprechende Kühlwasserdichte kalibriert werden (s. Abbildung 5.5).

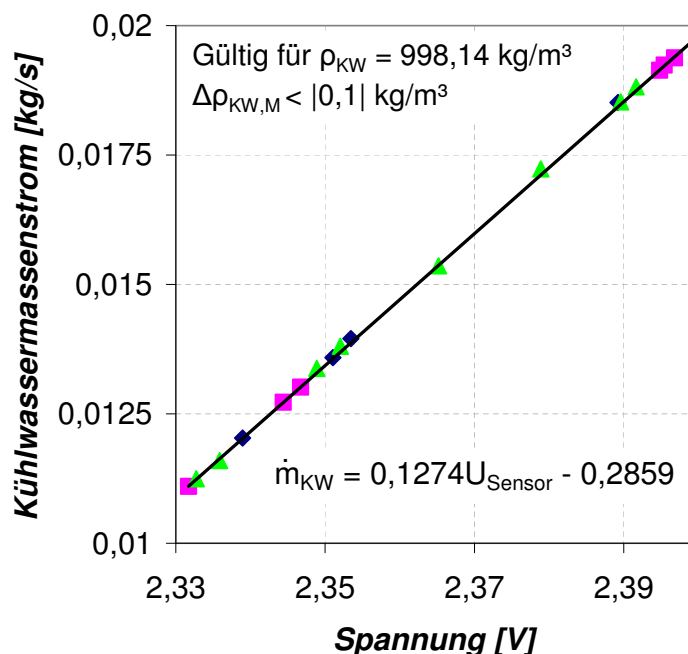


Abbildung 5.5: Kalibrierfunktion des Flügelradsensors

Die Kühlwasserdichte ρ_{KW} wird mit Hilfe der Temperatur- und Druckmessung (Berechnung über Wasserdampf tabel) des Kühlwassers bestimmt und kontrolliert. Die Temperaturmessung entspricht $T_{KW,E}$, die Druckmessung ist hingegen eine Funktion in Abhängigkeit von v_{KW} und p_{∞} . Da die Kühlwasserleitung ca. 800 mm nach der Messzone entlüftet wird, kann p_{KW} aus dem Druckverlust zwischen Flügelradsensor (3) und Entlüftung, Δp_{KW} und p_{∞} , bestimmt werden: $p_{KW} = \Delta p_{KW} + p_{\infty}$. Da sich die Dichte des Kühlwassers bei konstanter Temperatur $T_{KW,E}$ selbst bei Druckänderungen von 150 mbar um weniger als $|0,008| \text{ kg/m}^3$ verändert - im Ergebnis entspricht dies einer Änderung von $\dot{m}_{KW} = |1,5 \cdot 10^{-7}| \text{ kg/s}$ - ist diese Vorgehensweise ausreichend genau.

Die zufällig Messabweichung $u(x_i)^{zuf}$ des Kühlwassermassenstroms $Y = \dot{m}_{KW}$ aus der ermittelten Kalibriergeraden $\dot{m}_{KW} = 0,1274 \cdot U_{Sensor} - 0,2859$ (s. Abbildung 5.5) beträgt über alle $x_i(\dot{m}_{KW})$ (12600 Messwerte) maximal $u(\dot{m}_{KW})^{zuf} = 0,00019 \frac{\text{kg}}{\text{s}}$.

5.6.3 Messung der Gasgeschwindigkeit

Die Strömungsgeschwindigkeit v_G (22) vor dem Messrohr im Impellerrohr (13) wird auf zweierlei Arten gemessen. Zum Einen über ein Prandtl'sches Staurohr, zum Anderen über ein Hitzedrahtanemometer.

Das Prandtl'sche Staurohr (s. Abbildung 5.6) wird mit einem schrägliegenden U-Rohrmanometer ausgelesen. Durch die Schräglage kann die Messunsicherheit deutlich verbessert werden, da die Ableselänge l eine Funktion des Schrägstellwinkels γ ist (s. Abbildung 5.7). Die vertikale Höhendifferenz im U-Rohr entsteht durch die Druckdifferenz aus

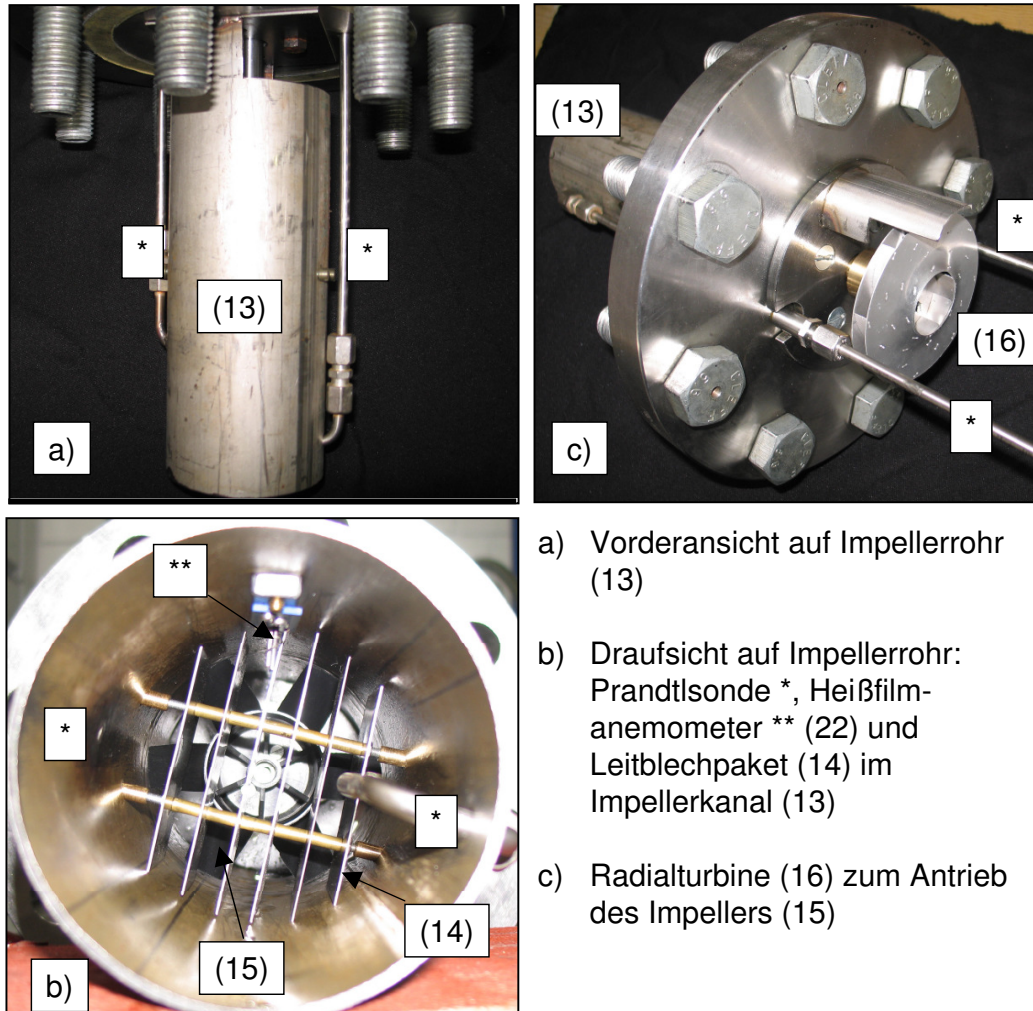


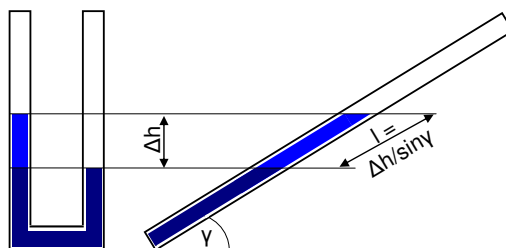
Abbildung 5.6: Anordnung des Prandtl'schen Staurohrs und des Heißfilmanemometers im Impellerrohr

Ruhedruck p_0 und statischem Druck p_{stat} des Prandtl'schen Staurohrs. Sie ist nach der *Bernoulli-Energiegleichung* für eine stationäre Strömung entlang eines Stromfadens eine Funktion der Gasgeschwindigkeit

$$v_G = \sqrt{\frac{2\rho_L g \Delta h}{\rho_G}} : \text{konst.} = \frac{\rho_G v_G^2}{2} + p_{stat} + \rho_G g h, \quad (5.18)$$

wobei der hydrodynamische Druck in der Gasphase vernachlässigt wird.

Ein Berechnungsbeispiel zur Darstellung der verbesserten Genauigkeit durch das Schrägruhrmanometer: Luft mit $v_G = 10$ m/s, $T_G = 20$ °C, $p_G = 1$ bar und Wasser als U-Rohrflüssigkeit \Rightarrow mit (5.18) $\Delta h = 6,07$ mm. Für $\gamma = 90^\circ \Rightarrow L = \Delta h$ ergäbe sich bei


 Abbildung 5.7: Abhängigkeit der Ableselänge l vom Liegewinkel γ des U-Rohrmanometers

einem Ablesefehler von 0,5 mm eine Geschwindigkeit von $10 \pm 0,42$ m/s. Bei $\gamma = 22^\circ \Rightarrow L = 16,2$ mm verbessert sich das vollständige Messergebnis hingegen auf $10 \pm 0,16$ m/s, was eine Reduzierung der systematischen Messunsicherheit um knapp 62 % bedeutet! Für die Messungen wird für das Prandtl'sche Staurohr eine systematische Messunsicherheit durch Ableseungenauigkeit von $u(\Delta h)^{sys} = \frac{a+b}{2} = 0,5$ mm (rechteckverteilt) angenommen.

Das Heißfilmanemometer (s. Abbildung 5.6, Bild b), mit ** gekennzeichnet) besteht aus einem, auf einer 1,5 mm breiten und 5 mm langen Platine fixierten, 0,01 mm starken Platindraht. Dieser wird durch Anlegen eines konstanten Stroms $I = 0,5$ A beheizt und je nach Strömungsgeschwindigkeit vom Wasserdampf-Inertgas-Gemisch unterschiedlich stark abgekühlt. Da der Ohmsche Widerstand temperaturabhängig ist, ändert sich auch die Anschlussspannung entsprechend. Das Heißfilmanemometer dient zur qualitativen Beurteilung des Geschwindigkeitsverlaufes während der Messung, weshalb auf eine Kalibrierung verzichtet werden kann.

5.7 Berechnung des Wärmestroms und der Messabweichung aus den Messdaten

Basis für die Berechnung des Wärmestroms $\dot{q}(p_G, v_G, \xi_D)$ sind gemittelte Messwerte der Temperatur-, Druck- oder Geschwindigkeitsmessungen, die im Durchschnitt aus 103 Einzelmessungen ($\Delta t = 3$ s) gebildet werden. In den nachfolgenden beiden Abschnitten wird die Berechnung des Wärmestroms nach der *Kühlwasser-* bzw. der *Wand-Wand-Methode* erläutert, anschließend werden diese (s. auch Kapitel 5.2) miteinander verglichen.

5.7.1 Kühlwasser-Methode

Die relativ einfach aufgebaute *Kühlwasser-Methode* basiert auf dem vom Kühlwasser aufgenommenen Wärmestrom

$$\dot{Q}_{KW} = \dot{m}_{KW} c_{p,KW} (T_{KW,A} - T_{KW,E}), \quad (5.19)$$

wofür die gemittelten Messwerte von $\bar{T}_{KW,E}$, $\bar{T}_{KW,A}$ und \bar{m}_{KW} eingesetzt werden. Die nicht direkt zu messende spezifische Wärmekapazität $\bar{c}_{p,KW}$ wird mit Hilfe der Wasserdampf-tafel aus der mittleren Kühlwassertemperatur $\frac{\bar{T}_{KW,A} + \bar{T}_{KW,E}}{2}$ und dem berechneten Kühlwasserdruck p_{KW} (s. Kapitel 5.6.2) berechnet.

Die Messunsicherheit von $u(\dot{Q}_{KW}) = f(c_{p,KW}, \dot{m}, T_E, T_A)_{KW}$ berechnet sich nach Kapitel 5.5 aus der positiven Quadratwurzel von

$$\begin{aligned}
 u(\dot{Q}_{KW})^2 &= \left(\frac{\partial \dot{Q}_{KW}}{\partial T_{KW,E}} \right)^2 u(T_{KW,E})^2 + \left(\frac{\partial \dot{Q}_{KW}}{\partial T_{KW,A}} \right)^2 u(T_{KW,A})^2 \\
 &+ \left(\frac{\partial \dot{Q}_{KW}}{\partial \dot{m}_{KW}} \right)^2 u(\dot{m}_{KW})^2 + \left(\frac{\partial \dot{Q}_{KW}}{\partial c_{p,KW}} \right)^2 u(c_{p,KW})^2 \\
 &+ 2 \frac{\partial \dot{Q}_{KW}}{\partial T_{KW,E}} \frac{\partial \dot{Q}_{KW}}{\partial T_{KW,A}} u(T_{KW,E}, T_{KW,A}) + 2 \frac{\partial \dot{Q}_{KW}}{\partial T_{KW,E}} \frac{\partial \dot{Q}_{KW}}{\partial \dot{m}_{KW}} u(T_{KW,E}, \dot{m}_{KW}) \\
 &+ 2 \frac{\partial \dot{Q}_{KW}}{\partial T_{KW,A}} \frac{\partial \dot{Q}_{KW}}{\partial \dot{m}_{KW}} u(T_{KW,A}, \dot{m}_{KW}). \tag{5.20}
 \end{aligned}$$

Die Eingangsgröße $c_{p,KW}$ besitzt per Definition keinen Korrelationsanteil, da es sich dabei um einen Tabellenwert handelt. Sie unterliegt nach WAGNER et al. [Wag00] einer Rechteckverteilung mit den Grenzen $a = 0,1\%$ und $b = 0,1\%$. Die systematischen Messunsicherheiten in Gleichung (5.20) sind aus Kapitel 5.6 abzuleiten. Die Ergebnisse von $u(\dot{Q}_{KW})$ werden für die Validierung der Wärmestrommessmethode (s. Kapitel 5.7.3) benötigt und sind in Abbildung C.4 jenen der nachfolgend vorgestellten *Wand-Wand-Methode* gegenüber gestellt.

5.7.2 Wand-Wand-Methode

Die Berechnung des Wärmestroms aus der *Wand-Wand-Methode* beruht auf dem Fourier'schen Wärmeleitungsgesetz

$$\dot{Q}_R = \frac{2l_R \pi \lambda_R}{\ln\left(\frac{r_a}{r_i}\right)} \overline{\Delta T}_W, \tag{5.21}$$

wobei l_R die Messrohlänge und λ_R der Wärmeleitkoeffizient der Rohrwand ist. r_a und r_i stellen jeweils den Radius bis zu den äußeren respektive inneren Thermoelementen in der Rohrwand dar und $\overline{\Delta T}_W$ misst die Temperaturdifferenz zwischen den gemittelten Temperaturen der inneren und äußeren Rohrwandoberfläche (s. Abbildung 5.4 „Querschnitt (6)“).

Für die Mittelung der Oberflächentemperaturen $T_{W,i}$ und $T_{W,a}$ des Messrohres wird angenommen, dass diese bei $\varphi = 90^\circ$ jenen bei $\varphi = 270^\circ$ entsprechen. Die Gültigkeit dieser Annahme kann mit Messungen von MICHAEL et al. [MRD89] bestätigt werden, die ebenfalls ein senkrecht, von oben angeströmtes, querliegendes Rohr für die Wärmestrommessungen verwenden. Die dadurch, jeweils die äußeren und inneren Wandoberfläche zur Verfügung stehenden, vier Temperaturen werden mittels einer Splineinterpolation über

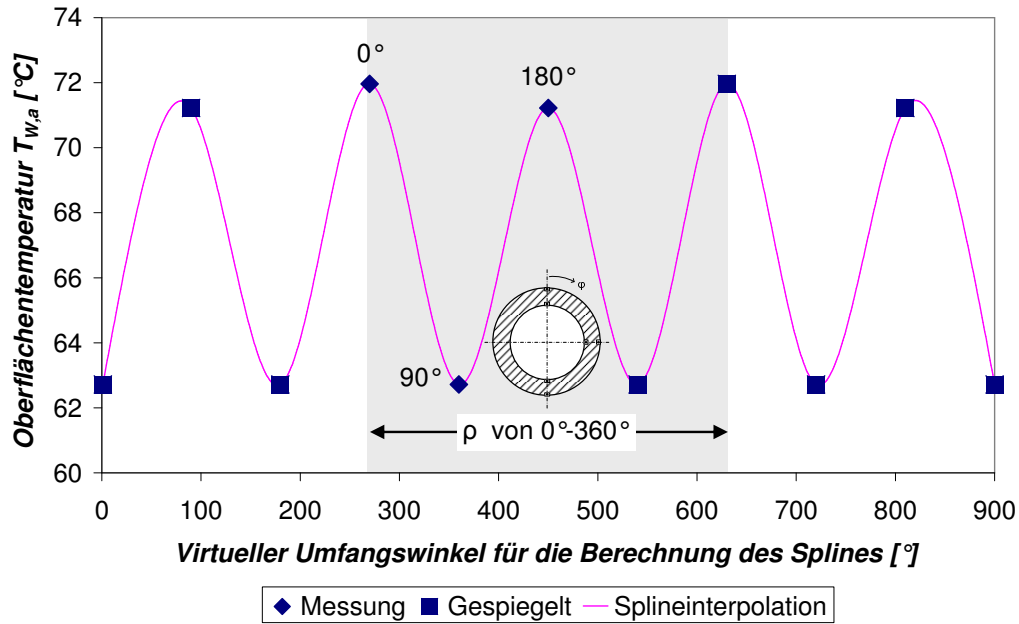


Abbildung 5.8: Berechnung des Oberflächentemperaturprofils des Messrohrs über einer Splineinterpolation

den Winkel φ zu einem Oberflächentemperaturprofil verbunden (s. Abbildung 5.8). Damit diese Interpolationsfunktion speziell in den Wendepunkten $\left(\frac{\partial T_W}{\partial \varphi}\right)' = 0$ exakt auf den Messpunkten liegt, wird der Interpolationsbereich um je 270° vor und nach dem Intervall $\varphi = [0; 360]^\circ$ ausgedehnt. Der so berechnete Verlauf wird anschließend über den Umfangswinkel φ von 0° - 360° für $\bar{T}_{W,i}$ und $\bar{T}_{W,a}$ arithmetisch gemittelt. Anschließend kann die mittlere Wandoberflächentemperaturdifferenz $\overline{\Delta T}_W = \bar{T}_{W,a} - \bar{T}_{W,i}$ berechnet werden.

Die Wärmeleitfähigkeit des Messrohrmaterials wird mittels einer Approximation berechnet

$$\lambda_R(\bar{T}_W) = \left(7 \cdot 10^{-8} \bar{T}_W^3 - 4 \cdot 10^{-5} \bar{T}_W^2 + 0,0211 \bar{T}_W + 14,358\right) \frac{W}{mK}, \quad (5.22)$$

die mit den temperaturabhängigen Werten für X5CrNi1810 aus [IDW90] für den Bereich von $[-73; 127]^\circ\text{C}$ (Abweichung von den Messwerten aus [IDW90]: $[-0,02; 0] \frac{W}{mK}$) erstellt wurde. Gleichung (5.22) weicht von den Werten aus dem VDI Wärmeatlas [CG02] im Intervall von $T = [20; 100]^\circ\text{C}$ um $[-0,2; 0,1] \frac{W}{mK}$ ab. Die Übereinstimmung mit dem von BLACKWELL et al. [BGDE00] mit hohem Aufwand bestimmten Wert von $\lambda_R = 14,57 \pm 0,6 \frac{W}{mK}$ bei 31°C ist ebenfalls sehr hoch, weshalb (5.22) als auf einer breiten Basis abgesichert angesehen wird.

Die mittlere Wandtemperatur \bar{T}_W in (5.22) berechnet sich aus dem arithmetischen Mittel der durchschnittlichen Oberflächentemperaturen $\bar{T}_{W,a}$ und $\bar{T}_{W,i}$. Wegen des stark linearen Verhaltens von (5.22) in Temperaturintervallen von $\Delta T_W < 30^\circ\text{C}$ führt dies zu einer sehr guten Übereinstimmung mit dem integralen Mittel zwischen $\bar{T}_{W,a} = f(T_1, T_2, T_3)$ und $\bar{T}_{W,i} = f(T_4, T_5, T_6)$.

Die Radien werden für die Berechnung des Wärmestroms in Gleichung (5.21) mit $r_i = 6,5 \pm 0,25$ mm und $r_a = 11,5 \pm 0,25$ mm abgeschätzt. Die Verteilung dieser Abschätzung ist aufgrund der Gleichwahrscheinlichkeit der Position des Thermoelements im angegebenen Intervall eine Rechteckverteilung.

Die Messunsicherheit der Messrohlänge $u(L_R) = 0,05$ mm ist im Vergleich zu den anderen Messunsicherheiten in $u(\dot{Q}_R) = f(L_R, T_1, T_2, T_3, T_4, T_5, T_6, r_a, r_i)$ vernachlässigbar klein und wird deshalb nicht berücksichtigt. Die Wärmeleitfähigkeit ist wiederum eine Funktion der Rohrwandtemperaturen T_1, \dots, T_6 , weshalb sich die Messunsicherheit $u(\dot{Q}_R)$ nach Kapitel 5.5 aus der positiven Quadratwurzel von (5.23) berechnet:

$$\begin{aligned}
 u(\dot{Q}_R) = & \left(\frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_1} \right)^2 u(T_1)^2 + \left(\frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_2} \right)^2 u(T_2)^2 + \left(\frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_3} \right)^2 u(T_3)^2 + \left(\frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_4} \right)^2 u(T_4)^2 \\
 & + \left(\frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_5} \right)^2 u(T_5)^2 + \left(\frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_6} \right)^2 u(T_6)^2 + \left(\frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial r_i} \right)^2 u(r_i)^2 + \left(\frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial r_a} \right)^2 u(r_a)^2 \\
 & + 2 \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_1} \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_2} u(T_1, T_2) + 2 \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_1} \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_3} u(T_1, T_3) + 2 \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_1} \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_4} u(T_1, T_4) \\
 & + 2 \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_1} \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_5} u(T_1, T_5) + 2 \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_1} \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_6} u(T_1, T_6) + 2 \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_2} \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_3} u(T_2, T_3) \\
 & + 2 \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_2} \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_4} u(T_2, T_4) + 2 \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_2} \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_5} u(T_2, T_5) + 2 \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_2} \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_6} u(T_2, T_6) \\
 & + 2 \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_3} \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_4} u(T_3, T_4) + 2 \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_3} \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_5} u(T_3, T_5) + 2 \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_3} \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_6} u(T_3, T_6) \\
 & + 2 \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_4} \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_5} u(T_4, T_5) + 2 \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_4} \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_6} u(T_4, T_6) + 2 \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_5} \frac{\partial \dot{Q}_R}{\partial T_6} u(T_5, T_6). \quad (5.23)
 \end{aligned}$$

Die Größenordnung von $u(\dot{Q}_R)$ lässt sich z.B. der Gegenüberstellung von Rechnung und Messung des Wandwärmestroms \dot{q}_W in Abbildung 5.10 entnehmen. Wie auch die Ergebnisse von $u(\dot{Q}_K W)$ sind diese essentieller Bestandteil der Validierung der Wärmestrommessmethode des nächsten Kapitels.

5.7.3 Validierung der Wärmestrommessung

Sind die Ergebnisgrößen $Y(\dot{Q}_{KW})$ und $Y(\dot{Q}_R)$ aus der *Kühlwasser-Methode* (s. Kapitel 5.7.1) bzw. der *Wand-Wand-Methode* (s. Kapitel 5.7.2) fehlerfrei, so muss gemäß den Gleichungen für den Kühlwasser- (5.19) und den Wandwärmestrom (5.21), deren Gleichheit sich aus (3.7) ergibt, für alle Parameterkonstellationen gelten, dass

$$0 = Y(\dot{Q}_{KW}) - Y(\dot{Q}_R). \quad (5.24)$$

Für den Fall einer Messung gilt (5.24) als hinreichend erfüllt, wenn

$$\Delta \bar{Y}^* = \left(\frac{2(u(\dot{Q}_{KW}) + u(\dot{Q}_R))}{Y(\dot{Q}_{KW}) + Y(\dot{Q}_R)} \right) - \left(\frac{2|Y(\dot{Q}_{KW}) - Y(\dot{Q}_R)|}{Y(\dot{Q}_{KW}) + Y(\dot{Q}_R)} \right) > 0, \quad (5.25)$$

da eine Messung stets eine gewisse Abweichung vom ‐wahren‐ Wert besitzt.

Die Größen $Y(\dot{Q}_{KW})$ und $Y(\dot{Q}_R)$ sind Ergebnisse der mit überprüften Messmitteln (s. Kapitel 5.7) erstellten, verifizierten Gleichungen (5.19) bzw. (5.21), weshalb auch alle Ergebnisgrößen, bzw. die beiden Messmethoden, als verifiziert gelten müssen wenn (5.25) über alle Messpunkte einer gemeinsamen Messung erfüllt ist.

Basis der Validierung ist eine Messreihe mit Gasgeschwindigkeiten von $v_G = [2, 0; 7, 5] \frac{m}{s}$ und Dampfgehalten von $\xi_D = [0, 1; 1] \frac{kg}{kg}$ mit einem Wasserdampf-Stickstoff-Gemisch bei ca. $p_G = 1, 02$. Wertet man die Ergebnisse dieser Messung für $\Delta\bar{Y}^*$ in (5.25) aus,

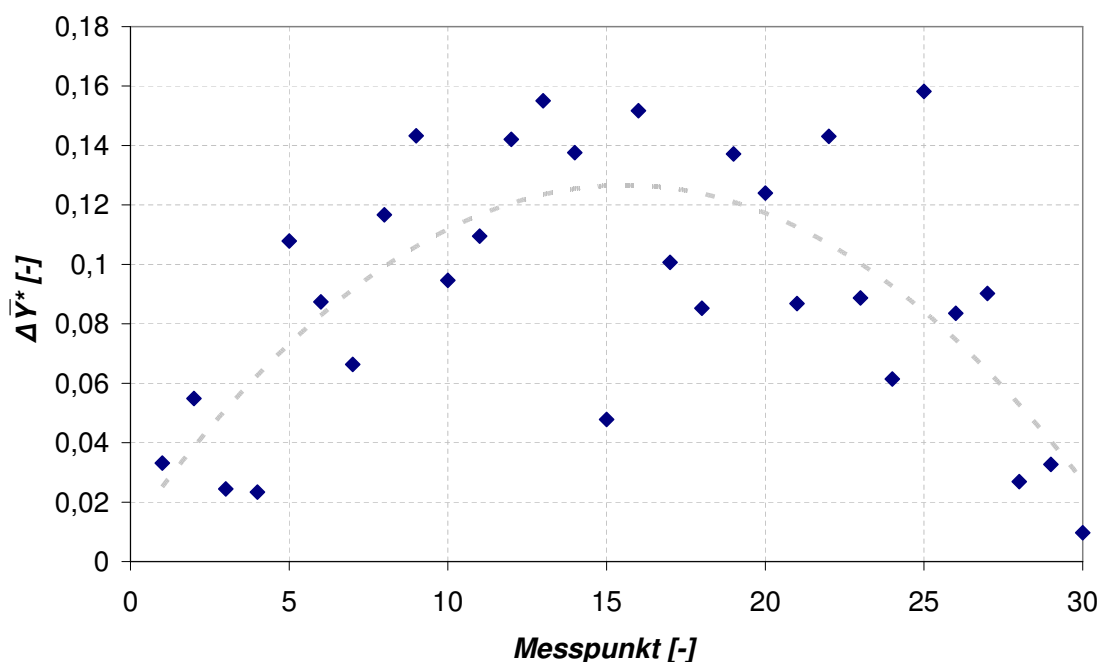


Abbildung 5.9: Validierungsergebnis des gewählten Messkonzepts aus der *Wand-Wand-* und *Kühlwasser-Methode* (Berechnungsbasis s. Anhang C.2)

ergibt sich Abbildung 5.9 (Messunsicherheit nach DIN 1319). Darin zeigt sich, dass (5.25) für alle Messpunkte erfüllt wird, weshalb das Messkonzept als hinreichend verifiziert gilt. Bemerkenswerterweise würde bereits ein ‐Temperaturfehler‐ von $-0,25 \text{ }^\circ\text{C}$ in ΔT_W im Falle des kleinsten Wandwärmestroms dazu führen, dass die *Wand-Wand-Methode* wegen $\Delta\bar{Y}^* = -0,029$ nicht für alle Messpunkte verifiziert werden könnte.

5.8 Validierung der Wärme- und Stoffübergangstheorie

Die mit dem Versuchsstand aus Kapitel 5.3 erzeugten Wärmestrom-Messdaten für H_2O/CO_2 - und H_2O/N_2 -Gemische mit Dampfanteilen von $0, 1 \leq \xi_D \leq 1$ und Strömungsgeschwindigkeiten von $2 \frac{m}{s} \leq v_G < 10 \frac{m}{s}$ bei Drücken von $p_G = 1, 047 \pm 0, 056 \text{ bar}$ bzw. $p_G = 1, 032 \pm 0, 025 \text{ bar}$ werden im Folgenden für die Validierung der

- Filmtheorie (s. Tabelle 3.1 und in Anlehnung an [CG02]), der
- Korrekturgleichungen nach Nozu et al. (s. Tabelle 3.2) und der
- Korrekturgleichungen nach Rose (s. Tabelle 3.2)

herangezogen. Abbildung 5.10 zeigt, dass alle Theorien im Vergleich zur Messung deut-

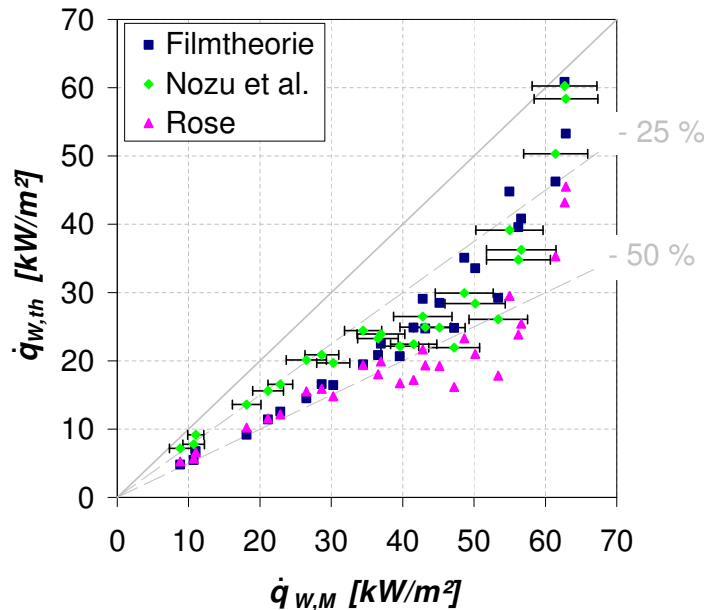


Abbildung 5.10: Vergleich von gemessenem, spezifischen Wandwärmestrom $\dot{q}_{W,M}$ mit dem aus der Theorie berechneten, spezifischen Wandwärmestrom $\dot{q}_{W,th}$ für H_2O/N_2 und beispielhaft dargestellter Messunsicherheit nach DIN 1319

lich über - 20 % nach unten streuen. Lediglich für hohe Wärmestromdichten gilt dies nicht. Das bedeutet, dass die Berechnung des übertragenen Wärmestroms einer solchen Geometrie zu deutlich kleineren Werten führt als die Messung es zeigen würde. Infolge dessen werden die Wärmeübertragungsflächen für den Fall eines H_2O/N_2 -Gemisches stets größer als notwendig ausgelegt. Am Besten schneidet hier noch der Ansatz von NOZU et al. [NOIH92] ab, der auf einer von ROSE [Ros80] entwickelten Gleichung basiert. Die Filmtheorie liegt im Bereich von $8 \frac{kW}{m^2}$ bis $40 \frac{kW}{m^2}$ bei etwa -45 % unterhalb der Messung, dieser Abstand reduziert sich aber oberhalb dieses Bereichs bis auf weniger als -25 % und streut hier im Gegensatz zu den beiden anderen nicht noch einmal deutlich nach unten. Wie sich dies bei einem H_2O/CO_2 -Gemisch verhält zeigt Abbildung 5.11. Qualitativ ergeben sich hier ähnliche Verläufe der drei Wärme- und Stoffübertragungstheorien wie für das H_2O/N_2 -Gemisch, allerdings differieren Messung und Berechnung für abnehmenden Dampfgehalt (\dot{q}_W wird kleiner) weniger stark. Um die Ursache hierfür zu finden werden

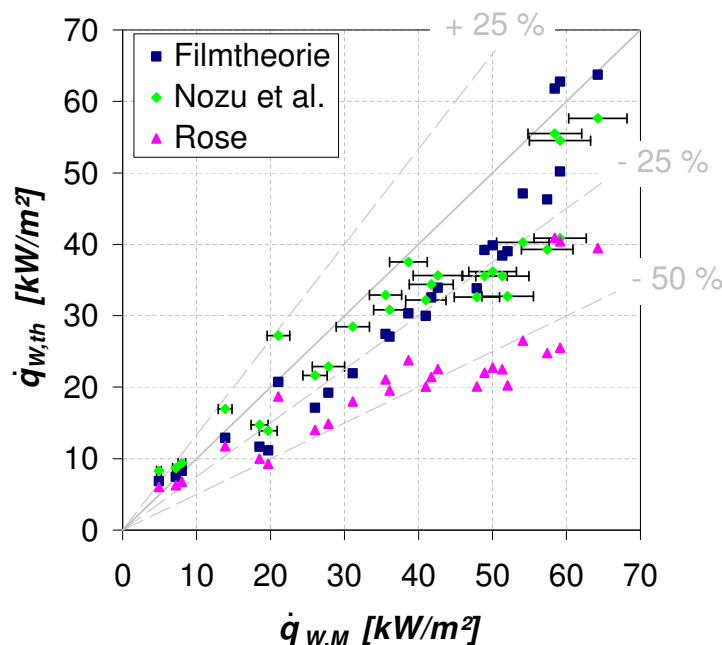


Abbildung 5.11: Vergleich von gemessenem, spezifischen Wandwärmestrom $\dot{q}_{w,M}$ mit dem aus der Theorie berechneten, spezifischen Wandwärmestrom $\dot{q}_{w,th}$ für H_2O/CO_2 und beispielhaft dargestellter Messunsicherheit nach DIN 1319

die beiden Messungen zunächst miteinander verglichen, dann werden einzelne Stoffänderungen untersucht.

Voraussetzung für den Vergleich der beiden Messreihen für H_2O/CO_2 und H_2O/N_2 ist jedoch, dass die Messpunkte der H_2O/CO_2 - und H_2O/N_2 -Gemische im Dampfgehalt und in der Strömungsgeschwindigkeit übereinstimmen. Die maximale Differenz zwischen den beiden Messungen bezüglich des Dampfgehalts beträgt $\Delta\xi_D = (\xi_D)_{H_2O/N_2} - (\xi_D)_{H_2O/CO_2} = -0,001 \pm 0,012$ und die der Strömungsgeschwindigkeit $\Delta v_G = (v_G)_{H_2O/N_2} - (v_G)_{H_2O/CO_2} = 0,00 \pm 0,29$ m/s, womit die oben angeführte Anforderung ausreichend erfüllt wird.

Ein direkter Vergleich der gemessenen, spezifischen Wärmeströme von H_2O/CO_2 und H_2O/N_2 in Abbildung 5.12 visualisiert die für H_2O/CO_2 -Gemische stärker abnehmende Wärmestromdichte bei Dampfgehalten unter $\xi_D < 0,5$ (Abnahme bis zu -44 %).

Die Bewertung im Anhang C.1 deutet darauf hin, dass die Wärme- und Stoffübertragungstheorie insbesondere die Stoff- und Kondensationseigenschaften des Wasserdampf-Kohlendioxid-Gemischs nur unzureichend berücksichtigt: in Abbildung 5.12 können die sich rechts befindenden Auswertungen zu Prandtl- und Schmidt-Zahl nur etwa 24 %-Punkte der bis zu 44 %-igen Abweichung zwischen der H_2O/CO_2 - und H_2O/N_2 -Messung erklären. Folglich gibt es noch eine weitere Ursache für die unterschiedlichen Wärmestromdichten. Es liegt nahe diese in der vergleichsweise hohen Löslichkeit des Kohlendioxids im

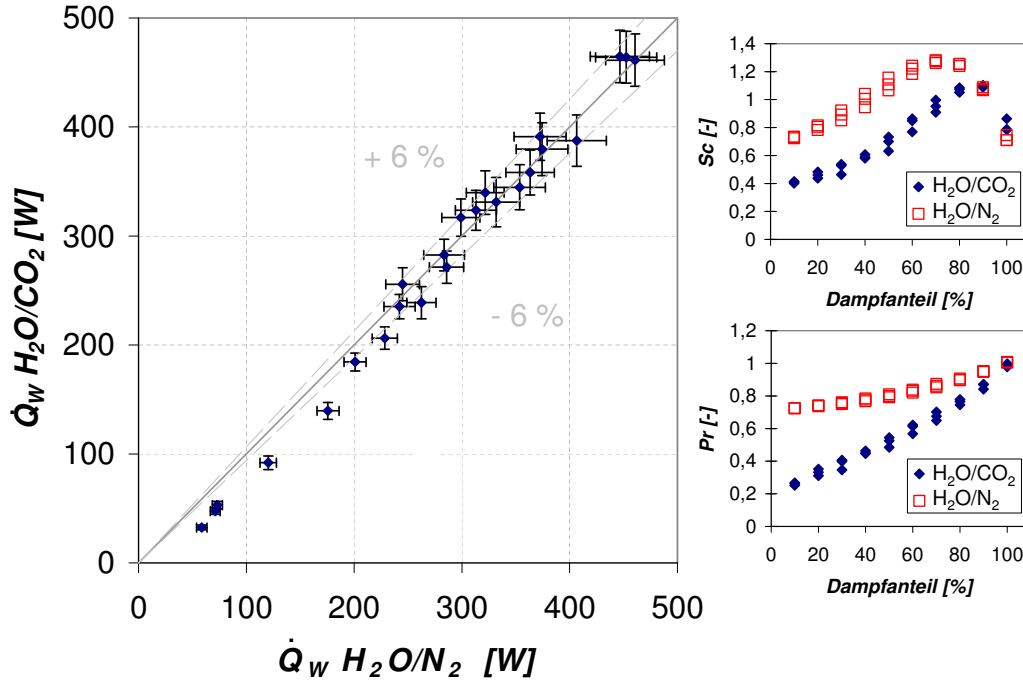


Abbildung 5.12: Vergleich der gemessenen Wärmestromdichten mit aus der Messung berechneten Prandtl- und Schmidt-Zahlen von H_2O/CO_2 und H_2O/N_2 (Messunsicherheit nach DIN 1319)

Kondensat zu suchen, wodurch sich nach Kapitel 3.1.5 der Diffusionsstrom \dot{n}_{CO_2} um

$$\begin{aligned} \dot{n}_{CO_2,abso} &= \gamma_{CO_2,abso} \cdot \dot{n}_K \\ &= \frac{p_{CO_2}}{H_{CO_2}(T_F)} \left(1 + \frac{0,2}{99,8} \right) \cdot \frac{\dot{q}_l}{\Delta h_V \cdot M_{H_2O}} \end{aligned} \quad (5.26)$$

reduziert. Die Integration von (5.26) in die Wärme- und Stoffübertragungstheorien und deren Validierung ist jedoch Aufgabe für weitere Forschungen.

Grundsätzlich kann für die Berechnung der Kondensation von Wasserdampf in Anwesenheit von Kohlendioxid das Berechnungsmodell von NOZU et al. (s. Tabelle 3.2) sowie jenes der Filmtheorie (s. Tabelle 3.1 und [CG02]) empfohlen werden. Nach Abbildung 5.11 weichen die berechneten Wärmestromdichten der Filmtheorie für $0,4 \leq \xi_D \leq 0,9$ im Mittel um -18 ± 11 %-Punkte und für $0,1 \leq \xi_D < 0,4$ im Mittel um -12 ± 25 %-Punkte von der Messung ab. Mit einer etwas größeren Abweichung folgt die Berechnungsmethode nach NOZU et al.. Hier beträgt die Abweichung von Theorie und Messung im Bereich $0,4 \leq \xi_D \leq 0,9$ der H_2O/CO_2 -Messung im Mittel -20 ± 11 %-Punkte und für $0,1 \leq \xi_D < 0,4$ im Mittel 8 ± 30 %-Punkte.

Kapitel 6

Kondensationskonzept

Der Stand von Wissenschaft und Technik aus Kapitel 3 bildet die Basis für die Aufstellung eines möglichst effizienten Kondensationskonzepts. Die Anforderungen an ein derartiges Konzept finden sich in Kapitel 3.3.3. Um das entwickelte Kondensationskonzept zu prüfen wurde im Rahmen dieser Forschungsarbeit ein entsprechendes Modell im Labormaßstab aufgebaut. Ziele der Untersuchungen an diesem Modell sind die Quantifizierung des Restdampfgehalts, der Vergleich der Ergebnisse mit einem konventionellen Rohrbündelkondensator und die qualitative sowie quantitative Beurteilung des Nebelanteils im Restgas des Kondensators.

Die Validierung umfasst eine Klärung der Anforderungen und des Messkonzepts des Labormodells. Weiterhin werden die Messunsicherheit nach DIN 1319 bestimmt und die Berechnungsmethoden für die Ergebnisparameter erläutert. Schließlich werden die Ergebnisse der Untersuchung diskutiert, wobei diese Aufschluss darüber geben inwieweit das Kondensatzirkulationskonzept gegenüber einem reinen Rohrbündelkonzept Verbesserungen hinsichtlich Restdampfgehalt, Nebelanteil usw. bewirkt.

6.1 Kondensationsmethode

Als Kondensationsmethoden stehen die direkte und indirekte Kondensation zur Verfügung, wobei beide Techniken bei den verschiedenen Oxyfuel-Prozessen ihre Berechtigung haben. In Prozessen, in denen der Oxyfuel-Kondensator nur zur Abscheidung des Kohlendioxids verwendet wird, wie z.B. beim Kohlekraftwerk mit Oxyfuel-Technologie [KKH⁺06], hat die direkte Kondensation einige Vorteile: Durch den Wegfall zweier Wärmewiderstände ist der Wärme- und Stoffübergang höher (s. Abbildung 3.5), es ist trotz Rauchgaspartikeln kein Fouling auf Wärmeübertragungsflächen möglich, außerdem gibt es die Möglichkeit der zusätzlichen Rauchgasentschwefelung [Alt06]. Diese Vorteile ließen unter anderem auch bei der Oxyfuel-Pilotanlage am Standort „Schwarze Pumpe“ die Direktkondensation zur Anwendung kommen.

Das in dieser Arbeit entwickelte Kondensationskonzept und die entsprechenden Messungen zum Wärme- und Stoffübergang beschränken sich jedoch auf die Oberflächenkondensation. Damit ist nicht nur einigen speziellen Oxyfuel-Prozessen gedient, in denen Kühl- und Dampfmedium nicht vermischt werden dürfen, sondern z.B. auch der Rauch-

gaskondensation in Heizwerken oder Heizkraftwerken. Die dort frei werdende Kondensationswärme wird zur Vorwärmung des Rücklaufs aus dem Heiznetz übertragen, wodurch der thermische Wirkungsgrad des Prozesses verbessert werden kann. Durch eine Erhöhung des Dampfanteils im Rauchgas lässt sich dieser Nutzen noch weiter ausbauen. Ein sehr innovatives und interessantes Konzept zur Dampfanreicherung und damit zur Nutzenerhöhung bei der Rauchgaskondensation wird z.B. von GADERER in [Gad08] vorgestellt. Des Weiteren ist die Oberflächenkondensation bei verschiedenen industriellen Trennungsvorgängen von Dampf-Inertgas-Gemischen der einzig sinnvolle verfahrenstechnische Weg um gesetzliche Vorgaben hinsichtlich Abwasserreinheit, Kühlmedienkosten, usw. vereinbaren zu können. Man denke nur an die kryogene Verflüssigung des Kohlendioxids, wie sie z.B. in [Alt06] vorgeschlagen wird.

6.2 Kondensationskonzept für Oxyfuel-Prozesse

Im Fokus der Kondensationskonzeptstudie liegen die beiden in Kapitel 4 betrachteten Oxyfuel-Prozesse, d.h. der S-Graz Cycle und der CES Prozess, deren Kondensatorbetriebsparameter in Kapitel 4.7.8 zusammengefasst wurden. Diese ermöglichen in Verbindung mit der Filmtheorie für die Berechnung des lokalen Wärme- und Stoffübergangs (s. Kapitel 3.1.1) die Darstellung des, für die Beurteilung eines Konzepts notwendigen, Verlaufs von Kühl- und Dampfmedientemperaturen über äquidistante Flächeneinheiten (s. Abbildung 6.1). Abbildung 6.1 zeigt den Zusammenhang zwischen der Kühlung und Kondensation des Gas-Dampf-Gemischs anhand der Verläufe von Rauchgastemperatur und des Dampfgehalts, weshalb man auch von Kühler-Kondensatoren spricht. Daneben fällt der Verlauf der treibenden Temperaturdifferenz $\Delta T = T_G - T_F$ auf, die bis etwa zur Hälfte der Kondensatorfläche über der von KAUFMANN [Kau99] empfohlenen 20 °C-Grenze liegt. Dort ist folglich eine Nebelbildung zum Abbau der Übersättigung des Rauchgases sehr wahrscheinlich. Somit ist nachvollziehbar, dass ΔT mit steigendem Kondensatordruck und steigendem Wärme- und Stoffübergang noch weiter zunehmen wird. Hieraus folgt jedoch unmittelbar, dass die Möglichkeiten der Einsparung von Wärmeübertragungsfläche hinsichtlich der Nebelbildung mit einem Rohrbündelkonzept ausgeschöpft sind. Es stellt sich daher die Frage, ob die Übersättigung des Rauchgases dennoch unterbunden werden kann?

Die in Kapitel 3.2.1 vorgestellten Konzepte und Patente verfolgen alle das Ziel einer Sättigungsreduktion. Allerdings wird zur Einhaltung des Restdampfgehaltes die notwendige Wärmeübertragungsfläche meist erhöht werden müssen. Um eine Reduzierung der Übersättigung bei, gegenüber einer konventionellen Auslegung, nicht wesentlich vergrößerter Wärmeübertragungsfläche zu erreichen, wird folgendes Konzept vorgeschlagen.

Idee ist, das Kondensat eines indirekt arbeitenden Kondensators zu rezirkulieren und in Tropfenform im Rauchgaseintritt zu verteilen um den Rauchgaswasserdampf teilweise direkt zu kondensieren (s. Abbildung 6.2). Hiermit soll die Temperatur des Rauchgases so

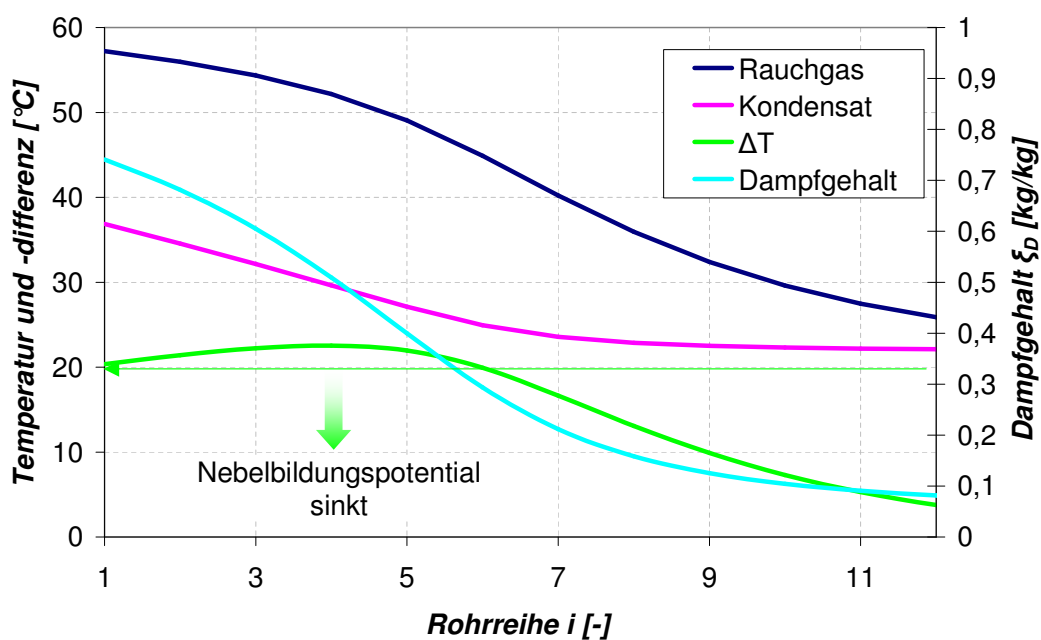


Abbildung 6.1: Temperaturprofile von Rauchgas, Kondensat sowie Differenz der beiden über der Rohrreihe i . Daneben der Verlauf des Dampfgehalts. Berechnet mit Berechnungsmodell (s. Abbildung 4.2) für den S-Graz Cycle-Kondensator im Bestpunkt bei $p_K = 0,2$ bar, $\Delta p_K = 12$ mbar und $v_{G,E} = 20$ m/s.

gesenkt werden, dass dieses bei Auftreffen auf das Rohrbündel nicht mehr zur Übersättigung neigt. Möglich wird dies durch das, gegenüber dem Rauchgas wesentlich kühlerem, Kondensat aus dem Kondensatsumpf (s. Abbildung 6.3). Damit eignet sich das rezirkulierte Kondensat aus dem Beispiel in Abbildung 6.1 mit $\bar{T}_K = 30,6 \text{ °C}$ sehr gut zur Direktkondensation eines Teils des Rauchgaswasserdampfs.

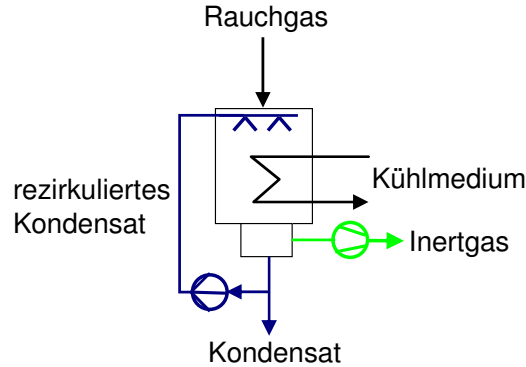


Abbildung 6.2: Das Kondensatrezirkulationskonzept für Oxyfuel-Kondensatoren

Dadurch kann die Temperaturdifferenz im Bereich der Rohrreihen 1-6 außerdem deutlich unter 20 °C gesenkt werden, wodurch sich die Nebelbildungsneigung nach KAUFMANN reduziert. Ohne die Rezirkulierung wäre diese bis zu Rohrreihe 6 (s. Abbildung 6.1) über dem von KAUFMANN empfohlenen Temperaturdifferenzlimit von $\Delta T < 20 \text{ K}$.

Durch die in den Rauchgaseintritt eingespritzten Kondensattropfen vergrößert sich die Wärmeübertragungsfläche um deren Oberfläche. D.h. bei gleichbleibender Rohrbündeloberfläche würde sich allein dadurch der Restwasserdampfgehalt weiter absenken lassen, wodurch sich der Prozesswirkungsgrad weiter steigern ließe. Es ist klar, dass die Tropfentemperatur und infolge dessen auch die Kondensatsumpftemperatur durch die aufgenommene Kondensationswärme ansteigt. Hierdurch würde sich das Potential für Direktkondensation durch die Verkleinerung der Temperaturdifferenz zwischen Rauchgas und rezirkuliertem Kondensat wiederum reduzieren. In diesem Zusammenhang wird der Parameter

$$\epsilon = \frac{\dot{m}_{Rez}}{\dot{m}_{K,Ges}} \quad (6.1)$$

eingeführt - die Rezirkulationsrate.

Um den Anstieg der Kondensationstemperatur abschätzen zu können wurde in IPSEpro ein zusätzliches Direktkondensationsmodul aufgebaut. Dieses ermöglicht in Verbindung mit dem Rohrbündelberechnungsmodul die Berechnung der Kondensatsumpf-, bzw. der Rezirkulationstemperatur des Kondensats. Basis ist dabei eine abschnittsweise Berechnung, bei der der Wärme- und Stoffübergang durch die Kondensation des Rauchgaswasserdampfs am Kondensattröpfchen mittels der Korrelation von CELATA [CCDF91]

$$\theta = \frac{T_{G,A} - T_{G,E}}{T_D^S - T_{G,E}} = \sqrt{1 - \exp(-\pi^2 Fo C_e)} \quad (6.2)$$

berechnet wird ($150 < Re < 2000$, Tröpfchendurchmesser 4,5 mm), wobei

$$C_e = 0,21 \left(r |v_G - v_{Tr}| \frac{\rho_{KW} c_{p,KW}}{\lambda_{KW}} \frac{\eta_G}{\eta_{KW} + \eta_G} \right)^{0,454} \quad (6.3)$$

gilt. Der Einfluss der inerten Gase auf die Sättigungstemperatur T_D^S wird durch (3.12) und (3.7) berechnet. Für die Berechnung der Kondensatumpftemperatur, welche eine Mischtemperatur des anfallenden Kondensats aller Rohrreihen und des rezirkulierten Kondensats ist, wird angenommen, dass die rezirkulierten Kondensattropfen keinerlei Kontakt zum Rohrbündel haben. Sie kann deshalb für einen Kondensator mit i Rohrreihen nach

$$T_{K,Rez} = \frac{\dot{m}_{K,ges} c_{p,K} \bar{T}_K + \epsilon \cdot \dot{m}_{K,ges} c_{p,Rez} T_{K,Rez}}{\dot{m}_{K,ges} c_{p,K} + \epsilon \cdot \dot{m}_{K,ges} c_{p,Rez}} \quad (6.4)$$

berechnet werden. In den meisten Fällen ändert sich der Wert der Wärmekapazität $c_{p,K}$ und $c_{p,Rez}$ nur in der dritten Nachkommastelle, sodass

$$T_{K,Rez} = \frac{\bar{T}_K + \epsilon \cdot T_{K,Rez}}{1 + \epsilon} \quad (6.5)$$

festgehalten werden kann.

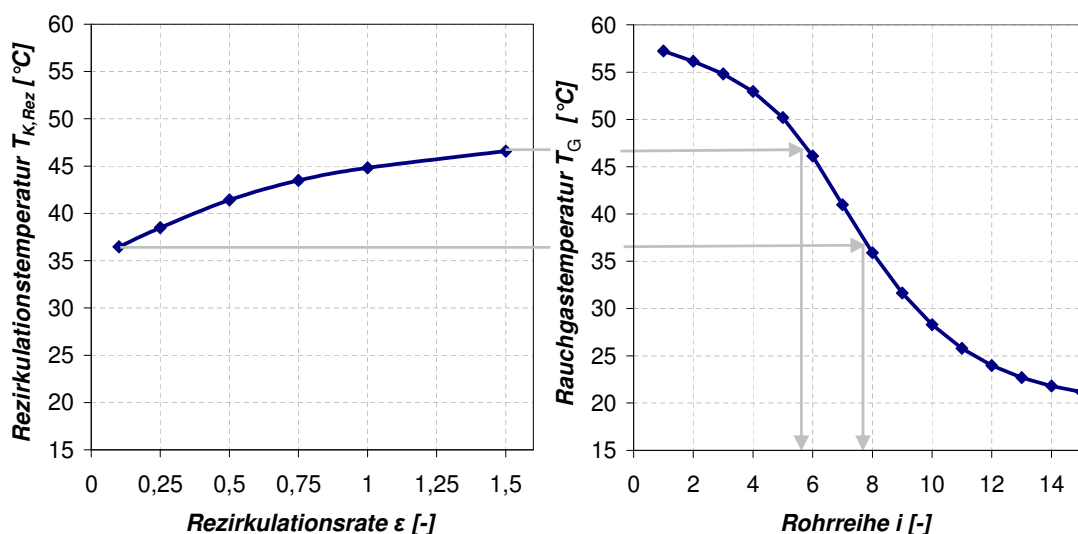


Abbildung 6.3: Kondensatzirkulationstemperatur (ohne Rückkühlung) über der Rezirkulationsrate und Rauchgastemperatur über der Rohrreihe i .

Wie die Abschätzung in Abbildung 6.3 deutlich macht, nimmt das Potenzial der Direktkondensation mittels Kondensattropfen mit zunehmender Rezirkulationsrate ab. Dieser negative Einfluss der Rezirkulation kann durch eine gezielte Tropfenkühlung auf den gekühlten Wärmeübertragungsflächen des Rohrbündels reduziert oder gar umgekehrt werden - eine Art HELLER-Verfahren (s. auch [For67]) zur Tropfenkühlung.

Ein weiterer Vorteil dieser gezielten Rückkühlung des rezirkulierten Kondensats ergibt sich aus dem Zusammenhang des temperaturabhängigen Absorptionsverhaltens des Kondensats für Gase wie z.B. Kohlendioxid und Schwefeldioxid (s. Kapitel 3.1.5). Je höher die Temperatur, desto geringer ist die Aufnahmekapazität des Wassers für Gase durch Absorption (pH-Wert steigt), womit die lokale Verdünnung von saurem mit weniger saurem Kondensat möglich wäre. Wie Abbildung 6.4 zeigt, wäre durch die Verdünnung eine

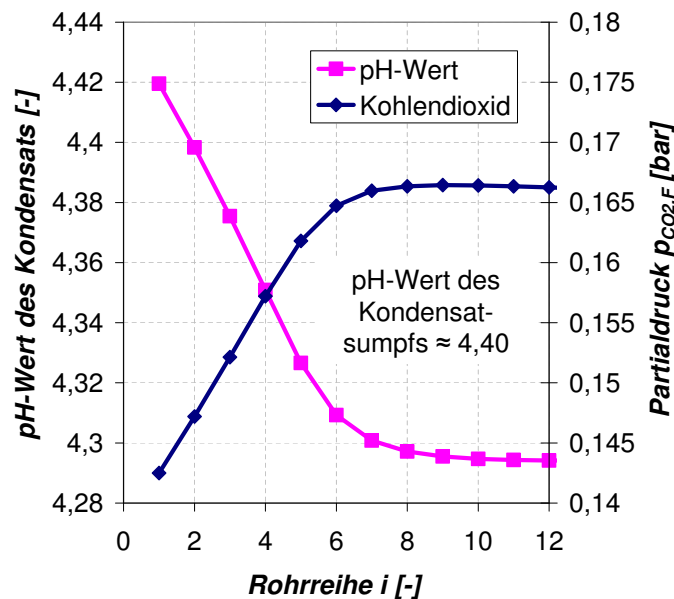


Abbildung 6.4: Kohlendioxidpartialdruck direkt über der Phasengrenzschicht und des daraus resultierenden pH-Werts des Kondensats über der Rohrreihe i .

Anhebung des lokalen pH-Werts der letzten Rohrreihen um etwa 0,1 Punkte möglich. Gleichzeitig würde aber der pH-Wert der ersten Rohrreihe um etwa 0,02 Punkte gesenkt werden. Ob sich dieses Potenzial wirtschaftlich nutzbar machen lässt hängt generell von der Toleranz der verwendeten Materialien ab, scheint aber aufgrund der engen pH-Wert-Spanne eher gering zu sein. Vergleichbar zu [AJ05] und Patentnr. DE 102004061729 A1 könnte dies aber mittels einer Nassentschwefelung und weiteren neutralisierenden, flüssigen Medien in das rezirkulierte Kondensat erfolgen.

Ein sehr viel spannenderer Effekt der gezielten internen Rückkühlung ergibt sich jedoch aus der Nutzung der etwas höheren Temperaturdifferenz für die Direktkondensation. Es stellt sich hier die Frage, ob sich ein höherer Anteil der Direktkondensation an der gesamten Kondensation durch die direkte Kühlung an der Rohrbündeloberfläche negativ auf die Kohlendioxidreinheit nach dem Kondensator auswirken würde. Zwar übertragen die auf die Rohroberfläche auftreffenden Tropfen einen Impuls und erhöhen somit die Turbulenz auf den getroffenen Rohren, gleichzeitig wächst aber auch die Kondensatfilmdicke durch den höheren, umlaufenden Kondensatmassenstrom auf den Rohren, womit grund-

sätzlich der Widerstand durch den Kondensatfilm wächst. Die Erhöhung der Turbulenz gilt vor allem für die ersten Rohrreihen, wodurch die Filmtemperatur etwas sinken könnte (s. Abbildung 6.1). Für die mittleren und letzten Rohrreihen gäbe es insbesondere einen erhöhten Kondensatmassenstrom auf den Rohren. Die Kondensattemperatur der letzten Rohrreihen liegt wegen der geringeren Kondensationsrate nur wenige Grad Celsius über der Kühlwassertemperatur, weshalb die Wärmeleistung dieser Rohre durch die Rückkühlung erhöht werden könnte. Folglich müsste die Rückkühlung vor allem hier stattfinden.

Zusammenfassend lauten die interessanten, zu untersuchenden Fragestellungen zum Kondensatzirkulationskonzept:

- Wie ist der Einfluss von ϵ auf den Restdampfgehalt?
- Kann die Nebelbildung durch dieses Konzept reduziert oder unterbunden werden?
- Welche Auswirkungen hat die Kondensatzirkulation auf das Kühlsystem wenn dort gezielt rückgekühlt wird?

Diese Fragen werden nachfolgend ausführlich untersucht.

6.3 Anforderungen an den Versuchsaufbau

Der Versuchsaufbau stellt eine auf Labormaßstab skalierte Abbildung des Kondensatzirkulationskonzepts dar, die sowohl als reiner Rohrbündelkondensator als auch als Rohrbündelkondensator mit Kondensatzirkulation betrieben werden kann. Ein Vergleich der beiden Konzepte soll folgende Parameter untersuchen:

1. Restdampfgehalt im Restgas
2. Nebelanteil im Restgas

Der zu untersuchende Kondensatorparameterbereich ist grundsätzlich derselbe wie bei der Messung von Wärmeströmen (s. Kapitel 5.1). Weiterhin soll der Kondensationsprozess optisch zugänglich sein um z.B. die Nebelbildung beobachten zu können.

6.4 Wahl des Messkonzepts

Analog zu Kapitel 5.2 werden nachfolgend mehrere Messkonzepte hinsichtlich ihrer Messsensitivität s_M im Sinne einer möglichst hohen Messqualität und ihrer Umsetzbarkeit unter den gegebenen Randbedingungen untersucht. Die zu messenden Größen Restdampf- und Nebelgehalt sind meist nicht direkt zu bestimmen, da sich beide auf den Gesamtmassenstrom im Bereich der Kondensatorentlüftung beziehen, wie (4.5) zeigt.

Die Anzahl der tauglichen Messkonzepte für diese beiden Größen wird durch die Querempfindlichkeit vieler Messtechniken auf Wasserdampf oder kleinste Wassertröpfchen stark

eingeschränkt. Unter der verbleibenden Auswahl sind für die Bestimmung des Restdampfgehalts $\xi_{D,A}$ aus einer Messung folgende denkbar:

1. Direkte Messung der Gasbestandteile im Restgas mittels der Raman-Spektroskopie, mit der sowohl Wasserdampf- als auch Nebelanteil bestimmt werden können. Deren Eignung wurde von CHRIST [Chr08] nachgewiesen („*Laser*“-*Methode*). Allerdings stellte KAUFMANN [Kau99] fest, dass die Tauglichkeit optischer Messverfahren bei Nebelanteilen von 5 Ma.-% der Kondensatmasse, bzw. $\xi_{N,A} > 12$ Ma.-% nicht mehr gegeben war, weshalb diese Methode für die Nebelmessung in Anbetracht des Aufwands nicht zielführend sein kann.
2. Indirekte Messung des Restdampfgehalts durch die Bestimmung des Taupunkts $T_{D,A}^S$ des Restgases über das Gesetz der idealen Mischung $\xi_{D,A} = \gamma_{D,A} \cdot \frac{M_D}{\gamma_{D,A}M_D + (1-\gamma_{D,A})M_{CO_2}}$, wobei $\gamma_{D,A} = \frac{p_{D,A}^S(T_{D,A}^S)}{p_{G,A}}$ („*Taupunkt*“-*Methode*)

Für die Messung des Nebelanteils sind neben der *Laser*-Methode folgende Konzepte denkbar:

1. Direkte Bestimmung des Nebelanteils $\xi_{N,A} = \frac{\dot{m}_{N,A}}{\dot{m}_{Ges,A}}$ mittels des „Drei Wellenlängen Extinktionsverfahrens“, wie es z.B. SCHABER et al. benutzten [SSZ94] („*Drei-Wellenlängen-Extinktions*“-*Methode*).
2. Direkte Bestimmung des Nebelanteils über ein Aerosol-Abscheideverfahren (z.B. Elektropartikelfilter) durch die zeitbezogene Gewichtsbestimmung der Abscheidemasse und Messung des Restgas- und Kondensatmassenstroms $\xi_{N,A} = \frac{\dot{m}_{N,A}}{\dot{m}_{Ges,A}}$ („*Abscheide*“-*Methode*)
3. Indirekte Messung des Nebelanteils durch eine Taupunktmessung im Restgasstrom (s. Taupunktmess-Methode mit $\dot{m}_{D,E} = \dot{m}_{D,A}(T_D^S) + \dot{m}_K + \dot{m}_{N,A}$ und $\xi_{N,A} = \frac{\dot{m}_{N,A}}{\dot{m}_{G,A}}$) „*kombinierte Taupunkt*“-*Methode*)

Als kleinste, sicher zu erfassende Messwerte Δz_{min} gelten im Falle einer Wiegung 0,01 kg, einer Temperaturmessung 1 °C, einer Druckmessung 0,8 % auf den Messbereich und einer ramanspektroskopischen Lasermessung 5 Vol.-%. Für ein aus mehreren Größen bestehendes Δz_{min} empfiehlt sich die Bildung der Gauß'schen Fehlerquadratsumme

$$\Delta z_{min} = \sqrt{\sum_{i=1}^{i=n} \left(\frac{\partial f}{\partial z_i} \right)^2 (\Delta z_{min})^2}, \quad (6.6)$$

ähnlich der Systematik in der Messunsicherheitsberechnung (s. Gleichung 5.3). Der für die Messung interessante Bereich erstreckt sich dabei von 0 bis etwa 34 Massen-% Restdampf- bzw. Nebelanteil.

Die oben genannte *Laser-Methode* ist eine der wenigen Messtechniken, die die Wasserdampfkonzentration (volumetrisch) direkt messbar macht. Allerdings ist fraglich, ob sich

der Einsatz dieser sehr aufwändigen Technik (s. [Kar05]) lohnt, da die Werte der Messsensitivität in Abbildung 6.5 im interessanten Nebelanteilsbereich deutlich kleiner als 20 % der Werte der *Taupunkt-Methode* sind.

$$a = \frac{p_{D,A}^S}{p_{G,A} \Delta z_{\min}} \frac{M_D}{\left(M_D \frac{p_{D,A}^S}{p_{G,A}} + M_{CO_2} \left(1 - \frac{p_{D,A}^S}{p_{G,A}} \right) \right)}$$

$$d = \frac{\gamma_{D,A}}{\Delta z_{\min}} \frac{M_D}{\left(M_D \gamma_{D,A} + M_{CO_2} (1 - \gamma_{D,A}) \right)}$$

$$b = \frac{\dot{m}_{D,E} - \dot{m}_K - \frac{p_{D,A}^S}{p_{G,A}} \frac{M_D}{M_D \frac{p_{D,A}^S}{p_{G,A}} + M_{CO_2} \left(1 - \frac{p_{D,A}^S}{p_{G,A}} \right)}{\left(\dot{m}_{D,E} - \dot{m}_K + \dot{m}_{CO_2} \right) \Delta z_{\min}} \left(\dot{m}_{CO_2} + \dot{m}_{D,E} - \dot{m}_K \right)}$$

$$c = \frac{\dot{m}_{N,A}}{\left(\dot{m}_{D,E} - \dot{m}_K + \dot{m}_{CO_2} \right) \Delta z_{\min}}$$

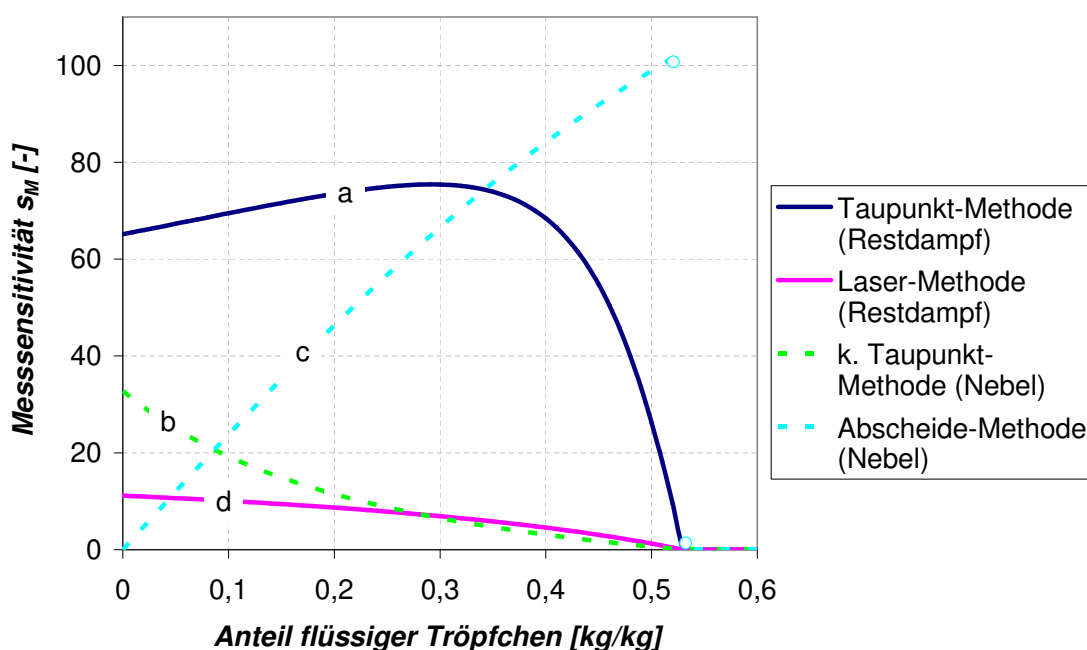


Abbildung 6.5: Messsensitivität über dem Nebelanteil im Restgas nach dem Kondensator. Berechnet für ein Wasserdampf/Kohlendioxid-Gemisch mit $\xi_{CO_2} = 0,47$, $p_{G,A} = 1$ bar, $\Delta z_{\min,a} = [0, 1; 1, 0]$ Ma.-%, $\Delta z_{\min,b} = [1, 6; 5, 0]$ Ma.-%, $\Delta z_{\min,c} = [4, 0; 5, 0]$ Ma.-% und $\Delta z_{\min,d} = 5, 0$ Ma.-%

Diese besitzt nach Abbildung 6.5 sehr hohe s_M -Werte zwischen 65 und 75 Punkten. Eine bedeutende Eigenschaft der *Taupunkt-Methode* ist außerdem, dass der Restdampfgehalt und der Nebelanteil gleichzeitig gemessen werden können (s. *kombinierte Taupunkt-Methode*). Diese ist für beide Belange bezüglich der erreichbaren Messsensitivität gut geeignet.

Auf die Beurteilung der Sensitivität s_M nach (5.1) der *Drei-Wellenlängen-Extinktions-*

Methode wurde verzichtet, da sich dieses Verfahren laut KAUFMANN nur bis zu einer volumetrischen Nebelkonzentration von $2 \cdot 10^{-5} \frac{m^3_N}{m^3_{Ges}}$ eignet. Realistisch seien aber bis zu 30-mal größere Werte (vgl. [Kau99]).

Die s_M -Werte der *Abscheide-Methode* verläuft entlang einer Ursprungsgeraden, deren Steigung im Wesentlichen von der Messgenauigkeit der Wägung (Zeitnahme und Ermittlung des kumulierten Aerosolgewichts) des abgeschiedenen Aerosolanteils abhängt. Der kritische Punkt dieses Verfahrens liegt in der nicht gemessenen Trennschärfe zwischen Wasserdampf und den 2-3 μm großen Nebeltröpfchen (vgl. [Kau99]).

Für die Versuchsanlage werden daher aufgrund der hohen Messsensitivitäten und der Synergieeffekte die *Taupunkt-* sowie die *kombinierte Taupunkt-Methode* zur Messung des Restdampf- und Nebelanteils im Restgasstrom eingesetzt.

6.5 Aufbau und Funktion der Versuchsanlage

Der Versuchsaufbau des Kondensatzirkulationskonzepts im Labormaßstab soll so gestaltet sein, dass sowohl für das Kondensatzirkulations- als auch für ein konventionelles Rohrbündelkonzept eine Messung von Restdampf- und Nebelanteil im Restgas möglich ist. Dafür wurde ein Rohrbündelkondensator mit Kondensatzirkulation aufgebaut, dessen Messsensoren über eine Messdatenerfassung ausgelesen und auf einem Datenträger gespeichert werden. Lediglich die Daten der Kondensatwägung (1) wird manuell abgespeichert.

Der Rohrbündelkondensator besteht aus 16 X5CrNi18-10 Rohren ($d_a = 0,012$ m, $d_i = 0,008$ m, $L_R = 0,610$ m, $s_q = 0,016$ m), die in einer Fest-Loslagerung zwischen zwei Flanschen eingebettet sind, wobei die Loslagerseite über ein O-Ringkonzept gedichtet wird. Das Kühlwasser aus (5) wird über, jeweils an der Flanschaußenseite befestigten, Klöpperböden in die Rohre eingespeist und wieder gesammelt abgeführt. Dabei werden die Ein- und Ausgangstemperaturen über (8) und (23) sowie der Volumenstrom über (7) von der Messdatenerfassung aufgezeichnet und abgespeichert. Da die Kühlwassertemperatur starken Schwankungen von bis zu $0,7$ °C/h unterliegt, wird das Kühlwasser auf eine einstellbare Temperatur über den Durchlauferhitzer (6) eingeregelt.

Damit die ablaufenden Prozesse im Kondensator sichtbar sind, besteht dessen $0,25$ m im Durchmesser messende Außenhülle (11) aus transparentem, 5 mm dickem Polycarbonat, welches bis $p_K < 2,4$ bar dauerhaft 135 °C Materialtemperatur aushält. Dieses wird mittels 8, über den Umfang verteilten, Zugstangen zwischen den beiden X5CrNi18-10 Flanschen in die Radial-Axialdichtungen gedrückt und dazwischen vorgespannt. Die unterschiedlichen thermischen Ausdehnungen der Stahlrohre und der Polycarbonataußenhülle werden über die Fest-Loslagerung der Rohre kompensiert. Die Schrauben der Zugstangen werden im Kaltzustand nur handfest angezogen, da diese erst durch die Ausdehnung des Polycarbonats bei Betriebstemperatur ihre Sollspannung erreichen. Folglich wird der kalte Kondensator zunächst nur radial und erst im betriebswarmen Zustand radial und axial

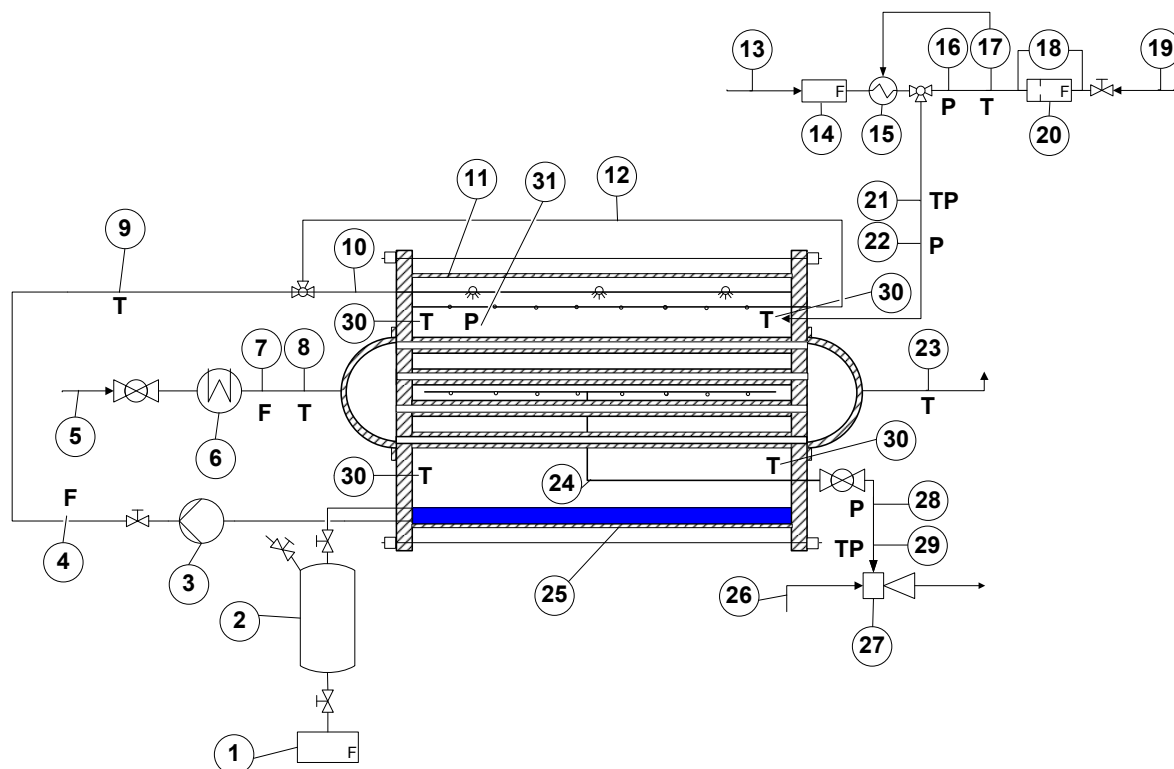


Abbildung 6.6: Prinzipieller Aufbau des Labormodellkondensators zur Untersuchung des Kondensatzirkulationskonzepts, bestehend aus (1) Kondensatwaage mit Zeitmessung, (2) Zu- und Ablauf-steuerbarer Kondensatsammelbehälter mit Entlüftungsventil, (3) Kondensatzirkulationspumpe, (4) Volumenstrommessung, (5) Kühlwasserversorgung, (6) temperaturgeregelter Durchlauferhitzer, (7) Volumenstrommessung, (8) und (9) Temperaturmessung, (10) Kondensatverteiler mit drei 90°-Hohlkegelspritzdüsen, (11) zylindrische, transparente Kondensatorwand aus Polycarbonat, (12) zwei-strängiger Kondensattropfenverteiler mit je 10 Bohrungen, (13) CO_2 -Zulauf, (14) massenstromgeregeltes Gasventil, (15) temperaturgeregelte Heizstrecke, (16) und (17) Druck- und Temperaturmessung zur Dichtebestimmung des Dampfes, (18) Differenzdruckmessung, (19) Dampfzuleitung, (20) Normblende, (21) Taupunktmessung, (22) Druckmessung, (23) Temperaturmessung Kühlwasserausgang, (24) Absauglanze für Restgas, (25) Kondensat, (26) Treibdruck (Luft, 3 bar), (27) Gasstrahlpumpe, (28) Druckmessung, (29) Taupunktmessung, (30) vier Temperatursensoren für den Dampfraum des Kondensators und schließlich (31), dem Kondensatordrucksensor

gedichtet, weshalb er erst dann die Nenndichtigkeit nach Auslegung (0,0025 bar/Std. bei 0,02 bar) erreicht.

Das Gas-Dampf-Gemisch wird über die Zugänge (13) und (19) gespeist. Der Dampf tritt mit 2 °C Überhitzung in die beheizte Misch- und Messstrecke ein und passiert kurz nach Eintritt die Differenzdruckmessung (18) über die Normblende (Viertelkreisdüse) (20). Mit Hilfe des Differenzdrucks und der aus der Temperatur- und Druckmessung (16) und (17) berechneten Dampfdichte erfolgt die Berechnung des Dampfmassenstroms nach VDI/VDE-Richtlinie 2041 (s. auch DIN 5167). Vor Eintritt des Kohlendioxids in die temperaturgeregelte Heizstrecke, in der das Kohlendioxid auf die Gemischtemperatur erwärmt wird, wird dessen Massenstrom über ein Heißfilmanemometerprinzip (14) ermittelt. Beide Gase werden anschließend in einem ca. 1 m langen Rohr vermischt, das mit einem speziell geformten Kupferdraht bestückt ist, welcher die Strömungsturbulenz deutlich erhöht. Noch vor Eintritt der Gas-Dampf-Mischung in den Kondensator werden Taupunkt (21) $T_{TP} = T_D^S$ und Ruhedruck (22) $p_{K,E,0}$ der Mischung gemessen. Der Eintritt in den Kondensator ist so gestaltet, dass sich das Gemisch zwischen Rohrbündel und Kondensatverteilsystem, (10) und (12), optimal verteilen kann und die Rohrbündel im Wesentlichen quer von oben nach unten angeströmt werden. Die sich im Kondensator einstellenden Zustandsgrößen für Druck und Temperatur werden über die Sensoren (31) und (30) gemessen.

Im Rohrbündel werden die nicht kondensierbaren von den kondensierbaren Bestandteilen durch Kondensation getrennt. Das dabei anfallende Kondensat läuft nach unten über die Rohre ab und fällt in den Kondensatsumpf (25). Von dort aus wird der Kondensatrezirkulationskreislauf mittels der Kondensatrezirkulationspumpe (Membrandosierpumpe) (3) gespeist. Der eingestellte Volumenstrom wird über (4), die Rezirkulationstemperatur über (9) aufgezeichnet. Das zu rezirkulierende Kondensat kann nach dem Dreivegeventil entweder über einen Fein- oder einen Grobtropfenverteiler (10) und (12) in den Kondensator eingebracht werden. Die gebildeten Tropfen haben einen Durchmesser von ca. 50 μm und werden von drei 90°-Hohlkegeldüsen erzeugt deren Spritzkegel sich noch über dem Rohrbündel überschneiden. Die 3-4 mm großen Tropfen werden über zwei Rohrlanzen mit jeweils 10, 2 mm großen, Tropfenlöchern direkt auf die jeweils äußeren Rohrreihen zielend in den Kondensator eingebracht. Dabei werden sie durch den an ihnen kondensierenden Dampf erwärmt, kühlen anschließend, während sie über die Rohrreihen ablaufen, wiederum auf die Temperatur T_R^* ab und fallen schließlich in den Kondensatsumpf. Aus diesem wird das Kondensat mit Temperatur T_R wieder der Rezirkulation zugeführt, wodurch der Kreislauf geschlossen wird.

Die druckluftbetriebene (26) Gasstrahlpumpe (27) saugt über die Absauglanze (24), deren Saugbohrungen nach unten ausgerichtet sind, die Restgase aus dem Rohrbündelsymmetriezentrum ab. Die Absauglanze selbst ist berührungsfrei und zentral zwischen den beiden mittleren Rohrreihen ausgerichtet und wird durch die mittig angeschweißte, senkrecht nach unten in den Kondensatsumpf führende Restgasleitung fixiert. Von

dort aus schwenkt sie senkrecht zur Rohrbündellängsachse aus dem Tropfenbereich hinaus bzw. hoch, um dann erneut parallel zur Absauglanze in Höhe der Rohrbündelmitte aus dem Kondensator in den Messbereich zu führen. Mit diesem Konzept der Restgasabsaugung kann eine Überhitzung keineswegs, eine Kondensation des Restdampfgehalts jedoch sicher vermieden werden. Kurz nach Kondensatoraustritt finden Ruhedruck- (27) und Taupunktmessung (28) zur Bestimmung des Dampfgehalts statt.

Die im Kondensatsammelbehälter (2) (über Ablauf aus dem Kondensatsumpf gespeist) kumulierte Flüssigkeit wird nach der Messzeit in ein Auffanggefäß abgelassen und mit der Kondensatwaage (1) gewogen. Um die Trägheit des Systems möglichst gering zu halten steht der Kondensator mit etwa 3° Neigung in Ablaufrichtung, zusätzlich ist der Kondensatsumpf mit PTFE-Stangenmaterial befüllt, womit sich ein gemessenes, verbleibendes Kondensatsumpfvolumen von 0,51 dm^3 ergibt.

6.6 Bestimmung der systematischen Messunsicherheit nach DIN 1319

Wie bei der Untersuchung zu den Wärme- und Stoffübergängen am quer überströmten Einzelrohr (s. Kapitel 5.5 ff) unterliegen die einzelnen Messgrößen der Modellfunktion $Y = f(X_1, X_2, \dots, X_m)$ sowohl zufälligen als auch systematischen Messunsicherheiten $u(x_i)^{zuf}$, respektive $u(x_i)^{sys}$. Die Vorgehensweise in der Berechnung der einfachen Messunsicherheit entspricht deshalb jener in den Kapiteln 5.5.1 bis 5.5.5. Im Folgenden wird die bekannte systematische Messunsicherheit der einzelnen Messtechniken analysiert.

6.6.1 Temperaturmessung

Zur Temperaturmessung im Labormodellkondensator werden chargengleiche Mantelthermoelemente vom Typ K nach DIN EN 60584 mit je 1 mm Manteldurchmesser an den Positionen (8), (9), (23) und (30) eingesetzt. Für deren Grenzabweichung $u(x_i)^{sys}$ gilt im Bereich von -40 °C bis 1000 °C der größere Wert von $u(x_i)^{sys} = \pm 1,5 \text{ °C}$ oder $u(x_i)^{sys} = \pm 0,004 \cdot T_M \text{ °C}$. An der Position (17) wird hingegen ein Einschraubensensor vom Typ PT 100 der Klasse A (s. Abbildung 6.7) eingesetzt, wobei für diesen nach DIN EN 60751 eine Grenzabweichung von $u(x_i)^{sys} = \pm (0,15 + 0,002 \cdot T_M) \text{ °C}$ gilt.

Die tatsächlich sensorabhängigen, systematischen Messabweichungen $u(x_i)^{sys}$ der Temperaturen T_D (17) und T_R (9) werden mit Hilfe von Eiswasser $T_{Vgl} = 0,01 \text{ °C}$ und siedendem Wasser $T_{Vgl} = f(p_\infty) \text{ °C}$ bestimmt. Aufgrund des, im Bereich $T_M = [0; 100]$, nahezu linearen Thermospannungs-Temperatur-Verlaufs eines Thermoelements ($\Delta T_{max} = T_{DIN60584-1} - T_{linear} = 0,53 \text{ °C}$, $r^2 = 0,99996$) sind zwei Fixpunkte zur Bildung einer linearen Messwertkorrekturfunktion $-K_i$ ausreichend. Ähnliches gilt für den Widerstands-Temperatur-Verlauf des Widerstandstemperatursensors (17) ($\Delta T_{max} = T_{DIN60751} - T_{linear} = 0,38 \text{ °C}$, $r^2 = 0,99998$).

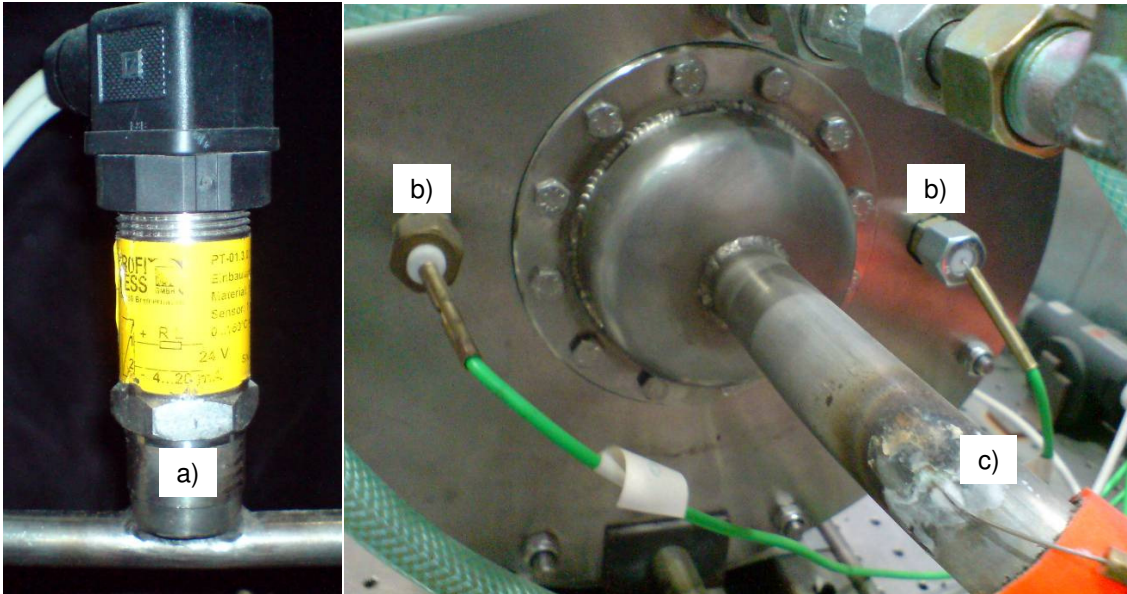


Abbildung 6.7: Einbaumethoden der Temperatursensoren: a) (17) PT 100 mit Einschraubverbindung, Sensorkopf taucht 2 mm in Gasströmung ein; b) (30) Thermoelement Typ K mit PTFE-Adapter für Schneidringverbindung, $E_T \approx 0,9$; c) (8) und (23) Thermoelement Typ K eingelötet im Hartlötverfahren, $E_T \approx 0,7$

Anders als bei den bisherigen Kalibrierungen der Temperatursensoren liegt die Standardabweichung des Temperatursignals am Widerstandsthermometer (17) in siedendem Wasser in der Größenordnung von der nach DIN 60751 genannten Grenzabweichung (s. Tabelle 6.1). Gründe hierfür sind die bauartbedingte geringe Eintauchtiefe und die vergleichsweise große, zu erwärmende Masse des PT 100 Temperatursensors, die in stark siedendem Wasser zu einer relativ hohen Temperaturschwankung führen.

Tabelle 6.1: Ergebnisse der Thermoelementkalibrierung von T_D (26 Messpunkte) und T_R (69 Messpunkte)

Thermoel.	x_i [°C]	T_{Vgl} [°C]	ΔT [°C]	$u(x_i)^{zuf}$ [°C]	$-K_i$ [°C]
T_D	98,557*	98,543	-0,014	0,143	
T_D	-0,032	0,01	0,042	0,035	$0,0006T_M + 0,0420$
T_R	99,070**	98,490	-0,580	0,023	
T_R	0,073	0,01	-0,063	0,014	$-0,0052T_M - 0,0635$

* Einfluss der Wärmeleitung im Temperatursensor: $\Delta T = 0,670$ °C

** s. Tabelle 5.1

Die Kühlwassertemperatursensoren $T_{KW,A}$ (8) und $T_{KW,E}$ (23) stammen aus dem Versuchsstand zur Wärmestrommessung (s. Kapitel 5.6.1). Die dafür ermittelten Korrek-

turgleichungen aus der Kalibrierung (s. Tabelle 5.1) werden nach dem Einlöten in die Kühlwasserzu- und -abführung (s. Abbildung 6.7) wegen möglicher Veränderungen durch die Wärmeeinwirkung beim Hartlötprozess nicht herangezogen. Es wird jedoch, wie in Kapitel 5.6.1, eine Vergleichsmessung mit einem kalibrierten Thermoelement zur Einschränkung der systematischen Messunsicherheit durchgeführt. Als Vergleichssensor dient der Temperatursensor an Position (9) zur Messung der Rezirkulationstemperatur T_R . Der Vergleichsmessung geht wieder eine Stillstandszeit der Anlage von 48 Stunden voraus. Die über 100 Messpunkte gemittelte, korrigierte Referenztemperatur ergab $T_{Vgl} = T_R^{korrr} = 20,605$ °C. Die zufälligen Messabweichungen betragen dabei $u(x_i)^{zuf} = 0,016$ °C. Die Ergebnisse der Vergleichsmessung für die beiden Kühlwassersensoren befinden sich in Tabelle 6.2. Daraus wird für die systematische Messunsicherheit für den Messbereich $x_i \in [10; 40]$ °C abgeleitet: $u(x_i)^{sys} = 0,2$ °C und für deren Korrekturwert $K_i = 0$ °C.

Tabelle 6.2: Messwerte von $T_{KW,E}$ und $T_{KW,A}$ zur Bestimmung derer systematischen Messunsicherheit $u(x_i)^{sys}$ (je 100 Messpunkte)

Messposition	$u(x_i)^{zuf}$ [°C]	x_i [°C]	$\Delta T = T_{Vgl} - x_i$ [°C]
$T_{KW,A}$ (8)	0,009	20,580	-0,025
$T_{KW,E}$ (23)	0,011	20,484	-0,121

6.6.2 Druckmessung

An Position (18) wird zur Messung des Druckverlustes Δp_{NB} über der Normblende (20) (Typ: Viertelkreisdüse nach VDI 2041) ein hochempfindlicher Differenzdrucktransmitter (Messbereich: $p_M = [0, 0; 0, 1]$ bar) eingesetzt. Der Hersteller gibt dafür eine systematische Messunsicherheit von $u(x_i)^{sys} = 0,0001$ bar an.

Der Druck an den Positionen (16), (22), (28) und (31) wird jeweils über eine Abolutdruckmessung erfasst. Dabei handelt es sich bei (16), (22) und (28) um eine Messung des statischen Drucks p_{stat} , der jeweils durch ein ca. 200 mm langes, im 90° Winkel abzweigendes und mit einer 360° Schleife versehenes Rohr von der Gasströmung entfernt erfasst wird. Im Bedarfsfall wird diese über die Berechnung des dynamischen Drucks p_{dyn} mit Hilfe der Bernoulligleichung für reibungsfreie Strömungen (unter Vernachlässigung des geodätischen Drucks) korrigiert:

$$p = p_{stat} + p_{dyn} = p_{stat} + \frac{\rho_G}{2} v_G^2. \quad (6.7)$$

Die Dichte der Mischung

$$\rho_G = \gamma_{CO_2} \rho_{CO_2} + \gamma_D \rho_D \quad (6.8)$$

wird für das Kohlendioxid aus der Mischungstemperatur $T_{K,E}$ und dem Kondensatordruck p_K bzw. für den Wasserdampf aus der Dichtebestimmung der Messblende berechnet oder übernommen.

Die systematischen Messunsicherheiten der Absolutdruckaufnehmer an den Positionen (16) (Messbereich: $p_M = [0; 4]$ bar), (22), (28) und (31) (Messbereich je: $p_M = [0; 1]$ bar) sind in Tabelle 6.3 aufgelistet. Die Werte für $u(x_i)^{sys}$ basieren auf einer Vergleichsmessung mit einem geeichten Drucktransmitter für den Umgebungsdruck p_∞ . Da es sich bei den zu messenden Drücken um Werte handelt, die im Bereich von $\pm 2\%$ um die Kalibrierwerte schwanken, wird angenommen, dass eine Einpunkt-Kalibrierung zur Korrektur der Messwerte x_i genügt.

Tabelle 6.3: Kalibrierung von p_M der Druckaufnehmer (16), (22), (28) und (31) (je 100 Messpunkte)

Messposition	$u(x_i)^{zuf}$ [bar]	x_i [bar]	p_{Vgl} [bar]	$\Delta p = p_\infty - x_i = -K_i$ [bar]
p_D (16)	0,0004	0,9582	0,9558	-0,0024
$p_{K,E}$ (22)	0,0005	0,9482	0,9558	0,0048
$p_{K,A}$ (28)	0,0004	0,9510	0,9558	0,0076
p_K (31)	0,0008	0,9630	0,9624	-0,0035

6.6.3 Taupunktmessung

Die Messung des Taupunkts T_{TP} dient neben der Bestimmung des dort herrschenden Gasgemischdrucks als Basis zur Bestimmung des Massenanteils an Dampf ξ_D im Gasgemisch (Ansatz und Berechnung s. Kapitel 6.7.2). Für diese Arbeit wird ein sehr einfaches Konzept der Taupunktmessung verwendet, wie es auch von NOLTE [Nol89] zur Bestimmung des Dampfanteils eingesetzt wurde. Der Aufbau und das Funktionsprinzip dieses Sensors sind in Abbildung 6.8 dargestellt.

Das Funktionsprinzip basiert auf der Kühlung der nur 0,02 mm dicken Kupferfolie, wodurch der Dampf des vorbeiströmenden Gasgemischs an deren Außenfläche kondensiert. Durch die Interpretation des dabei aufgezeichneten Temperaturverlaufs (s. Abbildung 6.8 rechts) durch das auf der Sensorinnenfläche angeschweißte Thermoelement (Drahtdurchmesser 0,1 mm) lässt sich der Taupunkt bestimmen. Der charakteristische Temperaturverlauf zeigt zunächst eine Unterkühlung der Sensorfläche, infolge derer sich Kondensationskeime an der gekühlten Oberfläche bilden. Diese nehmen mit weiter absinkender Temperatur so stark zu, bis ein stabiles Keimwachstum erreicht ist und Kondensation eintritt. Die dabei entstehende Kondensationsenthalpie führt zu einer Erwärmung der Sensorfläche, da diese bei der, dem lokalen Gasgemisch entsprechenden, Gleichgewichtstemperatur $T_D^S \approx T_{TP}$ frei wird. Da die Kühlgrenztemperatur, die für den Fall eines überhitzten Wasserdampf-Inertgas-Gemischs unterhalb der Sättigungstemperatur liegt, erst nach der ersten Tropfenkondensation erreicht werden kann, wird das aus zeitlich aufgelöste Messdaten abgeleitete Messergebnis dadurch nicht verfälscht. Der Umschlag von Tropfen- auf Filmkondensation sowie die Verdunstung des Kondensats führen zu einer Abnahme des

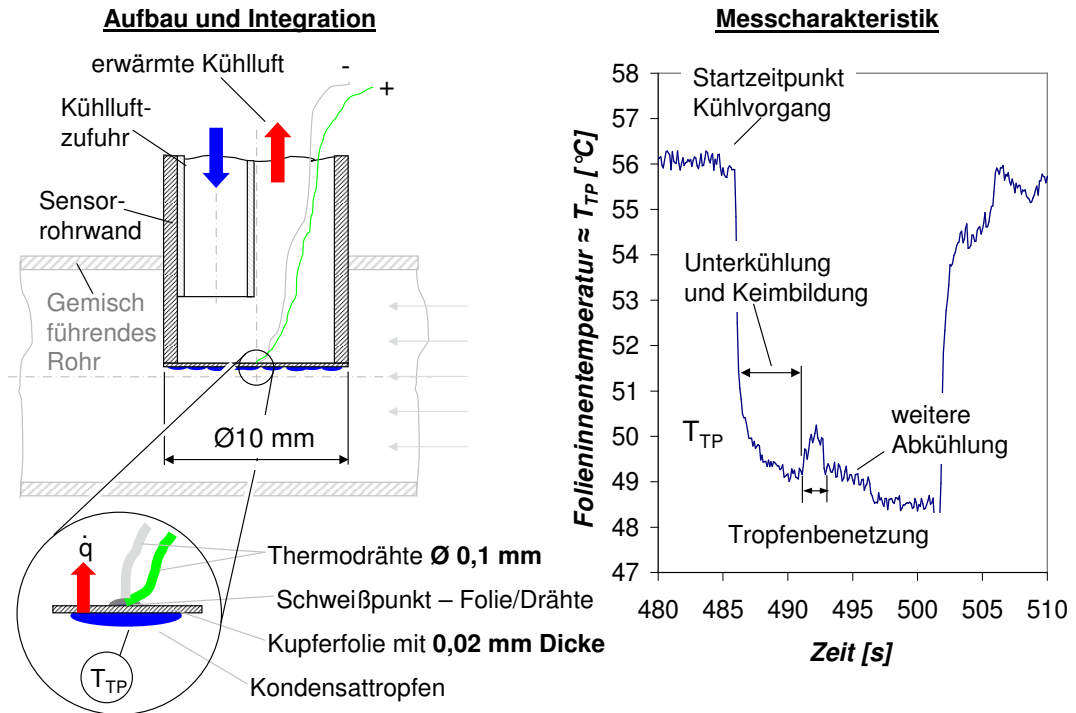


Abbildung 6.8: Aufbau und Integration des Taupunktsensors in ein Gasgemisch führendes Rohr (links) sowie typischer zeitlicher Verlauf der Temperatur während der Sensorkühlung

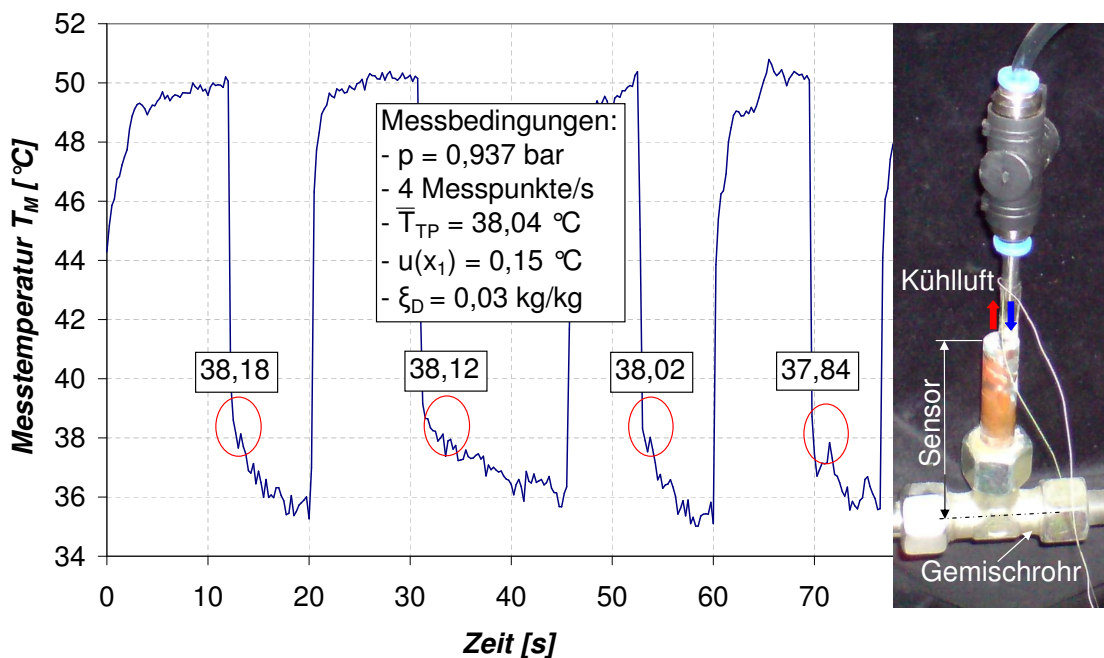


Abbildung 6.9: Reproduzierbarkeit der Taupunktmessung

Wärme- und Stoffübergangs, wodurch sich das Verhältnis aus ab- und zugeführter Wärme ändert und T_M auf die entsprechende Gleichgewichtstemperatur absinkt.

Das Thermoelement muss mit einer Frequenz von $f < 0,2$ s ausgelesen werden um das lokale Temperaturmaximum mit mindestens 6 Datenpunkten aufzeichnen zu können. Wie oben beschrieben und in Abbildung 6.8 verdeutlicht, zeigt sich der Taupunkt T_{TP} in einem lokalen Maximum, das sich über ca. 2 s Dauer um 0,8-1,2 °C deutlich von der sonst typischen Schwankungsbreite abhebt. Mit dieser Maximaltemperatur wird im Anschluß der Sättigungsdruck des Wasserdampfes berechnet, welcher die Basis für die Berechnung von γ_D und damit von ξ_D (s. Gleichung 4.8) bildet.

Zur Abschätzung der systematischen Messunsicherheit der Taupunktsensortemperatur T_{TP} werden Messungen mit reinem, gesättigtem Dampf herangezogen, aus deren Druckverläufe von p die zugehörige Sättigungstemperatur T_D^S berechnet werden kann (s. Tabelle 6.4). Aufgrund der Empfindlichkeit der Taupunktsensoren wurde auf einen Positionstausch der Sensoren (21) und (29) verzichtet und nur (21) kalibriert. Um die Ergebnisse dennoch für beide Sensoren nutzen zu können wurde deshalb nach einem 48-stündigen Anlagenstillstand eine Vergleichsmessung von T_M über 450 Messpunkte durchgeführt. Dabei wurde eine Abweichung der gemessenen Temperatur T_M des Sensors auf Position (29) vom Sensor auf Position (21) von $\Delta T_{TP} = -0,65$ °C festgestellt, wobei die zufälligen Messunsicherheiten für beide Sensoren im Bereich von $u(x_i)^{zuf} = 0,09$ °C lagen. Da beide Sensoren aus denselben Thermodrähten und Kupferfolien gestückelt und verbaut wurden, wird davon ausgegangen, dass $-K(T_{TP,A}) = -K(T_{TP,E}) + \Delta T_{TP} = 0,058$ °C gilt (s. Tabelle 6.4).

Tabelle 6.4: Kalibrierung von $T_{TP,E}$ des Taupunktsensors (21) mit gesättigtem Dampf bei $p_{K,E} = 1,0048$ bar, $u(p_{K,E})^{zuf} = 0,004$ bar (45 Messpunkte)

Messposition	$u(T_{TP,E})^{zuf}$ [°C]	$T_{TP,E}$ [°C]	$-K(T_{TP,E})$ [°C]
$T_{TP,E}$ (21)	0,094	99,057	0,708

Messtechnisch nicht berücksichtigt wird der Einfluss des Inertgases auf die Kondensation auf der Sensorfläche, welcher zur Ausbildung eines Temperaturgradienten senkrecht zur Oberfläche in der Grenzschicht führt. Dessen Abschätzung nach der in Kapitel 3.1.1 aufgezeigten Methode der Filmtheorie ergibt eine Taupunkttemperatur T_{TP} , die um ca. 0,14-0,28 °C ($\xi_D = 0,85$, $p = 0,96$ bar, $v_G = 30 \frac{m}{s}$, $\alpha_i = 150 \frac{W}{m^2K}$ bzw. $\alpha_i = 300 \frac{W}{m^2K}$) höher liegt als die gemessene Folieninnentemperatur T_M . Der Einfluss dieser Differenz auf den Dampfgehalt spielt aufgrund des exponentiellen Zusammenhangs zwischen Druck und Temperatur bei Sättigung nur bei sehr hohen Dampfgehalten $\xi_D > 0,89$ eine Rolle. Dort wird bei einem Druck von $p = 0,96$ bar die Schwelle von $\Delta \xi_D > 0,01$ überschritten. Für die interessantere Messung der Gaszusammensetzung nach dem Kondensator, wo $\xi_D < 0,3$ gilt, wird dies deshalb nicht berücksichtigt.

6.6.4 Massenstrommessung

Zusätzlich zur Taupunktmessung wird der Dampfgehalt vor und nach dem Kondensator aus der Massenbilanz

$$\dot{m}_{D,E} + \dot{m}_{CO_2,E} = \dot{m}_{CO_2,A} + \dot{m}_{D,A} + \dot{m}_K + \dot{m}_{N,A} \quad (6.9)$$

bestimmt. Dafür werden die Massenströme $\dot{m}_{D,E}$, $\dot{m}_{CO_2,E} \approx \dot{m}_{CO_2,A}$ ¹ und \dot{m}_K gemessen, wodurch sich, in Verbindung mit der Taupunkttemperatur, die Aufteilung von $\dot{m}_{N,A}$ und $\dot{m}_{D,A}$ ergibt.

Der Massenstrom $\dot{m}_{CO_2,E}$ wird über einen thermischen Massendurchflussregler (14) erfasst (Mess- und Regelbereich: $\dot{m}_{CO_2,E} = [0; 12]$ kg/h), dessen systematische Messunsicherheit $-K(\dot{m}_{CO_2,E})$ aus dem Hersteller-Kalibrierprotokoll (s. Tabelle 6.5) abgeleitet werden kann.

Tabelle 6.5: Systematische Messunsicherheit $-K(\dot{m}_{CO_2,E})$ als Funktion des Gebersignals S , mit $S \in [2; 10]$ V, des thermischen Massendurchflussreglers (14)

Messposition	$u(x_i)^{sys}$ [kg/h]	$-K(\dot{m}_{CO_2,E})$ [kg/h]
$\dot{m}_{CO_2,E}$ (14)	0,018	$0,0052 \cdot S^2 - 0,0498 \cdot S + 0,1103$

Die Kondensatmasse m_K wird durch Wiegung des in einem festgelegten Zeitintervall t_K gesammelten Kondensats mit der Kondensatwaage (1) bestimmt. Dafür läuft über eine waagrecht in den Kondensatsumpf führende Rohrleitung Kondensat aus dem Kondensatsumpf. Die systematische Messunsicherheit im Kondensatmassenstrom \dot{m}_K teilt sich folglich in die Bereiche Zeitmessung und Wiegung auf. Zur Messung der Zeit wird eine quartzgesteuerte Stoppuhr verwendet, deren typische Messunsicherheit pro Sekunde $u(x_i)^{sys} \approx 5,8 \cdot 10^{-6}$ s beträgt und deshalb bei einer Messzeit von $t_M \approx 1380$ s vernachlässigbar ist. Nicht vernachlässigbar hingegen ist die Abweichung die durch das Bedienen derselben entsteht, wobei diese für t_K mit $u(t_K)^{sys} = 0,5$ s abgeschätzt wird. Für die Wiegung des Kondensats wird eine Digitalwaage eingesetzt, deren Ablesunsicherheit bei $\pm 0,005$ kg liegt und damit größer ist als die mit dem Kalibriergewicht ermittelbare, eventuell vorhandene systematische Messunsicherheit. Zusätzlich können zufällige Höhenschwankungen im Kondensatablauf z.B. durch Änderung der Oberflächenspannung zu einer geringeren oder höheren Kondensatmasse führen. Diese werden mit $\Delta h_K = \pm 0,5$ mm, respektive $0,012$ kg abgeschätzt. Somit ergibt sich für die systematische Unsicherheit der Kondensatmasse m_K ein Wert von $u(m_K)^{sys} = 0,0075$ kg/h.

Der Dampfmassenstrom $\dot{m}_{D,E}$ wird mittels einer Blendenmessung bestimmt. Diese setzt sich aus der Normblende (20) (Typ: Viertelkreisdüse nach VDI 2041), der Differenzdruck-

¹Es werden unter den Versuchsbedingungen durchschnittlich 0,7 g Kohlendioxid pro kg Kondensat absorbiert, was bei einem Kondensatmassenstrom von etwa 6,2 kg/h zu einem vernachlässigbaren Kohlendioxidverlust von 0,4 % führt.

messung (18) und der Temperatur- und Druckmessung, (17) und (16), zusammen. Der Differenzdruck über der Blende dient zur Berechnung der Dampfgeschwindigkeit, die in Verbindung mit der Dichtebestimmung aus der Temperatur- und Druckmessung zum Dampfmassenstrom führt (Berechnung s. Kapitel 6.7.1). Die systematischen Messunsicherheiten der Temperatur-, Absolutdruck- und Differenzdruckmessungen sind in den Kapiteln 6.6.1 und 6.6.2 dokumentiert und können aufgrund ihrer Abhängigkeiten untereinander in der Blendenberechnung nach VDI 2041 nicht zu einer systematischen Gesamtmessunsicherheit zusammengeführt werden.

6.6.5 pH-Wert Messung

Um den Einfluss der Kondensatzirkulation auf den Kohlesäurehaushalt des Kondensats zu untersuchen werden dort pH-Wert-Messungen durchgeführt. Zum Einsatz kommt hier ein sogenannter „pH-Tester“ mit einem Messbereich von $pH = [0,00; 14,00]$ und einer Messunsicherheit von $u(pH)^{sys} = 0,20$ (Herstellerangabe). Letztere muss der zufälligen Messunsicherheit mittels einer Rechteckverteilung zugerechnet werden. Die Bestimmung der bekannten systematischen Messunsicherheit $-K_{pH}$ nach (5.9) erübrigt sich, da die Sensorkennlinie vor jeder Messung mit zwei Lösungen (mit unterschiedlichen, bekannten pH-Werten) kalibriert wird.

6.7 Verarbeitung der Messdaten

In diesem Kapitel wird der Zusammenhang zwischen den Daten aus der Messung und den Ergebnisparametern Y_i bzw. den damit verbundenen Messunsicherheiten $u(y_i)$ in Kapitel 6.9 hergestellt. Die einzelnen Y_i lauten: Restdampfgehalt, Nebelgehalt und pH-Wert. Insbesondere die ersten beiden Kennzahlen stellen wichtige Parameter zur Beurteilung eines Oxyfuel-Kondensators dar.

6.7.1 Restdampfgehalt

Der Anteil des Dampfes $\xi_{D,A}$ im zu reinigenden Gasstrom vor und nach dem Kondensator wird über die *Taupunkt-Methode* (s. Kapitel 6.4) ermittelt. Basis für diesen Ansatz ist das Gesetz von Dalton und das Gesetz der idealen Mischung (s. (4.8))

$$\xi_{D,A} = \frac{p_{D,A}^S}{p_{G,A}} \cdot \frac{M_D}{\frac{p_{D,A}^S}{p_{G,A}} M_D + \left(1 - \frac{p_{D,A}^S}{p_{G,A}}\right) M_{CO_2}}, \quad (6.10)$$

wobei der Ausdruck $\frac{p_{D,A}^S}{p_{G,A}}$ dem Molanteil des Dampfes $\gamma_{D,A}$ entspricht. Dass Gleichung (6.10) in Verbindung mit Realgasdaten (H_2O aus [Sch69] und CO_2 aus [Spa93]) auch für Wasserdampf-Kohlendioxid-Gemische sehr gute Ergebnisse liefert, wurde mit dem

Vergleich von Berechnungs- und Messdaten in Kapitel 4.5 nachgewiesen. Die Ergebnisse dieses Vergleichs sind in Tabelle 4.4 dokumentiert.

Als Unbekannte der Gleichung (6.10) müssen nunmehr der Sättigungsdruck $p_{D,A}^S$ und der Gemischdruck $p_{G,A}$ ermittelt werden. Letzterer wird jeweils aus dem gemessenen statischen Druck p_{stat} der Drucksensoren (22) und (28) und der in Kapitel 6.6.2 besprochenen Korrektur um den dynamischen Druck p_{dyn} berechnet. Der Sättigungsdruck $p_{D,A}^S$ des Dampfs wird aus den Taupunkttemperaturen T_{TP} der Sensoren (21) und (29) mittels der Stoffdatenbank für Wasserdampf nach SCHMIDT berechnet.

Die Messunsicherheit von $u(\xi_{D,A}) = f(p_{D,A}^S(T_{TP}), p_{G,A})$ berechnet sich nach Kapitel 5.5 aus der positiven Quadratwurzel von

$$u(\xi_{D,A})^2 = \left(\frac{\partial \xi_{D,A}}{\partial p_{D,A}^S(T_{TP})} \right)^2 u(p_{D,A}^S(T_{TP}))^2 + \left(\frac{\partial \xi_{D,A}}{\partial p_{G,A}} \right)^2 u(p_{G,A})^2 + 2 \frac{\partial \xi_{D,A}}{\partial p_{D,A}^S(T_{TP})} \frac{\partial \xi_{D,A}}{\partial p_{G,A}} u(p_{D,A}^S(T_{TP}), p_{G,A}). \quad (6.11)$$

Die Ergebnisse der aus den Messungen berechneten Messunsicherheiten $u(\xi_{D,A})$ werden in Kapitel 6.9.2 dargestellt.

6.7.2 Nebelanteil

Als Nebel sind hier kleinste Tröpfchen (Durchmesser nach KAUFMANN [Kau99] 2-3 μm) im Rauchgas zu verstehen, die, statt im Kondensator, nachgeschaltet abgeschieden werden müssen - z.B. durch einen Rotationsabscheider (s. Kapitel 3.1.4 und [Kau99]).

Um die Nebelbildung im Labormodell-Kondensator messtechnisch erfassen zu können, wird neben der Restdampfmesung durch die *Taupunkt-Methode* zusätzlich der Dampfmassenstrom am Kondensatoreintritt $\dot{m}_{D,E}$ über eine Blendenmessung an Position (20) erfasst (s. *kombinierte Taupunkt-Methode* in Kapitel 6.4). Da dieser Dampf um ca. 2 °C überhitzt ist und alle Dampf führenden Rohrleitungen auf Kondensatoreingangsseite zusätzlich beheizt werden, kann davon ausgegangen werden, dass sich dieser vollständig im dampfförmigen Zustand befindet. Somit lässt sich der Massenstrom an Nebel $\dot{m}_{N,A}$, der sich während der starken Abkühlung und Kondensation im Oxyfuel-Kondensator bildet, aus der Massenbilanz um den Oxyfuel-Kondensator mit

$$\dot{m}_{N,A} = \dot{m}_{D,E} - \dot{m}_{D,A} - \dot{m}_K \quad (6.12)$$

berechnen. Aus der Definition des Massenanteils $\xi_i = \frac{\dot{m}_i}{\sum_{j=1}^n \dot{m}_j}$ folgt schließlich die Berechnungsgleichung des Nebelanteils

$$\xi_{N,A} = \frac{\dot{m}_{D,E} - \dot{m}_{D,A} - \dot{m}_K}{\dot{m}_{D,E} - \dot{m}_K + \dot{m}_{CO_2}}, \quad (6.13)$$

wobei die zu messenden Größen in Gleichung (6.13) folgende sind: der Dampfmassenstrom vor Eintritt in den Kondensator $\dot{m}_{D,E} = f(T_D, p_D, \Delta p_{NB})$, der Dampfmassenstrom aus

dem Kondensator $\dot{m}_{D,A} = f(T_{TP}, p_{G,A})$, der anfallende Kondensatmassenstrom $\dot{m}_K = f(m_K, t_K)$ und der Kohlendioxidmassenstrom $\dot{m}_{CO_2} = f(v_{CO_2})$.

Der Dampfmassenstrom $\dot{m}_{D,E}$ wird aus der Blendenmessung an Position (20) nach der VDI-Richtlinie „Durchflußmessung mit Drosselgeräten; Blenden und Düsen für besondere Anwendungen“ VDI/VDE 2041 mit

$$\dot{m}_{D,E} = \frac{C}{\sqrt{(1 - \beta^4)}} \cdot \epsilon \pi d_{NB}^2 \cdot 0,25 \sqrt{(2 \cdot \Delta p_{NB} \cdot 10^5 \cdot \rho_D)} \quad (6.14)$$

berechnet. Hierbei ist C der Formfaktor ($C = 0,769 + 0,527 \cdot \beta^4 + 0,423 \cdot \beta^8 \approx 0,8127$), β das Verhältnis von Blendendurchmesser und Durchmesser des Rohres vor der Blende ($\beta = d_{NB}/d_R \approx 0,5285$) und ϵ die Expansionszahl

$$\epsilon = 1 - \left((0,484 + 1,54 \cdot \beta^4) \cdot \Delta p_{NB} \cdot (\kappa_D \cdot p_D)^{-1} \right) \approx 1 - (0,4543 \cdot \Delta p_{NB}/p_D). \quad (6.15)$$

Der Dampf- bzw. Restdampfmassenstrom $\dot{m}_{D,A}$ in der Absauglanze, Position (24), ergibt sich mit Gleichung (6.10) aus

$$\dot{m}_{D,A} = \xi_{D,A} (\dot{m}_{D,E} - \dot{m}_K + \dot{m}_{CO_2}). \quad (6.16)$$

Der Kondensatmassenstrom \dot{m}_K berechnet sich aus der Wägung des über die Zeit t_K gesammelten Kondensats nach

$$\dot{m}_K = \frac{m_K}{t_K}. \quad (6.17)$$

Die Messunsicherheit von $u(\xi_{N,A}) = f(\Delta p_{NB}, p_D, T_D, m_K, t_K, \dot{m}_{CO_2}, p_{D,A}^S, p_{G,A})$ folgt, nach Kapitel 5.5, aus der positiven Quadratwurzel von

$$\begin{aligned} u(\xi_{N,A})^2 &= \left(\frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial \Delta p_{NB}} \right)^2 u(\Delta p_{NB})^2 + \left(\frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial p_D} \right)^2 u(p_D)^2 + \left(\frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial T_D} \right)^2 u(T_D)^2 \\ &+ \left(\frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial m_K} \right)^2 u(m_K)^2 + \left(\frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial t_K} \right)^2 u(t_K)^2 + \left(\frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial \dot{m}_{CO_2}} \right)^2 u(\dot{m}_{CO_2})^2 \\ &+ \left(\frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial \Delta p_{D,A}^S} \right)^2 u(\Delta p_{D,A}^S)^2 + \left(\frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial p_{G,A}} \right)^2 u(p_{G,A})^2 \\ &+ 2 \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial \Delta p_{NB}} \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial p_D} u(\Delta p_{NB}, p_D) + 2 \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial \Delta p_{NB}} \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial T_D} u(\Delta p_{NB}, T_D) \\ &+ 2 \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial \Delta p_{NB}} \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial m_K} u(\Delta p_{NB}, m_K) + 2 \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial \Delta p_{NB}} \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial t_K} u(\Delta p_{NB}, t_K) \\ &+ 2 \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial \Delta p_{NB}} \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial \dot{m}_{CO_2}} u(\Delta p_{NB}, \dot{m}_{CO_2}) + 2 \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial \Delta p_{NB}} \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial p_{D,A}^S} u(\Delta p_{NB}, p_{D,A}^S) \\ &+ 2 \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial \Delta p_{NB}} \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial p_{G,A}} u(\Delta p_{NB}, p_{G,A}) + 2 \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial p_D} \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial T_D} u(p_D, T_D) \\ &+ 2 \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial p_D} \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial m_K} u(p_D, m_K) + 2 \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial p_D} \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial t_K} u(p_D, t_K) \\ &+ 2 \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial p_D} \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial \dot{m}_{CO_2}} u(p_D, \dot{m}_{CO_2}) + 2 \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial p_D} \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial p_{D,A}^S} u(p_D, p_{D,A}^S) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 & +2 \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial p_D} \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial p_{G,A}} u(p_D, p_{G,A}) + 2 \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial T_D} \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial m_K} u(T_D, m_K) \\
 & +2 \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial T_D} \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial t_K} u(T_D, t_K) + 2 \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial T_D} \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial \dot{m}_{CO_2}} u(T_D, \dot{m}_{CO_2}) \\
 & +2 \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial T_D} \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial p_{D,A}^S} u(T_D, p_{D,A}^S) + 2 \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial T_D} \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial p_{G,A}} u(T_D, p_{G,A}) \\
 & +2 \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial m_K} \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial t_K} u(m_K, t_K) + 2 \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial m_K} \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial \dot{m}_{CO_2}} u(m_K, \dot{m}_{CO_2}) \\
 & +2 \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial m_K} \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial p_{D,A}^S} u(m_K, p_{D,A}^S) + 2 \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial m_K} \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial p_{G,A}} u(m_K, p_{G,A}) \\
 & +2 \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial \dot{m}_{CO_2}} \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial p_{D,A}^S} u(\dot{m}_{CO_2}, p_{D,A}^S) + 2 \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial \dot{m}_{CO_2}} \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial p_{G,A}} u(\dot{m}_{CO_2}, p_{G,A}) \\
 & +2 \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial p_{D,A}^S} \frac{\partial \xi_{N,A}}{\partial p_{G,A}} u(p_{D,A}^S, p_{G,A}). \tag{6.18}
 \end{aligned}$$

Die Ergebnisse der aus den Messungen berechneten Messunsicherheiten $u(\xi_{N,A})$ werden in Kapitel 6.9.3 dargestellt.

6.7.3 pH-Wert Berechnung

Die pH-Wert-Bestimmung (s. Kapitel 3.1.5) im Kondensatsumpf des Kondensators verfolgt zweierlei Ziele: zum Einen sollen Aussagen zur pH-Wert-Senkung auf den Kühlrohren gemacht werden, zum Anderen wird mit den Messungen eine einfache pH-Wert-Berechnungsmethode für H_2O/CO_2 -Gemische validiert.

Die Sättigungskonzentration des Wasser-Kohlendioxid-Systems berechnet sich nach dem Henry'schen Gesetz $\gamma_{CO_2} = p_{CO_2}/H_{CO_2} \cdot (1 + 0,2/99,8)$ (vgl. (3.17) und Kapitel 3.1.5). Die für (3.17) notwendige temperaturabhängige Henry-Konstante in [bar] wurde im temperaturrelevanten Bereich von $T_K \in [0; 100]$ °C mit den Werten aus [LB76] approximiert als

$$H_{CO_2}(T_K) = 0,00003 \cdot T_K^4 + 0,0094 \cdot T_K^3 + 0,9085 \cdot T_K^2 + 17,432 \cdot T_K + 780,61. \tag{6.19}$$

Der pH-Wert berechnet sich aus der Näherungsgleichung (3.22), da hier ein auf CO_2 bezogener pK_S -Wert verwendet wird.

Zur Messung des pH-Werts wird ein über zwei pH-Wert Pufferlösungen (pH-Wert 4,01 und 10,01) kalibriertes Handmessgerät eingesetzt. Die Unsicherheit des pH-Werts der Pufferlösungen gibt der Hersteller mit $u(pH)^{sys} = 0,01$ an. Das Handmessgerät selbst besitzt eine Messunsicherheit für den pH-Wert von $u(pH)^{sys} = 0,20$, die wie in Kapitel 6.6.5 erläutert, als Unsicherheitsintervall den zufälligen Messfehlern zugeordnet wird. Bei der pH-Wert Messung handelt es sich um eine einparametrische, direkte Einzelmessung für die somit gilt: $u(pH) = \sqrt{0,20^2 + 0,01^2} \approx 0,20$.

6.8 Definition der Kondensator Kennzahl

Um Oxyfuel-Kondensatoren untereinander vergleichen zu können empfiehlt sich eine Kennzahl ähnlich der eines Wirkungsgrads. KAUFMANN [Kau99] definierte hierzu den Abscheidegrad Ω , der das Verhältnis von realem zu theoretisch möglichem Kondensatmassenstrom darstellt

$$\Omega = \frac{\dot{m}_K}{\dot{m}_{D,E} - \dot{m}_{D,A,th}}, \quad (6.20)$$

wobei \dot{m}_K der gemessene Kondensatmassenstrom ist, $\dot{m}_{D,E}$ der gemessene Dampfmassestrom am Kondensatoreintritt und $\dot{m}_{D,A,th}$ der nebelfreie und mit einer Wärme- und Stoffübertragungstheorie² (s. Beispiele in Kapitel 5.8) berechnete Dampfmassestrom am Kondensatoraustritt. Der Abscheidegrad Ω ist folglich immer kleiner eins, wenn $\dot{m}_{D,A,th} > \dot{m}_{D,A}$ gilt. Dies wiederum setzt aber voraus, dass Nebel entsteht, d.h. $\dot{m}_N > 0$, da für den Dampfmassestrom am Kondensatoraustritt gilt:

$$\dot{m}_{D,A} = \dot{m}_{D,E} - \dot{m}_K - \dot{m}_{N,A}. \quad (6.21)$$

Laut KAUFMANN lassen sich bei treibenden Temperaturdifferenzen von $\Delta T < 20$ °C Abscheidegrade von bis zu 98,5 % erreichen. D.h. nach (6.20) verlassen ca. 1,5 Massen-% der Gesamtkondensatmasse den Kondensator über die Entlüftung als Nebel. Gab KAUFMANN noch zusätzlich Primärkeime (bis zu 3 Vol.-% Zigarettenrauch³) in den Gasgemischeintritt, erhöhte sich dieser Anteil bis auf 5,2 Massen-%.

Aus Ω allein kann aber noch kein Bezug zum Restdampfgehalt hergestellt werden. Dieser für die Auslegung von Oxyfuel-Kondensatoren sehr wichtige und interessante Zusammenhang lässt sich mit Hilfe des Nebelanteils $\xi_{N,A}$

$$\xi_{N,A} = \frac{\dot{m}_{N,A}}{\dot{m}_{CO_2,A} + \dot{m}_{D,E} - \dot{m}_K} = \frac{\dot{m}_{N,A}}{\dot{m}_{CO_2,A} + \dot{m}_{D,A} + \dot{m}_{N,A}} \quad (6.22)$$

und des Restdampfgehalts $\xi_{D,A,th}$

$$\xi_{D,A,th} = \frac{\dot{m}_{D,A,th}}{\dot{m}_{D,A,th} + \dot{m}_{CO_2,A}} \quad (6.23)$$

herleiten, wobei letzterer mit einem Wärme- und Stoffübertragungsmodell berechnet wird und $\dot{m}_{CO_2,A}$ dem Kohlendioxidmassenanteil am Kondensatoraustritt entspricht. Da das nachfolgend gebildete Verhältnis aus $\xi_{N,A}$ und $\xi_{D,A,th}$ spezifisch für den Kondensator ist, wollen wir es als Kondensator Kennzahl K

$$K = \frac{\xi_{N,A}}{\xi_{D,A,th}} \quad (6.24)$$

²KAUFMANN berechnet $\dot{m}_{D,A,th}$ aus der gemessenen, nicht wie hier der mit [CG02] berechneten Austrittstemperatur des Restdampf-Kohlendioxid-Gemischs.

³Nach GRASSMANN [Gra82] liegt die Partikelgröße zwischen 0,02-0,1 μm

bezeichnen. Im Weiteren wird Gleichung (6.21) mit Hilfe der Gleichungen (6.20), (6.22) und (6.24) nach

$$\dot{m}_{D,A} = (K\xi_{D,A,th} - 1) (\Omega (\dot{m}_{D,E} - \dot{m}_{D,A,th}) - \dot{m}_{D,E}) - K\xi_{D,A,th}\dot{m}_{CO_2} \quad (6.25)$$

umgeformt und damit ein Bezug zwischen der Kondensatorkennzahl K und dem Abscheidegrad Ω hergestellt, wobei die letzten beiden aus den Messungen (s. Kapitel 6.9.5) abzuleiten sind. Mit der Definition des Restdampfgehalts und Gleichung (6.25) ergibt sich schließlich der gesuchte Zusammenhang zwischen Restdampfanteil $\xi_{D,A}$ und dem Abscheidegrad Ω wie folgt

$$\begin{aligned} \xi_{D,A} &= \frac{\dot{m}_{D,A}}{\dot{m}_{CO_2,A} + \dot{m}_{D,A} + \dot{m}_{N,A}} \\ &= \frac{(K\xi_{D,A,th} - 1) (\Omega (\dot{m}_{D,E} - \dot{m}_{D,A,th}) - \dot{m}_{D,E}) - K\xi_{D,A,th}\dot{m}_{CO_2}}{\dot{m}_{CO_2,A} + \dot{m}_{D,E} - \Omega (\dot{m}_{D,E} - \dot{m}_{D,A,th})}. \end{aligned} \quad (6.26)$$

Mit der hier eingeführten Kondensatorkennzahl K und dem Abscheidegrad Ω , kann demnach für einen Oxyfuel-Kondensator mit Rezirkulationskonzept einfachem, bereits bekanntem Wärme- und Stoffübertragungsmodell und den Ein- und Ausgangsparametern wie Druck, Temperatur, Massenströme der um den Nebelanteil reduzierte Restdampfgehalt berechnet werden. Anders als z.B. bei [Kau99] handelt es sich nicht um eine direkte, sehr komplexe Berechnung der lokalen Sättigung und der damit verursachten Nebelbildung, sondern um einen korrelativen Ansatz, der mit Vergleichsmessungen hergestellt wird (s. Kapitel 6.9.5).

6.9 Diskussion der Messergebnisse

In diesem Abschnitt werden die Messergebnisse des in Kapitel 6.4 vorgestellten Labormodells zum Kondensatorkonzept präsentiert und hinsichtlich Restdampfgehalt, Nebelgehalt, Abscheidegrad, Kondensatorkennzahl und Kondensat-pH-Wert (vgl. Kapitel 3.3.3) diskutiert.

6.9.1 Rahmenbedingungen der Messung

Anders als bei den Messungen am gekühlten Einzelrohr (s. Kapitel 5) handelt es sich bei diesem Versuchsaufbau um ein offenes System, was einen deutlich höheren Verbrauch an Kohlendioxidgas (verwendete Reinheit beträgt 99,999 %) bedeutet. Um die Kosten im verfügbaren Rahmen zu halten, wurde der CO_2 -Gehalt am Eintritt deshalb möglichst klein gewählt und die Anzahl der Messpunkte auf ein notwendiges Minimum beschränkt. Der CO_2 -Gehalt liegt für alle Messungen mit $\xi_{CO_2,E} \approx 0,143$ etwas unterhalb der mit der Kreislaufsimulation berechneten Werte (s. Tabelle 4.5).

Das Kondensatverteilssystem (10) (s. Abbildung 6.6) lässt sich aufgrund der Druckbegrenzung der Membrankolbenpumpe (3) auf maximal 10 bar Förderdruck nur bis zu

einem ϵ von ca. 1,1 einsetzen. Messungen mit höherem ϵ sind deshalb nur mit den beiden Tropfenverteilerlanzen (12) möglich.

Die äußeren Messbedingungen für die Abscheidung des Kohlendioxids aus dem Wasserdampf-Kohlendioxid-Gemisch lassen sich somit wie folgt zusammenfassen:

- die Kühlwassereintrittstemperatur liegt bei $T_{KW,E} = 29 \pm 0,1$ °C,
- der Dampfgehalt am Kondensatoreintritt beträgt $\xi_{D,E} = 0,857 \pm 0,03$,
- der Gemischdruck im Kondensator liegt bei $p_G = 0,96 \pm 0,1$ bar,
- die Kondensatzirkulationsrate beträgt im Falle der drei Kegeldüsen (10) $\epsilon = [0; 1, 1]$ bzw. für die beiden Tropfenverteilerlanzen (12) $\epsilon = [0; 3, 5]$ und
- die Präzision bzw. die Wiederholgenauigkeit einer Messung (Restdampf, Nebel) liegt durchschnittlich bei < 10 Prozent bezüglich des Messwerts.

6.9.2 Restdampfgehalt

Die Kreislaufsimulation zeigte, dass ein um 5 %-Punkte höherer Wasserdampfgehalt der ersten Kondensationsstufe den Nettowirkungsgrad des Prozesses um knapp 0,5 %-Punkte reduziert (s. Kapitel 4.7). Allerdings muss aus Sicht des Oxyfuel-Prozesses der Nebel des ersten Kondensators, der während der Druckerhöhung wieder zu Wasserdampf verdunstet, dem Wasserdampfgehalt vor Eintritt in die zweite Kondensationsstufe angerechnet werden. Somit erhöht sich der Massenstrom an Wasserdampf für die weiteren Kondensationsstufen, wodurch der Prozesswirkungsgrad abnimmt (s. Kapitel 4.7.3).

Den Einfluss der Rezirkulationsrate auf den mit der *Taupunkt-Methode* (s. Kapitel 6.6.3) gemessenen Restdampf zeigt Abbildung 6.10: Der Restdampfgehalt nimmt, ausgehend von der Vergleichsreferenz von ca. $\xi_{D,A} = 0,05$, für fast alle Messungen mit einer Rezirkulationsrate $\epsilon > 0$ zu. Dies deckt sich mit der Hypothese, dass mit steigender Kondensatzirkulationsrate der Wärme- und Stoffübergang reduziert wird, da Teile der Kühlrohre zusätzlich mit wärmerem Kondensat (wegen der Tropfenkondensation über dem Wärmeübertragerbündel) beaufschlagt werden. Hierdurch sollte bei gleichem Wandwärmübergang α_F die Kondensattemperatur T_F und folglich auch der Restdampfgehalt $\xi_{D,A}$ steigen. Da die Zunahme des Restdampfgehalts $\xi_{D,A}$ mit maximal 0,01 Punkten deutlich geringer als die Schwankungsbreite von Messpunkten nahe beieinander liegenden Rezirkulationsraten ausfällt und sich eine Abhängigkeit des Restdampfgehalts vom Kohlendioxidgehalt $\xi_{CO_2,E}$ aus Abbildung 6.10 ablesen lässt, kann keine direkte Abhängigkeit von Restdampf und Rezirkulationsrate abgeleitet werden. Interessant wird es nun zu sehen, wie sich bei diesem geringem Anstieg der Rezirkulationsrate das Rezirkulationskonzept auf die Nebelbildung auswirkt, weshalb eine Ergebnisbetrachtung hierzu in Kapitel 6.9.3 erfolgt.

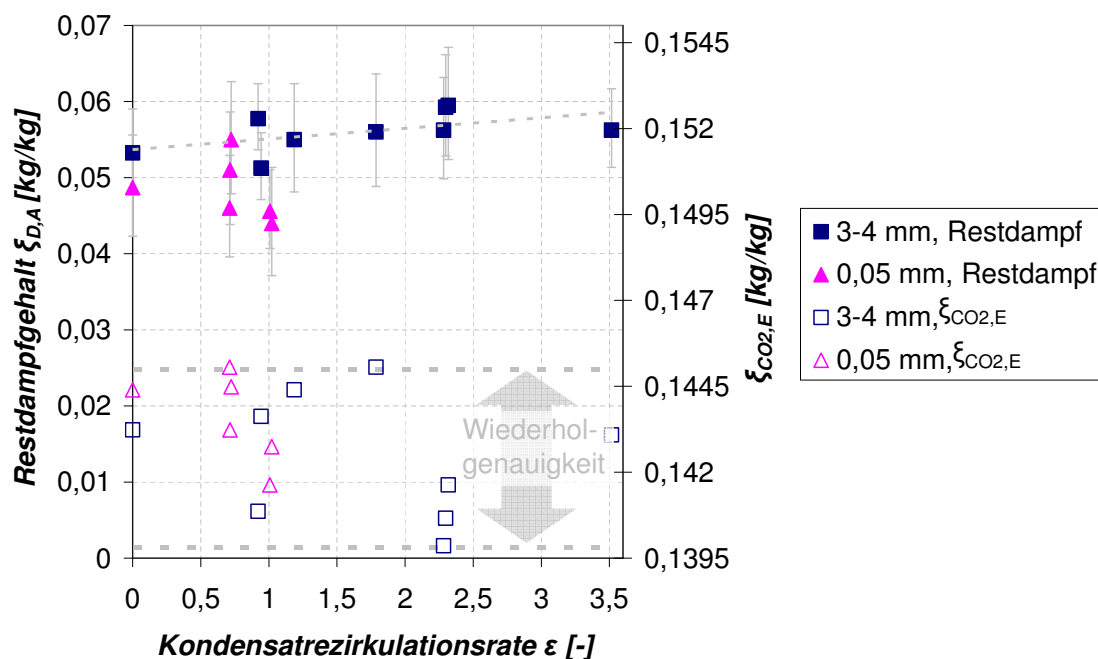


Abbildung 6.10: Ergebnisse der Messung mit der *Taupunkt-Methode*: Restdampfgehalt und Kohlendioxid-Massenanteil am Kondensatoreintritt über der Kondensatzirkulationsrate (Messunsicherheit nach DIN 1319)

6.9.3 Nebelgehalt

Nach KAUFMANN lässt sich die Nebelbildung bei fremdkeimfreiem Gas-Dampf-Gemisch mit einem unter 20 °C liegenden, treibenden Temperaturgefälle stark reduzieren bzw. bei einem Rauchgas ohne Fremdkeime sogar vermeiden. Das hieße für die Messungen, dass die Kühlwassereintrittstemperatur der ersten Rohrreihe statt 29 °C ca. 76 °C betragen müsste (z.B. durch einen mehrgängigen Kreuz-Gegenstromwärmeübertrager), wodurch die erforderliche Kondensatorfläche unter Beibehaltung des Restdampfgehalts wegen $\dot{Q} = \alpha \cdot A \cdot \Delta T$ im Vergleich etwa dreimal so groß werden würde. In Anbetracht dessen ist der Zusammenhang von Restdampf- und Nebelgehalt besonders interessant.

Die vergleichsweise höhere Messunsicherheit (vgl. Kapitel 4.7.3) resultiert aus der größeren Anzahl an Messgrößen und der damit steigenden Anzahl an Summanden im Gauß'schen Fehlerfortpflanzungsgesetz, wie Gleichung (6.18) bereits vermuten lässt. Da die über alle Messpunkte gemittelte Messunsicherheit von $\bar{u}(\xi_{N,A}) = 19,1 \%$ jedoch um ein Vielfaches kleiner ist als die Differenz zwischen größtem und kleinstem Messwert, stellt die Messreihe in Abbildung 6.11 eine gute Diskussionsbasis dar.

Wie Abbildung 6.11 veranschaulicht, lässt sich der Nebelanteil - ausgehend von einem Niveau von $\xi_{N,A} \approx 0,31$ bei $\epsilon = 0$: durch das Kondensatzirkulationskonzept um bis zu 50 % auf $\xi_{N,A} \approx 0,16$ reduzieren. D.h. geht man von einer Wiederverdunstung des Nebels in weiteren Reinigungs- bzw. Kondensationsstufen des Gemischs aus, sinkt der Gesamt-

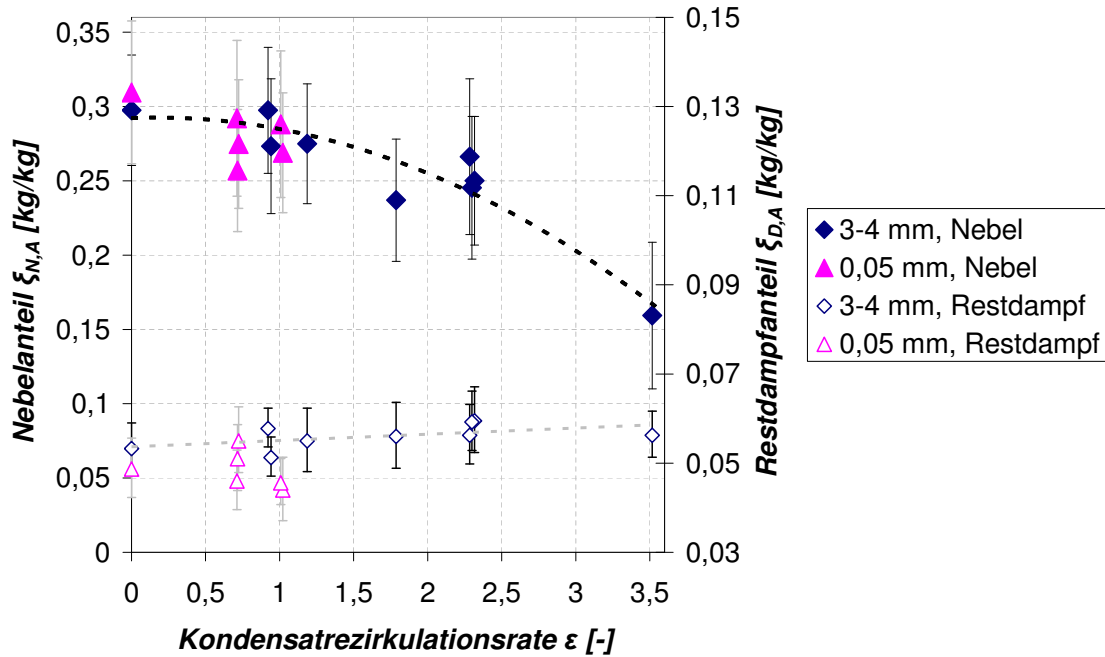


Abbildung 6.11: Ergebnisse der Messung mit der *kombinierten Taupunkt-Methode*: Nebel- und Dampfanteil im Kondensatoraustritt über der Rezirkulationsrate (Messunsicherheit nach DIN 1319)

wasserdampfgehalt $\xi_{N,A} + \xi_{D,A}$ folglich um 42 % von ca. 0,36 auf 0,21. Wie Abbildung 6.12 zeigt, und KAUFMANN erläutert, kann als Ursache hierfür die zunehmend kleiner werdende treibende Temperaturdifferenz $\Delta T = T_G - T_F$ angeführt werden. Ebenfalls dargestellt ist der Aufreinigungsfaktor $\psi = \frac{\xi_{CO_2,E}}{\xi_{CO_2,A}}$, der als praktische Darstellung der Reinigungsquantität eines Gas-Dampf-Kondensators bezeichnet werden könnte. Wie zu sehen ist, kann der Aufreinigungsfaktor durch die Erhöhung der Kondensatzirkulationsrate um bis zu 21 % verbessert werden.

Die sich bei Beginn der Kondensation einstellende treibende Temperaturdifferenz, aufgetragen über der Rezirkulationsrate ϵ , verhält sich ähnlich wie die Funktion $\Delta T(\epsilon) = \frac{1}{a \cdot \epsilon} + b$ (s. Abbildung 6.12) und nähert sich rechnerisch für sehr große ϵ an $\Delta T = 17,1$ °C an. D.h. die erste Stufe der Kondensation bewegt sich hinsichtlich der genannten Temperaturdifferenz mit steigender Rezirkulationsrate auf den Bereich zu, der von KAUFMANN zur Vermeidung von Nebel ohne Fremdpartikel genannt wird. Damit ergibt sich für das fremdkeimfreie Kohlendioxid-Wasserdampf-Gemisch qualitativ gesehen ein ähnliches Verhalten wie es KAUFMANN schon für Methanol-, Ethanol-, Toluol- und Methylchlorid-Stickstoff-Gemische herausfand. Ob sich dies auch quantitativ bestätigen lässt, zeigt Kapitel 6.9.4.

Wie weit könnte nun der Nebelgehalt bei einer weiteren Erhöhung der Rezirkulationsrate ϵ gesenkt werden? Da dieser Zusammenhang ganz wesentlich von der weiteren Temperaturdifferenz zwischen Gemisch und Rezirkulationstropfen $\Delta T = T_G - T_R$ abhängt,

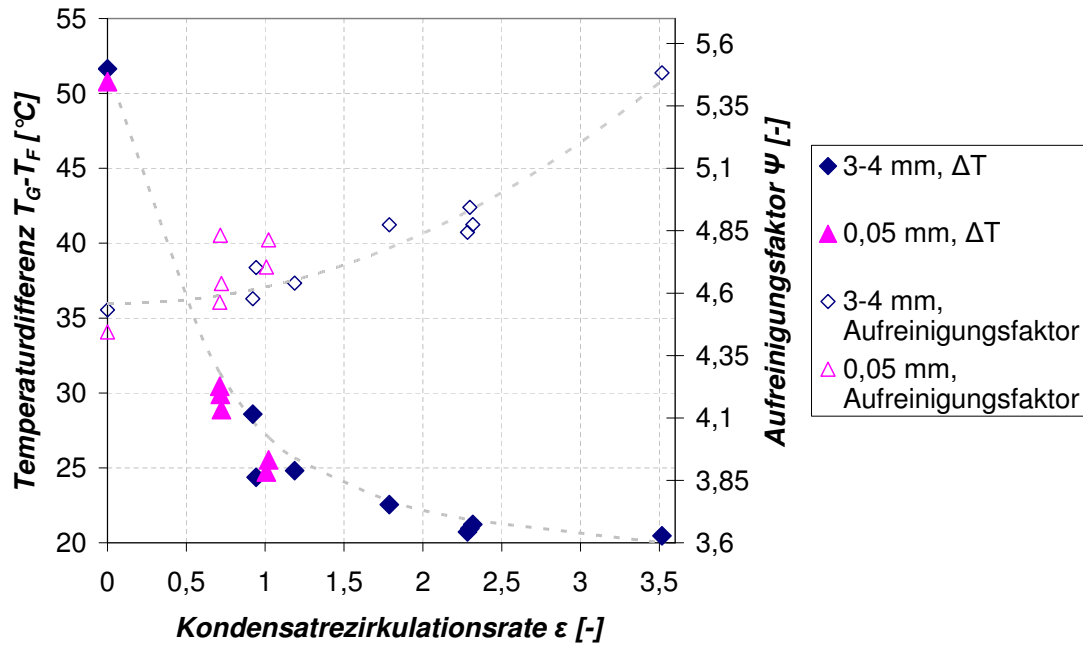


Abbildung 6.12: Temperaturdifferenz und Aufreinigungsfaktor über der Kondensatzirkulationsrate. Berechnung der Filmtemperatur T_F nach Filmtheorie

muss die Antwort dort (s. Abbildung 6.13) gesucht werden (T_R wird kurz vor Eintritt in den Kondensator gemessen, s. Abbildung 6.6 (9)). Die Temperatur eines Tropfens kurz vor Eintritt in den Kondensatsumpf, T_R^* genannt, wird mit $T_R^* = (T_F + \epsilon T_R)/(1 + \epsilon)$ aus der Energiebilanz bei $\sum \dot{Q} = 0$ um den Kondensatsumpf abgeschätzt. Die einzusetzende Kondensattemperatur ergibt sich aus den Berechnungen mit der Filmtheorie für die Kondensation am Rohrbündel. Der für die Berechnung des im Kondensatoraußenraum herrschenden Dampfgehalts notwendige Wärmeübergang der Tropfenkondensation wird mittels des Dampfgehalts bei $\epsilon = 0$ abgeschätzt und über das Berechnungsmodell von CELATA et al. [CCDF91] plausibilisiert. Dies ist wegen der nur abzuschätzenden Strömungsgeschwindigkeiten notwendig.

In den Verläufen von T_R^* und des berechneten Dampfgehaltes nach der Tropfenkondensation (und vor der Rohrbündelkondensation) in Abbildung 6.13 zeichnet sich für den Dampfgehalt ein Minimum bei einer Rezirkulationsrate von etwa vier ab. Das liegt daran, dass die berechnete, abgeführte Kühlleistung bei einer Rezirkulationsrate von $\epsilon \approx 2,5$ ihr Maximum erreicht. Grund ist die Abnahme der treibenden Temperaturdifferenz zwischen Dampf und rezirkuliertem Kondensat, welche auch nicht durch eine Erhöhung des Massenstroms kompensiert werden kann (s. Abbildung 6.13). Die weitere Reduzierung des Nebelgehalts für $\epsilon > 2,5$ kann nur noch auf einer Erhöhung der Kondensationstemperatur der äußeren beiden Rohrreihen (aufgrund darüber ablaufendem, rezirkuliertem Kondensat) beruhen, da sich das Temperaturgefälle zwischen Kondensationsoberfläche und

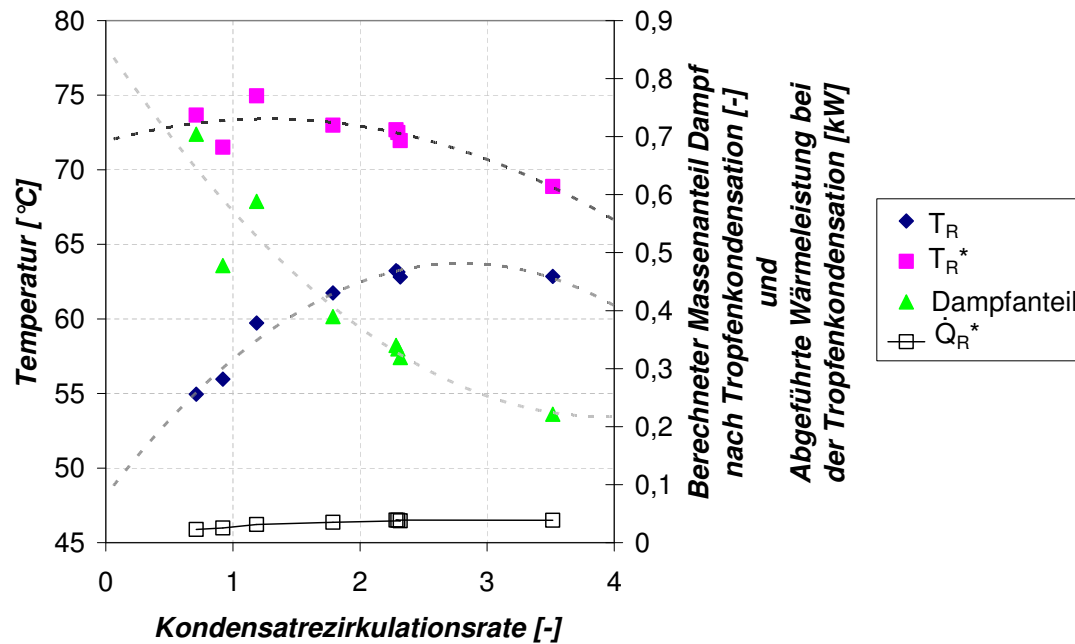


Abbildung 6.13: Verlauf von T_R (gemessen) und T_R^* (berechnet), dem berechneten Dampfgehalt im Kondensator nach der Tropfenkondensation und der vom rezirkulierten Kondensat aufgenommenen Wärmeleistung \dot{Q}_R^*

Gas-Dampf-Gemisch dadurch nebelreduzierend verringern kann. Das bedeutet aber auch, dass eine weitere Reduzierung des Nebelgehalts zunehmend auf Kosten des Restdampfgehalts (s. Abbildung 6.11) gehen muss. Folglich kann ab einem bestimmtem ϵ eine weitere Nebelreduzierung unter Beibehaltung eines definierten, maximalen Restdampfgehalts nur durch zusätzliche Rückkühlung des rezirkulierten Kondensats erreicht werden. Im Versuch liegt dieser Punkt bei $\epsilon \approx 4$ (s. Abbildung 6.13), womit ein geschätzter Nebelgehalt von $\xi_{N,A} \approx 0,13$ erreicht werden kann.

6.9.4 Abscheidegrad

Ziel des in [Kau99] vorgestellten Kondensationskonzepts, das basierend auf der Idee von COLBURN und EDISON [CE41] das Gemisch vorkühlt bzw. erwärmt, war, dessen Sättigung stets kleiner als $S = 1,1$ zu halten. Anders als bei den Ideengebern geschieht dies jedoch regenerativ statt elektrisch. Mit dieser Methodik der wärmeübertragerinternen Wärmeverschiebung war es möglich, den Abscheidegrad bei der Kondensation eines zeitweise mit Fremdpartikeln versetzten Stickstoff-Isopropanoldampf-Gemischs um 12 % von 0,80 auf 0,89 zu verbessern. Im besten Fall konnte der Abscheidegrad für fremdpartikelhaltige Prozessgase mit dieser Technik, ausgehend von einem konventionellen Kondensationskonzept, um bis zu 33 % erhöht werden. Im Falle einer Temperaturdifferenzreduzierung bei einem konventionellen Rohrbündelkonzept konnte der Abscheidegrad Ω von 78 % auf 96

% gesteigert werden. Allerdings ließe sich dies restdampfneutral nur durch eine um etwa 1/3 größere Wärmeübertragungsfläche (geschätzt nach Filmtheorie) umsetzen. Wie die interne Wärmeverschiebung des Rezirkulationskonzepts den Abscheidegrad zu verbessern vermag, zeigt Abbildung 6.14. Nach der Definition des Abscheidegrads von KAUFMANN

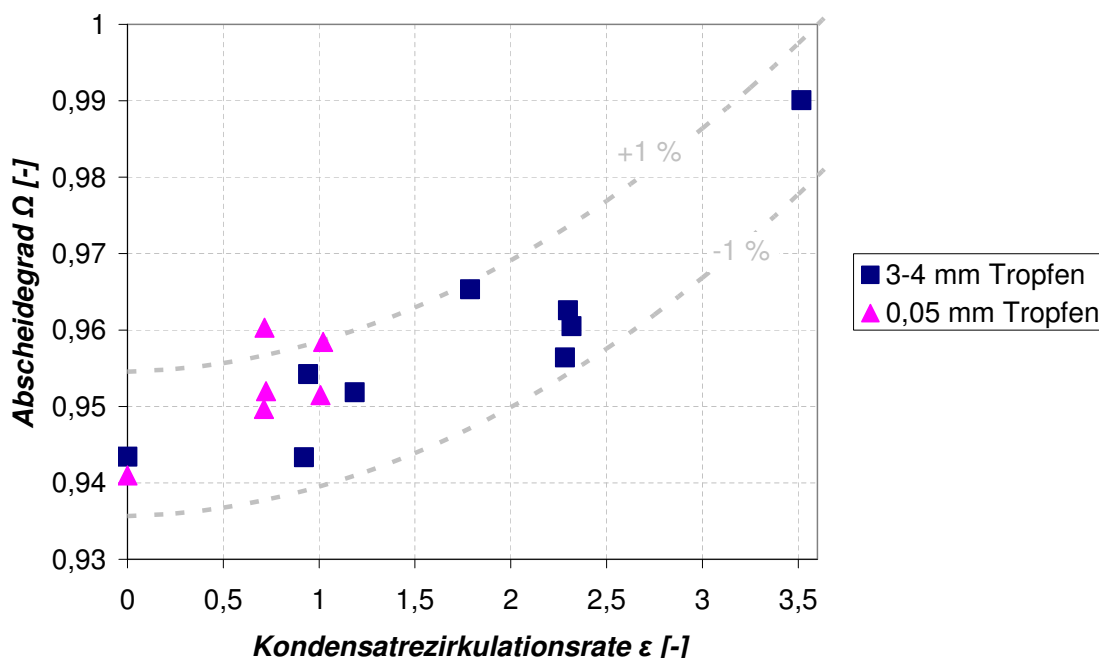


Abbildung 6.14: Abscheidegrad über der Kondensatzirkulationsrate (Messung) bei gleichbleibender Kühlwassereintrittstemperatur und -volumenstrom

lägen die Werte in Abbildung 6.14 um $2,26 \pm 0,3$ % niedriger, ursächlich hierfür ist der um ca. 10 Ma.-% höhere, mit [CG02] berechnete Restdampfgehalt. Mit der hier verwendeten auslegungsorientierten Definition beginnen diese bei $\Omega \approx 0,94$ für $\epsilon = 0$ und steigen durch das Kondensationsrezirkulationskonzept bei sonst konstanten Bedingungen um etwas mehr als 5 % auf Werte von bis zu $\Omega \approx 0,99$ (s. Abbildung 6.14). Wie bereits erläutert ist dies bei einem konventionellen Kondensatorkonzept wegen $\dot{Q} = \alpha \cdot A \cdot \Delta T$ nicht möglich, weshalb das Kondensatzirkulationskonzept eine erhebliche Verbesserung zur Abscheidung von Kohlendioxid aus einem Kohlendioxid-Dampf-Gemisch darstellt.

Für die qualitative und quantitative Beurteilung von Effizienz und Leistung eines Gemisch-Kondensators ist, wie in Kapitel 6.8 erwähnt, neben dem Abscheidegrad die Kondensatorkennzahl notwendig. Deren Ergebnisse werden im nächsten Kapitel präsentiert.

6.9.5 Kondensatorkennzahl

Die Kondensatorkennzahl nach der Definition von Gleichung (6.24) ist in Abbildung 6.15 dargestellt. Dort zeigt sich eine gute Korrelation aus Kondensatorkennzahl K und Rezir-

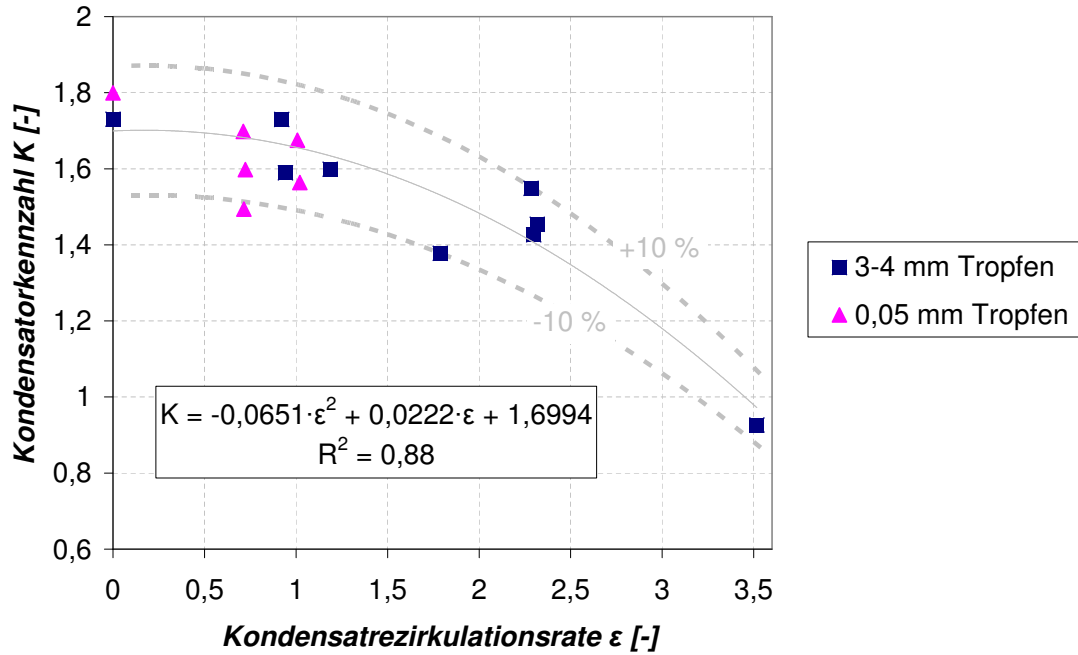


Abbildung 6.15: Kondensator Kennzahl über der Kondensatzirkulationsrate

kulationsrate ϵ

$$K(\epsilon) = -0,0651 \cdot \epsilon^2 + 0,0222 \cdot \epsilon + 1,6994, \quad (6.27)$$

die allerdings nur für die in Kapitel 6.9.1 genannten Bedingungen gilt. Ändern sich Abscheidegrad und Kondensatorzahl in Bezug auf die vermessenen Rezirkulationsraten (z.B. durch eine andere Kühlwassereintrittstemperatur), so ergeben sich für Abbildung 6.15 andere Korrelationen. D.h. hier ergäbe sich die Möglichkeit, durch eine Dimensionsanalyse der Kondensator Kennzahl und deren Abhängigkeiten, eine allgemein gültige Korrelation zu finden.

Wie in Kapitel 6.8 bereits erläutert, kann mit Hilfe von $K(\epsilon)$ (s. Abbildung 6.15) und $\Omega(K)$ der durch die Nebelbildung veränderte Restdampfgehalt berechnet werden. Aus den Messungen lässt sich die in Abbildung 6.16 dargestellte Korrelation zwischen Abscheidegrad und Kondensator Kennzahl ableiten. Diese erstreckt sich über den Gültigkeitsbereich von K , mit $K \in [0; K_{max} = K(\Omega = 0) = \xi_{N,max}/\xi_{D,A,th}]$, wobei gilt, dass $\xi_{N,max} = \lim_{\dot{m}_{N,A} \rightarrow \dot{m}_{D,E}} \xi_{N,A}$. Sie lautet

$$\Omega(K) = -0,0149 \cdot K^{2,4743} + 1 \quad (6.28)$$

und weicht maximal $\pm 2\%$ von den Messwerten ab ($r = \sqrt{0,92} \approx 0,96$). Mit Gleichung (6.28) für den von der Kondensator Kennzahl abhängigen Abscheidegrad, der Kondensatorzahl K (6.24) und einem Wärme- und Stoffübertragungsmodell (z.B. aus [CG02]) ist es nun möglich, alle für die Auslegung eines Oxyfuel-Kondensators erforderlichen Größen zu berechnen.

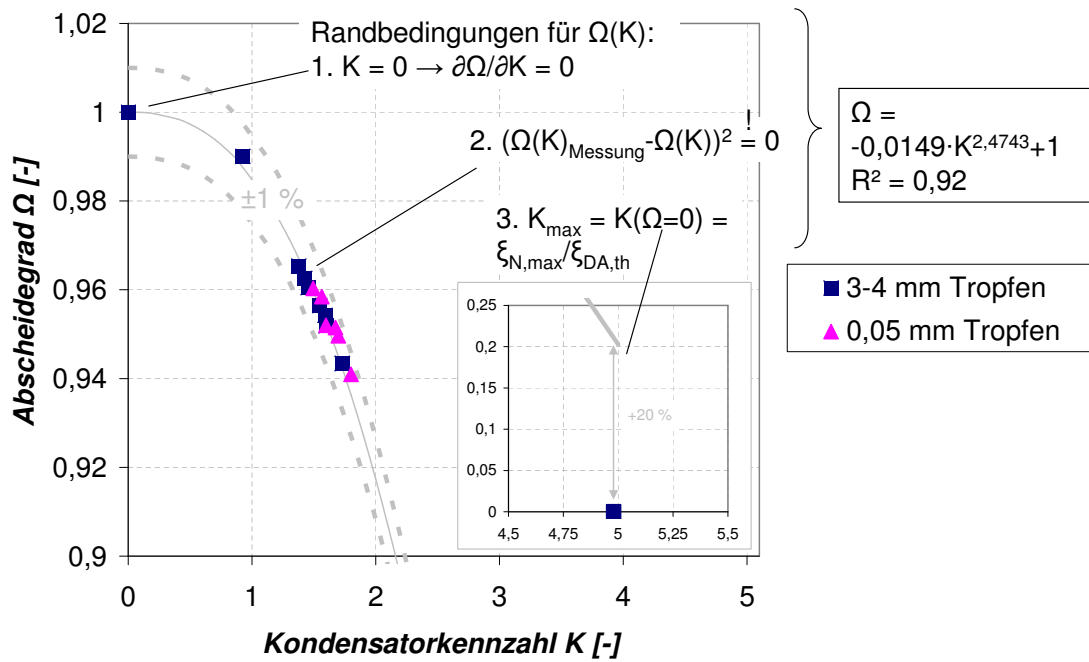


Abbildung 6.16: Kondensatorzahl K über Abscheidegrad Ω

Da es sich bei K und $\Omega(K)$ um Korrelationen handelt, soll abschließend ein Vergleich zwischen Rechnung und Messung die zu erwartenden Differenzen aufzeigen. Dafür werden folgende Größen aus Kapitel 6.8 herangezogen: die Kondensatorzahl K (6.27), der Abscheidegrad Ω (6.20), der Nebelanteil $\xi_{N,A}$ (6.22), der Restdampfgehalt $\xi_{D,A}$ (6.26) und mit den Laborkondensatormessungen verglichen.

Abbildung 6.17 zeigt eine gute bis sehr gute Übereinstimmung von Rechnung und Messung bei Kondensatorzahl, Abscheidegrad, Nebel-, und Restdampfgehalt. Mit diesem Ergebnis empfiehlt sich die vorgeschlagene Methode für die Auslegung von Oxyfuel-Kondensatoren mit Rezirkulationskonzept. Für eine allgemein gültige Empfehlung besteht aber noch weiterer Forschungsbedarf bei der Bestimmung der Kondensatorzahl-Korrelation über einen breiten Parameterbereich von Kühlwassereintrittstemperaturen, Eintrittswasserdampfgehalten und Kondensatordrücken.

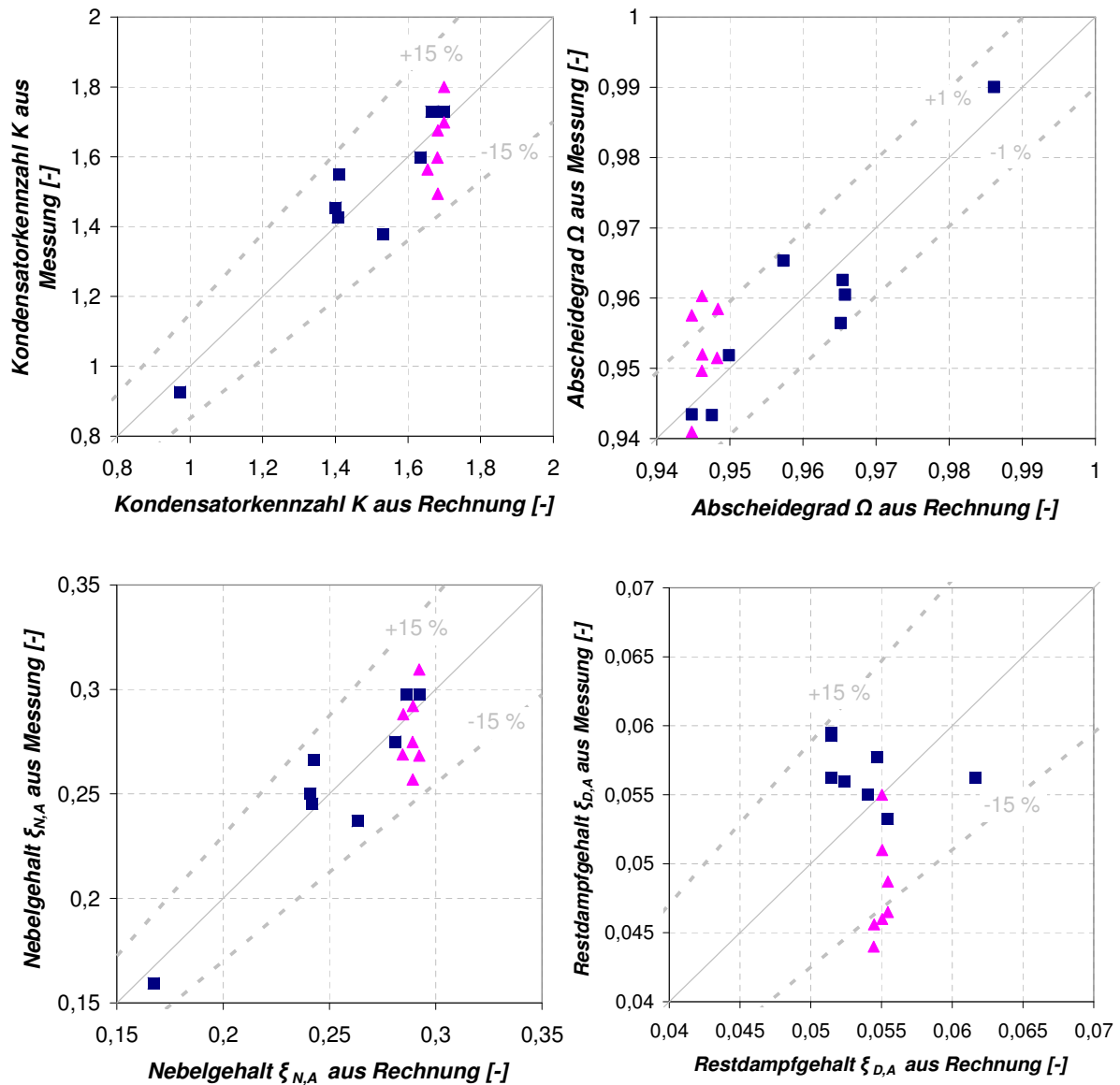


Abbildung 6.17: Vergleich von Mess- und Berechnungsdaten (Rechnung nach Kapitel 6.8 und 6.9.5). Von links oben in Reihe nach rechts unten: Kondensator Kennzahl, Abscheidegrad, Nebel- und Restdampfgehalt.

6.9.6 Messung des pH-Werts

Die Messung des pH-Werts des angefallenen Kondensats findet außerhalb des Kondensators statt. Dazu wurde Kondensat aus dem Kondensatsammelbehälter (s. Position (2) in Abbildung 6.6) in ein isoliertes Gefäß gegeben und sogleich die Messung durchgeführt. Dies ist notwendig da sich aufgrund der Partialdruckänderung über dem Kondensat die Gleichgewichtsbedingungen für das Kohlendioxid, und folglich auch der pH-Wert im Kondensat ändern. Nach jeder Messung erfolgten zwei Kalibriermessungen in zwei verschiedenen,

temperierten Lösungen (pH-Wert 4 und 10), wodurch ein eventueller Sensordrift zuverlässig kompensiert werden kann. Der pH-Wert wurde in den folgenden Betriebspunkten gemessen:

- ohne Kühlwasserumwälzung, ohne Rezirkulation
- ohne Kühlwasserumwälzung, mit Rezirkulation
- mit Kühlwasserumwälzung, ohne Rezirkulation
- mit Kühlwasserumwälzung, mit Rezirkulation
- mit Kühlwasserumwälzung, mit Frischwassereinspritzung

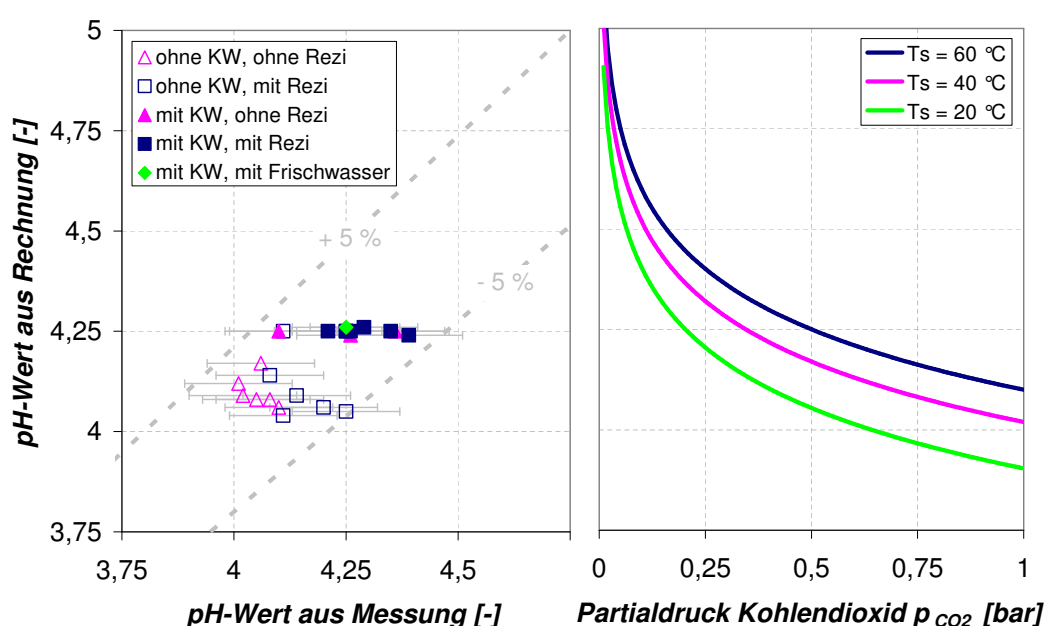


Abbildung 6.18: Links Vergleich des Kondensat-pH-Werts bei Kondensatoraustritt zwischen Messung und Rechnung, rechts berechnete pH-Werte in Abhängigkeit von Kondensationstemperatur und Partialdrucks des Kohlendioxids in der Kondensationsgrenzschicht

Da es sich bei den Messungen nicht um einen lokalen, sondern vielmehr um einen globalen pH-Wert handelt, lässt sich auch nur zu letzterem eine Aussage treffen. In Abbildung 6.18 werden die gerechneten (s. Kapitel 6.7.3) über den gemessenen pH-Werten dargestellt. Darin zeigt sich, dass die vorgestellte Berechnungsmethode für den pH-Wert des Kondensats (s. 6.7.3) eine gute Übereinstimmung von Messung und Rechnung im Bereich von $\pm 5\%$ erzielt. Geht man von einer darüber hinausgehenden Übereinstimmung aus muss angenommen werden, dass lokal geringere pH-Werte vorkommen (s. Abbildung 6.18). Bei den herrschenden Bedingungen des Laborkondensators bewegen sich diese im Bereich von

pH-Wert= [4, 0; 4, 4]. Für typische Kühlwassereintrittsbedingungen und sofern der Kondensatordruck bei 1 bar liegt, erweitert sich dieser Bereich dagegen nach unten bis auf pH-Werte um 3,9. Damit liegt die Obergrenze der lokalen Verdünnbarkeit, bzw. der Spielraum für eine lokale pH-Wert-Anhebung, bei etwa 0,3 Punkten, wenn man davon ausgeht dass analog zur Messung ein mittlerer pH-Wert von 4,3 für $\epsilon > 1,5$ erreicht wird.

Unter Anwesenheit von Schwefel- und Stickoxiden ist von einer zusätzlichen Beeinflussung des pH-Werts im Kondensat auszugehen, weshalb zusätzlich zum rezirkulierten Kondensat auf den Kühlrohren, welches eine verdünnende und spülende Wirkung besitzt, z.B. auch Natronlauge zur Neutralisierung in den Rezirkulationskreislauf beigemischt werden kann.

Kapitel 7

Zusammenfassung

Ziel dieser Arbeit war es, ein Kondensationskonzept aufzustellen, welches gegenüber einem konventionellen Rohrbündelkondensator in einem Oxyfuel-Prozess deutliche Verbesserungen hinsichtlich der Kondensationseffizienz bringt.

Hierzu wurde in einem ersten Schritt der Stand von Wissenschaft und Technik hinsichtlich Abscheidungs- und Auslegungsmethoden untersucht (s. Kapitel 3). Um diese mit den Rahmenbedingungen der Oxyfuel-Technologie vernetzen zu können, wurden anschließend Kreislaufrechnungen von Oxyfuel-Prozessen zur Ermittlung der optimalen Kondensator-Betriebsparameter durchgeführt (s. Kapitel 4). Hieraus ergaben sich auch wichtige Rahmenbedingungen für die Wärmestrommessungen mit Wasserdampf-Kohlendioxid-Gemischen, welche zur Validierung verschiedener Wärme- und Stoffübertragungstheorien herangezogen wurden (s. Kapitel 5). Die bis dahin gewonnenen Erkenntnisse mündeten schließlich in die Entwicklung eines neuen, effizienten Rauchgaskondensationskonzepts, welches in Messungen im Labormaßstab validiert wurde (s. Kapitel 6).

Aus der Untersuchung des Stands von Wissenschaft und Technik zeigten sich drei wesentliche Herausforderungen: ein bei der Kondensation durch die Anwesenheit von Inertgas reduzierter Wärme- und Stoffübergang [BS94], [LR84], [NOIH92], [CG02], usw., die Entstehung von Nebel durch Übersättigung des Wasserdampf-Inertgas-Gemischs [CE41], [Ste72], [Kau99], [Man00] sowie Korrosion durch Säurebildung im Kondensat aufgrund der Absorption von Kohlendioxid [Rie99]. Hieraus wurde als zusätzlicher Forschungsbedarf abgeleitet (s. Kapitel 3.3): die Ermittlung der Oxyfuel-Kondensator-Betriebsparameter für hohe Prozesswirkungsgrade, die Validierung von Wärme- und Stoffübertragungstheorien im Bereich von Dampfgehalten > 50 Ma.-% und die Entwicklung eines effizienten Kondensationskonzepts für Oxyfuel-Prozesse.

Mangels Daten zu den Betriebsparametern von Rauchgaskondensatoren in Oxyfuel-Prozessen wurden diese mittels Kreislaufrechnung geeigneter Prozesse ermittelt. Daraus ergab sich, dass zur Erreichung hoher Kohlendioxidreinheiten bzw. -anteile um 96 Ma.-% eine Kondensation in mehreren Stufen bei verschiedenen Drücken nötig ist. Dies ist auf die direkte Korrelation der kleinst möglichen Kondensationstemperatur mit dem Gesamtdruck zurückzuführen, welche dazu führt dass die Kühlwassereintrittstemperatur die begrenzende Größe für die erreichbare Reinheit darstellt. Die erste Kondensationsstufe übernimmt den größten Anteil der Kohlendioxidreinigung, weshalb sich die beschriebenen

Messungen auf deren Betriebsparameter konzentrieren. Im Wesentlichen sind dies Dampfgehalte von 5 Ma.-% bis 80 Ma.-%, Strömungsgeschwindigkeiten von 2 m/s bis 18 m/s und Kondensatordrücke von 0,2 bar bis 3,5 bar.

Die Validierung der Berechnungsmodelle für den lokalen Wärme- und Stoffübergang bei der Kondensation von Wasserdampf aus einem Wasserdampf-Kohlendioxid-Gemisch fand mittels Wärmestrommessungen über der horizontalen Einzelrohr-Versuchsgeometrie bei Strömungsgeschwindigkeiten in Schwerkrafttrichtung von 2 m/s bis 10 m/s, einem Druck von $p_\infty \pm 0,1$ bar und Dampfgehalten von 10 Ma.-% bis 100 Ma.-% statt. Die gemessenen Wärmestromdichten ($6 \frac{kW}{m^2}$ bis $63 \frac{kW}{m^2}$) wurden mit denen der Filmtheorie in Anlehnung an [CG02], dem Berechnungsmodell von NOZU et al. [NOIH92] und dem von ROSE [Ros80] verglichen. Hierbei zeigte das Berechnungsmodell von NOZU et al. die beste Übereinstimmung zwischen Berechnungstheorie und Wärmestrommessung, die meist innerhalb von ± 25 % lag. Etwas größer in der maximalen Abweichung, dafür insgesamt deutlich weniger breit streuend, folgt die Filmtheorie. Ähnliche Ergebnisse fand auch LANZEL [Lan95] für den Fall einer längsangeströmten horizontalen Rohrgeometrie. Das Berechnungsmodell von ROSE schätzt die Wärmeströme meist nur halb so groß ein, wie sie tatsächlich gemessen wurden.

Nach obigen Vorarbeiten konnte die Entwicklung eines Kondensationskonzepts für Oxyfuel-Prozesse gestartet werden. Aus anderen Arbeiten wie [Kau99], [CE41], [Hae00], [Bro96], usw. ist bekannt, dass die aus der Übersättigung des Wasserdampf-Inertgas-Gemischs resultierende Nebelbildung eine der größten Herausforderungen bei der geschickten Auslegung eines Rauchgaskondensators für Oxyfuel-Prozesse ist. Somit zielte die Konzeptentwicklung auf eine Reduzierung des Nebelanteils bei - im Vergleich zu einem konventionellen Rohrbündelkonzept - gleichbleibendem Restdampfgehalt ab. Es sieht vor, das gesammelte Kondensat im Kondensator durch ein Düsen- oder Tropfensystem über eine Rezirkulationspumpe in den Kondensatoreintritt aufzugeben und damit einen Teil des Dampfs aus dem Wasserdampf-Kohlendioxid-Gemisch bei einer wesentlich höheren Gemischttemperatur direkt zu kondensieren. Es steht dabei frei, das Aufgabesystem direkt auf die Kühlrohre auszurichten um eine weitere Verschiebung der Kondensation hin zur effizienteren Tropfenkondensation zu erreichen. Somit nutzt dieses sogenannte „Rezirkulationskonzept“ die Vorteile der Direkt- und Indirektkondensation und kann dadurch entscheidend zum genannten Ziel beitragen.

Das Rezirkulationskonzept wurde hinsichtlich Restdampf- und Nebelgehalt in einem Labormodell experimentell untersucht. Dafür wurde ein einfaches aber genaues System zur Bestimmung des Nebelgehalts entwickelt, das auf einem, wie in NOLTE [Nol89] verwendeten, Taupunktsensor basiert. Mit dem im Kondensationskonzept verwendeten Aufgabesystem war es möglich, sehr kleine Tropfen von $50 \mu m$ sowie vergleichsweise große von 3-4 mm zu erzeugen, wobei letztere aktiv über die kühlwasserdurchströmten, äußeren Rohrbündel gekühlt wurden. Es zeigte sich, dass insbesondere bei hohen Rezirkulationsraten von 3,5 (Vielfaches des anfallenden Kondensatmassenstromes) und 3-4 mm, aktiv

gekühlten, großen Tropfen der Nebelgehalt am Kondensatoraustritt (von etwa 31 Ma.-%) um knapp 50 % reduziert werden konnte. Der Restdampfgehalt stieg dabei um weniger als 1 Ma.-% an, d.h. die Kohlendioxidreinheit konnte bei gleichem Kühlwasseraufwand um 21 % verbessert werden.

Ein weiteres Ergebnis der Kondensatorkonzept-Validierung war die Möglichkeit der lokalen pH-Wert Anhebung auf den Kühlrohren. Ein Teil des physikalisch absorbierten Kohlendioxids wird in Form von Kohlensäure chemisch in das Wasser eingebunden und senkt damit den pH-Wert. Da dieser eine Funktion der Kondensattemperatur und des darüberliegenden Kohlendioxidpartialdruckes ist, kann der lokale pH-Wert durch rezirkuliertes Kondensat, dort wo die Kondensationstemperatur am geringsten und der Kohlendioxidpartialdruck am höchsten ist, um ca. 0,3 Punkte auf etwa 4,2 angehoben werden.

In den Untersuchungen und im Vergleich zu den Ergebnissen anderer Autoren zeigte sich, dass es zur Beschreibung der Kondensatoreffizienz nicht ausreicht, lediglich den Nebel- bzw. lediglich den Restdampfgehalt zu berücksichtigen. Um diese Effizienz zu bewerten und einen Zusammenhang zwischen Nebel- und Restdampfgehalt quantifizieren zu können wurde deshalb eine Kennzahl, hier als Kondensatorkennzahl benannt, vorgeschlagen. Diese stellt das Verhältnis aus dem Massenanteil Nebel und dem theoretisch ohne Nebelbildung erreichbarem Restdampfgehalt dar. Somit ergibt sich ein verifiziertes, nützliches Auslegungswerkzeug für Oxyfuel-Kondensatoren mit Rohrbündeloberflächen, da sich bei Kenntnis der Kondensatorkennzahl-Korrelation der Anteil des entstehenden Nebels aus dem, z.B. mit [CG02], berechneten Restdampfanteil ergibt. Die Auslegung von Oberflächenkondensatoren wird dadurch erheblich vereinfacht.

Weiterer Forschungsbedarf besteht, abgesehen von den bereits in den Kapiteln 5.8 und 6.9.5 erwähnten Punkten, bei der Übertragung des Kondensatrezirkulationskonzepts in den Pilotmaßstab. Dieser sollte Wärmeübertragungsleistungen im Bereich von mindestens 5 MW thermisch ermöglichen. Neben der Validierung des Konzepts für diesen Leistungsbereich sollte dort insbesondere der Zusammenhang zwischen Rohrbündeldichte, gezielt möglicher Rezirkulationstropfenkühlung und der Gemischgeschwindigkeit untersucht werden, da hier Auslegungsempfehlungen für die Kühl- und Kondensationsstrecke der Direktkontaktkondensation über dem Kondensatorrohrbündel hervorgehen.

Die Arbeiten zur Deckung des angesprochenen Forschungsbedarf dienen nicht allein der Bereitstellung einer effizienten Technologie im Bereich der Kohlendioxidabscheidung, grundsätzlich ist das Kondensatrezirkulationskonzept bei einer Vielzahl von Trennungs- und Wärmeübertragungsaufgaben mit nicht kondensierbaren Bestandteilen denkbar, wie z.B. bei der Rauchgaskondensation in Biomasseheizkraftwerken (s. [Gad08] und Kapitel 6.1).

Literaturverzeichnis

- [Ack37] ACKERMANN, G.: *Wärmeübergang und molekulare Stoffübertragung im gleichen Feld bei großen Temperatur- und Partialdruckdifferenzen*. VDI Verlag, 1937 (VDI-Forschungsheft 382) 9
- [AJ05] ALTMANN, H. ; JENTSCH, N.: Das Oxyfuel-Verfahren in Braunkohlekraftwerken. In: *Kooperationsforum Innovation konventionelle Kraftwerke* (2005) 24, 26, 30, 38, 83
- [Alt06] ALTMANN, H.: Das CO₂-freie Pilotkraftwerk von Vattenfall Europe Generation. In: *3. Innovationstag Energie*. Cottbus, 2006 23, 26, 78, 79
- [AMV⁺08] ANDERSON, R. E. ; MACADAM, S. ; VITERI, F. ; DANIEL, O. ; DOWNS, J. P. ; PALISZEWSKI, A.: Adapting gas turbines to zero emission Oxy-fuel power plants. In: *Proceedings of ASME Turbo Expo 2008: Power for Land, Sea and Air* (2008), Nr. GT2008-51377, S. 1 – 11 29, 35, 36, 40, 129
- [Asc78] ASCHNER, F. A.: *Planning fundamentals of thermal power plants*. John Wiley & Sons, Inc., New York, 1978 20
- [AVHe91] AKADEMISCHEN VEREINS HÜTTE E.V., Wissenschaftlicher A.: *Die Grundlagen der Ingenieurwissenschaften*. 29. Horst Czichos, 1991 65
- [Bec61] BECKER, R.: *Theorie der Wärme*. Springer Verlag, 1961 134
- [Ber69] BERMANN, L. D.: Determining the mass transfer coefficient in calculations on condensation of steam containing air. In: *Teploenergetika (Urspr.)* 16 (1969), S. 68–71 12
- [BG72] BELL, K. J. ; GHALY, M. A.: An approximate generalized design method for multi-component/partial condensers. In: *AIChE Symposium Series* 69 (1972), Nr. 131, S. 72–79 13
- [Bög00] BÖGE, A. (Hrsg.): *Das Techniker Handbuch*. 16. Vieweg Verlag, 2000 25
- [BGDE00] BLACKWELL, B. F. ; GILL, W. ; DOWDING, K. J. ; EASTERLING, R. G.: Uncertainty estimation in the determination of thermal conductivity of 304 stainless steel. In: *Proceedings of IMECE '00*, 2000 72

- [BGKT08] BENNACEUR, K. ; GIELEN, D. ; KERR, T. ; TAM, C.: *Energy Technology Analysis-CO₂ CAPTURE AND STORAGE*. Internationale Energie Agentur, 2008 1
- [Bro96] BROUWERS, H. J. H.: Effect of fog formation on turbulent vapor condensation with noncondensable gases. In: *Journal of Heat Transfer* 118 (1996), Nr. 1, S. 243 – 245 115
- [BS94] BAEHR, H. D. ; STEPHAN, K.: *Wärme- und Stoffübertragung*. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1994 6, 17, 114
- [BSL07] BIRD, R. B. ; STEWART, W. E. ; LIGHTFOOT, E. N.: *Transport Phenomena*. 2nd Edition. Wiley, 2007 8, 9, 10, 56
- [CCDF91] CELATA, G. P. ; CUMO, M. ; D'ANNIBALE, F. ; FARELLO, G. E.: Direct contact condensation of steam on droplets. In: *Int. J. of Multiphase Flow* 17 (1991), S. 191–211 20, 81, 106
- [CE41] COLBURN, A. P. ; EDISON, A. G.: Prevention of fog in cooler-condensers. In: *Industrial and Engineering Chemistry* 33 (1941), Nr. 4, S. 457–458 13, 16, 23, 107, 114, 115
- [CG02] CHEMIEINGENIEURWESEN (GVC), VDI-Gesellschaft V. (Hrsg.): *VDI Wärmeatlas - Berechnungsblätter für den Wärmeübergang*. Bd. 9., erweiterte Auflage. VDI Verlag, 2002 16, 20, 22, 30, 46, 47, 72, 75, 77, 101, 108, 109, 114, 115, 116
- [CH34] COLBURN, A. P. ; HOUGEN, O. A.: Design of cooler condensers for mixtures of vapor with non-condensing gases. In: *Industrial and Engineering Chemistry* 26 (1934), Nr. 11, S. 1178 – 1182 28
- [Cha85] CHASE, M. W.: NIST-JANAF Thermodynamical Tables, Third edition. In: *Journal of Physical and Chemical Reference Data* 14 (1985) 33, 128
- [Chr08] CHRIST, F.: *Titel noch unbekannt*, Technische Universität München, Diss., 2008 55, 56, 57, 85
- [DK98] DEUTSCHER-KALIBRIERDIENST: Angabe der Messunsicherheit bei Kalibrierungen (DKD-3) / Physikalisch-technische Bundesanstalt (PTB). 1998. – Richtlinie 65, 66
- [DK00] DEUTSCHER-KALIBRIERDIENST: Kalibrierung von Thermoelementen (DKD-R 5-3) / Physikalisch-technische Bundesanstalt (PTB). 2000. – Richtlinie 65

-
- [ED59] ECKERT, E. R. G. ; DRAKE, R.: *Heat and Mass Transfer*. Mc Graw Hill, 1959 15
- [FHO79] FUJII, T. ; HONDA, H. ; ODA, K.: Condensation of steam on a horizontal tube - the influence of oncoming velocity and thermal condition at the tube wall. In: *Condensation of Heat Transfer* 18 (1979), S. 35 – 43 21
- [For67] FORGO, L.: Probleme der Mischkondensator konstruktion bei Luftkondensationsanlagen System Heller. In: *Energietechn.* 17 (1967), S. 302–305 23, 82
- [FRLP66] FEDER, J. ; RUSSELL, K. C. ; LOTHE, J. ; POUND, G. M.: Homogeneous Nucleation and Growth of Droplets in Vapours. In: *Advances in Physics* 15 (1966), S. 111–178. 133
- [Gad08] GADERER, M.: *Wärmeversorgung mit fester Biomasse bei kleiner Leistung*, TU München, Diss., 2008 79, 116
- [GCH06] GOU, C. ; CAI, R. ; HONG, H.: An Advanced Oxy-Fuel Power Cycle with High Efficiency. In: *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part A: Journal of Power and Energy* 220 (2006), Nr. 4 / 2006, S. 315–325 36
- [Gni75] GNIELINSKI, V.: Neue Gleichungen für den Wärme- und Stoffübergang in turbulent durchströmten Rohren und Kanälen. In: *Forsch. Ing.-Wes* 41 (1975), Nr. 1, S. 8 – 16 9
- [Gol03] GOLDBRUNNER, M.: *Lokale Phänomene bei der Kondensation von Dampf in Anwesenheit eines nichtkondensierbaren Gases*, TU München, Diss., 2003 57
- [Gra69] GRANT, I. D. R.: Condenser performance - the effect of different arrangements for venting non-condensing gases. In: *British Chemical Engineering* 14 (1969), Nr. 12, S. 1709–1711 25
- [Gra82] GRASSMANN, P.: *Physikalische Grundlagen der Verfahrenstechnik*. Bd. 3. Auflage. Sauerländer, 1982 101
- [GS75] GADDIS, E. S. ; SCHLÜNDER, E. U.: Temperaturverlauf und übertragbare Wärmemenge in Röhrenkesselapparaten mit Umlenkblechen. In: *Verfahrenstechnik* 9 (1975), Nr. 12, S. 617–621 13
- [GS78] GADDIS, E. S. ; SCHLÜNDER, E. U.: Über die Berechnung des Austauschwirkungsgrades und der mittleren Temperaturdifferenz in mehrgängigen Rohrbündelwärmeaustauschern mit Umlenkblechen. In: *Verfahrenstechnik* 12 (1978), Nr. 3, S. 144–149 13

- [Hae00] HAEP, S.: *Bildung und Wachstum von Aerosolen unter Bedingungen der nasalen Rauchgasreinigung*. VDI Verlag Düsseldorf, 2000 (VDI Reihe 3 641) 16, 115
- [HAP⁺05] HUSTAD, C.-W. ; ANDERSON, R. E. ; PRONSKE, K. L. ; TRONSTAD, I. ; VITERI, F.: Optimization of thermodynamically efficient nominal 40 MW zero emission pilot and demonstration power plant in Norway. In: *ASME Turbo Expo 2005: Power for Land, Sea and Air* ASME Turbo Expo 2005 (2005), Nr. GT2005-68640, S. 1–8 35, 36
- [Hig35] HIGBIE, R.: The rates of absorption of a pure gas into a still liquid during short periods of exposure. In: *Trans. Am. Inst. Chem. Eng.* 31 (1935), S. 36–38 10
- [IDW90] INCOPERA, F.P. ; DE WITT, D. P.: *Introduction to heat transfer*. Wiley, 1990 (2nd Edition) 72
- [Kar97] KARL, J.: *Untersuchung des Wärmeübergangs bei der Partialkondensation mittels linearer Ramanspektroskopie*, TU München, Dissertation, 1997 55, 57
- [Kar05] KARELLAS, S.: *Online analysis of the composition of biogenous gases and their effect on microturbine and fuel cell systems*, TU München, Dissertation, 2005 86
- [Kau99] KAUFMANN, S.: *Kondensation von Dampf aus Gemischen mit inertem Gas: Effiziente Trennung statt Nebelbildung*. VDI Verlag Düsseldorf, 1999 (Fortschritt-Berichte, VDI Reihe 3 609) 2, 15, 18, 23, 24, 53, 79, 85, 87, 98, 101, 102, 107, 114, 115
- [KB87] KREITH, F. ; BOEHM, R. F.: *Direct contact heat transfer*. Springer Verlag, 1987 20, 21
- [KBM81] *Kapitel Condensers: Basic heat transfer and fluid flow*. In: KAKAC, S. ; BERGLES, A. E. ; MAYINGER, F.: *Heat exchangers, thermal and hydraulic fundamentals and design*. Hemisphere Publishing Corporation, 1981, S. 289–313 5
- [KHK⁺06] KATHER, A. ; HERMSDORF, C. ; KLOSTERMANN, M. ; MIESKE, K. ; KÖPKE, D. ; EGGERS, R.: Oxyfuel-Prozess für Steinkohle mit CO₂-Abscheidung: erste Ergebnisse. In: *Sitzung der VDI-GVC-Fachausschüsse Energieverfahrenstechnik, Gasreinigung und Aus- und Fortbildung*. Würzburg, 2006 5, 35
- [KKH⁺06] KATHER, A. ; KLOSTERMANN, M. ; HERMSDORF, C. ; MIESKE, K. ; EGGERS, R. ; KÖPKE, D.: Konzept für ein 600 MWel Steinkohlekraftwerk mit CO₂-Abtrennung auf Basis des Oxyfuel-Prozesses. In: *Kraftwerksbetrieb unter*

- künftigen Rahmenbedingungen* Bd. 38 Technische Universität Dresden, 2006
35, 78
- [Kla00] KLASMEIER, P.: Eintauchtiefen in thermische Systeme (Depths of Immersion in Thermal Systems). In: *tm - Technisches Messen* 67 (2000), Nr. 1, S. 34–66
- [Kop65] KOPP, J.H.: *Über den Wärme- und Stoffaustausch bei Mischkondensation*, ETH Zürich, Dissertation, 1965 20
- [Kre84] KREBS, R.: *Kondensation in Anwesenheit nicht kondensierbarer Gase in turbulent durchströmten senkrechten Kondensationsrohren*. VDI Verlag Düsseldorf, 1984 (Fortschritt-Berichte, Reihe 6 153) 11
- [Kri92] KRISCHER, O.; Kast W.: *Die wissenschaftlichen Grundlagen der Trocknungstechnik*. Springer Verlag, 1992 17
- [KS70] KINNEY, R. B. ; SPARROW, E. M.: Turbulent flow, heat transfer and mass transfer in a tube with surface suction. In: *ASME Journal of Heat Transfer* 92 (1970), S. 117–125 11
- [Lan95] LANZL, I.: *Teilkondensation im längsangeströmten horizontalen Rohrbündel*, TU München, Doktorarbeit, 1995 115
- [LB76] LANDOLT-BÖRNSTEIN: *Zahlenwerte und Funktionen aus Physik, Chemie, Astronomie, Geophysik, Technik, 6. Auflage, IV. Band Technik, 4. Teil Wärmetechnik, Gleichgewicht der Absorption von Gasen in Flüssigkeiten*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1976. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1976 19, 100
- [LCH79] LEONARD, D. A. ; CAPUTO, B. ; HOGE, F. E.: Remote sensing of subsurface water temperature by Raman scattering. In: *Applied Optics* 18 (1979), Nr. 11, S. 1732–1740 56
- [Lew22] LEWIS, W. K.: The evaporation of a liquid into a gas. In: *Mech. Engineering* 44 (1922), S. 445–448 9
- [LJ99] LEMMON, E. W. ; JACOBSEN, R. T.: A generalized model for the thermodynamic properties of mixtures. In: *International Journal of Thermophysics* 20 (1999), S. 825 – 835 33
- [LJY06] LI, H. ; JI, X. ; YAN, J.: A new modification on RK EOS for gaseous CO_2 and gaseous mixtures of CO_2 and H_2O . In: *International Journal of Energy Research* 30 (2006), S. 135 – 148 33

- [LR84] LEE, W. C. ; ROSE, J. W.: Forced convection film condensation on a horizontal tube with and without non-condensing gases. In: *Int. J. Heat Mass Transfer* 27 (1984), S. 519–528 12, 55, 114
- [Man00] MANTHEY, A.: *Bildung und Verhalten von Nebel in einem Rohrbündelkondensator*, Universität Fridericiana zu Karlsruhe (TH), Diss., 2000 2, 16, 18, 23, 114, 133, 134
- [Mat03] MATHIEU, P.: Mitigation of CO_2 emission using low and near zero CO_2 emission power plants. In: *Clean Air* 4 (2003), S. 21 – 36 29
- [MBP⁺03] MARIN, O. ; BOURHIS, Y. ; PERRIN, N. ; DiZANNO, P. ; VITERI, F. ; ANDERSON, R. E.: High Efficiency Zero Emission Power Generation Based on a High-Temperature Steam Cycle. In: *28th Int. Technical Conference on Coal Utilization and Fuel Systems, Clearwater, Florida, 2003* 36
- [McN79] MCNAUGHT, J. M.: Mass transfer correction terms in design methods for multi-component/partial condensers. In: MARTO, P. G. P. J. ; Kroeger K. P. J. ; Kroeger (Hrsg.) ; ASME The Heat Transfer Division (Veranst.): *Condensation Heat Transfer* Bd. 18th National Heat Transfer Conference San Diego ASME The Heat Transfer Division, 1979 13
- [Mer59] MERK, H. J.: The macroscopic equations for simultaneous heat and mass transfer in isotropic, continuous and closed systems. In: *Applied Scientific Research* A8 (1959), S. 73–99 10
- [Mer80] MERSMANN, A.: *Thermische Verfahrenstechnik*. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1980 20, 35
- [MRD89] MICHAEL, A. G. ; ROSE, J. W. ; DANIELS, L. C.: Forced convection condensation on a horizontal tube- experiments with a vertical downflow of steam. In: *Journal of Heat Transfer* 111 (1989), S. 792 – 797 55, 71
- [MTC76] MILLS, A. F. ; TAN, C. ; CHUNG, D. K.: Experimental study of condensation from steam-air mixtures flowing over a horizontal tube: overall condensation rates. In: *Proceeding of the 5th International Heat Transfer Conference - Tokio* Bd. 5, 1976, S. 20 – 23 12
- [Nau07] NAU, M.: *Elektrische Temperaturmessung mit Thermoelementen und Widerstandsthermometer*. JUMO, 2007 66
- [Ne95] NORMUNG E.V., Deutsches I. (Hrsg.): *DIN 1319 - Grundlagen der Messtechnik*. Beuth Verlag GmbH, 1995 (1 -4) 65
- [Noa87] NOAKER, P.: Variation research - debugging the manufacturing process. In: *Tooling & Production* 53 (1987), Nr. 6, S. 53–56 50

- [NOIH92] NOZU, Sh. ; OZAKI, K. ; INABA, H. ; HONDA, H.: Condensation of a nonazeotropic refrigerant mixture R114/R113 in horizontal annuli with an enhanced inner tube. In: *Journal of Heat Transfer* 114 (1992), S. 201–210 11, 75, 114, 115
- [Nol89] NOLTE, G.: *Kondensation von Dampf-Luft Gemischen im horizontal durchströmten Ringkanal*, TU München, Dissertation, 1989 93, 115
- [Ode83] ODENTHAL, H.-P.: *Berechnung des Wärme- und Stoffaustauschs bei partieller Kondensation in turbulent durchströmten Kondensatorrohren*, Rheinisch-Westfälische Technische Hochschule (RWTH) Aachen, Diss., 1983 11
- [OYIO03] OSAKABE, M. ; YAGI, K. ; ITOH, T. ; OHMASA, K.: Condensation Heat Transfer on Tubes in Actual Flue Gas (Parametric Study for Condensation Behavior). In: *Heat Transfer - Asian Research* 32 (2003), Nr. 2, S. 153–166 24
- [Pet70] PETUKHOV, B. S.: Heat transfer and friction in turbulent power pipe flow with variable physical properties. In: HARNETT, J. P. (Hrsg.) ; IRVINE, T. F. (Hrsg.): *Advances in Heat Transfer*. New York : Academic Press, 1970, S. 504–564 11
- [PP06] PAULUS, M. E. ; PENONCELLO, S. G.: Correlation for the carbon dioxide and water mixture based on the Lemmon-Jacobson mixture model and the Peng-Robinson equation of state. In: *International Journal of Thermodynamics* 27 (2006), S. 1373 – 1386 33
- [PR76] PENG, D.-Y. ; ROBINSON, D. B.: A New Two-Constant Equation of State. In: *Industrial and Engineering Chemistry, Fundamentals* 15 (1976), Nr. 1, S. 59 – 64 34
- [PS63] PROBER, R. ; STEWART, W. E.: Transport Phenomena in Wedge Flows; Perturbation Solutions for Small Mass Transfer Rates. In: *Int. J. Heat Mass Transfer* 6 (1963), S. 221–229 10
- [PT88] PATEL, M. R. ; T., Eubank P.: Experimental Densities and Derived Thermodynamic Properties for Carbon Dioxide-Water Mixtures. In: *J. Chem. Eng. Data* 33 (1988), S. 185 – 193 33
- [Ren55] RENKER, W.: In: *Chem. Tech. (Leipzig)* 7 (1955), Nr. 8, 451–461 S. 6
- [Rie99] RIEDEL, E.: *Anorganische Chemie*. Bd. 4. Auflage. Walter de Gruyter & Co Verlag, Berlin, 1999 19, 114

- [RK49] REDLICH, O. ; KWONG, J. N. S.: On the Thermodynamics of Solutions. V - An Equation of State. Fugacities of Gaseous Solutions. In: *Chemical Reviews* 44 (1949), S. 233 – 244 34
- [Ros80] ROSE, J. W.: Approximate equations for forced convection condensation in the presence of a non-condensing gas on a flat plate and horizontal tube. In: *Int. J. Heat Mass Transfer* 23 (1980), S. 539–546 11, 75, 115
- [RS94] *Kapitel* Berechnung von Wärmeübertragern. In: ROETZEL, W ; SPANG, B.: *VDI Wärmeatlas - Berechnungsblätter für den Wärmeübergang*. 7. VDI Verlag, 1994, S. Ca 1–Ca 39 13
- [RW97] RADE, L. ; WESTERGREN, B. (Übersetzt und bearbeitet von Vachenauer P.: *Springers Mathematische Formeln*. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1997 50
- [Sch66] SCHRADER, H.: Einfluß von Inertgasen auf den Wärmeübergang bei der Kondensation on Dämpfen. In: *Chemie-Ingenieur-Technik* 38 (1966), Nr. 10, S. 1091 – 1094 12
- [Sch69] SCHMIDT, E.: Properties of Water and Steam in SI-Units. In: *Springer-Verlag Heidelberg New York* (1969) 33, 97, 128
- [Sch90] SCHABER, K.: Aerosolbildung durch spontane Phasenübergänge bei Absorptions- und Kondensationsprozessen. In: *Chem.-Ing.-Tech.* 67 (1990), Nr. 11, S. 1443–1452 133
- [Sil47] SILVER, L.: Gas cooling with aqueous condensation. In: *Transaction of the Institution of Chemical Engineers* 25 (1947), S. 30–42 13
- [SJMHO4] SANZ, W. ; JERICHA, H. ; MOSER, M. ; HEITMEIR, F.: Thermodynamic and economic investigation of an improved Graz Cycle power plant for CO₂ capture. In: *Proceedings of ASME Turbo Expo 2004: Power for Land, Sea and Air* (2004), Nr. GT2004-53722, S. 1 – 10 29, 36, 37, 131
- [SM92] STEPHAN, K. ; MAYINGER, F.: *Mehrstoffsysteme und chemische Reaktionen*. Bd. 2: *Thermodynamik*. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1992 40, 59
- [SMS67] SPARROW, E. M. ; MINKOWYCZ, W. J. ; SADDY, M.: Forced convection condensation in the presence of non-condensables and interfacial resistance. In: *Int. J. Heat Mass Transfer* 10 (1967), S. 1829–1845 11
- [Spa93] SPAN, R.: *Eine neue Fundamentalgleichung für das fluide Zustandsgebiet von Kohlendioxid bei Temperaturen bis 1100 K und Drücken bis 800 MPa*. VDI Verlag, 1993 33, 97, 128

- [SQM⁺07] SOLOMON, S. ; QIN, D. ; MANNING, M. ; CHEN, Z. ; MARQUIS, M. ; AVERYT, K. B. ; TIGNOR, M. ; MILLER, H. L.: *Climate Change 2007: The Physical Science Basis: Summary for Policymakers*. Cambridge, UK and New York, USA : Cambridge University Press, 2007 1
- [SSG81] SCHEFFLER, K. ; STRAUB, J. ; GRIGULL, U.: *Wasserdampftafeln*. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1981 12
- [SSZ94] SCHABER, K. ; SCHENKEL, A. ; ZAHORANSKY, R.: Drei-Wellen-Extinktionsverfahren zur Charakterisierung von Aerosolen unter industriellen Bedingungen. In: *tm - Technisches Messen* 7/8 (1994), Nr. 61, S. 295–300 85
- [Ste71] STEFAN, J.: Über das Gleichgewicht und die Bewegung, insbesondere die Diffusion von Gasgemengen. In: *Sitzungsb. akad. Wiss. Wien* 63 (1871), S. 63–124 9
- [Ste72] STEINMEYER, D. E.: Fog formation in partial condensers. In: *Chem. Engng. Prog.* 7 (1972), S. 64–68. 18, 114
- [Ste06] STERN, N.: *The Economics of Climate Change: The Stern Review*. Siehe auch [http : //www.hm – treasury.gov.uk](http://www.hm-treasury.gov.uk) (Stand: 24.01.2010) : Cambridge University Press, 2006 1
- [SW83] SHAH, A. K. ; WEBB, D. R.: Condensation of single and mixed vapours from a non-condensing gas in flow over a horizontal tube bank. In: *Institute of Chemical Engineers Symposium Series No. 75*, 1983, S. 356 – 379 12
- [SW84] SMITH, G. R. ; WORMALD, C. J.: The excess molar enthalpies of $x_{H_2O} + (1 - x)CO_g$ and $x_{H_2O} + (1 - x)CO_{2g}$. In: *J. chem. Thermodynamics* 16 (1984), S. 543 – 550 33
- [The01] THERMODYNAMIK, Lehrstuhl für: *Skriptum zu den Vorlesungen Wärmetransportphänomene, Wärme- und Stoffübertragung*. Lehrstuhl für Thermodynamik, TU München, 2001 132
- [Vol39] VOLMER, M.: *Kinetik der Phasenbildung*. Theodor Steinkopf Verlag, 1939 133
- [Wag00] WAGNER, W.: The IAPWS Industrial Formulation 1997 for the Thermodynamic Properties of Water and Steam. In: *Journal of Engineering for Gas Turbines and Power* 122 (2000), S. 150 – 182 71
- [WLS86] WORMALD, C. J. ; LANCASTER, M. N. ; SELLARS, A. J.: The excess molar enthalpies of $x_{H_2O} + (1 - x)CO_g$ and $x_{H_2O} + (1 - x)CO_{2g}$ at high temperatures and pressures. In: *J. Chem. Thermodynamics* 18 (1986), S. 135 – 147 33

- [WV06] WU, T. ; VIEROW, K.: Local heat transfer measurements of steam/air mixtures in horizontal condenser tubes. In: *Int. J. Heat Mass Transfer* 49 (2006), S. 2491–2501 12, 55
- [YGSE03] YANTOVSKI, E. ; GORSKI, J. ; SMYTH, B. ; ELSHOF, J.: Zero emission fuel-fired power plants with ion transport membrane. In: *Second Annual Conference on Carbon Sequestration*, 2003 29

Anhang A

Informationen zur Simulation

A.1 Kondensator- und Iterationsparameter

Tabelle A.1: Liste der festzulegenden Kondensator- und Iterationsparameter

Parameter	Betriebsmodus*	Symbol	Einheit
Kühlwasserdruckverlust		Δp_{KW}	[bar]
Abstand der Rohre in Querrichtung		s_q	[m]
äußerer Rohrdurchmesser		D	[m]
innerer Rohrdurchmesser		d	[m]
Rohrlänge		l_R	[m]
Wärmeleitkoeffizient der Rohrwand		λ_R	$[\frac{W}{mK}]$
Kühlwassergeschwindigkeit		v_{KW}	$[\frac{m}{s}]$
Toleranzintervall für die Konvergenz	1	$tolx$	$[\frac{kg}{kg}]$
Aktivierung des Kondensators		<i>OnOff</i>	[-]
Betriebsweise		<i>Indicator</i>	[-]
Restdampfgehalt	1	$x_{H_2O,lim}$	$[\frac{kg}{kg}]$
Rauchgasgeschwindigkeit	1	v_G	$[\frac{m}{s}]$
Anzahl der Rohre pro Rohrreihe	0	<i>nPipe2</i>	[-]
Anzahl der Rohrreihen	0	<i>nRange2</i>	[-]

* Durch Betriebsweise definiert: 1 := Auslegungsmodus, 0 := Leistungsmodus

A.2 Neue Stoffdatenbasis für die Simulation

Tabelle A.2: Neues Konzept zur Berechnung der physikalischen Eigenschaften von Reinstoffen und Gemischen in IPSEpro

Stoff	Ansatz	Temperatur [°C]		Druck [bar]		Quelle
		min	max	min	max	
CO_2	Realgas	0	827	0	8000	[Spa93]
H_2O	Realgas	0,01	850	$0,1^{-6}$	1000	[Sch69]
AR	Idealgas	-30,0	5726,86	$0,1^{-6}$	20	[Cha85]
C_2H_6	Idealgas	-30,0	5726,86	$0,1^{-6}$	35	[Sch69]
C_3H_8	Idealgas	-30,0	5726,86	$0,1^{-6}$	35	[Sch69]
CH_4	Idealgas	-30,0	5726,86	$0,1^{-6}$	35	[Sch69]
CO	Idealgas	-30,0	5726,86	$0,1^{-6}$	100	[Sch69]
H_2	Idealgas	-30,0	5726,86	$0,1^{-6}$	35	[Sch69]
H_2S	Idealgas	-30,0	5726,86	$0,1^{-6}$	100	[Sch69]
N_2	Idealgas	-30,0	5726,86	$0,1^{-6}$	35	[Sch69]
O_2	Idealgas	-30,0	5726,86	$0,1^{-6}$	35	[Sch69]
SO_2	Idealgas	-30,0	5726,86	$0,1^{-6}$	10	[Sch69]

A.3 Simulationsbild des CES-Prozesses

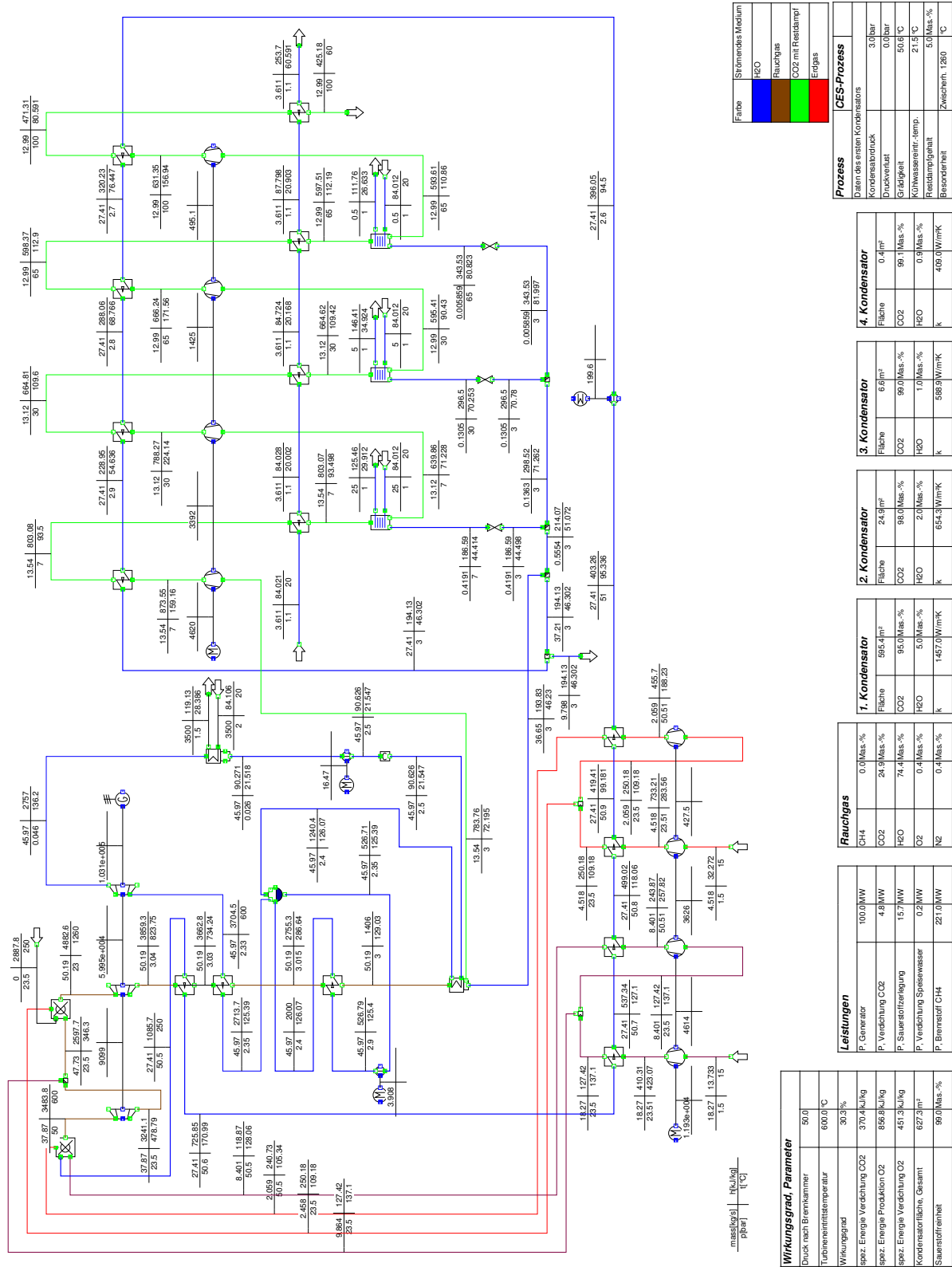


Abbildung A.1: Wärmeschaltplan des CES-Prozesses [AMV+08] im Simulationsprogramm

A.4 Simulationsbild des S-Graz Cycles

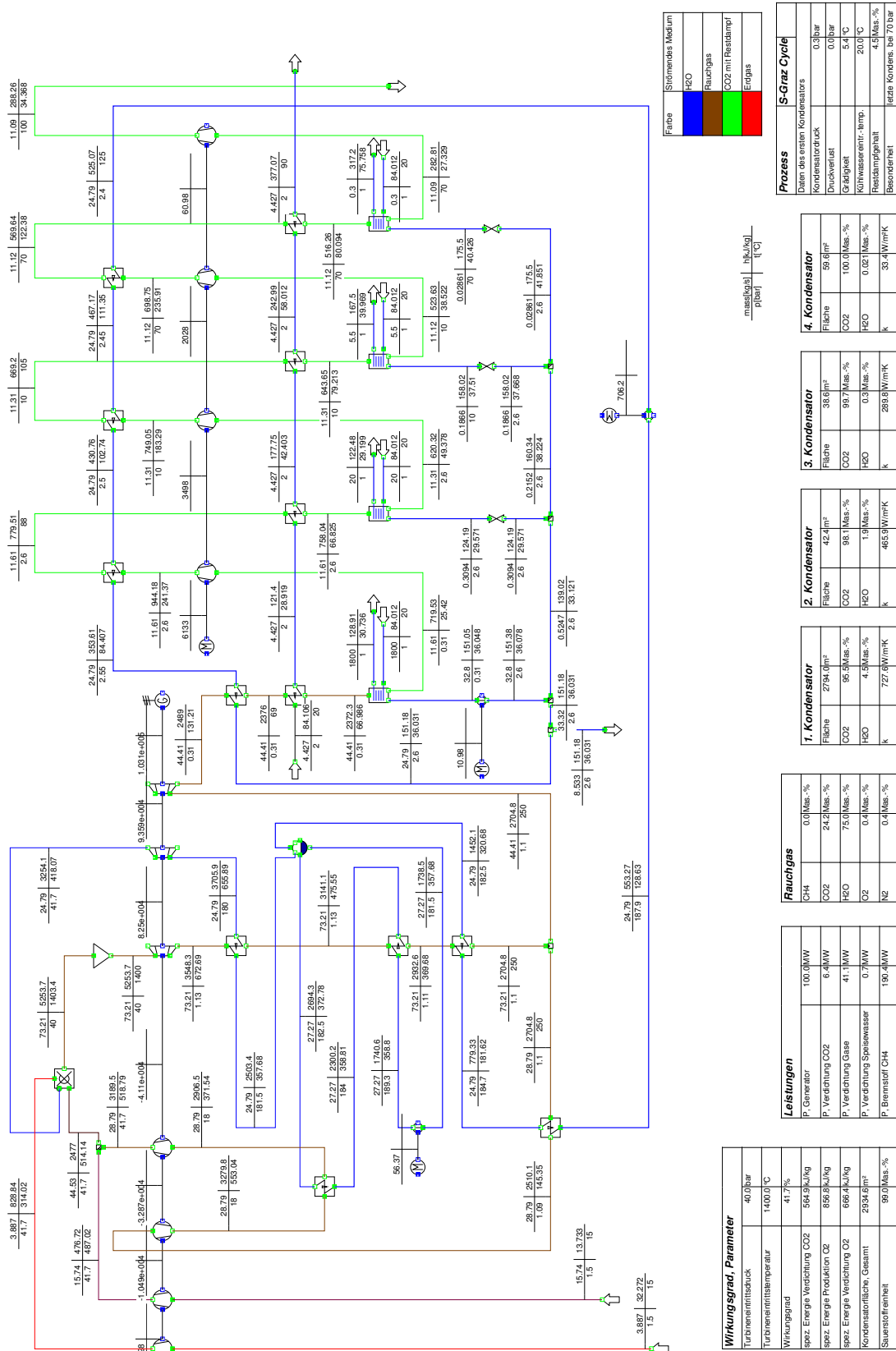


Abbildung A.2: Wärmeschaltplan des S-Graz Cycle [SJM04] im Simulationsprogramm

Anhang B

Berechnungsnachweise

B.1 Berechnung der logarithmisch gemittelten Temperaturdifferenz

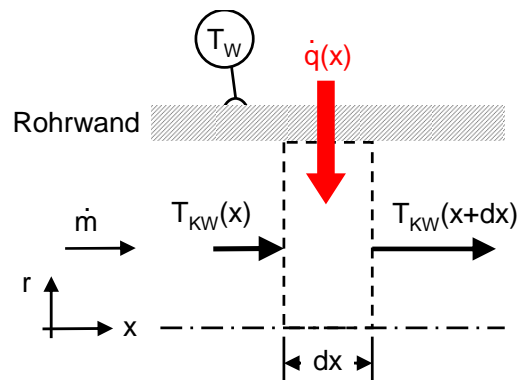


Abbildung B.1: Bilanz der Wärmeströme an einem Rohrabschnitt infinitesimaler Dicke dx in Anlehnung an [The01]

Der Grund für die nur abschnittsweise Gültigkeit von ΔT_{Log} liegt in einer Vereinfachung für die Herleitung von ΔT_{Log} . Die Energiebilanz über das Volumenelement in Abbildung B.1 lautet

$$\dot{q}_W U dx = \dot{m} c_p dT_{KW}, \quad (\text{B.1})$$

wobei der spezifische Wandwärmestrom mit

$$\dot{q}_W = k (T_W - T_{KW,m}) \quad (\text{B.2})$$

berechnet wird. Dieser muss über dem Umfang U des Rohrs entlang dx gleich dem vom Kühlmedium im Volumenelement aufgenommenen Wärmestrom sein. Die Berechnung des gesamt aufgenommenen Wärmestroms erfolgt über die Trennung der Variablen und die Integration über die Länge L

$$\int_0^L k U dx = \dot{m} c_p \int_{T_{KW,m}(0)}^{T_{KW,m}(L)} \frac{1}{T_W - T_{KW,m}} dT_{KW,m}. \quad (\text{B.3})$$

Gilt $T_W = konst.$ und definiert man $\Delta T_{KW} \equiv T_W - T_{KW,m}$ dann lässt sich in (B.3) der rechte Integrand zu $dT_{KW} = -d\Delta T_{KW}$ vereinfachen

$$\int_0^L kU dx = \dot{m}c_p \int_{T_W - T_{KW,m}(0)}^{T_W - T_{KW,m}(L)} \frac{1}{T_W - T_{KW,m}} d(T_W - T_{KW,m}). \quad (B.4)$$

Die Integration führt mit $\bar{k} = \int_0^L k dx$ zu

$$\bar{k}UL = \dot{m}c_p \ln \left(\frac{T_W - T_{KW,m}(L)}{T_W - T_{KW,m}(0)} \right). \quad (B.5)$$

Durch Einsatz der Gleichung für den Kühlmedienwärmestrom

$$\dot{Q}_{KW} = \dot{m}c_p (T_{KW,m}(L) - T_{KW,m}(0)) \quad (B.6)$$

und von $A = UL$ erhält man

$$\dot{Q}_{KW} = \bar{k}A \frac{T_{KW,m}(L) - T_{KW,m}(0)}{\ln \left(\frac{T_W - T_{KW,m}(L)}{T_W - T_{KW,m}(0)} \right)} = \bar{k}A \Delta T_{Log}, \quad (B.7)$$

wobei

$$\Delta T_{Log} \equiv \frac{T_{KW,m}(L) - T_{KW,m}(0)}{\ln \left(\frac{T_W - T_{KW,m}(L)}{T_W - T_{KW,m}(0)} \right)} = \frac{\Delta T_{KW,m}(L) - \Delta T_{KW,m}(0)}{\ln \left(\frac{\Delta T_{KW,m}(L)}{\Delta T_{KW,m}(0)} \right)} \quad (B.8)$$

gilt. Im Falle der Rauchgaskondensation, bei der sich sowohl die Wandtemperaturen als auch die Wärmekapazitätsströme gaseitig wesentlich ändern, ist die Vereinfachung $T_W = konst.$ nicht zulässig. Konsequenterweise kann Gleichung (B.7) nur abschnittsweise im Kondensator angewendet werden. Andernfalls muss bedacht werden, dass der Fehler umso größer wird, je größer die Änderung der Wandtemperatur bzw. je größer die Änderung in der Mischungszusammensetzung.

B.2 Kritische Übersättigung

Die kritische Übersättigung hängt von der Keimbildungsrate (s. MANTHEY [Man00])

$$J = K \exp \left(\frac{\Delta G}{k_B T} \right) \quad (B.9)$$

[Vol39] ab. Hierbei ist K der Stoßfaktor (Anzahl der Stöße der Gasmoleküle pro Zeit- und Volumeneinheit; Berechnung z.B. nach FEDER et al. [FRLP66]), ΔG die Gibb'sche freie Bildungsenthalpie, k_B die Boltzmannkonstante und T die Temperatur des Gases/Gasgemisches. Eine kritische Übersättigung bei technischen Prozessen liegt nach SCHABER [Sch90] dann vor, wenn die Keimbildungsrate J einen Wert von 10^4 bis $10^6 \text{ cm}^{-3}\text{s}^{-1}$ überschreitet. Ab diesem Wert erreicht die Keimbildung ein stabiles Wachstum, d.h. es werden mehr Keime (Tröpfchen) gebildet als wieder zerfallen. Den Verlauf der kritischen Übersättigung über der Temperatur zeigt Abbildung B.2. Für die Berechnung verwendete

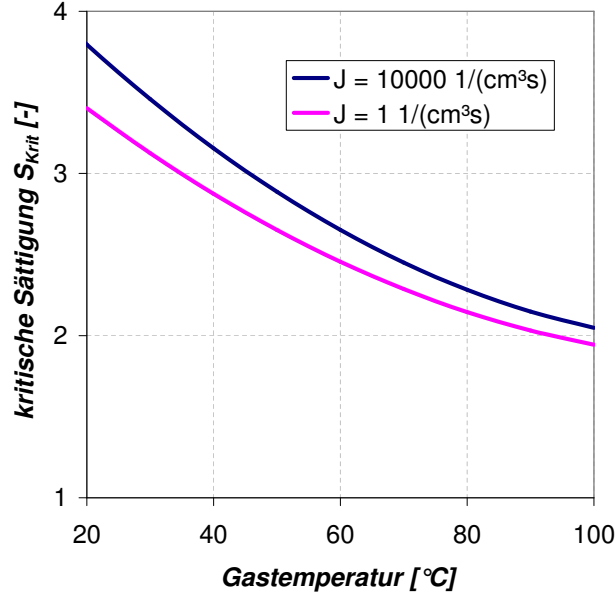


Abbildung B.2: Verlauf der kritischen Übersättigung für ein Wasserdampf/Gas-Gemisch über der Gemischtemperatur nach MANTHEY [Man00]

MANTHEY für den Stoßfaktor eine Abschätzung von BECKER [Bec61], der diesen für einen Wasserdampfpartialdruck von 10 mbar mit $K = 10^{25} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$ angab. Die Gibb'sche freie Bildungsenthalpie berechnete er nach

$$\Delta G = \frac{4}{3} \pi r_K^2 \sigma_S, \quad (\text{B.10})$$

worin

$$r_P = \frac{2\sigma_S}{p \ln S} \quad (\text{B.11})$$

der Radius des Keimes (Tröpfchens) und σ_S die Oberflächenspannung ist. Bei Analyse von (B.9) wird klar, dass die Sensibilität der Keimbildungsrate J auf Änderungen des Stoßfaktors deutlich geringer ist als die der Temperatur im Nenner des Exponentialarguments (s. Abbildung B.2).

B.3 Temperaturprofil eines Mantelthermoelements

Für die Wärmebilanz über Δx gilt

$$\frac{d\dot{Q}_{W,j}}{dt} = \dot{Q}_{W,j-1} + \dot{Q}_{W,j+1} + \dot{Q}_{a,j} \quad (\text{B.12})$$

wobei $\dot{Q}_{W,j} = \rho A_q \Delta x c_p T_j$; $\dot{Q}_{W,j-1} = -\lambda \frac{T_j - T_{j-1}}{\Delta x} A_q$; $\dot{Q}_{W,j+1} = \lambda \frac{T_{j+1} - T_j}{\Delta x} A_q$ und $\dot{Q}_{A,j} = \alpha_j A_a (T_\infty - T_j)$ und die Flächen $A_q = \frac{d^2}{4} \pi$ und $A_a = d\pi(x\Delta x)$ sind. Für die numerische

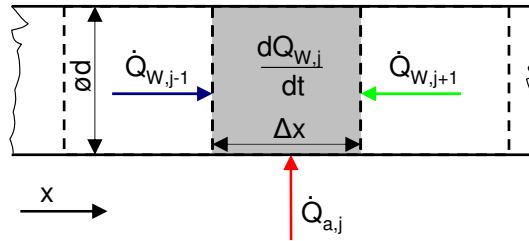


Abbildung B.3: Wärmebilanz an einem Stück Δx des Thermoelements

Berechnung wird der Übergang von dt in Δt vollzogen, wobei n Zeitschritte bis zur Erreichung eines stationären Profils notwendig sind. Unter Beachtung dieses Punktes lässt sich die Wärmebilanz über Δx folgendermaßen schreiben

$$\frac{T_j^{n+1} - T_j^n}{\Delta t} = \frac{-\lambda T_j^n - T_{j-1}^n}{c_p \rho \Delta x^2} + \frac{\lambda T_{j+1}^n - T_j^n}{c_p \rho \Delta x^2} + \frac{\alpha_j}{c_p \rho \Delta x} (T_\infty - T_j^n) \frac{A_a}{A_q}. \quad (\text{B.13})$$

Durch Ausklammern und Zusammenfassen lässt sich (B.13) wie folgt vereinfachen

$$T_j^{n+1} = \frac{-\lambda}{c_p \rho} \left(\frac{2T_j^n - T_{j-1}^n - T_{j+1}^n}{\Delta x^2} \right) \Delta t + \left(\frac{\alpha_j}{c_p \rho \Delta x} (T_\infty - T_j^n) \frac{A_a}{A_q} \right) \Delta t + T_j^n. \quad (\text{B.14})$$

Die Berechnung des örtlichen Wärmeübergangs α_j erfolgt unter der Annahme eines ho-

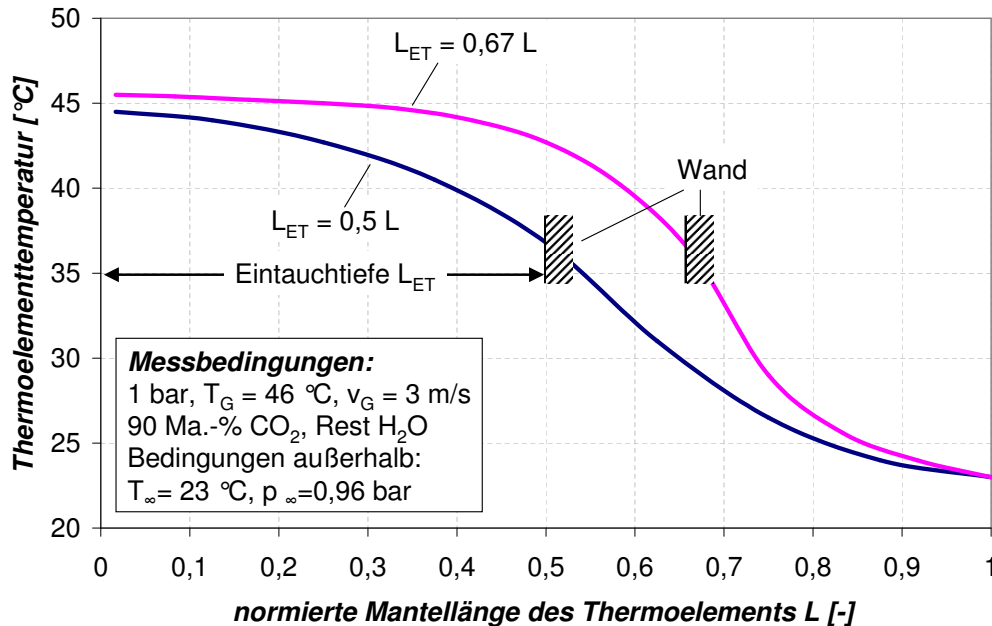


Abbildung B.4: Temperaturprofil eines Thermoelements über der Mantellänge L

mogenen Temperatur- und Geschwindigkeitsprofils entlang der Teilabschnitte L_{ET} und $1 - L_{ET}$ mit $L_{ET} = x_{ET}/L$.

Das so berechnete Temperaturprofil eines Thermoelements, welches durch eine spezielle Durchführung in der Versuchsstandwand (für Berechnung: $\Delta x_W = 0$) die Gasgemischtemperatur misst, zeigt Abbildung B.4. Dort sind beispielhaft zwei unterschiedliche Eintauchtiefen L_{ET} für den niedrigsten Wärme- und Stoffübergang im Versuchsstand dargestellt.

Anhang C

Weitere Details zu Messergebnissen

C.1 Auswertung der gemessenen und berechneten Wärmeströme

In folgendem Vergleich der Wärmemengendifferenzen

$$\Delta Q_{\Lambda} = \Delta \dot{Q}_{\Lambda} \cdot t = (\dot{Q}_{\Lambda, H_2O/N_2} - \dot{Q}_{\Lambda, H_2O/CO_2}) \cdot t \quad (C.1)$$

mit $t = 1$ s. Dabei steht Λ entweder für das Berechnungsmodell nach NOZU et al. (th) oder für Messwert (M). In Abbildung C.1 fällt zunächst auf, dass die gemessenen Wärmemengendifferenzen zwischen H_2O/N_2 - und H_2O/CO_2 -Gemischen kleiner sind als jene aus der Theorie. Die größere Streuung der Theorie ist neben den vier Eingangsparametern p_G , v_G ,

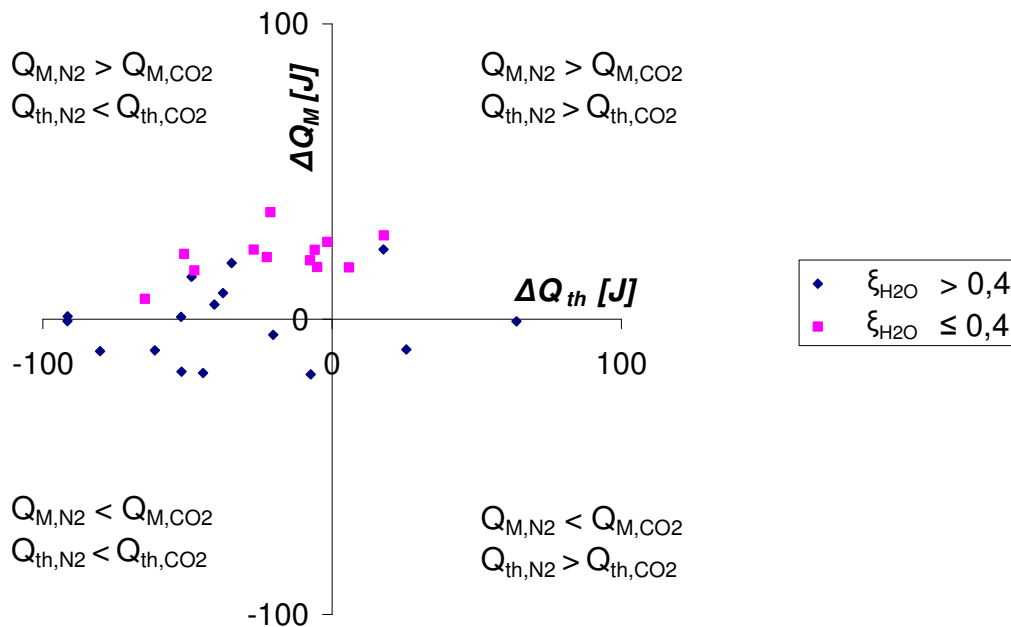


Abbildung C.1: Vergleich der Wärmemengendifferenzen ΔQ_M und ΔQ_{th} aus der Berechnung nach NOZU et al. und der Messung

T_W und T_G vor allem die > 60 notwendigen Parameter zur Berechnung der Stoffdaten, der Energie- und der Massenbilanzen zurückzuführen. Insgesamt ist aber eine Tendenz zu erkennen: während sich bei Wasserdampfgehalten von $\xi_{H_2O} > 0,4$ die Differenzen aus Mess- und Berechnungsdaten qualitativ meist gleichen (s. Abbildung C.1, 3. Quadrant), gibt es vor allem unterhalb dieser Grenze ($\xi_{CO_2} \geq 0,5$) widersprüchliche Ergebnisse (s. Abbildung C.1, 2. Quadrant). Daraus lässt sich ableiten, dass die Theorie spezielle Eigenschaften der Wasserdampf-Kohlendioxidmischung hierbei nicht berücksichtigt. Grund dafür könnte die viel höhere Löslichkeit in Wasser des Kohlendioxids gegenüber der des Stickstoffs sein, wodurch sich das Gleichgewicht aus konvektivem und diffusivem Massentransport verlagern wird.

C.2 Ergebnisse der Wärmestrommessungen

Nachfolgend sind die berechneten einfachen Messunsicherheiten der *Wand-Wand-* und der *Kühlwasser-*Methode sowie die Messergebnisse beider Methoden in Abbildungen dargestellt.

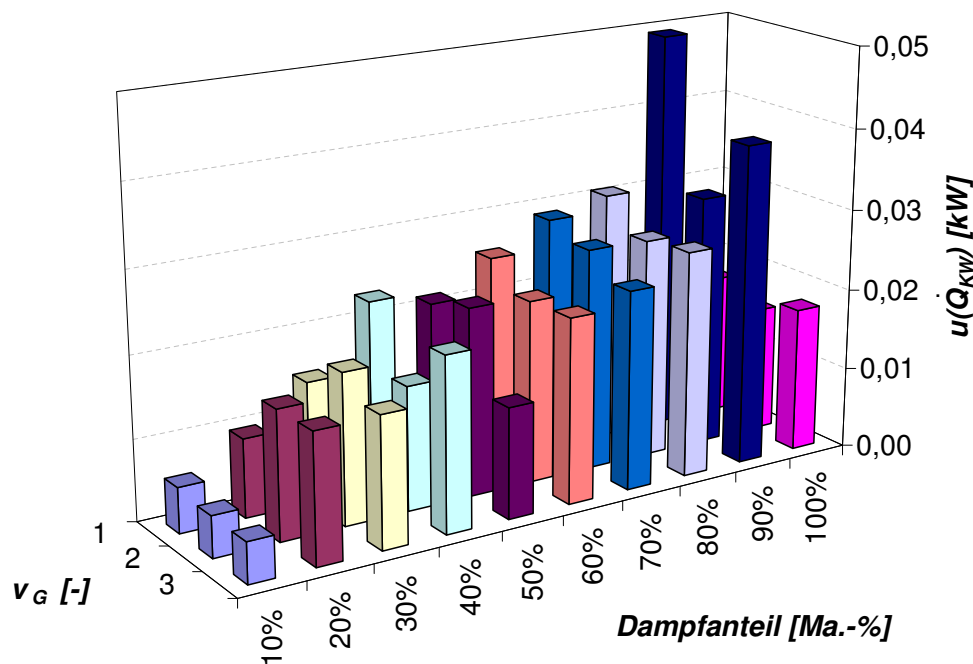


Abbildung C.2: Messunsicherheit über Dampfanteil und Konvektionsgeschwindigkeit der *Kühlwasser-Methode* nach DIN 1319

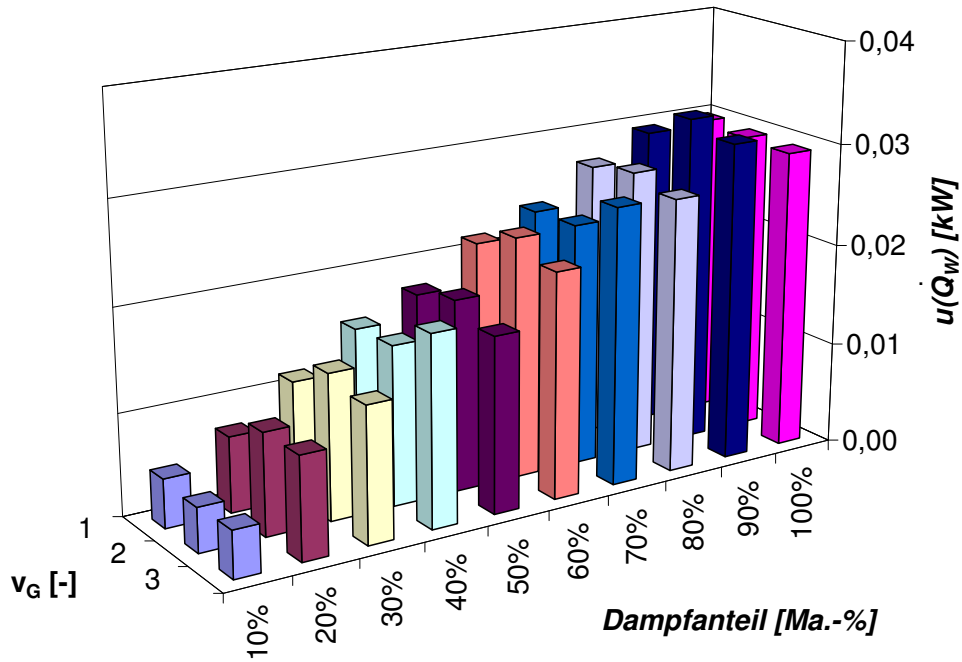


Abbildung C.3: Messunsicherheit über Dampfanteil und Konvektionsgeschwindigkeit der *Wand-Wand-Methode* nach DIN 1319

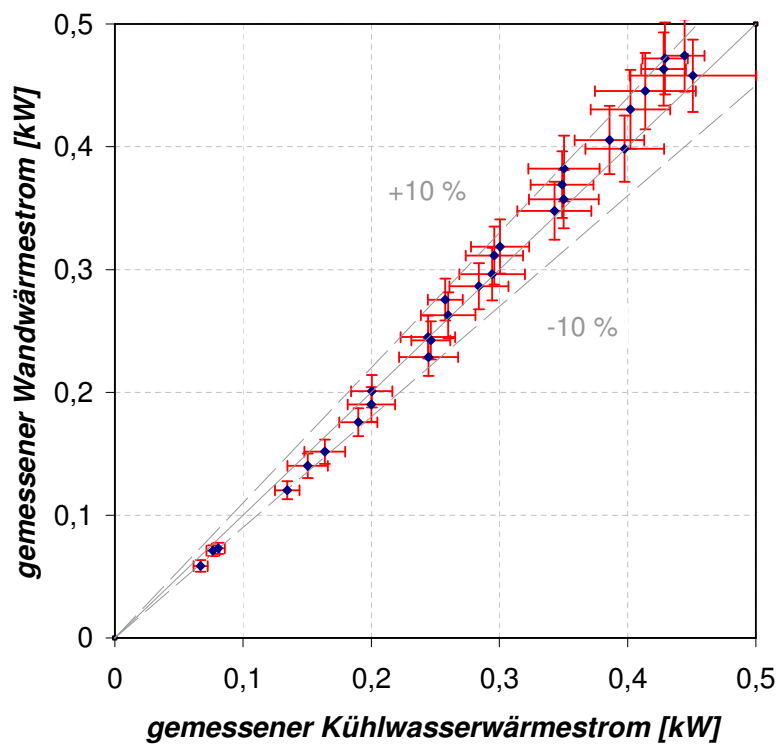


Abbildung C.4: Vergleich der Wärmeströme aus der *Wand-Wand-Methode* und der *Kühlwasser-Methode*, Fehlerbalken berechnet nach DIN 1319