

DIPLOMARBEIT

Potential von biogenen Reststoffen und Abfällen für die DFB-Vergasung in Oberwart

ausgeführt zum Zwecke der Erlangung des akademischen Grades einer Diplomingenieurin unter der Leitung von Univ.Prof. Dipl.-Ing. Dr.techn. Hermann Hofbauer

am

Institut für Verfahrenstechnik, Umwelttechnik und Technische Biowissenschaften betreut von

Dipl.-Ing. Florian Benedikt BSc

eingereicht an der Technischen Universität Wien Fakultät für Maschinenwesen und Betriebswissenschaften

von

Veronica Gubin

Wien, am 20.07.2020

Eidesstattliche Erklärung

Ich erkläre an Eides statt, dass die vorliegende Arbeit nach den anerkannten Grundsätzen für wissenschaftliche Abhandlungen von mir selbstständig erstellt wurde. Alle verwendeten Hilfsmittel, insbesondere die zugrunde gelegte Literatur, sind in dieser Arbeit genannt und aufgelistet. Die aus den Quellen wörtlich entnommenen Stellen sind als solche kenntlich gemacht.

Das Thema dieser Arbeit wurde von mir bisher weder im In- noch Ausland einer Beurteilerin/einem Beurteiler zur Begutachtung in irgendeiner Form als Prüfungsarbeit vorgelegt. Diese Arbeit stimmt mit der von den Begutachterinnen/Begutachtern beurteilten Arbeit überein.

Wien, am 20.07.2020

Veronica Gubin

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen Personen, die durch persönliche oder fachliche Unterstützung zur Entstehung dieser Arbeit mitgewirkt haben, bedanken.

Ein besonderer Dank gilt meinem Partner Dominik sowie meiner Mutter Stella für die außerordentliche Unterstützung im Zuge meines Studiums und der Erstellung dieser Diplomarbeit. Vor allem möchte ich meiner Mutter für den Rückhalt in den schwierigen Zeiten der vergangenen 5 Jahre danken.

Weiters danke ich Herrn Prof. Hermann Hofbauer für die Möglichkeit, meine Diplomarbeit am Institut für Verfahrenstechnik, Umwelttechnik und Technische Biowissenschaften in der Arbeitsgruppe Gasification and Gas Cleaning schreiben zu können.

Auch möchte ich mich bei Herrn Eberhard Reil für die Möglichkeit, die Diplomarbeit in Zusammenarbeit mit der Bio-Brennstoff GmbH erstellen zu dürfen, und für das interessante Thema, mit dem ich mich in den letzten Monaten beschäftigt habe, bedanken.

Ein herzliches Dankeschön geht an Florian Benedikt für die fachliche Betreuung, vielen Anregungen und konstruktive Kritik. Durch die zahlreichen Diskussionen und Überlegungen konnte mitunter auch ein bisschen Kreativität in diese Arbeit miteinfließen.

Ferner möchte ich mich bei Martin Hammerschmid, Anna Magdalena Mauerhofer, Josef Fuchs und Alexander Bartik für die Mühe bei der Revision der entstandenen Datenbank bedanken.

Abschließend möchte ich speziell meinen Freundinnen Theresa, Nina K. und Nina O. für die tolle Unterstützung in den stressigen Zeiten danken. Auch bedanke ich mich bei meinen Studienkollegen für die schöne, gemeinsame Zeit in den letzten Jahren!

Die Welt ist voll von kleinen Freuden, die Kunst besteht nur darin, sie zu sehen, ein Auge dafür zu haben.

Jeder kleine Schritt, der mich n\u00e4her zum Abschluss des Studiums und dieser Arbeit brachte, war mit großer
 Freude und Motivation verbunden. –

Kurzfassung

Diese Arbeit wurde in Zusammenarbeit mit dem Unternehmen Bio-Brennstoff GmbH und dem Institut für Verfahrenstechnik, Umwelttechnik und technische Biowissenschaften erstellt.

Zurzeit findet die Wieder-Inbetriebnahme der ehemals mit Biomasse betriebenen KWK-Anlage Oberwart statt, damit ein mittelkalorisches Produktgas aus alternativen Brennstoffen hergestellt werden kann. Dieses soll als Substituent für Erdgas in Form eines gasförmigen Energieträgers in einer Bindemittelanlage der Bio-Brennstoff GmbH dienen. Gegenwärtig gibt es großtechnisch wenig Erfahrungen, welche alternativen Brennstoffe für den kommerziellen Betrieb der DFB-Vergasung geeignet sind. Der Einsatz solcher Energieträger bringt Herausforderungen mit sich, weshalb es erforderlich ist, eine Vorselektion der Brennstoffe bezüglich derer brennstoffspezifischen Daten zu tätigen.

In der vorliegenden Arbeit sollen im Rahmen einer Studie alternative Brennstoffe hinsichtlich deren Eignung für die DFB-Vergasung anhand von ökologischen und ökonomischen Kriterien sowie der technischen Machbarkeit eruiert werden. Dafür wurden zunächst die Daten aller relevanten Versuche auf der neuartigen DFB-Pilotanlage der TU Wien in eine Datenbank zusammengeführt. Auf Grundlage dieser Daten konnten Korrelationen zwischen der elementaren Brennstoffzusammensetzung sowie brennstofftechnischer Eigenschaften und Produktgaszusammensetzung erarbeitet werden. Unter Zuhilfenahme dieser Beziehungen wurden zu erwartende Produktgaseigenschaften für verschiedene Brennstoffe, die in der DFB-Anlage in Oberwart eingesetzt werden sollen, abgeleitet und die berechneten Daten mit dem Standardbrennstoff Rejekt verglichen. Dabei wird besonderes Augenmerk auf die Schadstoffemissionen im erzeugten Produktgas und dessen Heizwert gelegt. Für zwei vorselektierte Brennstoffe, Altholz und Hartkunststoffe aus der Elektronikschrottaufbereitung, wurden Brennstoffanalysen durchgeführt. Die Elementaranalyse der Brennstoffe stellt die notwendigen Eingangsparameter für die Berechnung der zu erwartenden Produktgasqualität dar. Auf diesem Wege kann für geeignete, alternative Brennstoffe die Realisierbarkeit des großtechnischen Einsatzes bei kommerziellem Betrieb der Anlage aufgezeigt werden.

Die Berechnung über das entwickelte Prognosemodell hat ergeben, dass der Heizwert des Produktgases, das aus der Vergasung der Brennstoffe, Altholz und Hartkunststoffe aus der Elektronikschrottaufbereitung, an der 100 kW_{th} Pilotanlage der TU Wien hervorgehen würde, im Bereich von 14-15 MJ Nm⁻³tr zu erwarten wäre. Aus ökologischer Sicht kann die Hartkunststofffraktion wegen der hohen zu erwartenden HCl-Emissionen (1.718 ppm_{tr}) nur im Rahmen einer Co-Vergasung eingesetzt werden. Aus der Vergasung der Altholzfraktion würden hohe NH₃-Emissionen (16.354 ppm_{tr}) hervorgehen, wobei sich der H₂S- (zu erwarten: 183 ppm_{tr}) und HCl-Gehalt (zu erwarten: 89 ppm_{tr}) in Grenzen hält. Beide Brennstoffe weisen einen sehr hohen Aschegehalt auf, weswegen die Qualität der anfallenden Asche hinsichtlich der weiteren stofflichen Verwertung (Sekundärrohstoff) beziehungsweise Entsorgung (Kontamination) für die ökonomischen Aspekte von Bedeutung ist. Das Potential bei 7.500 Betriebsstunden ergibt sich für die Altholzfraktion zu 3,29-13,16 MW_{th}, beziehungsweise jenes der Hartkunststofffraktion zu 3,18 MW_{th}.

Abstract

This thesis was created in collaboration with the company Bio-Brennstoff GmbH and the Institute of Chemical, Environmental and Bioscience Engineering.

The restart of the combined heat and power plant in Oberwart, which was formerly operated with biomass, is currently in progress, so that the product gas with a medium calorific value can be produced from alternative fuels. It is planned as a substitute for natural gas in form of a gaseous energy carrier in a binder production from Bio-Brennstoff GmbH. At present there is few experience with alternative fuels in industrial scale plants for commercial operation of the DFB gasification. Due to the challenges associated with the use of alternative energy sources, it is necessary to make a preselection of these fuels relating to fuel-specific data.

The present thesis is concerned with a study to determine alternative fuels with regard to their suitability for DFB gasification based on ecological and economic criteria as well as their technical feasibility. Therefor the data of all relevant experiments on the novel DFB pilot plant at the Vienna University of Technology were merged on a database. Based on these data, correlations between elemental fuel composition as well as fuel-specific properties and product gas composition could be elaborated. With the aid of these correlations, expected properties of the product gas for various fuels to be used in the DFB plant in Oberwart were derived and the calculated data compared to the standard fuel Reject. Particular attention is paid to the pollutant emission in the produced gas and its calorific value. A fuel analysis was carried out for the two preselected fuels, waste wood and hard plastics from electronic scrap processing. The ultimate analysis of the fuels represents the necessary input parameters for the calculation of the expected product gas quality. Thus, the feasibility of industrial scale use in commercial operation of the plant can be demonstrated for suitable, alternative fuels.

The calculation using the developed forecast model has shown that the calorific value of the product gas, which would result from the gasification of the fuels, waste wood and hard plastics from electronic scrap processing, at the 100 kW_{th} pilot plant of the Vienna University of Technology, is in the range of 14-15 MJ Nm⁻³tr. From an ecological point of view, the hard-plastic fraction can due to the high expected HCl emissions (1.718 ppmtr) only be used for Co-gasification. Whereas the gasification of the waste wood fraction would entail high NH₃ emissions (16.354 ppmtr), the H₂S (expected: 183 ppmtr) und HCl concentration (expected: 89 ppmtr) would stay within the limits. Considering the economic aspects, the quality of the ash is crucial for recycling (secondary raw material) respectively disposal (contamination) of the ash, since both fuels have a high ash content. The calculation of the potential at 7.500 operating hours yields for the waste wood fraction 3,29-13,16 MW_{th} and that for the hard-plastic fraction 3,18 MW_{th}.

Die Arbeiten wurden in Zusammenarbeit mit der Bio-Brennstoff GmbH und der Forschungsgruppe Zukunftsfähige Energietechnik am Institut für Verfahrenstechnik, Umwelttechnik und Technische Biowissenschaften an der TU Wien durchgeführt.



Bio-Brennstoff GmbH

Inhaltsverzeichnis

1	E	INLEITUNG	1
	1.1	MOTIVATION	1
	1.2	AUSGANGSSITUATION	6
	1.3	ZIELSETZUNG UND UMFANG	6
2	S	TAND DER TECHNIK	7
	2.1	Thermochemische Umwandlung	7
	2.2	PRINZIP DER ZWEIBETT-WIRBELSCHICHT-VERGASUNG	9
	2.3	DFB-ANLAGE IN OBERWART	10
	2	3.1 Konzept der 8.6 MW _{th} KWK-Anlage	10
	2.	.3.2 Umbaumaßnahmen für den Einsatz von Reststoffen und Abfällen	13
	2.4	DFB-PILOTANLAGE DER TECHNISCHEN UNIVERSITÄT WIEN	16
	2.	 4.1 Konzept der 100 kW_{th} DFB-Pilotanlage 4.2 DFB-Pilotanlage 4 Generation 	16 17
	2.5	Brennstoffe	21
	2.	.5.1 Brennstoffanalytik	21
	2.	.5.2 Arten von festen Brennstoffen	23
	2.	.5.3 Einsatz von Ersatzbrennstoffen	25
3	E	INSATZ VERSCHIEDENER BRENNSTOFFE IN DER DFB-VERGASUNG	30
	3.1	KRITERIEN FÜR DEN ERFOLGREICHEN EINSATZ DER BRENNSTOFFE	30
	3.	.1.1 Brennstofftechnische Eigenschaften	30
	3. 3	1.2 Physikalisch-mechanische Eigenschaften	31 33
	3	1.4 Variation der Betriebsbedingungen in der DFB-Vergasung	36
	3.2	VERGASUNGSTECHNISCHE KENNWERTE	37
	3.3	VERGASUNG VERSCHIEDENER BRENNSTOFFE IN DER DFB-PILOTANLAGE	38
	3.	.3.1 Korrelationen für Schadstoffemissionen und Teer	<i>39</i>
	3.	.3.2 Entwicklung eines Prognosemodells für Produktgashauptkomponenten	43
4	R	RESTSTOFFE UND ABFALLE IN OSTERREICH	53
	4.1	CHARAKTERISIERUNG UND VERFÜGBARE MENGEN	53
	4.	.1.1 Rejekt	53
	4.	1.2 Expandiertes Polystyrol (EPS) und extrudiertes Polystyrol (XPS)	54
	4	.1.5 Saureleer	56
	4	.1.5 Altholz	59
	4.	.1.6 Hartkunststoffe aus der Elektronikschrottaufbereitung	59
	4.2	Physikalisch-mechanische Eigenschaften	61
	4.3	BRENNSTOFFTECHNISCHE EIGENSCHAFTEN	63
	4.4	ELEMENTARE ZUSAMMENSETZUNG	64
5	B	EWERTUNG DER ALTERNATIVEN BRENNSTOFFE	66
	5.1	Produktgasqualität	66
	5.2	ÖKOLOGIE	69
	5.3	Ökonomie und Potential	70
6	С	CONCLUSIO	72
7	А	USBLICK	74

8	1	ANMERKUNGEN	75
	8.1	Symbole	75
	8.2	ABKÜRZUNGEN	77
9	1	ABBILDUNGSVERZEICHNIS	79
10		TABELLENVERZEICHNIS	81
11	. 1	LITERATURVERZEICHNIS	82
12		ANHANG	88

1 Einleitung

Das folgende Kapitel erörtert die aktuelle Energie- und Emissionssituation, wie auch die Sachlage der Abfallverwertung in Bezug auf die Zementindustrie in Österreich. Abschließend wird auf die Zielsetzung und den Umfang dieser Arbeit eingegangen.

1.1 Motivation

Zumal unser Energieversorgungssystem weitgehend auf der Basis von fossilen Energieträgern aufgebaut ist und der Klimaschutz zunehmend an Bedeutung gewinnt, ergibt sich die Notwendigkeit für den Einsatz alternativer Energieträger mit geringerem Emissionsausstoß. Das Bestreben die übrigen fossilen Ressourcen im Sinne der Nachhaltigkeit und Emissionsminderung durch unerschöpfliche Energiequellen zu ersetzen, setzt die Entwicklung effizienter und ökonomischer Technologien zur Energiebereitstellung in Gang. [1, 2]

Der Primärenergiebedarf der stetig wachsenden Bevölkerung in Österreich hat sich zwischen 1970 und 2017, wie in Abbildung 1 ersichtlich, von 797 PJ auf 1442 PJ beinahe verdoppelt. [1, 3]



Abbildung 1: Entwicklung des Bruttoinlandsverbrauches an Energie 1970-2017 & Potentiale für die Jahre 2030 & 2050 [3]

Die Erwartung für den Bruttoinlandsverbrauch im Jahr 2030 liegt laut dem WAM¹ plus Szenario des Umweltbundesamts bei 1229 PJ, wobei dies einer Verringerung von ungefähr 14,8 % des Bruttoinlandsverbrauches an Energie aus 2017 entspricht. Die Prognose für den relativen Anteil an erneuerbaren Energien ist für das Jahr 2030 bei ungefähr 61 % angesetzt. Sowohl die Senkung des Bruttoinlandsverbrauchs als auch der zunehmende Anteil erneuerbarer Energietechnologien tragen zu dieser Erhöhung bei. Während im Jahr 2017 fossile Energieträger wie Öl, Erdgas und Kohle einen dominanten Anteil von 65 % des Endenergieverbrauchs in Österreich einnehmen, beläuft sich der Beitrag an erneuerbaren Energien auf 33 % (Abbildung 2).

¹ With Additional Measures



Abbildung 2: Energiefluss Österreich 2017 [3]



Weiters werden 2 % des Endenergieverbrauchs über nicht erneuerbare Abfälle bereitgestellt. Es fällt auf, dass 72 % der Primärenergieträger importiert werden, wobei es sich hauptsächlich um fossile Ressourcen handelt. Der verbleibende Anteil des Primärenergiebedarfs wird über die im Lande gewonnenen Energieträger gedeckt. Darunter nehmen erneuerbare Energien einen beträchtlichen Anteil von ungefähr 79,1 % der in Österreich zur Verfügung stehenden Energieressourcen ein. Bioenergie stellt bereits 55 % der erneuerbaren Energien, bezogen auf den Endenergieverbrauch, dar. Davon machen zirka 80 % der energetisch genutzten Biomasse Holz-basierte Brennstoffe inklusive Laugen aus der Papierindustrie aus. Die signifikante Erweiterung des Bioenergiesektors in den vergangenen 50 Jahren zeigt, dass das Ausbaupotential für gewöhnliche Biomasse und biogene Reststoffe hoch ist. Die Entwicklung des Anteils an erneuerbaren Energien durch den Einsatz von Biomasse wird in Abbildung 3 veranschaulicht. Ausgehend von dem Jahr 1970 ist eine Verdoppelung des Anteils erneuerbarer Energieträger am Bruttoinlandsverbrauch zu erkennen.



Abbildung 3: Anteil erneuerbarer Energieträger am Bruttoinlandsverbrauch mit & ohne Bioenergie 1970-2017 [3]

Der Beitrag der erneuerbaren Energien ohne Biomasse hingegen stagniert in den letzten 40 Jahren auf einem Niveau von ungefähr 10-13 %. Durch den vermehrten Einsatz erneuerbarer Energien wird eine positive Auswirkung auf die Emissionssituation vorangetrieben und somit die Konzentration problematischer Treibhausgase in der Atmosphäre mit weiteren Maßnahmen reduziert. Wie in Abbildung 4 ersichtlich, kam es während der Industrialisierung zur zunehmenden Nutzung von fossilen Energieträgern und zu einem drastischen Anstieg der CO₂-Konzentration in der Atmosphäre. Der CO₂-Gehalt hat sich im Zeitraum von 1870 bis 2016 von zirka 280 ppm auf 400 ppm gesteigert. Aus dem Einsatz fossiler Energieträger resultiert eine Erhöhung der CO₂-Konzentration um insgesamt 192 ppm. Der negative und positive Beitrag durch Entwaldung sowie Aufforstung gleicht sich vollkommen aus. Durch die Anreicherung von Ozeanen mit CO₂ kam es wiederum zur Senkung der Konzentration um 69 ppm.



Abbildung 4: Kumulative Beiträge zum globalen Kohlenstoffbudget seit 1870 [3]

In der betrachteten Zeitspanne beläuft sich der Beitrag allein von der Zementindustrie auf 6 ppm. Relativ betrachtet entspricht dies einer Erhöhung der CO₂-Konzentration von 5 %. [3] Eine Weiterentwicklung der Technologie zum Einsatz alternativer Energieträger in Zementwerken, hätte in Anbetracht des hohen CO₂-Beitrags bereits einen beachtlichen Einfluss auf die zukünftige Emissionssituation.

Im Zuge der Zementherstellung entstehen zwei Drittel der gesamten CO2-Emissionen des Zementwerks bereits bei der Entsäuerung karbonatischer Bestandteile des Rohmaterials (Kalzinierung). Diese belaufen sich auf etwa 0,5 kg CO2 pro kg Klinker. Das ergänzende Drittel der CO2-Gesamtemissionen stammt aus der Verbrennung kohlenstoffhaltiger Brennstoffe. Der Energiebeitrag an Ersatzbrennstoffen (EBS) in der Zementindustrie wurde in dem Zeitraum 1988-1999 von etwa 14 % auf 37 % gesteigert und konnte im Jahr 2018 bereits auf zirka 81 % erhöht werden. [4, 5] Unter EBS werden beispielsweise Abfälle wie Lösungsmittel und Reststoffe aus der Papierindustrie aber auch Altreifen und Kunststoffabfälle verstanden. Der Anteil an konventionellen Energieträgern (KET), wie Erdgas, Heizöl und Kohle, konnte damit beträchtlich gemindert werden. [4] Der Einsatz von Sekundärbrennstoffen führt einerseits zur Einsparung an Kosten, andererseits ist der CO2-Emissionsfaktor bezogen auf den Energiegehalt der EBS oft wesentlich niedriger im Vergleich zu KET, vor allem bei Kohle als Brennstoff. Dabei ist zu beachten, dass in EBS sowohl biogene als auch fossile Anteile vorhanden sind. Die Einsparung an zusätzlichen CO2-Emissionen bei der thermischen Verwertung ist daher von dem biogenen Anteil im EBS abhängig. Aufgrund der geringen Verfügbarkeit an KET in Österreich, werden durch EBS CO2-Emissionen, die auf den Transport beim Import der KET zurückzuführen sind, eingespart. [6, 7] In Abbildung 2 ist ersichtlich, dass der Anteil an in Österreich vorhandenen KET 4 % des Primärenergieeinsatzes beträgt. [3] Abfallfraktionen, die als EBS eingesetzt werden, können in Zementwerken sowohl stofflich als auch thermisch verwertet werden. Einerseits wird der Energiegehalt des EBS genutzt, andererseits dient die anfallende Brennstoffasche als Sekundärrohstoff bei der Klinkerproduktion. [8]

Im Vordergrund der Kreislaufwirtschaft steht die kaskadische Nutzung von Stoffströmen, um natürliche Ressourcen zu schonen. Dabei sollen durch den Einsatz von Abfällen geschlossene Stoffkreisläufe entstehen. Das Ziel ist die möglichst intensive Nutzung der Materialien. Als zentraler Bestandteil der nachhaltigen Abfallwirtschaft im Sinne des Abfallwirtschaftsgesetzes dient die Abfallhierarchie (Abbildung 5 – Rechts). [9]

Diese stellt die Prioritätsreihung von Maßnahmen zur Abfallbehandlung dar. Vorrang hat die Vermeidung und stoffliche Verwertung, wie die Vorbereitung zur Wiederverwendung und das Recycling von Abfällen. Die energetische Abfallverwertung steht in der Abfallhierarchie, angeführt als *Sonstige Verwertung*, an vierter Stelle in der Prioritätsreihung [10]



Abbildung 5: Links – Verwertung & Beseitigung von Abfällen (ohne Aushubmaterialien) in Österreich 2017 [13] ; Rechts – Abfallhierarchie [10]

Der gehäufte Einsatz von Reststoffen und Abfällen zur Energiebereitstellung und als Sekundärrohstoff führt zu einer Minderung an deponiertem Abfallaufkommen, weshalb sich die thermische und stoffliche Abfallverwertung als ein wichtiger Grundpfeiler der Abfallhierarchie erweist. [11, 12] Links in Abbildung 5 sind die Anteile des verwerteten und beseitigten Abfallaufkommens aus dem Jahr 2017 in Österreich dargestellt. Es ist ersichtlich, dass 10 % des gesamten Abfallaufkommens deponiert und 14 % thermisch verwertet worden sind. Bereits 66 % werden einem Recyclingprozess unterzogen sowie 10 % in mechanisch-biologischen oder chemisch-physikalischen Anlagen aufbereitet. [13]

Neben den Grundsätzen (Abfallhierarchie), sind auch die Ziele des Abfallwirtschaftsgesetzes für die Behandlung von Abfällen von Bedeutung. Diese lauten wie folgt:

- 1. "Schutz des Menschen und der Umwelt
- 2. Emissionen von Luftschadstoffen und Treibhausgasen geringhalten
- 3. Schonung von Ressourcen (Rohstoffe, Energie, Wasser, Deponievolumen, ...)
- 4. Gefährdungspotential von Sekundärrohstoffen soll nicht größer sein als jenes von Primärrohstoffen
- 5. Keine Gefährdung zukünftiger Generationen durch Deponien" [11]

Diese Arbeit ist vorrangig mit der Erfüllung der Forderungen aus den Punkten 2 und 3 konfrontiert, wobei der Punkt 1 *Schutz des Menschen und der Umwelt* mit der Einhaltung von Emissionsgrenzwerten und Erfüllung von Punkt 2 miteinhergeht.

1.2 Ausgangssituation

Im Zuge der Energiewende hat die Technische Universität Wien in den vergangenen Jahren intensiv Forschung auf dem Gebiet der zukunftsfähigen Energietechnik betrieben. Dabei wurde eine Pilotanlage für die Vergasung von Biomasse entwickelt. Die 100 kW_{th} Pilotanlage wurde in den letzten Jahren in Bezug auf die großtechnische Umsetzung und den wirtschaftlichen Betrieb laufend adaptiert. Diese bedient sich für die Produktgasherstellung aus verschiedenen Brennstoffen dem Prinzip der Zweibett-Wirbelschicht-Vergasung (DFB²-Vergasung), wobei Verbrennungs- und Vergasungsprozess in getrennten Wirbelschichtreaktoren stattfinden. Das Produktgas kann beispielsweise in einer Kraft-Wärme-Kopplungsanlage (KWK-Anlage) als Sekundärenergieträger zur Erzeugung von Fernwärme und Strom eingesetzt oder als Synthesegas aufbereitet werden.

Nachdem sich das Scale-Up mit einer 8 MWth KWK-Anlage in Güssing als erfolgreich erwiesen hat, wurde ebenfalls eine solche mit 8,6 MWth Brennstoffwärmeleistung in Oberwart realisiert. Da der Betrieb der Anlage mit dem Standardbrennstoff Holzhackgut wegen der steigenden Preise je Mengeneinheit nicht mehr rentabel war, wurde diese stillgelegt. In weiterer Folge hat das Unternehmen Bio-Brennstoff GmbH die KWK-Anlage mit dem Konzept übernommen, die Beschickung der DFB-Anlage mit kostengünstigeren Brennstoffen, wie biogenen Reststoffen und Abfällen, vorzunehmen. Das Ziel ist die Herstellung eines gasförmigen Sekundärenergieträgers mit einem Heizwert im Bereich von 12-16 MJ Nm⁻³tr, welcher im Anschluss in der nebenan geplanten Bindemittelherstellung als Erdgasersatz verwendet werden soll. Dies erfordert Umbaumaßnahmen an der KWK-Anlage bezüglich des Brennstoffeintrags und der Abgasreinigung. In Hinsicht auf die neue gesetzliche Lage beim Betrieb der DFB-Anlage als Abfallverwertungsanlage, müssen vor allem die zulässigen Emissionsgrenzwerte für die Schadstoffgehalte im Produkt- und Abgas gemäß der Abfallverbrennungsverordnung (AVV) berücksichtigt werden.

1.3 Zielsetzung und Umfang

Für die vorliegende Arbeit wurden die Daten der Vergasungsversuche an der 100 kWth Pilotanlage der TU Wien zusammengeführt, um Korrelationen in der verfügbaren Datenbank zu suchen. Es sollen Kriterien für den Einsatz verschiedener Brennstoffe anhand der vorhandenen, experimentellen Daten ausgearbeitet werden, damit ein Rückschluss auf das Verhalten in der DFB-Anlage und die Auswirkung auf die Produktgasqualität gezogen werden kann. Dies soll die Bewertung eines alternativen Brennstoffs hinsichtlich dessen Eignung für die Vergasung zum Zwecke der frühzeitigen Ausselektion bereits vor der Versuchsdurchführung ermöglichen. Die einzuhaltenden Grenzwerte für Schadstoffgehalte im Produktgas sind vor allem für die ökonomischen und ökologischen Aspekte maßgeblich. Daher liegt der Fokus besonders auf Kennwerten der Brennstoffe, die sich aus deren elementaren Zusammensetzungen und brennstofftechnischen Eigenschaften ableiten und auf die Produktgaszusammensetzung schließen lassen. Darüber hinaus ist es Ziel dieser Arbeit Bestände, der in Österreich zur Verfügung stehenden, technisch und wirtschaftlich interessanten Reststoffe und Abfälle, zu eruieren und deren chemische Zusammensetzung und brennstofftechnische Kennwerte näher zu erläutern.

² DFB – Dual Fluidized Bed

2 Stand der Technik

Dieses Kapitel befasst sich mit den Grundlagen der Vergasung und dem Prinzip der Zweibett-Wirbelschicht-Vergasung. In weiterer Folge wird das Konzept der DFB-Anlage in Oberwart sowie DFB-Pilotanlage an der TU Wien vorgestellt und erklärt. Letztlich wird auf die Analyseprinzipien der Brennstoffanalyse im Akkreditierten Prüflabor für Feuerungsanlagen der TU Wien eingegangen und verschiedene Brennstoffarten einander gegenübergestellt.

2.1 Thermochemische Umwandlung

Das Ziel der Vergasung ist die Überführung eines festen Brennstoffs in ein Produkt- oder Brenngas. Dafür ist die Erhitzung des Feststoffs unter Zufuhr eines Vergasungsmittels notwendig. Als Vergasungsmittel werden unterschiedliche Gase, wie beispielsweise Luft, CO₂, H₂O oder auch Mischungen aus H₂O und O₂, verwendet. Während aus der Vergasung mit Wasserdampf ein Produktgas mit einem mittelhohen Heizwert im Bereich von 12-16 MJ Nm⁻³tr und einer Inexistenz von Stickstoff hervorgeht, wird bei Luft als Vergasungsmittel hingegen ein hoher Stickstoffanteil im Produktgas und niedriger Heizwert von 3-6,5 MJ Nm⁻³tr verzeichnet.

Im Zuge der Vergasung finden drei Teilschritte, die Trocknung, Entgasung (oder pyrolytische Zersetzung) und Vergasung, statt. Dieser fortschreitende Prozess ist schematisch in Abbildung 6 anhand der Umwandlung eines einzelnen Partikels dargestellt.



Abbildung 6: Thermochemische Umwandlung eines Partikels (aus [14] entnommen und angepasst)

Bei Erreichen eines Temperaturniveaus von zirka 150-170 °C wird der restliche Wassergehalt des Brennstoffs abgegeben. Weitere Temperaturerhöhung führt zum Aufbrechen der Makromoleküle des Brennstoffs, weswegen Entgasungs- und Zersetzungsprodukte, auch flüchtige Bestandteile genannt, aus dem Brennstoffpartikel entweichen. Neben den Gaskomponenten wie CO, CO₂, H₂, CH₄ und anderen niedrigen Kohlenwasserstoffen sowie Gasen, sind auch flüchtige organische Verbindungen und Koks als fester Rückstand nach dem Entgasungsvorgang präsent. Unter kondensierbare höhere Kohlenwasserstoffe, oft wird auch von Teer gesprochen, werden die flüssigen Zersetzungsprodukte der pyrolytischen Zersetzung verstanden. Teere bestehen aus langkettigen und/oder polyaromatischen Kohlenwasserstoffen, welche ab einem Temperaturniveau von etwa

1200 °C vollständig zersetzt werden. Durch kontinuierliche Abgabe der Entgasungsprodukte bei der pyrolytischen Zersetzung, kommt das Vergasungsmittel mit den Feststoffpartikeln nicht in Kontakt und hat praktisch keinen Einfluss auf die Entgasung.

Nach Beendigung der pyrolytischen Zersetzung findet im Rahmen der Vergasung eine Reihe von heterogenen und homogen Reaktionen, welche in Tabelle 1 aufgelistet sind, statt. Dabei reagiert der verbleibende Koks bei Temperaturen ab 700 °C mit Dampf und wird zu den oxidierbaren Produktgaskomponenten wie H₂, CO und CH₄ aber auch zu CO₂ umgesetzt (heterogene Reaktionen – Gl. 1-4). Als fester, nicht brennbarer Rückstand verbleibt der Ascheanteil des Brennstoffs. Im Anschluss kommt es zu homogenen Reaktionen der Produktgashauptkomponenten untereinander sowie mit den flüchtigen Verbindungen aus der Entgasung beziehungsweise dem während der Trocknung abgegebenen Dampf wie auch dem Vergasungsmittel. Der Anteil an flüchtigen Bestandteilen im Produktgas hängt sowohl von deren Verweilzeit bei höheren Temperaturen als auch von der Kontaktzeit mit dem Vergasungsmittel ab.

Summa summarum ist die Dampfvergasung ein endothermer Prozess und benötigt daher die Zufuhr von Wärme. Die Prozessführung bei der Vergasung kann in Bezug auf die Wärmezufuhr entweder allotherm oder autotherm erfolgen. Im Falle der allothermen Prozessführung kann die Wärmebereitstellung indirekt über einen Wärmetauscher oder bei einem Wirbelschichtreaktor durch umlaufendes Bettmaterial realisiert werden. Beim autothermen Betrieb wird die notwendige Energie direkt im Vergasungsreaktor per Oxidation des Brennstoffs erzeugt. Dafür wird Luft oder eine Mischung aus H₂O und O₂ als Fluidisierungsmittel in den Vergasungsreaktor eingebracht. [12, 14, 15]

$\label{eq:heterogene} Heterogene Reaktionen - Vergasung \\ \Delta H_{R,298} [kJ \ mol^{-1}]$			
Partielle Oxidation	$C + \frac{1}{2}O_2 \rightarrow CO$	-110,5	Gl. 1
Boudouard-Reaktion	$C + CO_2 \rightarrow 2CO$	+172,4	Gl. 2
Wassergas-Reaktion	$C + H_2O \rightarrow CO + H_2$	+131,3	Gl. 3
Methanbildung	$\mathrm{C} + 2\mathrm{H}_2 \to \mathrm{CH}_4$	- 74,9	Gl. 4
Homogene Reaktionen – Vergasung			
Wassergas-Shift-Reaktion	$CO + H_2O \leftrightarrow CO_2 + H_2$	- 41,2	Gl. 5
Methan-Dampfreformierung	$\mathrm{CH}_4 + \mathrm{H}_2\mathrm{O} \longleftrightarrow \mathrm{CO} + 3\mathrm{H}_2$	+206,2	Gl. 6
KW ³ -Dampfreformierung	$\mathrm{C}_{\mathrm{m}}\mathrm{H}_{\mathrm{n}} + \mathrm{m} \ \mathrm{H}_{2}\mathrm{O} \leftrightarrow \mathrm{m} \ \mathrm{CO} + (\mathrm{m}^{+} \ ^{1}\!\!/ 2\mathrm{n}) \ \mathrm{H}_{2}$		Gl. 7
Methan-Reformierung	$CH_4 + CO_2 \leftrightarrow 2CO + 2H_2$	+247,3	Gl. 8
Reaktionen – Verbrennung			
Kohlenstoff-Oxidation	$C + O_2 \rightarrow CO_2$	-393,4	Gl. 9
Kohlenmonoxid-Oxidation	$CO + \frac{1}{2}O_2 \rightarrow CO_2$	-282,9	Gl. 10
Wasserstoff-Oxidation	$\mathrm{H}_2 + {}^{1\!\!}/_2\mathrm{O}_2 \to \mathrm{H}_2\mathrm{O}$	-241,8	Gl. 11

Tabelle 1: Ausgewählte Reaktionen in der DFB-Dampfvergasung und Verbrennung [12]

³ KW – Kohlenwasserstoff

2.2 Prinzip der Zweibett-Wirbelschicht-Vergasung

Die Wirbelschicht-Technologie hat sich für die thermische Verwertung verschiedener Brennstoffe aufgrund der guten Durchmischung von Bettmaterial mit dem Brennstoff und der durchströmenden Gasphase im Reaktor gut bewährt. Bei der DFB-Vergasung wird der Brennstoff aufgrund des hohen Wärmeübergangs und Gas-Feststoffkontakts mit einer hohen Konversionsrate zu einem nutzbaren Sekundärenergieträger oder Synthesegas umgesetzt.

Das Bettmaterial wird in einem Wirbelschichtreaktor durch das Vergasungsmittel fluidisiert und darin der Brennstoff anschließend zu einem Produkt- beziehungsweise Brenngas und geringem Anteil an verbleibenden Koks umgewandelt. Es handelt sich bei der DFB-Vergasung um eine allotherme Prozessführung, bei der die für die Vergasung benötigte Wärmeleistung über das umlaufende Bettmaterial, welches im Verbrennungsreaktor die notwendige Wärmezufuhr erfährt, bereitgestellt wird. Das Funktionsprinzip der klassischen DFB-Vergasung ist in Abbildung 7 dargestellt.



Abbildung 7: Prinzip der Zweibett-Wirbelschicht-Vergasung (aus [14] entnommen und angepasst)

Im Vordergrund steht der Vorteil des DFB-Systems, der sich aus dem räumlich entkoppelten Vergasungs- und Verbrennungsprozess ergibt. Über Separation der Vergasung von der Verbrennung wird die Trennung des Produktgases aus der Vergasung von dem Abgas aus der Verbrennung gewährleistet. Zumal Luft als Fluidisierungsmittel im Verbrennungsreaktor verwendet wird, wird durch das DFB-System die Verdünnung des Produktgases mit dem aus der Luft hervorgehenden Stickstoff unterbunden. Hiermit wird die Möglichkeit geschaffen, Luft als Oxidationsmittel zu verwenden. Demnach kann im Kontrast zu Sauerstoff auf eine kostenintensive Luftzerlegungseinheit verzichtet werden. Das zirkulierende Bettmaterial hat neben der indirekten Wärmezufuhr auch noch den Nutzen des Transportes von entstandenem Koks aus dem Vergasungs- in den Verbrennungsreaktor, wodurch der Einsatz an zusätzlichen Brennstoff für die Verbrennung reduziert wird. Der Gehalt an flüchtigen Bestandteilen des Brennstoffs ist maßgeblich für die entstehende Koksmenge, weshalb die Temperatur im Vergasungsreaktor ein zu mit dem fixen-Kohlenstoffgehalt kontrollierbaren Parameter wird. Je mehr Koks für den Verbrennungsprozess zur Verfügung steht, desto höher ist die Vergasungstemperatur bei gleichbleibender Menge an Zusatzbrennstoff.

Angesichts der im Vergasungsprozess anfallenden unerwünschten Komponenten (beispielweise Teer) wird durch die gezielte Wahl von katalytisch aktivem Bettmaterial der Entstehung solcher entgegengewirkt. Ferner kann die

Asche des Brennstoffs, in Abhängigkeit derer Zusammensetzung, ebenso einen katalytischen Einfluss auf die Reaktionen im Vergasungsreaktor haben.

Da bei der Wahl von Dampf als Vergasungsmittel ein hohes H₂/CO-Verhältnis im Produktgas erzielt werden kann, ist dieses für die weitere Umwandlung zu gasförmigen, wie SNG⁴ oder H₂, und flüssigen Sekundärenergieträgern, wie Fischer-Tropsch-Diesel, besonders gut geeignet. [12, 14, 15]

2.3 DFB-Anlage in Oberwart

Das DFB-System hat sich im Zuge der zahlreichen Versuche an der 100 kW_{th} Pilotanlage gut bewährt und wurde an der 8 MW_{th} KWK-Anlage in Güssing großtechnisch demonstriert. Anschließend wurde die Technologie an mehreren Standorten, unter anderem auch in Oberwart in der 8,6 MW_{th} KWK-Anlage, realisiert.

2.3.1 Konzept der 8,6 MW_{th} KWK-Anlage

In Abbildung 8 ist ein vereinfachtes Fließschema der KWK-Anlage dargestellt und zeigt die grundlegenden Apparate und Prozessschritte.

Der feste Brennstoff wird vor Eintritt in die blasenbildende Wirbelschicht des Vergasungsreaktors einer Trocknung unterzogen, um den Wassergehalt auf etwa 20 % zu reduzieren. Dabei wird die dafür benötigte, trockene Luft durch Abwärme der Anlage in einem Querstromtrockner erzeugt. Anschließend wird der Brennstoff über ein Schneckenfördersystem in die Wirbelschicht eingebracht und mit Dampf, welcher zugleich als Fluidisierungsmittel dient, vergast. Der intern erzeugte Dampf wird durch den Wärmeaustausch mit den im Verbrennungsreaktor entstandenen Rauchgas überhitzt und infolgedessen dem Vergasungsreaktor zugeführt. Bei Vergasung des Brennstoffs auf einem Temperaturniveau von zirka 850 °C entsteht ein Produktgas mit mittelhohem Heizwert. Dieses wird in drei Stufen auf eine Temperatur von ungefähr 170 °C abgekühlt, wobei die abgegebene Wärmeleistung für die Fernwärmeauskopplung und einen ORC5-Prozess genutzt wird. Nach der Kühlung wird das Produktgas mit Hilfe eines Schlauchfilters von Flugkoks befreit und in eine Absorptionskolonne geleitet. Der im Produktgas vorhandene Teer wird mit Rapsmethylester (RME) entfernt und gleichzeitig auf zirka 40-50 °C abgekühlt, um den restlichen Wassergehalt zu kondensieren. Während die mit Teer gesättigte RME-Waschflüssigkeit sowie der im Schlauchfilter abgeschiedene Flugkoks dem Verbrennungsreaktor zugeführt werden, wird das Kondensat aus dem Produktgas für die Dampferzeugung verwendet. Das aufbereitete Produktgas wird zwei redundant ausgeführten Gasmotoren zugeleitet und durch zwei Generatoren in Strom umgewandelt. Der ORC-Prozess dient außerdem zur Erhöhung der elektrischen Leistung.

Die für die Vergasung benötigte Wärme wird über das umlaufende Bettmaterial, welches zuvor in der Verbrennungswirbelschicht aufgeheizt und regeneriert wurde, bereitgestellt. Bei der Wirbelschichtform im Verbrennungsreaktor handelt es sich um eine schnelle Wirbelschicht, wobei hier das Bettmaterial mit Luft fluidisiert wird. Da Vergasung und Verbrennung in nebeneinander angeordneten Reaktoren stattfinden, kann die Trennung des Produktgases aus der Vergasung von dem Abgas aus der Verbrennung sichergestellt werden. Neben der mit Teer gesättigten RME-Waschflüssigkeit und dem abgeschiedenen Koks wird auch der im Vergasungsreaktor entstandene Koks mit dem Bettmaterial in den Verbrennungsreaktor geführt und folglich

⁴ SNG – Synthetic Natural Gas

⁵ ORC – Organic Rankine Cycle

verbrannt. Das Bettmaterial wird in der schnellen Wirbelschicht pneumatisch aus der Verbrennung transportiert und in einem nachgeschalteten Zyklon von dem Abgas abgeschieden. Mit einem Siphon wird das Bettmaterial wiederum dem Vergasungsreaktor zugeführt.

Die für den Verbrennungsprozess notwendige Luft wird durch Wärmeaustauscher mit dem Rauchgas vorgewärmt und in weiterer Folge dem Verbrennungsreaktor zugeleitet. Über die Rückführung eines bestimmten Teilmassenstroms an Produktgas, kann die Temperatur im Verbrennungsreaktor auf das geforderte Temperaturniveau gebracht werden. Dieses befindet sich für die Verbrennung ungefähr bei ca. 900-940 °C. Das entstandene Abgas wird in den nachgeschalteten Zyklon und anschließend in eine Nachbrennkammer geleitet. Jenes aus der Nachverbrennung passiert einen Grobabscheider und wird abgekühlt. Die dabei abgeschiedene Grobasche wird in die Verbrennungswirbelschicht eingebracht. Nach den darauffolgenden Wärmetauschern für die Dampfüber- und Lufterhitzung, wird in einem weiteren Wärmetauscher Wärme an das für den ORC-Prozess benötigte Thermoöl abgegeben. Letztendlich wird das Rauchgas in einem Schlauchfilter entstaubt und gemeinsam mit dem aus den Gasmotoren strömenden Rauchgas durch den Aufstiegskanal im Kamin in die Atmosphäre abgeleitet. [16, 17]

Die Auslegungsdaten der KWK-Anlage sind in der Tabelle 2 ersichtlich. Für die Auslegung wurde Holzhackgut als Standardbrennstoff festgelegt.

KWK-Anlage in Oberwart					
Konzept	Zweibett-Wirbelschichtvergasung mit Nutzung des				
	Produktgases für die Kraft-Wärme-Kopplung				
Inbetriebnahme	2007				
Vergasungsmittel	Dampf				
Brennstoffwärmeleistung	8,6 MW _{th}				
Standardbrennstoff	Holzhackgut				
Brennstoffmassenstrom	ca. 3 t h ⁻¹				
Energiebereitstellungsaggregate	2 Gasmotoren, ORC-Anlage, Fernwärmeauskopplung				
Elektrische Leistung	2,7 MW				
Thermische Leistung	1,5 - 4 MW				
Vergasungstemperatur	835 – 865 °C				
Brennkammertemperatur	900 – 940 °C				
Produktgasvolumenstrom	ca. 11.000 Nm ³ h ⁻¹				
Abgasvolumenstrom	ca. $6.000 \text{ Nm}^3 \text{ h}^{-1}$				

Tabelle 2: Kenndaten der KWK-Anlage Oberwart [17, 18]





Abbildung 8: Verfahrensfließbild der KWK-Anlage in Oberwart (entnommen aus [16] und abgeändert)

2.3.2 Umbaumaßnahmen für den Einsatz von Reststoffen und Abfällen

Die KWK-Anlage Oberwart wurde für die erneute Inbetriebnahme adaptiert, um den Einsatz von alternativen Brennstoffen für den zukünftigen Betrieb zu bewerkstelligen. Dadurch muss die Anlage auch den sicherheitstechnischen und umweltrelevanten Anforderungen im Rahmen der AVV gerecht werden.

Neben der DFB-Anlage in Oberwart soll eine Anlage zur Herstellung von Bindemittel errichtet werden. Das erzeugte Produktgas soll als Energieträger in der Bindemittelerzeugung dienen, damit das bisher eingesetzte Erdgas substituiert werden kann. Der Versuchsbetrieb wurde in zwei Phasen unterteilt, wobei für die erste zunächst die Nachverbrennung des erzeugten, unbehandelten Produktgases aus der Vergasung und Abgases aus der Verbrennung vorgesehen ist. Die aus der Nachverbrennung hervorgehenden Gase werden einer Kühlung und Nachbehandlung für die anschließende Ableitung in die Umgebung unterzogen.

Nach Abschluss der ersten Phase wird der Versuchsbetrieb angepasst, indem nun das erzeugte Produktgas in der adaptierten Gasbehandlung gereinigt und wiederum in die Nachverbrennungskammer rückgeführt wird. Nach Abschluss der zweiten Phase im Versuchsbetrieb wird das gereinigte Produktgas der Bindemittelanlage zugeführt.

Die Umbaumaßnahmen umfassen folgende Änderungen an der ehemaligen KWK-Anlage (siehe Abbildung 9):

- Entfernung der Gasmotoren
- Einleitung des Produktgases in den Abgasstrom aus dem Verbrennungsreaktor über eine Brennermuffel, welche in die Nachbrennkammer mündet
- Installation einer SNCR⁶-Anlage in der Nachbrennkammer
- Anpassung der Abgaskühlung nach der Nachbrennkammer auf die vorhandene Abgasmenge
- Erweiterung der bestehenden Abgasreinigung
- Installation einer Emissionsmessung
- Einbau von weiteren Erdgaslanzen im Verbrennungsreaktor
- Kontinuierliche Ausschleusung von Störstoffen aus dem Verbrennungsreaktor
- Installation eines Windsichters nach Ausschleusung der Störstoffe
- Erweiterung der sicherheitstechnischen Ma
 ßnahmen

In der SNCR-Anlage wird eine Harnstoffsuspension eingedüst, um Stickoxide zu N₂ und H₂O zu reduzieren. Das thermisch behandelte Rauchgas aus der Nachbrennkammer und SNCR-Anlage wird einem erweiterten Strahlungskühler zugeleitet und folglich in zwei Abgasströme aufgeteilt. Während etwa eine Hälfte des Abgasstroms drei hintereinander angeordnete Wärmetauscher für die Dampfüberhitzung, Luftvorwärmung 1 und Thermoölvorwärmung 2 passiert, wird die andere Hälfte des Abgasstroms durch den Luftvorwärmer 2 und Thermoölvorwärmer 1 abgekühlt.

Das Abgas wird nun in eine Kühl- und Reaktionszone mit nachgeschaltetem Schlauchfilter geleitet. Beim Eintritt in den Reaktor wird das Abgas durch Eindüsung von Wasser abgekühlt und verwirbelt. Die trockene Abgasreinigung erfolgt zunächst in der Reaktionszone, in welcher die Adsorption von Schadstoffen mit einer Mischung aus Herdofenkoks, im Prozess abgeschiedener Asche und Calciumhydroxid stattfindet. Im Zuge der Adsorption entstehen die Reaktionsprodukte CaSO₃, CaSO₄, CaCl₂ und CaF₂, welche über eine Förderschnecke

⁶ SNCR – Selective Non-Catalytic Reduction

ausgetragen werden. Der im Reaktor verbleibende Anteil des beladenen Adsorbens wird mit Hilfe von Schlauchfilter aus dem Abgas entfernt. Der Filterkuchen an den Schlauchfiltern dient außerdem zur weiteren Adsorption von Schadstoffen wie HCl, SO₂, HF, Hg sowie PCDD⁷ und PCDF⁸.

Die Ausschleusung von Störstoffen, wie beispielsweise metallische Partikel, wurde mit einem zentralen Austrag im Verbrennungsreaktor durch Betätigung eines Plattenschiebers bewerkstelligt. Die Mischung aus Bettmaterial und Störstoffen wird über eine Förderschnecke einem Windsichter zugeführt. Feines Bettmaterial wird über eine Rückblaseleitung dem Verbrennungsreaktor rückgeführt und grobe Partikel in ein Behältnis ausgetragen. [19]

Da im Versuchsbetrieb sowohl das Produktgas als auch das Abgas in die Nachbrennkammer zur Nachverbrennung geleitet werden, wird damit bereits das Maximum an Gesamtdurchsatz von Produktgas und Abgas festgelegt. Im Störfall müssen beide Gasströme über die Brennermuffel in die Nachbrennkammer eingeleitet werden, somit werden durch die Auslegung der Nachbrennkammer die Brennstoffwärmeleistung und weitere Parameter limitiert.

Zur thermischen Abgasreinigung muss gemäß der AVV das Abgas in der Nachbrennkammer 2 Sekunden lang bei einer Temperatur von 850 °C verweilen. Bei hohen Anteilen > 1 mass.-% an halogenierten organischen Substanzen (berechnet als Chloride) im Brennstoff muss eine Temperatur von 1100 °C und Verweilzeit von mehr als 2 Sekunden eingehalten werden. [20]

Die Kenndaten für den Versuchsbetrieb sind in Tabelle 3 dargestellt.

DFB-Anlage in Oberwart					
Konzept	DFB-Vergasung mit Nutzung des Produktgases für die				
	Baustoffindustrie				
Inbetriebnahme	2020				
Vergasungsmittel	Dampf				
Brennstoffwärmeleistung	max. 5,4 MW _{th}				
Standardbrennstoff	Rejekte				
Brennstoffmassenstrom	max. 2 t h ⁻¹				
Energiebereitstellungsaggregate	ORC-Anlage, Fernwärmeauskopplung				
Thermische Leistung	max. 3 MW				
Vergasungstemperatur	800 °C (Freeboard)				
Brennkammertemperatur	925°C				
Produktgasvolumenstrom	2.800 Nm ³ h ⁻¹				
Abgasvolumenstrom	$4.000 \text{ Nm}^3 \text{ h}^{-1}$				

Tabelle 3: Kenndaten der DFB-Anlage Oberwart [19, 21]

⁷ PCDD – Polychlorierte Dibenzodioxine

⁸ PCDF – Polychlorierte Dibenzofurane



2.4 DFB-Pilotanlage der Technischen Universität Wien

In dieser Arbeit werden ausschließlich Daten aus Versuchen an der 100 kWth Pilotanlage der TU Wien für die Auswertung verwendet. Die Pilotanlage wurde für aussagekräftige Messergebnisse, welche durch umfangreiche kontinuierliche und diskontinuierliche Messeinrichtungen erfasst werden, konzipiert.

2.4.1 Konzept der 100 kWth DFB-Pilotanlage

In Abbildung 10 sind die 3. und 4. Generation der DFB-Pilotanlage dargestellt. Der Aufbau der 3. Generation (bis 2013) ist mittig sowie jener der neuartigen Pilotanlage (4. Generation ab 2014) rechts in Abbildung 10 ersichtlich. [22] Ein Ziel des Umbaus der Pilotanlage war primär die umfassende Untersuchung der Teerreduktion und -reformierung beim Einsatz verschiedener Brennstoffe. Dafür wurde die Erhöhung der Verweilzeit wie auch Intensivierung des Kontakts zwischen Brennstoff, Bettmaterial und der Gasphase vorgesehen, um eine positive Auswirkung auf die Vergasungsreaktionen (siehe Tabelle 1), Reduktion von Teer im Produktgas und Konversionsrate zu erhalten. Diese Verbesserung ist vor allem für den Einsatz von alternativen Brennstoffen, wie Reststoffe und Abfälle, relevant, da es oft beim Einsatz dieser zu einem höheren Anteil an Teer im Produktgas kommt. Dadurch konnte die Flexibilität für die Brennstoffvariation in der Pilotanlage erhöht werden. Die KWK-Anlage Güssing wurde mit dem DFB-System, welches links in Abbildung 10 dargestellt ist, errichtet. [23]



Abbildung 10: Aufbau des DFB-Systems in Güssing (Links); Aufbau der Pilotanlage der TU Wien – 3. Generation (Mitte) & 4. Generation (Rechts) [22]

2.4.2 DFB-Pilotanlage 4. Generation

Das grundlegende Funktionsprinzip der Zweibett-Wirbelschicht wurde bereits in Kapitel 2.2 und 2.3.1 erläutert. Der Übergang für das Bettmaterial zwischen Vergasungs- und Verbrennungsreaktor wird mit Hilfe von Siphonen bewerkstelligt. Diese werden mit dem Vergasungsmittel fluidisiert, um eine saubere Trennung des Produktgases aus der Vergasung von dem Abgas aus der Verbrennung zu gewährleisten. Während bei dem ursprünglichen Design der Pilotanlage ein unterer und oberer Siphon als Übergangszone für das Bettmaterial vorgesehen war, hat sich bei dem neuartigen System die Notwendigkeit eines weiteren, internen Siphons für den Vergasungsreaktor ergeben. Es befinden sich zwei Zonen im Vergasungsreaktor, wobei sich die Wirbelschichtformen jeweils in einem anderen Regime befinden. Im unteren Vergasungsreaktor liegt wie nach dem DFB-System der 3. Generation ebenfalls eine blasenbildende Wirbelschicht vor, jedoch wurden für den oberen Vergasungsreaktor Querschnittsverengungen vorgesehen. Durch den Beschleunigungseffekt nach jeder Verengung, kommt es zu der Ausbildung von Wirbelschichten im Übergangsbereich zwischen turbulentem und schnellem Regime. Die Partikel nehmen beim Passieren dieser Querschnittsverengung kinetische Energie auf, weshalb die interne Zirkulation des Bettmaterials im Vergasungsreaktor zu Stande kommt.

Um die Pilotanlage hinsichtlich des Einsatzes von verschiedenen Bettmaterialen für die Zweibett-Wirbelschicht flexibler gestalten zu können, wurde das mechanische Abscheidesystem für die Feststoff-Gas Trennung nach dem jeweiligen Reaktor adaptiert. Im Vergleich zum Einsatz eines Zyklons, kommt es dadurch zur Verringerung der Partikel- und Gasgeschwindigkeit, weswegen der Abrieb und die Abrasion von Bettmaterialien mit geringerer Härte vermieden wird. [23] Dies ist vor allem für den Betrieb der Pilotanlage im Zuge eines SER⁹-Versuchs relevant, da hierbei Kalk als Bettmaterial eingesetzt wird. Auch bei konventioneller Vergasung wird Kalk zur Teerreduktion dem Bettmaterial zugemischt. Die Mohs-Härte von Kalk ist verglichen mit Olivin deutlich geringer. Der Betrieb mit erhöhtem Kalkanteil in der Bettmaterialzusammensetzung erfordert daher eine schonende Gas-Feststoff Trennung. [24] Nachdem die Ascheabtrennung durch einen zusätzlichen Abscheider erfolgt ist, wird die Asche ausgetragen und kann in weiterer Folge analysiert werden.

In der neuartigen Pilotanlage können auch andere Vergasungsmittel wie CO₂ oder Gasmischungen aus Dampf und CO₂ verwendet werden. Der Brennstoff wird über eine wassergekühlte Förderschnecke in den Reaktor transportiert. Dieser fällt ohne Berührung der Reaktorwände in das Wirbelbett, sodass auch Brennstoffe mit niedrigen Schmelzpunkten eingesetzt werden können. Die Trocknung und Entgasung des Brennstoffes findet statt, sobald dieser in den Vergasungsreaktor eingespeist wurde. Durch die Querschnittsverengung im oberen Vergasungsreaktor wird die Verweilzeit des verbliebenen Koks sowie Bettmaterials erhöht und der Gas-Feststoffkontakt intensiviert, um die Produktgaszusammensetzung gezielt zu beeinflussen. Vor allem beim Einsatz von CO₂ als Vergasungsmittel ist die Erhöhung der Verweilzeit von Bedeutung. Da das aufgeheizte und regenerierte Bettmaterial aus dem Verbrennungsreaktor über den oberen Siphon dem Vergasungsreaktor hinzugeführt wird, kommt es in dieser Zone zu einer Gegenstromführung. Die hohe Temperatur des aufgeheizten Bettmaterials begünstigt die Reformierung und das Cracking der unerwünschten Teerkomponenten.

TU Bibliothek Die approbierte gedruckte Originalversion dieser Diplomarbeit ist an der TU Wien Bibliothek verfügbar WIEN vourknowledge hub The approved original version of this thesis is available in print at TU Wien Bibliothek.

⁹ SER – Sorption Enhanced Reforming







Abbildung 11: Grundfließschema der neuartigen 100 kWth Pilotanlage (4. Generation) [23]

An dem Verbrennungsreaktor sind in drei Höhenabschnitten Lanzen für die Luftzufuhr angebracht, um die Zirkulationsrate ohne Änderung des Luftvolumenstroms regeln zu können. Die Grobasche kann gemeinsam mit dem Bettmaterial über eine Förderschnecke diskontinuierlich aus dem unteren Siphon ausgetragen werden. Dies ist vor allem für aschereiche Brennstoffe notwendig. Als Zusatzbrennstoff wird der Brennkammer Heizöl EL zugeführt. In Abbildung 11 ist das Grundfließschema der gesamten Pilotanlage von Brennstoffzufuhr, Produktund Abgasproduktion bis zur Gaskühlung und -reinigung dargestellt. [23]

Online-Messeinrichtungen

Die Anzahl der Temperatursensoren wurde auf ungefähr 100 Thermoelemente und die der Drucksensoren auf etwa 70 erweitert. Um Beschädigungen an dem Sensor und die Kondensation von Teer oder Dampf zu vermeiden, werden die Messstellen der Drucksensoren kontinuierlich mit N₂ (gegebenenfalls mit CO₂) gespült. Während die in das System eintretenden Volumenströme der Fluide mit Rotametern erfasst werden, wird der Durchfluss des Ab- und Produktgases mit Differenzdruckmessblenden gemessen. Die kontinuierliche Analyse der Hauptkomponenten im Produktgas wie H₂, CO, CO₂, CH₄ und O₂ erfolgt durch das Analysemodul NGA2000. Anteile an C₂H₂, C₂H₄, C₂H₆, C₃H₈ und N₂ sowie CO, CO₂, CH₄ und O₂ werden mittels Gaschromatographie in einem Intervall von 12 Minuten bestimmt. Die Produktgaszusammensetzung wird sowohl im Freeboard des unteren Vergasungsreaktors (LSP¹⁰) als auch nach dem Schwerkraftabscheider und Strahlungskühler in der Produktgasleitung (USP¹¹) gemessen. Die Kenntnis der Produktgaszusammensetzung in den beiden Messpunkten ermöglicht es den Einfluss des oberen Vergasungsreaktors auf verschiedene Parameter darzustellen.



Abbildung 12: Produktgasreinigung vor der Online-Gasanalyse [23]

- ¹⁰ LSP Lower Sample Point
- ¹¹ USP Upper Sample Point



Abbildung 13: Aufbau zur Bestimmung des Teergehalts im Produktgas [23]

Bevor die Produktgaszusammensetzung mithilfe des Analysemoduls und dem Gaschromatographen gemessen wird, wird das Produktgas einer Filtration mit Quarzwolle als Filtermittel unterzogen und anschließend über mehrere Gaswaschflaschen, welche sich in einem gekühlten Bad befinden, geleitet. Zuerst wird der Restgehalt an Wasser durch Kondensation entfernt und folglich der Teergehalt im Zuge der Absorption in RME und gleichzeitiger Kondensation von Teerkomponenten reduziert. Danach wird das Produktgas durch Filtration erneut gereinigt. Der Aufbau der Gasaufbereitung vor der Analyse ist in Abbildung 12 ersichtlich. Die Anteile an CO₂, CO, O₂, NO, NO₂, N₂O und SO₂ im Abgas aus dem Verbrennungsreaktor sowie auch die an CO₂, CO, O₂ im Rauchgas nach der Nachverbrennung werden kontinuierlich mit einem weiteren Analysemodul erfasst. [23]

Offline-Messeinrichtungen

Die Messungen des Teergehalts erfolgen durch ein an die Norm CEN/TS 15439:2006 angelehntes Verfahren nach Standard des Akkreditierten Prüflabors der TU Wien. [25] Diese werden für jede Probenahme zwei Mal durchgeführt. Nachdem die feinen Partikel über einen Zyklon und anschließender Filtration mit Quarzwolle von dem Produktgasstrom abgetrennt worden sind, wird dieser in mehrere Gaswaschflaschen geleitet. Die Filtration wird in einer Staubmesshülse vorgenommen, wobei durch Auswägen der Quarzwolle der Staubgehalt gravimetrisch bestimmt wird. Die Gaswaschflaschen befinden sich wie auch bei der Online-Messeinrichtung in einem gekühlten Bad, welches auf -8 °C mit einem Kryostaten temperiert wird. Das Lösungsmittel wird anschließend verdampft und folglich der verbleibende Anteil an Teer gravimetrisch bestimmt. Für die gravimetrische Bestimmung des Teergehalts wird Toluol als Lösungsmittel verwendet, wobei für gewöhnlich Isopropanol als Lösungsmittel verwendet wird. Durch die Verwendung von Toluol kann auch der Wassergehalt im Produktgas bestimmt werden. Es ist daher nicht möglich den Toluol-Gehalt zu bestimmen. Die Analyse der einzelnen Teerkomponenten wird unter Zuhilfenahme von Gaschromatographie gekoppelt mit Massenspektroskopie (GC/MS) bewerkstelligt. Der Aufbau der Messeinrichtung ist in Abbildung 13 dargestellt. Die Produktgaskomponenten CO₂, CO, O₂, C₂H₄, C₂H₆, N₂, CH₄, H₂S, COS, R-SH und C₄H₄S können durch einen zweiten Gaschromatographen, sofern dieser zur Verfügung steht, gemessen werden.

Für die Messung der anorganischen Verbindungen wie NH₃, H₂S, HCN und HCl im Produktgas, wird eine ähnlich aufgebaute Messkette verwendet. Jedoch wird ein anderes Lösungsmittel für die jeweilige Komponente verwendet. [23] Das im Produktgas befindliche NH₃ wird zuerst in verdünnter H₂SO₄ absorbiert und anschließend die Konzentration der NH₄⁺ Ionen mit Hilfe von Ionenchromatographie gemessen. H₂S und HCN werden durch Absorption in 35 %iger KOH-Lösung und mittels potentiometrischer Titration nachgewiesen. Für die Bestimmung des HCl-Gehalts wird H₂O₂ als Lösungsmittel vorgelegt und Ionenchromatographie für den Nachweis der Cl⁻ Ionen angewandt. [12]

Prozesssimulation

Die Validierung der Messdaten erfolgt durch die Anwendung des Prozesssimulationsprogramms IPSEpro, welches sich einem gleichungsorientiertem Lösungsverfahren bedient. Massen- und Energiebilanzen werden für den Prozess berechnet sowie für überbestimmte Systeme mittels definierter Messtoleranzen eine ausgeglichene Lösung errechnet. Mit Hilfe der Prozesssimulation können Daten gewonnen werden, die nicht direkt im Prozess gemessen werden können. [16]

2.5 Brennstoffe

Bei der thermischen Verwertung unterschiedlicher Brennstoffe, sind eine Reihe von charakteristischen Kenngrößen für die Konzipierung eines Prozesses zu beachten. Die Kenngrößen und Analyseprinzipien zur Ermittlung dieser werden in den folgenden Kapiteln näher erläutert.

2.5.1 Brennstoffanalytik

2.5.1.1 Immediatanalyse

Über die Immediatanalyse können vorerst informative Aussagen über den Brennstoff durch den Brennwert, Heizwert, Anteil an flüchtigen Bestandteilen sowie Asche- und Wassergehalt getroffen werden.

Der Brennwert wird nach der Norm DIN 51900 T2 als Quotient aus der bei vollständiger Oxidation freiwerdenden Wärmemenge und der Masse des Brennstoffes bei 25 °C ermittelt. Dabei befindet sich das im Brennstoff enthaltende Wasser und das durch Oxidation von Wasserstoff entstandene Wasser im flüssigen Aggregatzustand. Die Bestimmung erfolgt durch die Verbrennung des Brennstoffes in einem Bombenkalorimeter. Während die im Zuge der Oxidation von Kohlenstoff und Schwefel gebildeten Gase als CO₂ und SO₂ vorliegen, darf die Oxidation von Stickstoff nicht vorhergegangen sein. Der Heizwert berücksichtigt bereits die Verdampfungsenthalpie des Wassers und kann aufgrund des dafür notwendigen gasförmigen Aggregatzustandes vom Wasser nicht im Bombenkalorimeter bestimmt werden.

Der Anteil an flüchtigen Bestandteilen im Brennstoff wird gemäß der Norm DIN 51720 durch Erhitzung der Probe auf 900 °C unter Luftabschluss ermittelt. Nach vollendeter Entgasung ist noch ein verbleibender Rückstand vorhanden, welcher auch als Restkoks bezeichnet wird. Der Aschegehalt wird nach der Norm DIN 51719 durch Glühen bis zur Massekonstanz bei 550 °C in einem Muffelofen bestimmt. Die im Brennstoff vorhandene Asche enthält anorganische Verbindungen, welche nicht brennbar sind. [25, 26]

Da die Asche des Brennstoffes aus verschiedenen anorganischen Bestandteilen besteht, findet der Asche-Schmelzvorgang in einem definierten Temperaturbereich statt. Das Asche-Schmelzverhalten wird mit einem Erhitzungsmikroskop entsprechend der Norm DIN 51730 bestimmt. Dafür wird die Ascheprobe in einer definierten Form mit einer konstanten Heizrate erwärmt. Im Zuge des Asche-Schmelzvorgangs werden Erweichungs-, Sphärisch-, Halbkugel- und Fließtemperatur durch Beobachtung des Probekörpers im Zuge des Aufheizvorganges bestimmt. Der Sinterbeginn, jene Temperatur bei welcher der Probekörper erstmals zu schrumpfen beginnt, kann laut Norm nicht eindeutig definiert werden. Bei der Erweichungstemperatur (A) treten erste Formveränderungen, wie Blähen des Probekörpers oder Rundwerden der Kanten, auf. Im Kontrast zur Sphärischtemperatur (B), bei welcher die Höhe des Probekörpers gleich der Breite der Basislinie ist und der Probekörper somit Kugelform annimmt, weist die Probe beim Erreichen der Halbkugeltemperatur (C) bereits eine Halbkugelform auf. Die Fließtemperatur (D) ist jene Temperatur, bei welcher der Probekörper vollständig geschmolzen ist und dessen Höhe lediglich ein Drittel des Halbkugelradius aufweist. Der Schmelzbereich befindet sich laut DIN 51730 daher in einem Temperaturbereich von Halbkugel- bis Fließtemperatur. [25, 26, 27]

Entsprechend der Norm DIN 51718 wird der Wassergehalt der Probe bei 106 ±2 °C im Trockenschrank durch Erreichen konstanter Masse ermittelt. [25, 26, 28]

2.5.1.2 Elementaranalyse

Die elementare Zusammensetzung des Brennstoffs ist wegen der Ableitung wichtiger Kenngrößen zur Prognose der Hauptkomponenten im Produktgas und Schadstoffemissionen, basierend auf den Elementen Stickstoff, Schwefel und Chlor, unabdingbar.

Der C-, H- und N-Gehalt wird mit einem CHN Elementar Analyzer von Perkin Elmer nach der Norm DIN 51721 bestimmt. Dabei wird die Brennstoffprobe in einer Zinnkapsel und diese anschließend in einen Ofen gegeben und unter Sauerstoffüberschuss verbrannt. Durch den Einsatz von Wolframtrioxid als Katalysator kommt es zur vollständigen Oxidation, sodass nach dem Passieren des Katalysators die Verbrennungsprodukte CO₂, H₂O und NO_x sowie gegebenenfalls SO₂ und Halogenwasserstoff, wobei letztere zwei Komponenten in einer Silber Vanadat-Falle absorbiert werden, vorhanden sind. Der überschüssige Sauerstoff durchströmt ebenfalls den Katalysator. Im Anschluss wird das Gas einer Kolonne mit Kupfergranulat zugeleitet, damit der überschüssige Sauerstoff gebunden und die Stickoxide zu Stickstoff reduziert werden. Über das Trägergas (Helium) wird das Analysegas auf einen definierten Druck/Volums-Zustand gebracht und durch eine Chromatographiesäule geleitet. Da die Chromatographiesäule in Zonen getrennt ist, werden Stufenkurven für die jeweiligen Gaskomponenten erhalten. Die Stufenhöhe ist der jeweiligen Substanzmenge im Analysegas proportional. [29]

Die Analyse des S- und Cl-Gehaltes erfolgt nach der Norm DIN EN ISO 16994 - Verfahren A: Verbrennung in einer Sauerstoffatmosphäre in einem Verbrennungsgefäß und Aufnahme der sauren Gasbestandteile in einer Absorptionslösung. Die Probe wird in der Verbrennungsbombe des Bombenkalorimeters unter Sauerstoffatmosphäre verbrannt. Für die Analyse werden in der Verbrennungsbombe 5 ml Reinstwasser als Absorptionsmittel vorgelegt. Die Absorptionslösung wird auf eine definierte Konzentration verdünnt und in weiterer Folge der Sulfat-und Chlorid-Gehalt durch Ionenchromatographie bestimmt. [25, 26, 30]

2.5.1.3 Röntgenfluoreszenzanalyse (RFA)

Bei der RFA wird die, aus der Anregung der Elektronen durch Röntgenstrahlung, resultierende Röntgenemission gemessen. Dabei werden die Elektronen der kernnahen Schalen angeregt und herausgeschlagen, zwecks der Stabilisierung des Atoms nimmt ein Elektron einer höheren Schale unter Emission von Röntgenstrahlung den Platz des herausgeschlagenen Elektrons ein. Das emittierte Elektron besitzt eine von der Anregungs- und seiner Bindungsenergie abhängige kinetische Energie. Sofern die Strahlung der Anregung und Emission im Röntgenbereich liegen, wird diese Methode als Röntgenfluoreszenz bezeichnet. Die freiwerdende Röntgenstrahlung wird mit einem Detektor aufgenommen, um die elementare Zusammensetzung der Probe in weiterer Folge auswerten zu können. Im Allgemeinen kann die RFA für den Nachweis von 83 Elementen, von Fluor ($Z^{12}=9$) bis Uran (Z=92), angewandt werden. [31] Im Rahmen der Brennstoffanalyse an der TU Wien werden die Elemente aus der Aschezusammensetzung häufig als Oxide angegeben.

¹² Z bezeichnet die Ordnungszahl im Periodensystem der Elemente.

2.5.2 Arten von festen Brennstoffen

Die gravimetrische Energiedichte verschiedener Brennstoffe unterscheidet sich nach deren Aggregatzuständen signifikant voneinander. Unterdessen weisen gasförmige Brennstoffe die höchste gravimetrische Energiedichte auf (mit Ausnahmen, wie beispielsweise CO), gefolgt von flüssigen und festen Energieträgern. [26, 32]

Für den Heizwert des wasserfreien, festen Brennstoffs sind der Kohlenstoff-, Wasserstoff- und Sauerstoffgehalt ausschlaggebend. Der Wasser- und Aschegehalt haben eine negative Auswirkung auf den Heizwert. Stickstoff-, Schwefel- und Chloranteile sind ebenfalls unerwünschte Bestandteile im Brennstoff, da sie zur Emissionsbildung und Korrosion in der Verwertungsanlage führen. [26]

In Abbildung 14 sind Bilder von verschiedenen Brennstoffen, die bereits an der 100 kW_{th} Pilotanlage der TU Wien getestet worden sind, dargestellt. Dabei ist im ersten Bild Weichholz (SW¹³) als klassischer Vertreter für biogene Brennstoffe und im letzten Bild Lignit¹⁴ (LIG) ebenfalls als solcher für fossile, feste Brennstoffe dargestellt. In den Bildern zwischen dem ersten und letzten sind alternative Brennstoffe, wie Zuckerrohrbagasse (SCB¹⁵), Olivenbagasse (EOP¹⁶), Rinde (BA¹⁷) und Reisschalen (RH¹⁸), stellvertretend für biogene Reststoffe, und Abfälle wie Shredderleichtfraktion (SLF¹⁹) und Hausmüllfraktion (MWF²⁰) ersichtlich. [33]

In der Regel werden die Brennstoffe für den Einsatz in die Pilotanlage pelletiert, um eine gleichmäßige Förderung zu gewährleisten. Diese mechanische Vorbehandlung ist für den großtechnischen Einsatz nicht notwendig. [23]



Abbildung 14: Verschiedene Brennstoffe für die Versuche an der 100 kWth Pilotanlage der TU Wien [33]

- ¹⁴ Lignit ist eine weitere Bezeichnung für Weichbraunkohle.
- ¹⁵ SCB Sugar Cane Bagasse
- ¹⁶ EOP Exhausted Olive Pomace
- ¹⁷ BA Bark
- ¹⁸ RH Rice Husk
- ¹⁹ SLF Shredder Light Fraction
- ²⁰ MWF Municipal solid Waste Fraction

¹³ SW – Soft Wood

2.5.2.1 Fossile Energieträger

Generell wird bei festen fossilen Energieträgern zwischen Torf, Braun- und Steinkohle und damit nach dem geologischen Alter der jeweiligen Kohleart unterschieden. Das geologische Alter ist maßgebend für den Kohlenstoff- und Sauerstoffgehalt der Kohle. Der Kohlenstoffanteil nimmt mit steigendem Alter zu und der Sauerstoffanteil sinkt. Beispielsweise verfügt Steinkohle über einen typischen Kohlenstoffgehalt von über 70 %. Dieser liegt bei Braunkohle im Bereich von 40 bis knapp über 50 %. Wie in Abbildung 4 ersichtlich, hat der Einsatz von Kohlen für die Energiebereitstellung den größten Beitrag zur Erhöhung des CO₂-Gehalts in der Atmosphäre geliefert. Dies ist auf den hohen Kohlenstoffanteil im Brennstoff zurückzuführen. [26] Da fossile Brennstoffe in dieser Arbeit nicht von Relevanz sind, wird auf diese nicht näher eingegangen.

2.5.2.2 Biogene Energieträger

Der Begriff Biomasse umfasst nach ÖNORM M 7101 alle organischen Stoffe biogener, nicht fossiler Art. Darunter wird sowohl die lebende und wachsende Materie als auch die daraus resultierenden Abfallstoffe verstanden. [34] Hinsichtlich der elementaren Zusammensetzung bilden Kohlenstoff, Sauerstoff und Wasserstoff den Hauptbestandteil der Biomasse. Nebenbestanteile sind die Elemente Stickstoff, Kalium, Magnesium, Kalzium, Schwefel, Silicium, Natrium, Phosphor und Chlor. Diese stellen mit der Ausnahme von Silizium und Natrium die Hauptnährstoffe der Pflanze dar. Als Spurenelemente werden Elemente wie beispielsweise Eisen, Mangan, Zink, Kupfer aber auch flüchtige Schwermetalle wie Cadmium oder Quecksilber von der Pflanze aufgenommen. Bei der Photosynthese wird das aufgenommene CO2 mit H2 reduziert und dadurch die Bausteine für die Biomasse in Form von Kohlenhydraten geschaffen. Dabei wird das H2 durch die Wasserspaltung erhalten und das erhaltene O₂ an die Atmosphäre abgegeben. Aus biochemischer Sicht besteht die Zusammensetzung der Biomasse primär aus den folgenden drei Biopolymeren: Zellulose, Hemizellulose und Lignin. Diese sind überwiegend aus den Elementen C, H und O aufgebaut. [14] Während Zellulose (Anteil 40-50 %) als Gerüstsubstanz und damit für das Aufnehmen der mechanischen Zugkräfte verantwortlich ist, ist Lignin (Anteil 20-30 %) für das Aufnehmen der mechanischen Druckkräfte und die Hydrophobierung zuständig. Zusätzlich fungiert Lignin als Kittsubstanz und Füllstoff für die Biomasse. Hemizellulose (Anteil 20-40 %) ist eine flexible Kittsubstanz, welche zwischen den Zellulose-Fibrillen und Lignindomänen angeordnet ist. [35]

Im Gegensatz zu fossilen Energieträgern verfügen biogene Energieträger über einen niedrigen Kohlenstoff- und hohen Sauerstoffgehalt. Der geringere Kohlenstoffanteil von biogenen Energieträgern führt zu einem verminderten und nicht fossilen CO₂-Emissionsausstoß, jedoch ist auf den Stickstoff-, Schwefel-, und Chlorgehalt, welche unerwünschte Bestandteile im Brennstoff darstellen, zu achten. Diese unterscheiden sich von Art zu Art und sind für die Bildung unerwünschter Gaskomponenten im Zuge der thermischen Verwertung verantwortlich. Bei der Verbrennung treten diese in oxidierter Form wie beispielsweise NO_x und SO₂, bei der Vergasung in reduzierter Form wie NH₃ oder H₂S auf. Auch der Aschegehalt kann für verschiedene Biomassearten stark variieren. Der Heizwert verschiedener biogener Energieträger liegt typischerweise in einem Bereich von 15 bis 19 MJ kg⁻¹tr. [26]

2.5.2.3 Abfälle und Reststoffe

Neben der Vergasung von klassischer Biomasse, wie qualitativ hochwertige holzartige Biomasse, ist es im Sinne der Abfallverwertung auch möglich Reststoffe beispielsweise aus der Land- und Forstwirtschaft, dem Industriebereich oder Haushaltsabfälle für die thermische Verwertung heranzuziehen. Im Vordergrund steht, abgesehen von dem Einsatz zur Energiebereitstellung, hauptsächlich die Abfallverwertung und Reduzierung von Mülldeponien. [11, 26] Während diese Materialien in der Anschaffung sehr günstig sind oder gar über negative Preise verfügen [11], stellt der Einsatz solcher in DFB-Anlagen sowie die Konzipierung des Downstreams²¹ jedoch eine Herausforderung dar. [15] Alternative Brennstoffe aus biogenen Reststoffen und Abfällen weisen in Relation zur klassischen Biomasse oft signifikante Inhomogenitäten und variierende Qualitäten auf. Die chemische Zusammensetzung betreffend, finden sich in diesen Brennstoffen oft höhere Konzentrationen an unerwünschten Komponenten wie Schwefel, Stickstoff oder Chlor und unterschiedlich hohe Anteile an leichter flüchtigen Verbindungen oder Schwermetallen. [12, 15]

2.5.3 Einsatz von Ersatzbrennstoffen

Dieses Kapitel widmet sich dem Einsatz von Ersatzbrennstoffen in der österreichischen Zementindustrie und erläutert die Emissionssituation sowie gesetzlichen Bestimmungen hinsichtlich der einzuhaltenden Emissionsgrenzwerte gemäß der AVV.

Dabei werden Stoffe, "deren ursprüngliche Funktion nicht in der Nutzung der chemischen Energie zur Gewinnung von thermischer Energie bestand", als Ersatzbrennstoff bezeichnet. [4] Für den Nachweis von CO2-Einsparungen in Bezug auf den Einsatz von EBS als KET-Ersatz ist die Kenntnis des fossilen und biogenen Anteils im EBS essentiell. Die Bestimmung des fossilen und biogenen Anteils in heterogenen Abfällen kann durch die Anwendung von verschiedenen Methoden erfolgen. Es wird zwischen der Bestimmung vor (manuelle Sortierung, selektive Lösemethode, Radiokarbonmethode und adaptierte Bilanzenmethode) und nach der thermischen Verwertung des Brennstoffs (Bilanzenmethode) unterschieden. Die Anwendung der Bilanzenmethode verlangt jedoch Betriebsdaten (wie beispielsweise der CO₂-Gehalt im Rauchgas) der thermischen Verwertungsanlage, damit der biogene und fossile Anteil im Brennstoff berechnet werden kann. Der Vorteil gegenüber den anderen Methoden liegt in der Betrachtung des gesamten Brennstoffs, der in der betrachteten Zeitspanne eingesetzt wurde. Die Methoden zur Bestimmung vor der thermischen Verwertung erfordern eine repräsentative Probenziehung. Neben der manuellen Sortierung und selektiven Lösemethode liefert die Radiokarbonmethode die zuverlässigsten Ergebnisse hinsichtlich des fossilen und biogenen Anteils im Brennstoff. Diese wird in der Praxis jedoch nicht angewandt. Die adaptierte Bilanzenmethode (aBM) wurde als robuste Methode zur Bestimmung der jeweiligen Anteile im EBS entwickelt, um Daten bereits vor dem Einsatz des EBS in der thermischen Verwertungsanlage zu generieren. Die über die aBM berechneten Anteile wurden beispielsweise für den EBS Papier-Rejekt (aus der Altpapieraufbereitung) mit den drei übrigen Methoden verglichen. Der fossile CO₂-Emissionsfaktor stimmt für die aBM und Radiokarbonmethode sehr gut überein. Der fossile CO2-Emissionsfaktor bezogen auf die Trockensubstanz beträgt für diesen EBS $1130 \pm 9 \text{ kg}_{\text{CO2,fos}} \text{ t}^{-1}$ tr sowie der fossile CO₂-Emissionsfaktor bezogen auf den Heizwert $48 \pm 3 \text{ kg CO}_{2,\text{fos}} \text{ GJ}^{-1}$. [7, 36]

²¹In diesem Kontext werden die notwendigen Operationen für die Reinigung des Produktgases als Downstream bezeichnet.

2.5.3.1 Aktuelle Situation in Österreich

Wie bereits in Kapitel 1.1 erwähnt, werden 81,24 % des Energiebedarfs der Zementindustrie durch den Einsatz von EBS gedeckt. In Abbildung 15 ist die Entwicklung des Energiebedarfs der österreichischen Zementindustrie in GJ pro Tonne Zement im Zeitraum von 1997 bis 2018 dargestellt.



Der Verlauf von KET (Kohle, Öl und Gas) zeigt sich in Abbildung 15 im Vergleich zu jenem der EBS abnehmend. Der Gesamtenergiebedarf pro Tonne Zement hingegen stagniert in einem Bereich von zirka 3 bis 3,2 GJ t⁻¹_{Zement}. In Abbildung 16 sind die Einsatzmengen verschiedener EBS in den österreichischen Zementwerken im Beobachtungszeitraum von 2008 bis 2018 dargestellt.



Abbildung 16: Einsatzmengen von EBS in Anlagen der österreichischen Zementindustrie im Zeitraum von 2008 bis 2018 (Daten aus [5, 37] entnommen)

Da diese Einsatzmengen in Tonnen pro Jahr als absolute Mengen angegeben sind, ist auch der Verlauf der Produktionsmengen in diesem Zeitraum zu beachten. Beispielsweise ist zwischen den Jahren 2008 und 2010 die Produktionsmenge von Zement um etwa 1 Mio. Tonne gesunken und entspricht daher einer Abnahme von ungefähr 20 %. Jedoch zeigt sich eine steigende Tendenz hinsichtlich der Produktionsmengen für die folgenden Jahre bis 2018. [8] Aufgrund der hohen Energiedichte werden vor allem Altreifen und Kunststoffabfälle gehäuft als EBS eingesetzt. Neben diesen sind auch sonstige biogene EBS, wie beispielsweise Altholz, Sägemehl, Klärschlamm oder Tierfett, dargestellt, wobei hier schwankende Einsatzmengen zu erkennen sind. [5, 37]

Der globale CO₂-Beitrag der Zementindustrie beträgt 5-6 %, demzufolge ist es sinnvoll in die Entwicklung fortschrittlicher Technologien zu investieren und eine CO₂-neutrale Zementherstellung zu erzielen. Den CO₂-Ausstoß der Zementindustrie betreffend, befindet sich Österreich mit 521 kg CO₂ pro Tonne Zement an der Spitzenstelle weltweit und konnte bereits im Jahr 2018 das EU-28 Ziel für das Jahr 2050 unterschreiten. Dieses wurde mit 530 kg CO₂ pro Tonne Zement festgesetzt und wurde im Vergleich zum EU-28 Ziel für 2015 um zirka 21 % gesenkt. [8]

2.5.3.2 Gesetzliche Bestimmungen

Beim Betrieb von thermischen Verwertungsanlagen müssen Emissionsgrenzwerte für das aus dem Kamin austretende Rauchgas eingehalten werden. Die thermische Verwertung von Reststoffen und Abfällen fällt in den Geltungsbereich der AVV, welche die einzuhaltenden Grenzwerte beispielsweise für Abfallverbrennungsanlagen, Zementwerke oder Konversionsanlagen, wie zur Pyrolyse oder Vergasung der Reststoffe und Abfälle, festlegt.

Gemäß Paragraph §2 Absatz 1a gilt die AVV nicht "*für Vergasungs- oder Pyrolyseanlagen, wenn die Gase, die bei dieser thermischen Behandlung der Abfälle entstehen, vor ihrer Verbrennung so weit gereinigt werden, dass sie nicht mehr als Abfall gelten und keine höheren Emissionen verursachen können, als bei der Verbrennung von Erdgas anfallen."* Die Grenzwerte, entsprechend der gesetzlichen Bestimmungen, für das gereinigte Produktgas aus Vergasungs- oder Pyrolyseanlagen sind in Tabelle 4 aufgelistet und dürfen nicht überschritten werden. [20] Die AVV verweist außerdem auf die Vorgaben der ÖVGW²² Richtlinie G 31 in Bezug auf Halogenverbindungen, Ammoniak und flüssige sowie feste Bestandteile im Produktgas. [38]

Die Gesamtemissionsgrenzwerte laut AVV unterscheiden sich nach der Art, thermischen Leistung und Alter der Verbrennungsanlage. Wie in Tabelle 5 ersichtlich, stimmen die Gesamtemissionsgrenzwerte für Verbrennungsanlagen und Zementwerke nicht überein. Hinsichtlich der staubförmigen, SO₂-, NO_x- und Hg-Emissionen sind unterschiedliche Grenzwerte festgelegt. Die Gesamtemissionsgrenzwerte beziehen sich auf verschiedene Beobachtungszeiträume und sind für kurze Beobachtungszeiträume (beispielsweise Halbstundenmittelwerte oder 0,5-8 beziehungsweise 6-8 Stunden Mittelwerte) höher angesetzt. [20] Diese sind mit den untenstehenden Symbolen gekennzeichnet.

*	Halbstundenmittelwert (HMW)
**	Mittelwert über einen Zeitraum von 0,5 bis 8 Stunden
***	Mittelwert über einen Zeitraum von 6 bis 8 Stunden
****	Jahresmittelwert

²² ÖVGW – Österreichische Vereinigung für das Gas- und Wasserfach
Chemische Verbindung	Grenzwert	Einheit	Rechtsakt
Gesamtschwefel	10	mg Nm ⁻³	AVV
H_2S	5	mg Nm ⁻³	AVV
COS	5	mg Nm ⁻³	AVV
Halogenverbindungen	0	mg Nm ⁻³	ÖVGW Richtlinie G 31
NH ₃	Technisch frei ²³		ÖVGW Richtlinie G 31
Fest- und Flüssigbestandteile	Technisch frei ²³		ÖVGW Richtlinie G 31

Tabelle 4: Grenzwerte für gereinigtes Produktgas aus der Vergasungs- oder Pyrolyseanlage [20, 38]

Tabelle 5: Gesamtemissionsgrenzwerte für Abfallverbrennungsanlagen [20]

	Verb	rennungsanlagen	Zer	mentwerke	F ' 1 '
Emission	TMW ²⁴ Andere MW		TMW	TMW Andere MW	
Staubförmige Emissionen	10	10*	20	30*	mg Nm-3
Corg	10	10*	10	10*/120 ²⁵	mg Nm ⁻³
СО	50	100*	_26		mg Nm ⁻³
NO _x	20027	200*	500	500*	mg Nm ⁻³
SO ₂	50	50*	50	50*/350 ²⁸	mg Nm ⁻³
HCl	10	10*	10	10*	mg Nm ⁻³
HF	0,5	0,7*	0,7	0,7*	mg Nm ⁻³
Dioxine und Furane		0,1***		0,1***	ng Nm ⁻³
Нg	0,03	0,05*	0,05	0,05* 0,03****	mg Nm ⁻³
Cd und Tl		0,05**		0,05**	mg Nm ⁻³
Σ (Sb, As, Pb, Cr, Co, Cu, Mn, Ni, V, Sn)		0,5**		0,5**	mg Nm ⁻³

²³ Da Ammoniak in wasserdampfhaltigen Gasen Korrosion hervorrufen kann, muss dieser soweit entfernt werden, "dass der dauerhafte Betrieb von Gasgeräten und gastechnischen Einrichtungen, normgerechter oder üblicher Konstruktion, gewährleistet wird." Dies gilt auch für Fest- und Flüssigbestandteile. [38]

²⁴ TMW - Tagesmittelwerte

²⁵ Bei Emissionen von organisch gebundenem Kohlenstoff, "der nachweislich nicht aus der Verbrennung von Abfällen entsteht". [20]

²⁶ Die Behörde hat keinen Grenzwert für CO festgelegt.

 $^{^{27}}$ Angegeben als NO2 bei einer Nennkapazität bis 2 $t_{\rm Abfall} \ h^{\text{-1}}$

²⁸ Bei Emissionen von H₂S, "*die nachweislich nicht aus der Verbrennung von Abfällen entsteht*". [20]

3 Einsatz verschiedener Brennstoffe in der DFB-Vergasung

In dem folgenden Kapitel wird die Sensitivität der DFB-Vergasung auf brennstoffspezifische Eigenschaften aufgezeigt. Weiters wird auf das Verhalten des DFB-Systems bei verschiedenen Betriebsbedingungen eingegangen. Dabei handelt es sich um Erkenntnisse, die im Zuge zahlreicher Versuche an der DFB-Anlage der TU Wien erlangt wurden. Schließlich werden die Daten der relevanten Versuche betrachtet und die daraus abgeleiteten Korrelationen sowie ein Prognosemodell vorgestellt.

3.1 Kriterien für den erfolgreichen Einsatz der Brennstoffe

3.1.1 Brennstofftechnische Eigenschaften

Die Immediatanalyse des Brennstoffs (siehe Kapitel 2.5.1.1) ermöglicht eine erste Bewertung hinsichtlich des erfolgreichen Einsatzes in der DFB-Vergasung.

Sowohl das im Brennstoff befindliche Wasser als auch die Asche stellen für die thermische Verwertung Ballaststoffe dar. [26] Im Vergasungsreaktor muss die Verdampfungsenthalpie des Wassers aufgebracht werden, weshalb dem System Wärme entzogen wird. Demzufolge wirkt sich ein hoher Wassergehalt des Brennstoffs negativ auf die Effizienz des Prozesses aus. Das Vortrocknen des Brennstoffes vor dem Einbringen in die Vergasungswirbelschicht wäre daher von Vorteil. [39] Der Aschegehalt und die Aschezusammensetzung ist für die Auslegung der Konversionsanlage ein wichtiger Aspekt, da es durch einen ungünstigen Asche-Schmelzbereich oder der Bildung von sogenannten Aschegerüsten zu technischen Problemen beim Betrieb kommen kann. [14, 23] Die Asche enthält anorganische Bestandteile, weshalb der Schmelzvorgang in einem von der Aschezusammensetzung abhängigen Temperaturbereich stattfindet. Die nicht brennbaren Verbindungen des Brennstoffs können beispielsweise als Oxide, Sulfate oder auch Phosphate auftreten. Bereits bei Sinterbeginn der Asche kann es zum Verkleben der Aschepartikel kommen. Aus Versinterung und Erweichung der Aschepartikel folgt unerwünschte Ascheagglomeration. Der Sinterbeginn der Brennstoffasche stellt daher einen limitierenden Faktor für die thermochemische Umwandlung dar, da das Temperaturniveau für diese nicht höher als jenes der Sintertemperatur gewählt werden darf. Das Temperaturniveau von 700 °C jedoch, sollte aufgrund der erhöhten Teerbildung nicht unterschritten werden. Ferner kann es zu Anbackungen und Ablagerungen der feinen Aschepartikel in Anlageneinbauten kommen. [14] Aschebestandteile wie Na₂O, K₂O oder V₂O₅ begünstigen Hochtemperaturkorrosion und sind deshalb unerwünschte Begleitelemente im Prozess. [26] Während die Ascheerweichungstemperatur mit höheren Calcium- und Magnesium-Gehalt ansteigt, wird bei Silizium in Kombination mit Kalium der gegenläufige Effekt beobachtet. Die Beimengung von Zusatzstoffen, beispielsweise dolomitischer Kalk oder alkalienbindende Additive wie Kaolin, kann zu einer Steigerung der Ascherweichungstemperatur um 100 bis zu 150 °C führen.

Bereits entrindetes Holz, als Vertreter der klassischen, holzartigen Biomasse, weist oft einen sehr geringen Aschegehalt, typischerweise unter 0,5 %, auf und ist daher im Gegensatz zu alternativen Brennstoffen nicht problematisch bei der thermischen Verwertung in einer Wirbelschicht. [14] Des Weiteren kann die Asche einen katalytischen Einfluss auf die Teerreformierung, siehe Dampfreformierung von KW in Tabelle 1 – Gl. 7, haben. Die katalytische Aktivität von Aschebestandteilen wie Kalium, Calcium und Eisen konnte bereits bei der Vergasung von Stroh und Klärschlamm, wegen des niedrigeren Teergehalts im Produktgas, beobachtet werden.

Der Gas-Feststoffkontakt zwischen dem Bettmaterial, den Aschepartikeln und der Gasphase muss aus diesem Grund während der thermochemischen Umwandlung intensiviert werden, um eine hohe Konversionsrate des Teers zu erzielen. [40]

Der Anteil der flüchtigen Bestandteile ist, wie bereits in Kapitel 2.2 erwähnt, maßgeblich für Brennstoffbedarf des Verbrennungsreaktors. Im Falle von Brennstoffen mit einem hohen Anteil an flüchtigen Bestandteilen, wie beispielsweise Kunststoffe, ist der Einsatz einer größeren Menge an Brennstoff in der Brennkammer (Zusatzbrennstoff, recycliertes Produktgas) notwendig. Mit einem steigenden Anteil der Kunststofffraktion im Brennstoff geht eine erhöhte Produktgasausbeute, ein erhöhter Teer- sowie CH4-Gehalt im Produktgas und höherer Heizwert des Produktgases einher. Versuche an der Pilotanlage (3. Generation) zur Co-Vergasung von Biomasse und Kunststoffen sowie zur Vergasung von Kunststoffmischungen haben gezeigt, dass Synergieeffekte auftreten. Beispielsweise nimmt Biomassekoks einen Einfluss auf die pyrolytische Zersetzung der Kunststoffe. Während dieser eine positive Auswirkung auf die pyrolytische Zersetzung von Polypropylen (PP) zeigt, wirkt sich die Präsenz des Biomassekokses negativ auf jene von Polystyrol (PS) aus. Weiters konnte bei der Co-Vergasung beobachtet werden, dass es durch den Biomassekoks zur reduzierten Teerbildung aus den Kunststoffen kam. [12]

3.1.2 Physikalisch-mechanische Eigenschaften

Neben den brennstofftechnischen Eigenschaften aus der Immediatanalyse, sind auch die physikalischmechanischen Eigenschaften des Brennstoffs für die Betrachtung in Hinsicht auf dessen Eignung für die DFB-Vergasung von Relevanz. Aufgrund der starken Wechselwirkungen zwischen den Kennwerten aus der Immediatanalyse und den physikalisch-mechanischen Eigenschaften, werden Wassergehalt, Heizwert, Aschegehalt und Asche-Schmelzverhalten oft ebenfalls zu den physikalisch-mechanischen Eigenschaften gezählt. Wie in Abbildung 17 ersichtlich, nimmt der Wassergehalt des Brennstoffs eine zentrale Stellung ein und nimmt auf vier weitere, wichtige Kennwerte Einfluss.



Abbildung 17: Wechselwirkungen zwischen den physikalischmechanischen Eigenschaften von festen, biogenen Brennstoffen [14]

Das mechanische Förder- und Beschickungssystem muss für den kontinuierlichen und störungsfreien Betrieb der Konversionsanlage auf die Fließ- und Transporteigenschaften des jeweiligen Brennstoffs ausgelegt beziehungsweise optimiert werden. Diese Eigenschaften werden primär von der Partikelgrößenverteilung des Brennstoffs (siehe Abbildung 17), aber auch von der Partikelform und dem Feinanteil beeinflusst. Feine Brennstoffpartikel können durch dessen geringe Abriebfestigkeit gebildet werden, weshalb es zur Verschiebung der Partikelgrößenverteilung in Richtung kleinerer Partikelgrößen kommt. Der erhöhte Feinanteil kann zur Entmischung beim Fördern des Brennstoffs führen und damit Einfluss auf die Homogenität ausüben. Die Abriebfestigkeit bezieht sich hier auf den *"Zusammenhalt von Brennstoffteilchen im Verbund eines hoch verdichteten Presslings*", wie beispielsweise Pellets. Die Neigung zur Brücken- oder Schachtbildung in Brennstoffbunkern ist ein weiterer, unerwünschter Effekt, der durch eine breite Partikelgrößenverteilung und einer unregelmäßigen Partikelform hervorgerufen wird. [14]

Grundsätzlich wird beim Ausfließen des Schüttguts²⁹ aus dem Silo oder Bunker zwischen Massen- und Kernfluss unterschieden, wobei beim Massenfluss ein gleichmäßiges Absinken des Bunkerinhalts über den gesamten Querschnitt und damit eine enge Verweilzeitverteilung der Brennstoffpartikel vorliegt. Beim Kernfluss kommt es zu einem Auslauf von einer oder mehreren Zonen des Schüttguts, während das umgebende Material im Silo oder Bunker verbleibt. Das Einstürzen der wandnahen, ruhenden Zonen kann für eine ungleichmäßige Brennstoffzufuhr verantwortlich sein. Als Abhilfe können Austragshilfen wie vibrierende Flächen, eingeblasene Luft oder Rüttler eingesetzt werden. [41] Diese Effekte haben eine breitere Verweilzeitverteilung im Brennstoffbunker sowie ein ungleichmäßige Brennstoffzusammensetzung der Entmischung nach Partikelgröße, -dichte oder -form zu Folge und kann zu Schwankungen der Betriebsbedingungen in der Konversionsanlage führen. Neben der Korngrößenverteilung und Partikelform, zeigt sich auch der Wassergehalt als direkter Einflussfaktor auf die Fließund Rieselfähigkeit des Brennstoffs.

Die Partikelform kann durch den Kornformfaktor, welcher in der bildanalytischen Bestimmung als Quotient aus dem Umfang eines flächengleichen Kreises und Umfang des Partikels ausgewertet wird, charakterisiert werden. Im Zuge von Testdurchführungen mit verschiedenen biogenen Brennstoffen wurde festgestellt, dass der Kornformfaktor den größten Einfluss auf die Brückenbildungsneigung hat. [14] Die Bestimmung der Fließeigenschaften von Schüttgütern, genauer die experimentelle Fließortbestimmung, erfolgt für gewöhnlich mit einer Schermesszelle. Dieses Verfahren eignet sich wegen der unregelmäßigen Korngrößenverteilung jedoch nicht für biogene Festbrennstoffe. [14, 41] Aus diesem Grund wurde ein experimentelles Prüfverfahren zur Untersuchung der Brückenbildungsneigung von biogenen Brennstoffen entwickelt. Dabei werden 1,5 m³ der Brennstoffprobe in einen quaderförmigen Behälter eingebracht und die reale Brückenbildung in der Messapparatur untersucht. Dies geschieht durch spaltförmig symmetrisches Öffnen in der Mitte des Behälterbodens unter Veränderung der Öffnungsweite des Bodenspaltes. Bei Erreichen einer bestimmten Öffnungsweite bildet sich ein durchgehender Fallschacht aus, das heißt die Brücke oberhalb der Öffnung bricht ein, und die gemessene Öffnungsweite wird als Maß für die Brückenbildungsneigung des Brennstoffs festgestellt. [14] Die Vorausberechnung der Auslaufgeometrie für ein gewünschtes Auslaufverhalten des Schüttguts ist auf Basis von Messreihen mit einer Schermesszelle möglich. Eine asymmetrische Geometrie und das exzentrische Befüllen des Silos oder Bunkers kann jedoch zu Abweichungen von den Berechnungen führen. Für die Berechnung der Auslaufgeometrie müssen einige Schüttgutkennwerte, wie beispielsweise der Wandreibungswinkel, bekannt sein, welche durch eine vorhergehende, aufwendige Berechnung aus den experimentellen Daten ermittelt werden müssen. Für grobkörniges, freifließendes Gut entsteht die Brücke durch Verkeilen einzelner Partikel (maximale

²⁹ Als Schüttgut wird ein Haufenwerk aus körnigen oder pulverigen Feststoffen bezeichnet. [41]

Partikelgröße x_{max}). Um dies zu vermeiden, sollten Abmessungen für Auslauföffnungen mindestens folgende Werte aufweisen [41]:

Durchmesser D bei rotationssymmetrischer Auslauföffnung	D	>	$10 * x_{max}$
Öffnungsbreite B bei ebener Auslauföffnung	В	>	$7 * x_{max}$

Des Weiteren hat die Partikelgröße des Brennstoffs einen großen Einfluss auf die thermochemische Umwandlung, da die Partikelgröße für den Wärme- und Stofftransport bei der Gas-Feststoffreaktion maßgeblich ist. Die Verweilzeitverteilung der Partikel ist abhängig von der Partikelgrößenverteilung, da beispielsweise kleinere Partikel durch schnelleres Erreichen der Schwebegeschwindigkeit leichter ausgetragen werden. Die Entgasung kleiner Partikel findet im Freeboard der Wirbelschicht statt, weshalb die Partikel praktisch keinen oder nur kurzzeitigen Kontakt mit dem katalytisch aktiven Bettmaterial hatten. Der limitierte Kontakt führt zu einer geringen Umsetzung der flüchtigen Bestandteile und damit zu einem erhöhten Teergehalt im Produktgas. Dies konnte anhand der Vergasung von Altholzfraktionen mit unterschiedlich hohen Feinanteil an der Pilotanlage (3. Generation) gezeigt werden. Die Erhöhung des gravimetrischen Teergehalts mit steigendem Anteil der Feinfraktion folgt einem linearen Trend, wohingegen bei GC/MS-Teer keine klare Tendenz feststellbar ist. Hinsichtlich der Produktgaszusammensetzung wurde mit steigendem Anteil der Feinfraktion ein erhöhter CH₄- und CO- sowie abnehmender H₂-Gehalt verzeichnet. Weiters erfordert der erhöhte Partikelaustrag mehr Zusatzbrennstoff für den Verbrennungsreaktor, da folglich weniger Koks verfügbar ist. [12]

3.1.3 Chemische Zusammensetzung

In Bezug auf die Schadstoffbildung und der damit verbundenen Gasreinigung ist die chemische Zusammensetzung von großer Bedeutung. Um eine realistische Abschätzung für die Schadstoffgehalte im Produkt- und Abgas zu erlangen, ist es von Vorteil, den Ursprung der Schadstoffe und die Reaktionstechnik zu kennen.

Die pyrolytische Zersetzung des Brennstoffs kann grundsätzlich in zwei Teilschritte unterteilt werden. In der ersten Stufe der Entgasung erfolgt die Teerbildung aus schwachen aliphatischen³⁰ Verbindungen. Infolgedessen findet während der zweiten Stufe die Bildung der gasförmigen Zersetzungsprodukte wie CH₄, Methylgruppen, CO (aus Ethern), Wasserstoff (aus Ringkondensation) und NH₃ beziehungsweise HCN (aus Ringstrukturen) statt. [42]

Der im Koks verbleibende Stickstoffanteil wird ebenso als NH_3 und HCN freigesetzt und folglich im Zuge verschiedener Oxidationsreaktionen mit unterschiedlichen Radikalen zu den Verbrennungsprodukten wie NO_x und N_2O umgesetzt. Diese Verbrennungsprodukte können durch katalytischen Einfluss und/oder mit unterschiedlichen Radikalen wiederum zu N_2 umgesetzt werden. Das Temperaturniveau darf jedoch nicht zu hoch sein, damit die thermische (> 1200 °C) und prompte (> 1500 °C) Stickoxidbildung aus N_2 vermieden wird. Das Reaktionsnetzwerk für den im Brennstoff befindlichen Stickstoff ist in Abbildung 18 dargestellt. [43]

In der reduzierenden Atmosphäre der Vergasung kommt es zur Bildung von N₂, NH₃ und HCN. Aus den Daten von Versuchen an der Pilotanlage 3. Generation hat sich eine NH₃-Konversionsrate des Brennstoffstickstoffs von 50-85 % ergeben. Diese ist von der Dampfmenge zur Fluidisierung des Vergasungsreaktors, der Verweilzeit des

³⁰ Unter aliphatische Verbindungen werden organische Verbindungen, die kein aromatisches Ringsystem enthalten, verstanden. [82]

Produktgases und der jeweiligen funktionellen Gruppe, in welcher der Stickstoff gebunden ist, abhängig. Bei einer Temperatur von 850 °C kommt es zur Reduktion von NH₃ zu N₂. Da die gemessene NH₃-Konzentration höher als die NH₃-Konzentration im Reaktionsgleichgewicht war, wurde vermutet, dass es zur kinetischen Hemmung der NH₃-Reduktion kam. Die erhöhte NH₃-Konversionsrate von 85 % beim Einsatz von Altholz wurde auf den hohen Feinanteil zurückgeführt. Feine Partikel werden, wie bereits in Kapitel 3.1.2 beschrieben, rasch aus der Wirbelschicht ausgetragen und entgasen in kälteren Bereichen des Reaktors. Bei den vorherrschenden Temperaturen im oberen Teil des Vergasungsreaktors kam es zur Reduktion von NH₃ zu N₂. Dies betrifft nur für die Bauart der alten Pilotanlage (3. Generation), zumal die Entgasungs- und Zersetzungsprodukte der feinen Partikel in der neuartigen Pilotanlage (4. Generation) den oberen Vergasungsreaktor, welcher im Vergleich zum unteren Vergasungsreaktor eine höhere Betriebstemperatur aufweist, passieren müssen. [12]



Abbildung 18: Reaktionsnetzwerk für den im Brennstoff befindlichen Stickstoff (entnommen aus [43])

Wie in bereits in Kapitel 2.3.2 erläutert, werden Stickoxide bei der SNCR zu N_2 und H_2O durch Eindüsung von Harnstoff in der Nachbrennkammer reduziert. Der Pfad für die Reduktion von Stickoxiden zu N_2 über die SNCR ist in Abbildung 18 anhand des Radikals NH_2 zu erkennen.

Die volatilen Schwefelanteile entstehen aus der vollständigen Umsetzung der folgenden Schwefelverbindungen: Pyrit, Mercaptane, aliphatische Sulfide und Disulfide. Der im Brennstoff gebundene Schwefel geht bei der thermochemischen Umwandlung überwiegend als H₂S in die Gasphase über. [42, 43] Dabei nimmt H₂S einen Anteil von etwa 80-95 % des im Gas befindlichen Schwefels ein. Andere Schwefelkomponenten wie COS, CS₂, Mercaptanschwefel (R-SH) oder SO₂ können ebenfalls Bestandteile des Gases sein. Bei der Verbrennung werden die reduzierten Verbindungen, überwiegend H₂S, zu SO₂ oder SO₃ oxidiert. Da die Asche von biogenen Brennstoffen stark alkalisch sein kann [26], zeigt sich in Anwesenheit von anorganischen Bestandteilen wie Alkali- und Erdalkalimetalle ein hohes Einbindungsvermögen für SO₂. Insbesondere begünstigen hohe Calciumanteile in der Asche die Schwefeleinbindung. [42] Die H₂S-Konzentration im Produktgas wird daher von dem Aschegehalt und der Aschezusammensetzung beeinflusst.

Während aus dem im Brennstoff befindlichen Chlor bei der Vergasung Verbindungen wie HCl, Alkalichloride (NaCl, KCl) und im geringen Ausmaß auch Cl₂ und Dioxine/Furane (PCDD/PCDF) gebildet werden, entstehen

im Verbrennungsreaktor aus den im Koks gebundenen Chloriden überwiegend Alkali- und Erdalkalichloride. Diese können an feinen Flugaschepartikeln oder Wänden der Einbauten auskondensieren und Korrosion hervorrufen. Ungefähr 50-90 % des Brennstoffchlors verbleibt in der Asche, wobei der Chloranteil in der Asche vom Aschegehalt und der Temperatur beim Ascheaustrag abhängt. Bei der Vergasung von Altholz in der 3. Generation der Pilotanlage wurde festgestellt, dass ungefähr 94 % des Brennstoffchlors in der Asche eingebunden wurde. [12]

Dioxine sind hochgiftige Verbindungen [42], die im Rahmen von homogenen und heterogenen Reaktionen entstehen können. Letztere sind durch Kondensation und Reaktion auf der Oberfläche von Flugaschepartikeln oder alternativ durch die De-novo-Synthese möglich. [44] Bei der De-novo-Synthese erfolgt die Dioxin- und Furanbildung aus unvollständig verbrannten Kohlenstoffverbindungen sowie Chlor oder chorhaltige Substanzen. Partikelförmige oder an Staubpartikeln abgelagerte Schwermetalle (besonders Kupfer) haben einen katalytischen Einfluss auf die De-novo-Synthese, Gaskomponenten wie NH₃ und H₂S hingegen vermindern die Wirkung von Schwermetallen als Katalysator. [11] Die Präsenz von Schwefel kann die katalytische Wirkung von Kupferoxiden beeinflussen und inaktivieren. Das Cl/S-Verhältnis im Brennstoff (bei Kohlen-Brennstoffen) weist auf eine reduzierende Wirkung für die PCDD/PCDF-Bildung hin. Liegt dieses unterhalb von 1 kommt es zu einer niedrigeren Chlorierung von Aromaten, bei Unterschreitung eines Cl/S-Verhältnisses von 0,1 wird die PCDD/PCDF-Bildung gänzlich unterbunden. [45]

Die Dioxinbildung findet bevorzugt bei einem Temperaturniveau von zirka 600 °C und die Furanbildung bei 700 °C statt. Hohe Temperaturen ab 850 °C unterdrücken die Bildung dieser toxischen Verbindungen. Neben der Temperatur und Präsenz von Katalysatoren, sind auch weitere Einflussfaktoren für die Dioxin- und Furanbildung, wie die Sauerstoffkonzentration, der Wassergehalt, andere Halogene sowie die Verweilzeit des Gases, von Bedeutung. Die Sauerstoffatmosphäre hat gegenüber der Anwesenheit eines Katalysators (beispielsweise Fe, Cu, Zn und Pb) einen größeren Einfluss auf die Reaktion. CuCl₂ weist die höchste katalytische Aktivität auf und begünstigt auch bei geringer Sauerstoffkonzentration die PCDD/PCDF-Bildung. Dioxinemissionen, aufgrund der Präsenz von Kupfer, konnten bereits durch die Zugabe von (NH₄)₂SO₄ oder (NH₄)₂SO₃ um 98-99 % reduziert werden. Als Sekundärmaßnahme kann, wie bereits in Kapitel 2.3.2 beschrieben, die Adsorption von PCDD/PCDF durch Ca-basierte Materialien erfolgen. Der Einfluss verschiedener Parameter auf die Dioxin- und Furanbildung wurde bei der Dampfvergasung von ASR31 in einem dem DFB-System ähnlichen Aufbau einer 3-4 MWth Anlage untersucht, wobei hier das Produktgas aus dem Vergasungsreaktor wiederum dem Verbrennungsreaktor zugeführt wird. Die PCDD/PCDF-Konzentration wurde an drei Punkten gemessen: Produktgasaustritt aus dem Vergasungsreaktor (0,17 ng kg⁻¹_{ASR}), Abgasaustritt nach Abkühlung von 900 °C auf 155 °C (3,44 ng kg⁻¹_{ASR}) und Abgasaustritt nach Passieren des Adsorbers (0,34 ng kg⁻¹ASR). Der Vergleich der Konzentrationen an den drei verschiedenen Messpunkten zeigt den signifikanten Einfluss der Temperaturerniedrigung auf die Dioxin- und Furanbildung. Die PCDD/PCDF-Konzentration beim Abgasaustritt nach Abkühlung lag bei direkter Verbrennung des ASR bei 0,27 ng Nm⁻³tr, wohingegen bei vorgeschalteter Vergasung des ASR und anschließender Verbrennung des Produktgases die PCDD/PCDF-Konzentration einen deutlich niedrigeren Wert von 0,11 ng Nm⁻³tr aufwies. Dies lässt sich auf den geringen Sauerstoffüberschuss im Falle einer homogenen Verbrennung zurückführen. [44]

³¹ ASR – Automotive Shredder Residue ist die letzte Fraktion im Auto-Recyclingprozess, bestehend aus Kunststoffen, Textilien, Gummi, Glas, Holz, Metallen und Schäumen.

3.1.4 Variation der Betriebsbedingungen in der DFB-Vergasung

Wie bereits in Kapitel 2.2 erläutert, ist der fixe-Kohlenstoffanteil im Brennstoff bestimmend für die nach der Entgasung verbleibende Koksmenge. Diese wird zusammen mit dem Bettmaterial über den unteren Siphon des DFB-Systems dem Verbrennungsreaktor rückgeführt und der Koks anschließend verbrannt. Die Temperatur im Vergasungsreaktor kann so mit dem fixen-Kohlenstoffgehalt des Brennstoffs oder auch durch Rückführung des Produktgases in den Verbrennungsreaktor geregelt werden. [16, 23] Zugleich wird die notwendige Menge an Zusatzbrennstoff für die Wärmebereitstellung reduziert. Die Reformierung von unerwünschten Komponenten wie Flugkoks oder Teer wird durch eine erhöhte Temperatur im Vergasungsreaktor begünstigt. [23]

Durch die Variation der Bettmaterialzusammensetzung kann Einfluss auf die katalytische Aktivität des Bettmaterials oder den selektiven Gastransport zwischen dem Vergasungs- und Verbrennungsreaktor genommen werden. Beispielsweise kann durch hohe Kalkanteile im Bettmaterial oder gar reinem Kalk als Bettmaterial, im Rahmen eines SER-Betriebs der Pilotanlage, ein selektiver Transport des CO₂ aus dem Produktgas in das Abgas erfolgen. Das Bettmaterial wird dem Vergasungsreaktor aufgeheizt als gebrannter Kalk (CaO) zugeführt und verlässt diesen nach Einbindung des CO₂ wiederum als Calciumcarbonat (CaCO₃). Das Bettmaterial wird im Verbrennungsreaktor unter Abgabe des eingebundenen CO₂ kalziniert, wodurch ein CO₂-reiches Abgas und H₂-reiches Produktgas hergestellt werden kann. Der Gleichgewichtsverschiebung in der Wassergas-Shift-Reaktion (siehe Tabelle 1 – Gl. 5) nach dem Prinzip von Le Chatelier und Braun zufolge, kommt es so zur verstärkten H₂- und CO₂-Bildung. Die endotherme Reaktion findet in einem Temperaturbereich von 830-930 °C statt, während das Temperaturintervall im Vergasungsreaktor auf 600-700 °C abgesenkt werden muss (im Vergleich zu dem konventionellen Betrieb der DFB-Vergasung). Aufgrund der niedrigen Temperatur im Vergasungsreaktor wird mehr Koks in den Verbrennungsreaktor transportiert, wodurch die Menge an benötigten Zusatzbrennstoff weitgehend reduziert wird. Ein verstärkter Austrag der hohen Koksmenge wird durch Erhöhung der Verweilzeit im Verbrennungsreaktor vermieden. [23, 24]

Der großtechnische Betrieb der DFB-Vergasung wird typischerweise mit Olivin als Bettmaterial durchgeführt. Im Langzeit-Betrieb werden Calcium-reiche Schichten, welche die katalytische Aktivität verbessern, auf der Oberfläche der Olivinpartikel gebildet. Diese entstehen durch Wechselwirkungen zwischen den Olivinpartikeln und der Asche der eingesetzten Biomasse und sind besonders wichtig für die Reduzierung des Teergehalts im Produktgas. Die Anschaffung von Olivin ist in Relation zu anderen Bettmaterialien teurer, weshalb Quarz, Feldspat, Kalk oder Mischungen dieser Materialien mit/ohne Olivin als alternative Bettmaterialien getestet wurden. Hinsichtlich der Zumischung von Kalk als Bettmaterial, konnte bereits eine signifikante Abnahme des Teergehalts im Produktgas festgestellt werden. [23]

Weitere wichtige Parameter als Einflussfaktoren auf die ablaufenden Reaktionen sind die Druckverhältnisse sowie die Art und Menge des Vergasungsmittels, das dem Vergasungsreaktor zugeführt wird. [45]

3.2 Vergasungstechnische Kennwerte

Im Rahmen der Prozesssimulation mit IPSEpro werden einige Kennwerte, die große Relevanz für die Betriebsweise des Vergasungsreaktors haben, berechnet. Diese werden auch vergasungstechnische Kennwerte genannt und in weiterer Folge aufgelistet und näher erläutert.

φ_{SF} stellt den Quotienten aus der Menge an Gesamtdampf, welcher aus der Fluidisierung und dem Wassergehalt des Brennstoffs hervorgeht, und der zugeführten, trockenen und aschefreien Brennstoffmenge dar. Dieser Parameter wird auch als Dampf-zu-Brennstoff Verhältnis bezeichnet (Gl. 12). Das Dampf-zu-Kohlenstoff Verhältnis hingegen bezieht die gesamte Dampfmenge auf den Kohlenstoffanteil der zugeführten Brennstoffmenge (Gl. 13). Dadurch können verschiedene Brennstoffarten in Hinsicht auf deren Kohlenstoffanteil verglichen werden. Die Produktgasausbeute PGY³² wird als Verhältnis des trockenen Produktgasvolumenstroms zu der dem Vergasungsreaktor zugeführten, trockenen und aschefreien Brennstoffmenge angegeben (Gl. 14). X_{H2O} ist hier die brennstoffbezogene Wasserkonversionsrate und setzt die im Vergasungsvorgang umgesetzte Wassermenge in Relation zu der dem Vergasungsreaktor zugeführten Brennstoffmenge (Gl. 15). Der Kaltgaswirkungsgrad η_{CG} ist der Quotient aus der chemischen Energie des Produktgases und jener des in den Vergasungsreaktor zugeführten Brennstoffs (Gl. 16). Dieser wird auf Grundlage des Heizwertes des Produktgases und Brennstoffs berechnet. Der Gesamtwirkungsgrad $\eta_{CG,o}$ ermöglicht den Vergleich von Anlagen unterschiedlicher Größe bezüglich der Brennstoffwärmeleistung (Gl. 17). Es wird sowohl der Wärmeverlust durch Strahlung als auch die in den Verbrennungsreaktor zugeführte Menge an Zusatzbrennstoff berücksichtigt. Während der Wärmeverlust Qloss bei Anlagen im großtechnischen Maßstab in einem Bereich von 2-3 % der Brennstoffwärmeleistung beträgt, wird beim Betrieb der Pilotanlage ein Anteil von ungefähr 20-30 % der chemischen Energie des Brennstoffs verzeichnet. [23]

$$\varphi_{SF} = \frac{\dot{m}_{steam,GR} + \dot{m}_{H2O,GR,fuel}}{\dot{m}_{GR,fuel,tr,af}}$$
Gl. 12

$$\varphi_{SC} = \frac{\dot{m}_{steam,GR} + \dot{m}_{H2O,GR,fuel}}{\dot{m}_{C,GR,fuel}}$$
Gl. 13

$$PGY = \frac{\dot{V}_{PG}}{\dot{m}_{GR,fuel,tr,af}}$$
Gl. 14

$$X_{H2O} = \frac{\dot{m}_{steam,GR} + \dot{m}_{H2O,GR,fuel} - \dot{m}_{H2O,PG}}{\dot{m}_{GR,fuel,tr,af}}$$
Gl. 15

$$\eta_{CG} = \frac{\dot{V}_{PG} * LHV_{PG}}{\dot{m}_{GR,fuel} * LHV_{GR,fuel}} * 100$$
Gl. 16

$$\eta_{CG,o} = \frac{\dot{V}_{PG} * LHV_{PG}}{\dot{m}_{GR,fuel} * LHV_{GR,fuel} + \dot{m}_{CR,fuel} * LHV_{CR,fuel} - \dot{Q}_{loss}} * 100$$
Gl. 17

³² PGY – Product Gas Yield

3.3 Vergasung verschiedener Brennstoffe in der DFB-Pilotanlage

Eingangs wurden die Daten der Versuche, die auf der neuartigen Pilotanlage der TU Wien durchgeführt worden sind, in einer Excel-Datenbank aufgenommen. Diese Datenbank umfasst 87 Messpunkte und 200 Parameter. Dabei wurden vorerst auch SER-Messpunkte und Messpunkte aus Vergasungsversuchen mit CO₂ als Vergasungsmittel in die Datenbank aufgenommen.

Diese Datenbank stellt die Grundlage für die Ableitung von Zusammenhängen zwischen den spezifischen Eigenschaften des Brennstoffs, Daten aus der Immediat- und Elementaranalyse betreffend, und verschiedenen Parametern dar. Nachdem sich der Aufwand für das Auffinden solcher Korrelationen in Excel als zu groß erwiesen hat, wurde dies unter Zuhilfenahme eines mit der Programmiersprache Python geschrieben Programms realisiert. Dafür wurde zuerst die Datenbank auf das erforderliche Format gebracht und zunächst als DataFrame eingelesen. Die Gegenüberstellung eines jeden Parameters zum jeweiligen anderen in Diagrammen wurde mit dem Befehl PairGrid() implementiert. Der ausgegebene Plot wurde anschließend in einer PNG-Datei abgespeichert. Das Eruieren verschiedener Zusammenhänge erforderte trotzdem die manuelle Durchsicht der Diagramme, weshalb zusätzlich für das automatisierte Auffinden von Korrelationen der Befehl corr() implementiert wurde. Dies sollte die Detektion von Zusammenhängen mit hohem Bestimmtheitsmaß (R²) ermöglichen, wobei für diese Regressionsanalyse die Wahl eines Korrelationskoeffizienten erforderlich war. Da der Pearson-Korrelationskoeffizient die Annahme benötigt, dass ein linearer Zusammenhang zwischen den Parametern besteht, und empfindlich gegenüber Ausreißern ist, wurde der Rangkorrelationskoeffizient für die Betrachtung der experimentellen Daten gewählt. Der Kendall-Rangkorrelationskoeffizient erfordert im Kontrast zum Spearman'schen Rangkorrelationskoeffizienten nicht die Normalverteilung der Daten und ist für kleine Stichprobengrößen besser geeignet. [46] Aus diesem Grund wurde der Kendall-Rangkorrelationskoeffizient für die Berechnung der Korrelationen angewandt. Die berechneten Werte wurden als Heatmap zur farblichen Hinterlegung verschiedener Wertebereiche des Bestimmtheitsmaßes ausgegeben, damit Zusammenhänge mit einem hohen Bestimmtheitsmaß schnell auffindbar sind, sowie auch in einer XLS-Datei gespeichert. Aufgrund der niedrigen Werte der Bestimmtheitsmaße (Ausreißer müssen manuell für die entsprechenden Zusammenhänge exkludiert werden), war dennoch die manuelle Durchsicht der ausgegebenen Diagramme notwendig.

Die Miteinbeziehung der Daten aus SER-Messpunkten und Messpunkten aus Vergasungsversuchen mit CO₂ als Vergasungsmittel hat sich als nicht sinnvoll erwiesen, weshalb für diese Auswertung nur der konventionelle Betrieb der DFB-Vergasung betrachtet wurde. Des Weiteren wurde die Anzahl der Parameter zur Verringerung der Datenmenge auf 113 begrenzt. Demzufolge ergab sich für die Python-Auswertung eine 113 x 113 Matrix. Das Skript für die Python-Auswertung und die ausgegebene Matrix ist im Anhang aufzufinden. Es handelt sich bei dieser Vorgehensweise um eine Methode zur schnellen Vorselektion verschiedener, möglicher Zusammenhänge. Korrelationen, die im Zuge der Datenanalyse eruiert wurden, sind in den folgenden Diagrammen dargestellt und dienen zur Abschätzung der Produktgaszusammensetzung auf Basis der Daten aus der Brennstoffanalyse. Für die Auswertung wurden sowohl gemessene als auch mit IPSEpro validierte Daten verwendet.

3.3.1 Korrelationen für Schadstoffemissionen und Teer

Die Abhängigkeiten der Schadstoffemissionen im Produktgas (NH₃, H₂S, HCl), angegeben in ppm_{tr}, von dem jeweiligen Ursprung im Brennstoff (N, S, Cl), angegeben in mass.-%_{tr}, sind für die Messpunkte der Versuche in der Pilotanlage 3. und 4. Generation durch unterschiedliche Markierung und Farbe gekennzeichnet. Im Kontrast zu den Versuchen an der Pilotanlage der 4. Generation, wurden die Versuche an Pilotanlage 3. Generation stets auf gleichem Temperaturniveau sowie bei gleichbleibender Bettmaterialzusammensetzung (100 % Olivin) durchgeführt.

Wie in Abbildung 19 ersichtlich, zeigt sich eine geringfügige Abweichung der Regressionsgerade aus den Messpunkten der Pilotanlage 3. Generation im Vergleich zu jener aus den Messpunkten der Pilotanlage 4. Generation. Die höhere Temperatur im oberen Vergasungsreaktor sowie erhöhte Verweilzeit durch die Ausbildung einzelner Wirbelschichten nach jeder Querschnittverengung stellen begünstigte Betriebsbedingungen hinsichtlich der NH3-Reduktion dar (siehe Kapitel 3.1.3), weshalb für die Messpunkte der Pilotanlage 4. Generation eine geringere Steigung der Regressionsgerade zu erwarten wäre. Aufgrund der variierenden Betriebsparameter, wie beispielsweise das Dampf-Brennstoff Verhältnis und die Vergasungstemperatur, für die einzelnen Messpunkte der Pilotanlage kann es durchaus zur Beeinflussung der NH3-Reduktion kommen. Dies könnte ein Grund für die geringfügige Abweichung der Steigung der Regressionsgerade für die Messpunkte der Pilotanlage 3. und 4. Generation sein. Die Bestimmtheitsmaße der Regressionsgeraden unterscheiden sich für die Messpunkte der Pilotanlage 3. Generation (R²=0,9459) und 4. Generation (R²=0,9937) marginal voneinander. Der blau-transparente Bereich deckt die Streuung der Werte bei Betrachtung der Messpunkte von beiden Pilotanlagen ab. Sofern eine Regressionsgerade für alle Messpunkte betrachtet wird, zeigt sich ein hohes Bestimmtheitsmaß von 0,9484 (siehe Anhang - Abbildung 41). Für eine realistische Abschätzung des NH3-Gehalts im Produktgas auf Basis des Brennstoffstickstoffs wäre die Berechnung eines Toleranzbereichs anhand der Grenzen der blau-transparenten Fläche von Vorteil.



Abbildung 19: Lineare Korrelation des Brennstoff-N und der NH3-Konzentration im Produktgas

Ebenso lässt sich in Abbildung 20 ein Unterschied angesichts der H₂S-Messpunkte aus den Versuchen an der Pilotanlage 3. und 4. Generation erkennen. Die Steigung der Regressionsgerade aus den Messpunkten der Pilotanlage 3. Generation ist um einen Faktor von etwa 1,7 höher im Vergleich zu jener aus den Messpunkten der 4. Generation. Darüber hinaus ist der blau-transparente Toleranzbereich wegen der stärkeren Streuung der Werte größer. Bei Betrachtung der Regressionsgerade aus allen Messpunkten ergibt sich ein geringfügig niedrigeres Bestimmtheitsmaß von 0,9075 (siehe Anhang – Abbildung 42) in Relation zu den Regressionsgerade für die Messpunkte der Pilotanlage 3. Generation (R^2 =0,986). Jenes der Messpunkte der Pilotanlage 4. Generation liegt bei R^2 =0,8932. Die niedrigere Konversionsrate von Brennstoff-S zu H₂S im Produktgas aus der Pilotanlage 4. Generation ist auf den Kalk-Anteil im Bettmaterial sowie intensivierten Gas-Feststoffkontakt im oberen Vergasungsreaktor zurückzuführen. Dieser begünstigt die Adsorption von H₂S im Kalk-Anteil des Bettmaterials und den Erdalkali- beziehungsweise Alkalimetallen aus der Brennstoffasche. Wiederum sind die variierenden Betriebsparameter, vor allem Bettmaterialzusammensetzung aber auch Vergasungstemperatur, in Bezug auf die Streuung der Werte für die Messpunkte der Pilotanlage 4. Generation zu den Vergasungstemperatur, in Bezug auf die



Abbildung 20: Lineare Korrelation des Brennstoff-S und der H2S-Konzentration im Produktgas

Der Unterschied zwischen den Steigungen der Regressionsgeraden für die HCl-Messpunkte der Pilotanlage 3. und 4. Generation ist in Abbildung 21 erkennbar. Die Steigung der Regressionsgerade für die Messpunkte Pilotanlage 3. Generation ist um den Faktor von ungefähr 4,3 höher als jene für Pilotanlage 4. Generation. Wie es auch bei H₂S der Fall ist, kommt es zur begünstigten Adsorption von HCl aus dem Produktgas im Kalk-Anteil des Bettmaterials. Weiters führt auch hier der intensivierte Gas-Feststoffkontakt zur verstärkten Anreicherung der Erdalkali- und Alkalimetalle mit dem HCl aus dem Produktgas. Die Korrelation für den Brennstoff-Cl und das HCl im Produktgas ist jedoch für die Pilotanlage 4. Generation wegen der geringen Anzahl an Messpunkten als kritisch zu betrachten. Es sind zwei weitere Messpunkte, welche einen deutlich niedrigeren HCl-Gehalt, als laut Korrelation zu erwarten wäre, enthalten, für die Pilotanlage 3. Generation vorhanden. Diese weisen in Relation zu den anderen getesteten Brennstoffen einen hohen Kalium-Anteil in der Brennstoffasche auf, weshalb es vermutlich zu einem geringeren HCl-Gehalt durch Einbindung in der Brennstoffasche gekommen ist. Die Streuung der Werte um die Regressionsgerade für die Messpunkte der Pilotanlage 3. Generation zeigt sich anhand des niedrigeren Bestimmtheitsmaßes von 0,8178.



Abbildung 21: Lineare Korrelation des Brennstoff-Cl und der HCl-Konzentration im Produktgas

Neben den zuvor gennannten Schadstoffemissionen ist als unerwünschte Komponente im Produktgas auch der Teergehalt zu berücksichtigen. Die Auswertung der Vergasungsversuche von Brennstoffen mit unterschiedlich hohen Anteilen an flüchtigen Bestandteilen ergab, dass mit steigendem Anteil ein Produktgas mit höherem Heizwert (höherer Gehalt an CH₄ und höheren Kohlenwasserstoffen beziehungsweise niedrigerer H₂-Gehalt) und Teergehalt aus der Vergasung hervorging. Dabei wurde für einen Brennstoff mit nahezu 100 % Anteil an flüchtigen Bestandteilen PE herangezogen, sowie Koks repräsentativ für einen Brennstoff mit dem niedrigsten Anteil an flüchtigen Bestandteilen (4 %) eingesetzt. S. Kern gelang anhand dieser Beobachtung zur Erkenntnis, dass der Anteil der flüchtigen Bestandteile im Brennstoff maßgebend für die Teerbildung ist. Weiters konnte der Zusammenhang von Produktgaskomponenten wie CH₄ und C₂H₄ mit dem Teergehalt bei den Versuchen an der alten Pilotanlage beobachtet werden. [47]

Die Datenanalyse für die Messpunkte der Pilotanlage 4. Generation hinsichtlich der flüchtigen Bestandteile und Teergehalte ergab jedoch keine eindeutige Korrelation. In Anbetracht der variierenden Betriebsparameter, wie die Bettmaterialzusammensetzung und Vergasungstemperatur, kann hier keine Aussage über den zuvor genannten Zusammenhang getroffen werden. Die Betrachtung der Teermessungen der Pilotanlage 3. Generation zeigt eine steigende Tendenz des Teergehalts mit dem Anteil der flüchtigen Bestandteile, wobei auch hier keine eindeutige Korrelation erkennbar ist. Bei Betrachtung der CH₄-Konzentration zeigt sich ebenso eine steigende Tendenz für den Gehalt an gravimetrischen und GC/MS-Teer, wobei die Regression für den gravimetrischen Teer durch eine lineare Funktion und jene für den GC/MS-Teer durch eine exponentielle Funktion möglich ist. In Abbildung 22 und Abbildung 23 sind die Zusammenhänge der C₂H₂- und C₂H₄-Konzentration (in vol.- $%_{tr}$) zu dem Gehalt an gravimetrischen und GC/MS-Teer (in g Nm⁻³) im Produktgas ersichtlich. In beiden Diagrammen zeigt sich ein erhöhter Teergehalt bei steigender C₂H₂- beziehungsweise C₂H₄-Konzentration. Das Bestimmtheitsmaß der Regressionsgerade für die C₂H₂-Konzentration ist sowohl für den gravimetrischen Teer (R²=0,9721) als auch für den GC/MS-Teer (R²=0,9652) hoch.



Abbildung 22: Lineare Korrelation der C_2H_2 -Konzentration und Teergehalts im Produktgas (Pilotanlage 4. Generation)

Die Korrelation zwischen C₂H₄-Konzentration und dem Teergehalt ist, wie in Abbildung 23 ersichtlich, exponentiell. Im Vergleich zu Abbildung 22 streuen die Werte der Messpunkte für den gravimetrischen und GC/MS-Teer stärker, jedoch ist zu beachten, dass deutlich mehr Messpunkte vorhanden sind. Wiederum können die variierenden Betriebsbedingungen bei der Vielzahl von Messpunkten für die Streuung der Werte ausschlaggebend sein. In Abbildung 23 wurden 45 Teermessungen betrachtet, wohingegen in Abbildung 22 nur 8 Messpunkte vorhanden sind.

Die Kenntnis der Zusammenhänge aus Abbildung 22 und Abbildung 23 ist jedenfalls für den Betrieb der Anlage von Vorteil, da diese Produktgaskomponenten ein Indikator für den Teergehalt sind. Somit kann bei der Messung dieser Gaskomponenten rasch eine Aussage hinsichtlich des Teergehalts getroffen werden. [48]



Abbildung 23: Exponentielle Korrelation der C_2H_4 -Konzentration und Teergehalts im Produktgas (Pilotanlage 4. Generation)

3.3.2 Entwicklung eines Prognosemodells für Produktgashauptkomponenten

Überdies wurde ein Prognosemodell für die Konzentrationen der Produktgashauptkomponenten (H₂, CO, CO₂ und CH₄) basierend auf den vorhandenen Daten aus Versuchen an der Pilotanlage 4. Generation entwickelt. Die notwendigen Eingangsparameter für das Prognosemodell folgen aus der Elementaranalyse des Brennstoffs. Da einige Brennstoffe öfters in der Pilotanlage getestet worden sind und die elementare Zusammensetzung eine gleichbleibende Größe ist, wurde je Brennstoff ein repräsentativer Messpunkt bei möglichst gleichbleibenden Betriebsparametern gewählt (Versuchsdaten für den Brennstoff Klärschlamm wurden nicht betrachtet). Dafür wurde eine möglichst ähnliche Bettmaterialzusammensetzung als Auswahlkriterium für die jeweiligen Messpunkte festgelegt. Weiters wurden die Korrelationen des Prognosemodells für biogene und fossile Brennstoffe separat betrachtet. Während sich für biogene Brennstoffe vorwiegend Punktwolken im Diagramm ergeben, zeigen sich bei fossilen Brennstoffen, Kunststoff- und Abfallfraktionen (Lignit, Lignit & MWF, SLF, MWF und Rejekt) eindeutige Funktionen. Die Betrachtung der Korrelationen aus den Messpunkten der Vergasung von biogenen und fossilen Brennstoffen sind in den folgenden Abbildungen dargestellt. Im Folgenden ist die Vorgehensweise für die Berechnung der Konzentrationen der Produktgashauptkomponenten aufgelistet:

- H₂/CO-Verhältnis im Produktgas aus Korrelation mit Brennstoff-H
- CH₄-Gehalt im Produktgas aus Korrelation mit Brennstoff-H
- CO-Gehalt im Produktgas aus Korrelation mit CH₄-Gehalt
- CO₂-Gehalt im Produktgas aus Korrelation mit Brennstoff-C
- H₂-Gehalt im Produktgas aus des zuvor errechneten H₂/CO-Verhältnisses und CO-Gehalts

Die Analyse der Daten aus den Versuchen an der Pilotanlage 4. Generation hat ergeben, dass die Korrelationen apparatespezifisch sind. Aus diesem Grund ist es nicht möglich anhand dieser Korrelationen Aussagen über die in anderen Anlagen, wie beispielsweise der Pilotanlage 3. Generation oder DFB-Anlage in Oberwart, resultierenden Produktgaszusammensetzungen zu treffen. Die Abschätzung der Produktgashauptkomponenten durch das Modell für die alternativen Brennstoffe, die künftig in der DFB-Anlage Oberwart eingesetzt werden sollen, dient jedoch zum Vergleich mit den Versuchsdaten aus der Vergasung des Rejekts. Somit werden die Daten aus dem Versuch mit dem Rejekt als Referenzdaten betrachtet. Auf diese Art und Weise kann eine adäquate Bewertung hinsichtlich der Produktgasqualität erfolgen.

In Abbildung 24 ist der Zusammenhang zwischen dem Brennstoff-H in mass.- $\%_{af}$ und dem H₂/CO-Verhältnis im Produktgas dargestellt. Während sich die Messpunkte für biogene Brennstoffe in einem Bereich von 5-5,8 mass.- $\%_{af}$ Brennstoff-H ansammeln, stammen die vier außenliegenden Messpunkte aus der Vergasung von fossilen Brennstoffen, Kunststoff- und Abfallfraktionen. Aufgrund der Streuung um die Regressionsgerade (R²=0,8438), ist mit absoluten Abweichungen des H₂/CO-Verhältnisses von maximal 0,47 (5,38/2,74) zu rechnen. Beispielsweise errechnet sich der relative Fehler für Lignit (3,39/2,08) auf zirka 17 %. Wobei für fossile Brennstoffe eine exaktere Abschätzung durch Anwendung eines Modells, welches sich ausschließlich auf Daten von Versuchen mit fossilen Brennstoffen, Kunststoff- und Abfallfraktionen stützt, möglich wäre. Im Kontrast zur Regressionsgerade aus Abbildung 24 weist jene des alternativen Modells für fossile Brennstoffe, Kunststoff- und Abfallfraktionen ein sehr hohes Bestimmtheitsmaß von 0,9974 auf (siehe Anhang – Abbildung 43).



Abbildung 24: Lineare Korrelation des Brennstoff-H und H₂/CO-Verhältnisses im Produktgas (Pilotanlage 4. Generation)

Die Berechnung der CH₄-Konzentration in vol.- $%_{tr}$ erfolgt durch die lineare Korrelation mit dem Brennstoff-H in mass.- $%_{af}$, ersichtlich in Abbildung 25. Wiederum streuen die Werte für den CH₄-Gehalt im Produktgas in einem Bereich von 5-5,8 mass.- $%_{af}$ Brennstoff-H. Der maximale absolute Fehler für die Berechnung der CH₄-Konzentration über die Funktion der Regressionsgerade (R²=0,904) beträgt 2,5 vol.- $%_{tr}$ (5,52/11,3), wobei der relative Fehler für CH₄-Konzentrationen im niedrigen Wertebereich sehr hoch wäre.



Abbildung 25: Lineare Korrelation des Brennstoff-H und der CH₄-Konzentration im Produktgas (Pilotanlage 4. Generation)

Bei Betrachtung des Messpunkts von Lignit (3,39/3,32) ergibt sich wie auch im Falle des H₂/CO-Verhältnisses eine exaktere Abschätzung aus dem alternativen Modell. Jedoch kann der CH₄-Gehalt im Produktgas durch die Korrelation mit dem Anteil an flüchtigen Bestandteilen genauer errechnet werden (siehe Anhang – Abbildung 44). Das Bestimmtheitsmaß dieser exponentiellen Korrelation ergibt sich zu 0,9968.

In Abbildung 26 ist der Zusammenhang zwischen der CH₄- und CO-Konzentration im Produktgas (R²=0,7911) dargestellt.



*Abbildung 26: Exponentielle Korrelation der CH*⁴⁻ *und CO-Konzentration im Produktgas (Pilotanlage 4. Generation)*

Der Nachteil dieser Korrelation ist die Berechnung der CO-Konzentration auf Basis der zuvor berechneten CH₄-Konzentration. Erfahrungsgemäß zeigt sich jedoch, dass der CO-Gehalt trotz größeren relativen Fehlers des zuvor berechneten CH₄-Gehalts häufig innerhalb eines engen Toleranzbereichs liegt.

Die Korrelation aus dem alternativen Modell weist ein Bestimmtheitsmaß von 0,9641 auf (siehe Anhang – Abbildung 45). Der maximale absolute Fehler von 2,2 vol.-%_{tr} (ohne Betrachtung der Messpunkte für Lignin und EOP) bezieht sich auf den Messpunkt der Rindenpellets (9,34/17,1). Sowohl für Abbildung 25 als auch für Abbildung 26 wurde der Messpunkt für den Brennstoff Rejekt exkludiert.

Der CO₂-Gehalt im Produktgas kann durch Regression mittels Potenzfunktion ($R^2=0,705$) in Abhängigkeit des Brennstoff-C berechnet werden. Das Diagramm ist in Abbildung 27 ersichtlich. Der erhöhte relative Fehler im Bereich von 45-50 mass.-‰_{af} Brennstoff-C ist bedingt durch die vermehrte Streuung der Werte um die Potenzfunktion. Die berechneten CO₂-Konzentrationen der Messpunkte aus den Versuchen mit Rindenpellets (45,91/25,2) und Lignit (59,19/15,9) als Brennstoff weisen den höchsten relativen Fehler von etwa 14 % auf. Im Vergleich zu anderen Korrelationen aus dem alternativen Modell, liegt das Bestimmtheitsmaß für die Potenzfunktion zur Abschätzung der CO₂-Konzentration lediglich bei 0,6431 (siehe Anhang – Abbildung 46). Es zeigt sich keine eindeutige Abhängigkeit zwischen Brennstoff-C_{af} und CO₂-Konzentration in Abbildung 46. Letztlich kann der H₂-Gehalt im Produktgas anhand des H₂/CO-Verhältnisses und CO-Gehalts berechnet werden.



Abbildung 27: Korrelation des Brennstoff-C und der CO₂-Konzentration im Produktgas (Pilotanlage 4. Generation)

Das Prognosemodell verlangt für eine realistische Abschätzung der Konzentrationen der Produktgashauptkomponenten die Richtigkeit der CH₄-Abschätzung, da sich der Fehler der CH₄-Abschätzung bei der Berechnung des CO- und H₂-Gehalts fortpflanzt. Durch die Betrachtung zusätzlicher Korrelationen zur Berechnung der CH₄-Konzentration kann das Ergebnis verbessert werden. Als Abszisse für alternative Korrelationen kann beispielsweise auch der Anteil an flüchtigen Bestandteilen (R²=0,6975) oder das H/C-Verhältnis im Brennstoff (R²=0,7562) herangezogen werden.

Weiters ist wiederum die Variation der Betriebsbedingungen, wie Vergasungstemperatur oder Bettmaterialzusammensetzung, für die einzelnen Messpunkte zu beachten. Beispielsweise könnte das Einführen eines Korrekturfaktors in Bezug auf die Abweichung der vorherrschenden Temperatur von jener Temperatur, bei welcher sich das Gleichgewicht der dominanten Wassergas-Shift-Reaktion befindet, die Robustheit des Prognosemodells verbessern.

Neben den Korrelationen zur Berechnung der Hauptkomponenten im Produktgas, wurden auch Zusammenhänge für den Heizwert des Produktgases (ohne Teer und Koks) eruiert. Abbildung 28 zeigt die lineare Korrelation des Brennstoff-O/H-Verhältnisses und Heizwertes des Produktgases (ohne Teer und Koks) in MJ Nm⁻³tr.



Abbildung 28: Lineare Korrelation des Brennstoff-O/H-Verhältnisses und Heizwertes des Produktgases – ohne Teer & Koks (Pilotanlage 4. Generation)

Die Regressionsgerade weist ein hohes Bestimmtheitsmaß von 0,9301 auf und ermöglicht eine Berechnung des Produktgasheizwertes mit einem maximalen relativen Fehler von etwa 6 %. Dieser ergibt sich aus der Betrachtung des Messpunkts für RHP (6,93/12,47). Während der maximale absolute Fehler im Falle einer Unterschätzung des tatsächlichen Produktgasheizwertes bei 0,84 MJ Nm⁻³tr (1,01/16,06) liegt, errechnet sich ein maximaler absoluter Fehler im Falle einer Überschätzung des tatsächlichen Produktgasheizwertes von 0,46 MJ Nm⁻³tr (6,45/11,59). Weiters wäre auch die Berechnung des Produktgasheizwertes über das O/C-Verhältnis im Brennstoff möglich (R²=0,9016; siehe Anhang – Abbildung 47). Es lässt sich aus den Abhängigkeiten des Produktgasheizwertes von O/H- und O/C-Verhältnis schließen, dass der Produktgasheizwert überwiegend von dem aschefreien O-Gehalt im Brennstoff beeinflusst wird. Jedoch weist die Korrelation für diese Variante ein geringfügig niedrigeres Bestimmtheitsmaß auf. Die Messpunkte für die Brennstoffe Rejekt und Lignin wurden, wie auch für Abbildung 29 und Abbildung 30, entfernt, da diese Ausreißer für die jeweiligen Korrelationen darstellen. Die Berechnung des Produktgasheizwertes des Rejekts ist jedoch durch die Anwendung des alternativen Modells möglich. Das Bestimmtheitsmaß der Potenzfunktion für das H/C-Verhältnis im Brennstoff zur Berechnung des Produktgasheizwertes beträgt 0,918 (siehe Anhang – Abbildung 48).

Wie in Abbildung 29 ersichtlich, könnte das O/H-Verhältnis im Brennstoff ein Indikator für den GC/MS-Teergehalt sein. Aufgrund der vermehrten Streuung der Messpunkte um die Regressionsgerade (R²=0,9084), ist die Abschätzung des Teergehalts auf Basis des O/H-Verhältnisses mit einem hohen relativen Fehler behaftet. Alternativ ist die Regression des Zusammenhangs zwischen O/C-Verhältnis im Brennstoff und GC/MS-Teergehalt möglich. Die Betrachtung des aschefreien O-Gehalts im Brennstoff liefert eine lineare Korrelation mit geringfügig niedrigerem Bestimmtheitsmaß. Dieser Zusammenhang ergibt sich auch bei der Betrachtung des alternativen Modells (R²=0,9801; siehe Anhang – Abbildung 49). Jedoch ist die Betrachtung des GC/MS-Teergehalts über das O/C-Verhältnis beim alternativen Modell wesentlich ungenauer.



Abbildung 29: Lineare Korrelation des Brennstoff-O/H-Verhältnisses und GC/MS-Teergehalts im Produktgas (Pilotanlage 4. Generation)

Abbildung 30 zeigt lineare Zusammenhänge zwischen dem aschefreien O-Gehalt im Brennstoff und der brennstoffbezogenen Wasserkonversionsrate in kg_{H2O} $kg^{-1}_{fuel,tr,af}$ (R²=0,8617) sowie PGY in Nm³_{PG,tr} $kg^{-1}_{fuel,tr}$ (R²=0,8507). Beide vergasungstechnische Kennwerte (Definition siehe Kapitel 3.2) zeigen eine abnehmende Tendenz mit Erhöhung des O-Gehalts im Brennstoff. Kunststoffe weisen im Vergleich zu biogenen Materialien einen geringen O-Gehalt auf. Bei der Co-Vergasung von biogenen Brennstoffen und Kunststofffraktionen in der Pilotanlage (3. Generation) konnte eine Erhöhung der Wasserkonversionsrate in kg_{H2O} kg^{-1}_{H2O} und des PGY mit steigendem Anteil der Kunststofffraktion beobachtet werden. [12] Mit steigendem O-Gehalt im Brennstoff kommt es zur vermehrten Oxidation von Brennstoff-C oder -H im Vergasungsreaktor, weshalb die Produktgasdichte höher wird und damit der Produktgasvolumenstrom deutlich geringer ist. Da die Kennzahl PGY das Verhältnis von Produktgasvolumenstrom zum trockenen Brennstoffmassenstrom darstellt, lässt sich die abnehmende Tendenz mit steigendem Brennstoff-O aus Abbildung 30 mit dieser Überlegung bestätigen. Bei zunehmender Oxidation von Brennstoff-H mit dem Brennstoff-O kommt es zu einer höheren verfügbaren Dampfmenge im Vergasungsreaktor. Durch Betrachtung von Gl. 15 in Kapitel 3.2 lässt sich schlussfolgern, dass mit einem höheren verbleibenden Wasseranteil im Produktgas die brennstoffbezogene Wasserkonversionsrate sinkt.



Abbildung 30: Lineare Korrelationen des Brennstoff-O und brennstoffbezogene Wasserkonversionsrate sowie PGY (Pilotanlage 4. Generation)

Die Validierung der berechneten Werte aus den Korrelationen des Prognosemodells erfolgte durch die Betrachtung von Versuchsdaten eines in der Datenbank nicht vorhandenen, biogenen Brennstoffs. In Tabelle 6 ist die Elementaranalyse des biogenen Brennstoffs ersichtlich. Die elementare Zusammensetzung stellt die benötigten Eingangsparameter für das Prognosemodell zur Verfügung.

Tabelle 6: Elementaranalyse des biogenen Brennstoffs

H ₂ O	Asche	С	Н	0	Ν	S	Cl	O/H
mass%	mass%tr	mass% _{tr}	-					
8,92	9,27	48,050	5,790	34,394	1,810	0,297	0,389	5,94

Die auf Basis der elementaren Zusammensetzung berechneten Werte für die Produktgaszusammensetzung und den Heizwert des Produktgases sind in Tabelle 7 dargestellt. Dabei wurden die Daten für die Produktgashauptkomponenten mit den gemessenen Werten des Analysemoduls NGA2000 sowie den durch Prozesssimulation mit IPSEpro berechneten Werten verglichen. Bei den gemessenen Werten handelt es sich um Mittelwerte einer betrachteten Zeitspanne. Mit Ausnahme des CH₄-Gehalts liefert das Prognosemodell Daten mit sehr niedrigen relativen Fehlern von maximal 8,58 %. Die CH₄-Konzentration im Produktgas wurde mit einem relativen Fehler von 11,89 % (Daten aus IPSEpro) und 9,63 % (Analysemodul NGA2000) überschätzt. Erfahrungsgemäß hat sich gezeigt, dass die Empfindlichkeit der Korrelation für den CO-Gehalt im Vergleich zu den anderen Korrelationen relativ gering bei signifikanter Variation des CH₄-Gehalts ist.

Parameter	D :1	Daten aus Modell	Relativer Fehler			
	Emneit		Prüflabor	IPSEpro	NGA2000	
H ₂ /CO-Verhältnis		2,37		1,82 %	4,51 %	
CH ₄ -Gehalt	vol%tr	9,24		11,89 %	9,63 %	
CO-Gehalt	vol%tr	19,40		0,36 %	2,02 %	
CO ₂ -Gehalt	vol%tr	21,05		5,70 %	2,87 %	
H ₂ -Gehalt	vol%tr	45,98		2,19 %	2,39 %	
NH ₃ -Gehalt	ppm _{tr}	25.074	0,68 %			
H ₂ S-Gehalt	ppm_{tr}	922	8,58 %			
Heizwert Produktgas ohne Teer und Koks	MJ Nm ⁻³ tr	12,32		3,98 %		

Tabelle 7: Anwendung des Prognosemodells für den biogenen Brennstoff und Validierung der Daten

Anhand der Daten aus der Brennstoffanalyse sollen die zu erwartenden Parameter, wie sie in Tabelle 7 dargestellt sind, mit dem Prognosemodell berechnet und folglich mit den Versuchsdaten des Rejekts verglichen werden. In Tabelle 8 sind die Versuchsdaten von ausgewählten Brennstoffen (Rejekt, MWF, SLF und SWP) dargestellt. Durch Abgleich der brennstoffspezifischen Daten für die, seitens der Bio-Brennstoff GmbH als interessant bekundete, Brennstoffe (siehe Kapitel 4) mit jenen des Rejekts, MWF und SLF können Aussagen hinsichtlich der zu erwarteten Produktgaszusammensetzung getroffen werden.

Die Daten aus der Brennstoffanalyse und Vergasung des Rejekts sind in Tabelle 8 aufgelistet. Die Betriebsparameter, wie beispielsweise Vergasungstemperatur und Bettmaterialzusammensetzung, unterscheiden sich für die vier Vergasungsversuch voneinander, weshalb der Vergleich der Messpunkte nur mit Vorbehalt möglich ist. Bei Betrachtung der vergasungstechnischen Kennwerte in Tabelle 8 fällt auf, dass die brennstoffbezogene Wasserkonversionsrate des Rejekts, MWF und SLF (Kunststoffhaltige Abfälle) im Vergleich zu jener der SWP deutlich höher ist. Bei der thermischen Zersetzung von Kunststoffen kommt es zu einer Spaltung der langkettigen Polymere. Bei der Vergasung von Kunststofffraktionen, bestehend aus mehreren Polymertypen, wird bei der Spaltung eine Vielzahl von unterschiedlichen Radikalen gebildet. Diese reagieren in weiterer Folge mit dem Vergasungsmittel unter Bildung von kleineren Molekülen wie H2 und CO, was zu einer höheren Wasserkonversionsrate führt. Der geringe O-Gehalt in den Brennstoffen MWF und SLF zeigt sich auch in der deutlich niedrigeren CO- und CO2-Konzentration im Produktgas in Relation zu SWP. In Hinsicht auf die entstehenden Radikale ist der CH4-Gehalt im Produktgas von den im Brennstoff befindlichen Polymertypen abhängig. Beispielsweise führte die Vergasung von PE erwartungsgemäß zu höheren C₂H₄- und die Vergasung von PP zu hohen CH₄-Konzentrationen im Produktgas. Generell sind CH₄ und C₂H₄ typische Zersetzungsprodukte von Kunststoffen. [12] Der GC/MS Teergehalt unterscheidet sich für die Messpunkte der Vergasung des Rejekts, MWF und SLF signifikant. Dies lässt sich auf den unterschiedlichen O-Gehalt im Brennstoff zurückführen. Die Abhängigkeit des GC/MS Teers von dem Brennstoff-O/H-Verhältnis (Brennstoff-O) ist in Abbildung 29 dargestellt.

Parame	ter	Einheit	Rejekt [49]	MWF [33, 50]	SLF [33, 50]	SWP [51]
	Prüfbericht-Nr.	-	PL-15084-A	PL-16054-A	PL-16045-A	PL-15065-A
	Heizwert feucht	MJ kg ⁻¹	17,247	30,953	28,961	17,397
	Heizwert trocken	MJ kg ⁻¹ tr	23,452	31,479	31,068	18,943
	Wassergehalt	mass%	24	1,55	6,29	7,2
	Aschegehalt	mass% _{tr}	8,7	7,22	12,79	0,2
ff	Flüchtige Bestandteile	mass% _{tr}	82,6	85,98	80,65	85,4
nnsto	C-Gehalt	mass% _{tr}	58,8	70,13	70,73	50,7
Bre	H-Gehalt	mass%tr	6,5	10,43	10,67	5,9
	O-Gehalt	mass%tr	24,6	10,52	3,22	42,98
	N-Gehalt	mass% _{tr}	0,7	0,53	0,43	0,21
	S-Gehalt	mass%tr	0,1	0,076	0,22	0,005
	Cl-Gehalt	mass% _{tr}	0,6	1,093	1,944	0,005
	Brennstoffmassenstrom in GR	kg h ⁻¹	21	12,2*	12,7*	20,1*
tt- erial	Bettmaterialart	mass%	76 Olivin 24 Kalzit	7 Olivin 93 Kalzit	7 Olivin 93 Kalzit	89 Olivin 11 Kalzit
Be	Gesamtes eingebrachtes Bettmaterial	kg	84	77	77	94
	Brennstoffleistung in GR	kW	100	110,2*	112,5*	95*
eter	Zusatzbrennstoffleistung in CR	kW	57	55,3*	55,3*	50,9*
Betri	Temperatur unterer GR	°C	740	754	807	857
	Temperatur oberer GR	°C	915	965	976	965

Tabelle 8: Darstellung der Versuchsdaten für die Brennstoffe - Rejekt, MWF, SLF und SWP (* Daten aus IPSEpro)



	Dampf-zu-Brennstoff Verhältnis	kgsteam kg-1 fuel,tr,af	1,1*	1,4*	1,7*	1,0*
bs- eter	H ₂ /CO-Verhältnis	-	2,6*	3,6*	3,9*	1,9*
Betriel	Produktgasausbeute (PGY)	Nm ³ tr kg ⁻¹ tr,af	1,5-1,6	2,0*	2,3*	1,5*
	Wasserkonversionsrate	$kg_{\rm H2O} kg^{\text{-1}}{}_{\rm fuel, tr, af}$	0,43	0,59*	0,74*	0,28*
	H ₂ -Gehalt	vol% _{tr}	36,2*	45,87*	48,1*	43,9*
	CO-Gehalt	vol%tr	14,1*	12,58*	12,21*	22,62*
	CO ₂ -Gehalt	vol%tr	23*	15,82*	15,09*	21,14*
	CH4-Gehalt	vol% _{tr}	16,6*	19,97*	18,83*	9,68*
	N ₂ -Gehalt	vol% _{tr}	3*	1,07	1,85	1,27
	C ₂ H ₄ -Gehalt	vol% _{tr}	5,63*	3,5	2,69	0,82
	C ₂ H ₆ -Gehalt	vol% _{tr}	0,37*	0,4	0,3	0,05
	C ₃ H ₈ -Gehalt	vol% _{tr}	0*	0	0	0
ttgas	NH3-Gehalt	ppm _{tr}	11.166	-	-	-
roduł	H ₂ S-Gehalt	ppm _{tr}	566	-	-	-
\mathbf{P}_{1}	HCl-Gehalt	ppm _{tr}	93	-	-	-
	Teergehalt GC/MS	g Nm ⁻³ tr	27,6	150,2	140,1	4,5
	Teergehalt gravimetrisch	g Nm ⁻³ tr	13	15,6	20,2	1,5
	Flugkoksgehalt	g Nm ⁻³ tr	4,1	3,56	1,74	1,19
	Staubgehalt	g Nm ⁻³ tr	12,6	7,29	1,68	0,40
	Wassergehalt	vol%	34*	35	39	38
	Volumenstrom	Nm ³ h ⁻¹	22,8* (tr)	33,25*	37,06*	43,19*
	Heizwert	MJ Nm ⁻³ tr	15,3*	16,06*	15,31*	11,6*
	1					



4 Reststoffe und Abfälle in Österreich

In diesem Kapitel werden ausgewählte alternative Brennstoffe charakterisiert und die in Österreich verfügbaren Mengenströme aufgezeigt. Folglich werden zwei dieser Brennstoffe sowie das Rejekt anhand der brennstoffspezifischen Eigenschaften miteinander verglichen.

4.1 Charakterisierung und verfügbare Mengen

4.1.1 Rejekt

Der EBS Rejekt wurde bereits in der Pilotanlage 4. Generation getestet (Versuchsdaten siehe Tabelle 8) und als Standardbrennstoff für den Versuchsbetrieb der DFB-Anlage Oberwart genehmigt. Abbildung 31 zeigt das bereits pelletierte Rejekt.



Abbildung 31: Rejekt

Eine Schätzung für die in Österreich zur Verfügung stehende Menge an qualitätsgesicherten Rejekten aus Aufbereitungsanlagen liegt bei > 200.000 t a⁻¹. [52]

Die Daten aus der Brennstoffanalyse und Vergasung des Rejekts sind in Tabelle 8 aufgelistet. Das Rejekt (24,6 mass.- $\%_{tr}$) weist im Vergleich zu den Brennstoffen MWF (10,52 mass.- $\%_{tr}$) und SLF (3,22 mass.- $\%_{tr}$) einen deutlich höheren Sauerstoffgehalt auf. Der auf die Trockensubstanz bezogene Heizwert ist für das Rejekt (23,452 MJ kg⁻¹tr) niedriger als jener der MWF (31,479 MJ kg⁻¹tr) und SLF (31,068 MJ kg⁻¹tr). Dies ist auf den niedrigeren Kohlenstoff- (58,8 mass.- $\%_{tr}$) und Wasserstoffgehalt (6,5 mass.- $\%_{tr}$) sowie höheren Sauerstoffgehalt im Rejekt zurückzuführen. Auffällig ist der hohe Chloranteil in den Brennstoffen MWF (1,093 mass.- $\%_{tr}$) und SLF (1,944 mass.- $\%_{tr}$) in Relation zu jenem des Rejekts (0,6 mass.- $\%_{tr}$). Vermutlich sind im Falle des SLF hohe Anteile an PVC enthalten. Der Wassergehalt des Rejekts (24 mass.- $\%_{tr}$) ist im Kontrast zu jenem der Brennstoffe MWF (1,55 mass.- $\%_{tr}$) und SLF (6,29 mass.- $\%_{tr}$) bedeutend höher. In Hinblick auf den Aschegehalt befindet sich das Rejekt (8,7 mass.- $\%_{tr}$) zwischen MWF (7,22 mass.- $\%_{tr}$) und SLF (12,79 mass.- $\%_{tr}$). Den Anteil flüchtiger Bestandteile betreffend, liegt das Rejekt mit 82,6 mass.- $\%_{tr}$ zwischen jenem des SLF (80,65 mass.- $\%_{tr}$) und MWF (85,98 mass.- $\%_{tr}$).

4.1.2 Expandiertes Polystyrol (EPS) und extrudiertes Polystyrol (XPS)

Polystyrol-Hartschaum stellt den wichtigsten Dämmstoff aus Kunststoff dar. Es kann nach der Herstellungsart zwischen Partikelschaumstoff aus geblähtem Polystyrolgranulat (EPS) und extrudergeschäumten Polystyrolschaumstoff (XPS) unterschieden werden. Während EPS grobporig und als Styropor bekannt ist, ist XPS feinporig und wird als Styrodur bezeichnet. [53, 54]

Unter EPS werden schäumbare (expandierte) Homopolymere des Monomers Styrol, ersichtlich in Abbildung 32, aber auch Copolymere verstanden. [55] Die Herstellung von EPS erfolgt durch Suspensionspolymerisation, wobei ungefähr 6 % an n-/iso-Pentanen als physikalische Treibmittel in den Polystyrol-Kugeln zur Erniedrigung der Dichte eingelagert werden. [55, 56]



Abbildung 32: Monomer des Polystyrols (PS) [55]

Die Herstellung von XPS erfolgt durch Aufschmelzen des PS, das durch Masse- oder Lösungspolymerisation erzeugt wird, in einem Extruder unter Beimengung von Treibmitteln und anschließender Pressung durch eine Breitschlitzdüse. Als Treibmittel wird für XPS heutzutage CO_2 (früher FCKW, H-FCKW³³, HFKW³⁴) verwendet. Weiters ist in EPS und XPS Flammschutzmittel, welches aufgrund der Anforderungen des Bauordnungsrechts als Additiv beim Herstellungsprozess beigemengt wird, enthalten. [54, 56, 57] Dabei wird wegen der langfristigen Leistungsfähigkeit überwiegend HBCD 35 als Flammschutzmittel eingesetzt. HBCD ist ein persistenter organischer Schadstoff (POP³⁶), weshalb für Materialien mit Überschreitung des Grenzwerts von 1.000 mg kgtr-1 (0,1 %) HBCD-Gehalt gemäß Anhang IV der POP-Verordnung ein Zerstörungsgebot (dies verbietet die stoffliche Verwertung der Materialien) festgelegt wurde. [10, 58, 59] Bei Überschreitung des Grenzwerts von 3 % HBCD-Gehalt wird die jeweilige Substanz als "reproduktionstoxisch" eingestuft. Da der HBCD-Gehalt von EPS (ungefähr 0,7 %) und XPS (ungefähr 2 %) unterhalb von diesem Grenzwert liegt, sind diese Dämmstoffe hinsichtlich des HBCD-Gehalts als nicht gefährliche [57, Abfälle Angesichts der Fluor einzustufen. 58] mit und/oder Chlor halogenierten Kohlenwasserstoffverbindungen (FCKW, H-FCKW, HFKW), ist XPS jedoch ein gefährlicher Abfall mit der gefahrenrelevanten Eigenschaft "ökotoxisch". [58] Zufolge von Diffusionsprozessen entweichen die Treibmittel des XPS, somit ist der genaue Gehalt an mit Fluor und/oder Chlor halogenierten Kohlenwasserstoffverbindungen zu einem bestimmten Zeitpunkt über die Anfangskonzentration und Diffusionsrate zu berechnen. [60] Die Anfangskonzentration bewegt sich in einem Bereich von 6-10 %, wobei der Grenzwert für den Gehalt der Fluor und/oder Chlor halogenierten Kohlenwasserstoffverbindungen in Österreich mit 0,2 % festgesetzt ist.

³³ H-FCKW - teilhalogenierte Fluor-Chlorkohlenwasserstoffe

³⁴ HFKW – teilfluorierte Kohlenwasserstoffe

³⁵ HBCD - Hexabromcyclododecan

³⁶ POP – Persistent Organic Pollutant

Der Verbau von XPS mit FCKW, H-FCKW oder HFKW als Treibmittel wurde in Österreich ab dem Jahr 2009 untersagt, weswegen das vor 2009 verbaute XPS, in Anbetracht der hohen Halbwertszeit im Bereich von 20-90 Jahren und des vorgeschriebenen Grenzwerts, jedenfalls als gefährlicher Abfall eingestuft wird. [58, 60]

Laut dem Umweltbundesamt liegt das derzeitige Potential des Abfallaufkommens der EPS und XPS in Österreich bei ungefähr 5.000 t a⁻¹ und wird durch den Abbruch einer Vielzahl von Gebäuden, in denen Dämmstoffe mit HBCD und im Falle der XPS FCKW, H-FCKW oder HFKW als Treibmittel verbaut wurden, zukünftig steigen. Das geschätzte Maximum liegt bei zirka 23.000 t a⁻¹ im Jahr 2050. [61]

4.1.3 Säureteer

Säureteer beziehungsweise -harz entsteht bei der Raffination von Rohölen (Primärraffination) oder Aufarbeitung von Altölen (Zweitraffination) im Zuge des Schwefelsäure-Bleicherde Kontaktverfahrens.

Das entwässerte Altöl wird zur Vorbehandlung der Additive in eine Thermocrackkolonne geführt und simultan leichtsiedende Komponenten über die Destillatfraktion gewonnen. Im Anschluss wird das Destillat sowie ein Teil der Sumpffraktion mit etwa 10 %-konzentrierter Schwefelsäure vermengt und die Additivreste und -zersetzungsprodukte, wie auch instabile Komponenten, Metallabrieb und aromatische Verbindungen zu dem sogenannten Säureteer (siehe Tabelle 9 - Zusammensetzung) umgesetzt. Dieser ist in Mineralöl unlöslich und kann in weiterer Folge aufgrund des Dichteunterschieds von dem bereinigten Altöl abgetrennt werden. Der verbleibende Anteil in der Sumpffraktion der Thermocrackkolonne wird als Fluxöl abgezogen. [62, 63, 64] Das Altöl wird mit Bleicherde vermengt und diese anschließend einem Verdampfungsprozess unterzogen. Bei der Aufbereitung von einer Tonne Altöl (trocken) fielen beim Meinken-Verfahren 165 kg Säureteer und 159 kg beladene Bleicherde an. Später wurde das ENTRA-Verfahren zur Rückgewinnung von Altöl angewandt, wobei durch zusätzlichen Einsatz von Natronlauge lediglich 19 kg Säureteer pro Tonne Altöl entstanden. [64, 65] Während Säureteere bereits unter Rückgewinnung von SO₂ thermisch verwertet werden, wird auch die beladene Bleicherde in der Zementindustrie eingesetzt. Es liegen keine Informationen in Bezug auf verbleibende Schadstoffe im Rückstand der Verbrennung vor, weshalb bisher von einer Zerstörung des organischen Schadstoffanteils bei der Verbrennung ausgegangen wurde. [65]

Tabelle 9: Charakteristische Zusammensetzung von Säureteer [62]

Anteil	Inhaltsstoffe
> 50 %	Mineralölkohlenwasserstoffe (z.B. Teer, Bitumen, PAK ³⁷)
10-30 %	Schwefelsäure
5-10 %	Anorganische Bestandteile (z.B. Sulfate, Schwermetalle)
1-5 %	Sonstige organische Schadstoffe

Hinsichtlich der Gefährdungsabschätzung wurde Säureteer als stark wassergefährdend (Wassergefährdungsklasse 3) eingestuft. Die Ablagerung der Altlasten wurde ohne Abdichtung vorgenommen, sodass das Sickerwasser bei Erreichen des Grundwassers die Grundwasserqualität beeinträchtigt. [66]

³⁷ Polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe

Säureteere und –harze sind hochzähflüssige, schwarze Substanzen, die als aggressive Materialien bezeichnet werden, und dennoch in der Vergangenheit stark verdünnt in Flüsse abgelassen oder in offenen Gruben deponiert wurden. [67, 68] Derartige Säureteere und –harze wurden in der Vergangenheit unsachgemäß abgelagert. Aufgrund der Umweltverschmutzung und dem damit verbundenen Gefahrenpotential, sind keine umfassenden Dokumentationen hinsichtlich der Altlastdeponien vorhanden.

Seitens der MUEG GmbH wurde berichtet, dass im osteuropäischen Raum vermutlich kaum Sanierungsarbeiten zur Beseitigung der Säureteer- und -harzdeponien unternommen wurden. Die von dem Unternehmen geschätzten, noch vorhandenen Mengen an Säureteer und -harzdeponien in europäischen Ländern, Russland und Aserbaidschan sind in Tabelle 10 aufgelistet. [68]

M	enge	Land
>	80.000 t	Österreich
>	70.000 t	Slowakei
>	150.000 t	Kroatien
>	1,5 Mio. t	Rumänien
>	400.000 t	Ukraine
>	250.000 t	Vereinigtes Königreich
>>	10 Mio. t	Russland
>	1 Mio. t	Aserbaidschan
-		

Tabelle 10: Geschätzte Mengen an Säureteer- und -harzdeponien [68]

4.1.4 Klärschlamm

Klärschlamm fällt bei der Reinigung von kommunalen und industriellen Abwässern an und enthält zum einen Pflanzennährstoffe wie Phosphor, Stickstoff, Schwefel oder Kalk. Zum anderen beinhaltet dieser auch schwer biologisch abbaubare organische Verbindungen, Schwermetalle, Nanomaterialien, pathogene Mikroorganismen oder hormonell wirksame Substanzen. [10]

Das gesamte Aufkommen von kommunalen Klärschlämmen in Österreich und aufgeschlüsselt auf die einzelnen Bundesländer für das Jahr 2015 ist in Tabelle 11 dargestellt, wobei es sich bei diesen Angaben um gerundete Werte handelt. [10] In den Jahren 2001-2006 zeigt das Aufkommen von kommunalen Klärschlamm eine steigende Tendenz, wobei sich jenes aus den Jahren 2015 [10] und 2001 [69] deckt. Aufgrund der unterschiedlichen Quellen und Schätzungen sowie der nicht eindeutigen Unterscheidungsmöglichkeit zwischen kommunalen und industriellen Massenströmen, kann keine Aussage hinsichtlich der Tendenz (steigend oder fallend) des Gesamtaufkommens von Klärschlamm getroffen werden. Das Aufkommen von industriellen Klärschlamm in Österreich betrug im Jahr 2001 155.100 t. Dieses wurde für die nachfolgenden Jahre mit einem durchschnittlichen Wachstum von 1,5 % a⁻¹ abgeschätzt. [69]

	Statistisch erfasste Behandlung						
Bundesland	Gerundetes Aufkommen ³⁸	Landwirtschaft	Thermische Behandlung	Sonstige Behandlung	Einheit		
Burgenland	11.000	3.900	0	7.100	t _{tr}		
Kärnten	13.000	700	7.300	5.000	t _{tr}		
Niederösterreich ³⁹	44.500	18.500	8.500	17.500	t _{tr}		
Oberösterreich	36.200	18.900	14.300	3.000	t _{tr}		
Salzburg	13.100	0	12.700	400	t _{tr}		
Steiermark	22.400	3.800	10.100	8.500	t _{tr}		
Tirol	17.400	0	3.500	13.900	t _{tr}		
Vorarlberg ⁴⁰	9.800	1.000	0	13.700	t _{tr}		
Wien	67.500	0	67.500	0	t _{tr}		
Gesamt	234.900	46.800	123.900	69.100	t _{tr}		
Verwertung/Beseitigung	-	19	52	29	%		

Tabelle 11: Aufkommen und Behandlung der kommunalen Klärschlämme im Jahr 2015 [10]

In Tabelle 11 ist außerdem ersichtlich, dass im Jahr 2015 bereits 52 % des kommunalen Klärschlamms thermisch verwertet wurden. Unter der Berücksichtigung des im Jahr 2001 thermisch verwerteten kommunalen Klärschlamms (zirka 32 %) entspricht dies einer Steigerung von 20 %. Industrieller Klärschlamm wurde im Jahr 2001 zu einem Anteil von ungefähr 59 % thermisch verwertet. [10, 69] Aufgrund des hohen Phosphoranteils ist die Verwendung von Klärschlamm als Düngemittel, nach Hygienisierung im Zuge der thermischen Verwertung unter der Einhaltung von Schadstoffgrenzwerten für Schwermetalle, von Interesse. [10, 70] Der Anteil von kommunalem Klärschlamm, der zur Phosphorrückgewinnung angedacht ist, soll bis zum Jahr 2030 auf 65-85 % erhöht werden. [10]

Die Herkunft des Klärschlamms, aus kommunalen/-industriellen Kläranlagen oder Kläranlagen im städtischen/ ländlichen Bereich, und Art (Primär-, Sekundär-, Faulschlamm, stabilisiert/nicht stabilisiert) ist für die chemische Zusammensetzung und brennstofftechnischen Eigenschaften maßgebend. Während der Anteil an flüchtigen Bestandteilen bis zu 90 mass.-% betragen kann, liegen im Klärschlamm oft Aschegehalte bis zu 50 mass.-%_{tr} vor. [70, 71] Der Wassergehalt im Klärschlamm nimmt sowohl auf den Heizwert als auch auf die Förderbarkeit direkten Einfluss (siehe Kapitel 3.1).

³⁸ Aufkommen der Kläranlagen in Österreich ab einer Kapazität von 2.000 EW₆₀.

³⁹ Die Daten wurden für das Bundesland Niederösterreich aus dem Jahr 2015 übernommen.

⁴⁰ Das Aufkommen und die behandelte Menge an Klärschlamm für das Bundesland Vorarlberg weist einen Unterschied von 4.900 t auf. Dieser resultiert aus der zusätzlichen Behandlung von Klärschlammgranulat, das aus den Lagerbeständen der ARA Dornbirn bezogen wird.

Der Abbildung 33 kann entnommen werden, dass bei 60 mass.-% Wasseranteil Klärschlamm einen Heizwert von ungefähr 4 MJ kg⁻¹ (in Abhängigkeit der chemischen Zusammensetzung) aufweist.



Abbildung 33: Heizwert in Abhängigkeit des Wassergehalts des Klärschlamms [71]

Weiters ändert sich mit dem Wassergehalt die Art der optimalen Einbringung von Klärschlamm (siehe Abbildung 34). Der Übergang von krümeligen zu trockenen Klärschlamm erstreckt sich über einen Bereich von 15-65 mass.-% Wassergehalt. Nach Abbildung 33 entspräche dies einem Heizwertbereich von ungefähr 3-13 MJ kg⁻¹. Die Förderung des krümeligen Klärschlamms kann mit einer Förderschnecke erfolgen. [71] Die weitgehende Entwässerung und Trocknung des Klärschlamms unter Nutzung von Abwärme aus Prozessen wäre im Sinne der Heizwertsteigerung und Einsparung von hochkalorischen Stützbrennstoffen sinnvoll. Arten für die Vortrocknung des Klärschlamms wären Konvektions- und Kontakttrocknung. [70]



Abbildung 34: Eigenschaften des Klärschlamms in Abhängigkeit vom Wassergehalt und Verfahren zur Entwässerung [71]

4.1.5 Altholz

Unter Altholz werden Holzabfälle, welche nach Anfall in verschiedenen Wirtschaftssektoren unterteilt werden, verstanden. [72] Im Zuge dieser Arbeit sollen nur Stoffströme der Abfallgruppen mit den Schlüsselnummern (SN) 17114, 17115, 17212, 17213, 17216 und 17218 berücksichtigt werden. In Tabelle 12 werden diese hinsichtlich derer Herkunft und anfallenden Mengen in den Jahren 2015 und 2017 dargestellt.

Tabelle 12: Aufkommen von Holzabfällen nach Abfallgruppen in den Jahren 2015 und 2017 [10, 72]

SN	Abfallbezeichnung	2015	2017	Einheit
17114	Staub und Schlamm aus der Spanplattenherstellung	129.200	136.000	t
17115	Spannplattenabfälle	36.500	83.000	t
17212	Durch anorganische Chemikalien verunreinigtes Sägemehl	4.100	6.000	t
	bzw. Sägespäne			
17213	Durch organische Chemikalien verunreinigte Holzemballagen,	1.700		t
	-abfälle und -wolle			
17216	Durch organische Chemikalien verunreinigtes Sägemehl	1.000		t
	bzw. Sägespäne; mit gefahrenrelevanten Eigenschaften			
17218	Organisch behandelte Holzabfälle	41.700	48.000	t

Altholz, welches wegen "*einer chemischen Behandlung, Verunreinigung oder des ursprünglichen Einsatzzwecks nicht für eine stoffliche oder energetische Nutzung geeignet ist"*, muss in thermischen Abfallbehandlungsanlagen bei hohem Temperaturniveau beseitigt werden. Beispielsweise wird imprägniertes Altholz, wie Eisenbahnschwellen, als gefährlicher Abfall eingestuft. Aufgrund des steigenden Anteils von Holz im Baubereich (auf die Nutzfläche bezogen), ist mit einem steigenden Aufkommen von Altholz zu rechnen. In der Zeitspanne von 1998-2018 erfuhr der Holzbauanteil eine Erhöhung von 14 % auf 24 %. Die Tendenz für das Abfallaufkommen von Altholz ist hinsichtlich der prognostizierten Bevölkerungsentwicklung und dem zunehmenden Wohnflächenbedarf pro Einwohner sowie dem erhöhten Holzbauanteil steigend. [72]

4.1.6 Hartkunststoffe aus der Elektronikschrottaufbereitung

Bei der Aufarbeitung von Elektro- und Elektronikaltgeräten⁴¹ (EAG) fallen ungefähr 50 % an Reststoffen (Gesamtmenge abzüglich von Eisen, Kupfer und Aluminium), wobei diese etwa 26-27 % Kunststoffe enthalten, an. [61, 73] Die Bestandteile der Kunststoffe in EAG sind überwiegend Polypropylen (PP), PS, EPS und Acrylnitril-Butadien-Styrol (ABS⁴²). Der Anteil der Kunststoffabfälle aus dem Einsatzbereich Elektronik (inklusive der EAG im Restmüll) beträgt für das Jahr 2015 einer Menge von 27.125 t und entspricht 3 % des gesamten Primäraufkommens (reine und kunststoffhaltige, feste Abfälle). Die Aufschlüsselung des Kunststoffabfallaufkommens in EAG nach Polymertypen ist in Tabelle 13 dargestellt. Dabei wurden Kühl- und Klimageräte (25 % Kunststoffanteil), Bildschirmgeräte einschließlich Bildröhrengeräte (26 % Kunststoffanteil), Elektro- und Elektronik-Altgeräte mit einer Kantenlänge größer oder gleich 50 cm (21 % Kunststoffanteil)

⁴¹ Unter EAG werden *"alle mit elektrischer Energie betriebenen Geräte nach Ende des Gebrauchs"* verstanden. [73]

⁴² ABS ist ein Copolymer der Monomere Acrylnitril, Butadien und Styrol. [56]

beziehungsweise kleiner 50 cm (35 % Kunststoffanteil) und Gasentladungslampen (3 % Kunststoffanteil) als EAG betrachtet. Aufgrund des steigenden Bedarfs an Elektrogeräten und Elektronik wird das Abfallaufkommen der EAG und damit auch die Kunststofffraktion aus den EAG in naher Zukunft stark zunehmen. Die Tendenz für das Kunststoffabfallaufkommen in EAG ist demnach steigend. [61]

In EAG sind Flammschutzmittel wie Polybromierte Diphenylether (PBDE) als Additive enthalten. [74] Da PBDE als POP eingestuft werden, gilt auch für den PBDE-Gehalt gemäß Anhang IV der POP-Verordnung ein Grenzwert von 1.000 mg kgtr⁻¹ (0,1 %). Seit 2006 ist die Beimengung von PBDE in Kunststoffen aus dem Elektro- und Elektronikbereich in einer Konzentration von mehr als 0,1 % untersagt. [10] Der Untersuchungsbericht der Montanuniversität Leoben legt dar, dass "*ungefähr 15 % der Kunststoffabfälle aus TV-Gehäusen und ungefähr 47 % der Kunststoffabfälle aus PC-Gehäusen deutlich höhere Summengehalte an PBDE als 0,1 % aufweisen."* [75] Die Bestimmung des Bromgehalts in Kunststoffen aus dem Elektro- und Elektronikbereich kann durch die RFA (siehe Kapitel 2.5.1.3) erfolgen. Sofern ein Bromgehalt unterschritten wird. [10] Bei der thermischen Verwertung entstehen toxische Verbindungen wie bromierte Dioxine und Furane. Antimontrioxid (ATO) wird als Synergist zur Steigerung der Wirksamkeit des Flammschutzmittels PBDE in Kunststoffen der Elektronik- und Elektronik- und sußerdem ein Katalysator für die Dioxin- und Furanbildung. Weiters steht dieses unter Kanzerogenitätsverdacht, weshalb Antimonemissionen gering zu halten sind. [74]

Menge	Polymertyp
4.000 t	рр
5.000 t	PS/EPS
900 t	PVC
6.900 t	ABS
2.200 t	PC^{43}
3.400 t	Andere Polymere
22.400 t	Gesamtes Kunststoffabfallaufkommen in EAG

Tabelle 13: Schätzung des Kunststoffabfallaufkommens in EAG nach Polymertypen in 2015 [61]

4.2 Physikalisch-mechanische Eigenschaften

Die Betrachtung der physikalisch-mechanischen Eigenschaften wird in diesem Kapitel für die alternativen Brennstoffe Altholz (siehe Abbildung 35) und Hartkunststoffe (HKS) aus der Elektronikschrottaufbereitung (siehe Abbildung 36) vorgenommen.



Abbildung 35: Altholz



Abbildung 36: Hartkunststoffe aus der Elektronikschrottaufbereitung

Beide Abfallfraktionen unterscheiden sich hinsichtlich der Teilchenform und Stückigkeit signifikant voneinander. Beim Altholz lässt sich eine nadelartige Teilchenform beobachten, während es sich bei den zerkleinerten HKS eher um unregelmäßig geformte, geknüllte Teilchen handelt. Wie bereits in Kapitel 3.1.2 erwähnt, werden die Fließ- und Transporteigenschaften von der Teilchengrößenverteilung, Teilchenform sowie dem Feinanteil beeinflusst. Die stark variierende Teilchenform der Altholzfraktion könnte bei der Förderung und dem zu erzielenden Massenfluss im Brennstoffbunker Probleme hervorrufen. Neben dem biogenen Anteil in nadelartiger Form, ist eine Vielzahl von verschiedenen anorganischen Bestandteilen, wie Glas- und Spiegelscherben, kugelförmige beziehungsweise drahtartige metallische Bestandteile und vereinzelt Kunststoffstücke, vorhanden. Angesichts der verschiedenen Teilchenformen kann es im Brennstoffbunker leicht zum Verkeilen dieser Teilchen kommen und dies in weiterer Folge zur unerwünschten Brückenbildung führen. Weiters kann es beispielsweise bei der Förderung zum Brechen der nadelartigen Teilchen kommen, wobei sich die Korngrößenverteilung in Richtung kleinerer Teilchengrößen verschieben kann und damit eine Erhöhung des Feinanteils bewirkt. Eine Entmischung nach Teilchengröße, -form oder -dichte wäre in Bezug auf die Inhomogenität der Altholzfraktion zu erwarten. Bei der HKS-Fraktion hingegen lässt sich hinsichtlich der Teilchenform und Stückigkeit eine relativ homogene Mischung aus verschiedenen Polymertypen feststellen. Drahtstücke sind im geringen Maße ebenfalls Bestandteil dieser Fraktion. Im Kontrast zur Altholzfraktion könnte es hier durch einen hohen Wassergehalt in Folge von Agglomeration zu verschlechterten Fließ- und Transporteigenschaften kommen.

Für beide Brennstoffe wurde eine Siebanalyse mittels Siebturm durchgeführt. Die jeweilige Fraktion wurde auf einer Metallplatte ausgebreitet und in Form eines Quadrates gebracht. Durch eine weitere Metallplatte wurde dieses in 4 gleichgroße, kleinere Quadrate geteilt. Schließlich wurden zwei diagonal gegenüberliegende Quadrate gewählt und als Probe für die Siebanalyse herangezogen. Dafür wurden 5 Normsiebe derart angeordnet, dass die Maschenweiten der Siebe von oben nach unten abnehmen, und auf eine Siebpfanne gestellt.

In weiterer Folge wurde der Siebturm mit einem Deckel verschlossen und in die Siebmaschine eingespannt. Die Siebung wurde bei mittelmäßiger Rüttelintensität und einer Siebzeit von einer Minute durchgeführt. Bei dieser Siebanalyse war es nicht Ziel zu einer möglichst genauen Teilchengrößenverteilung zu gelangen (dafür wären mehrere Normsiebe erforderlich gewesen sowie Anpassung der Siebzeit und Rüttelintensität), sondern den Durchgang für 1.000 µm – repräsentativ für den Feinanteil – und 2.000 µm Maschenweite zu bestimmen.

Unter einem Feinanteil wird für gewöhnlich der Anteil von deutlich kleineren Teilchengrößen verstanden. Für diese Anwendung ist es jedoch sinnvoller die Definition Feinanteil für größere Teilchen zu wählen. Normsiebe mit den folgenden Maschenweiten wurden verwendet:

- 5.000 μm Altholz | 2.500 μm HKS
- 2.000 μm
- 1.000 μm
- 500 μm
- 250 μm

Der Durchgang bei der Maschenweite von 1.000 μ m liegt im Falle der Altholzfraktion bei etwa 2 % der aufgegebenen Probenmasse, wohingegen sich jener der HKS-Fraktion mit zirka 4,5 % nicht wesentlich unterscheidet. Im Vergleich zu den Anforderungen an Pellets (Feinanteil von 1.000 μ m < 4 %) [45] sind diese Ergebnisse als nicht kritisch zu beurteilen. Bei Betrachtung der Maschenweite von 2.000 μ m lässt sich bei der Altholzfraktion ein Durchgang von ungefähr 15,5 % feststellen. Im Falle der HKS liegt dieser bereits bei 48,5 %. Die tabellarische Auflistung der Überkornmassen des jeweiligen Normsiebes für die Siebanalyse der Altholz- und HKS-Fraktion ist im Anhang (Tabelle 23) ersichtlich.

Die Beschickung des Vergasungsreaktors erfolgt durch Transport des Brennstoffs mittels Stopfschnecke, weshalb die Dichte von großer Bedeutung ist. Wenn die Dichte gering ist, wie im Falle der HKS oder als Extremfall EPS und XPS, kommt es zu einer hohen Komprimierung des Förderguts. Dies wäre bei der Altholzfraktion nur in geringem Maße zu erwarten. Da der Heizwert von Kunststofffraktionen weitaus höher ist als jener des Altholzes, muss die Fördergeschwindigkeit beim Einsatz der Kunststofffraktionen reduziert werden, um die gegebene Brennstoffwärmeleistung der DFB-Anlage einzuhalten. Die Unregelmäßigkeit der Teilchenform der Altholzfraktion (Scherben, Nägel, Holzteilchen) kann in Hinblick auf den Brennstoffmassenstrom und die -wärmeleistung zu schwankenden Betriebsbedingungen führen.

Die Gewichtskraft der Teilchen ist für Brennstoffe mit geringer Dichte, vor allem EPS und XPS, deutlich kleiner, weshalb es zum Entrainment dieser Teilchen und damit einer unvollständigen thermochemischen Umwandlung kommen kann. Kunststofffraktionen weisen üblicherweise sehr hohe Anteile an flüchtigen Bestandteilen auf. Demnach kann davon ausgegangen werden, dass in kürzester Zeit nach Eintritt der Teilchen in den Vergasungsreaktor die pyrolytische Zersetzung stattgefunden hat.

Stark variierende physikalisch-mechanische Eigenschaften sind vor allem bei dem Einsatz von Reststoffen und Abfällen von Bedeutung und begünstigen unerwünschte Effekte, wie Brückenbildung oder Kernfluss. Sofern gleichmäßige Materialeigenschaften durch eine mechanische Vorbehandlung der Brennstoffe erzielbar sind, wäre diese für die Gewährleistung einer kontinuierlichen Brennstoffzufuhr mit minimierten Schwankungen der Zusammensetzung vorteilhaft. Mechanische Prozessschritte sind sehr energieintensiv und wirken sich wegen der zusätzlichen Betriebskosten negativ auf die Wirtschaftlichkeit aus.

4.3 Brennstofftechnische Eigenschaften

Für die alternativen Brennstoffe Altholz und HKS aus der Elektronikschrottaufbereitung wurden im Akkreditierten Prüflabor für Feuerungsanlagen der TU Wien Brennstoffanalysen im Umfang einer Immediat- und Elementaranalyse durchgeführt. Aufgrund der zurzeit aktuellen Bestimmungen von COVID-19 konnten nicht alle Daten (fehlend: Wassergehalt, Asche-Schmelzverhalten und RFA) aus der Brennstoffanalyse rechtzeitig zur Verfügung gestellt werden. Die Daten aus der Immediatanalyse sind in der Tabelle 14 ersichtlich.

 Tabelle 14: Immediatanalyse für Altholz und Hartkunststoffe aus der
 Elektronikschrottaufbereitung [76]

		HKS	Altholz
Prüfbericht-Nr.	-	PL-20009-A	PL-20009-B
Heizwert trocken	MJ kg ⁻¹ tr	17,182	8,884
Analysenfeuchtigkeit	mass%	0,28	4,69
Aschegehalt	mass%tr	30,14	60,30
Flüchtige Bestandteile	mass% _{tr}	64,73	38,29

Die Immediatanalyse zeigt, dass der Heizwert der HKS-Fraktion im Vergleich zu jenem des Altholzes deutlich höher ist. Um die Brennstoffwärmeleistung von 5,4 MWth (siehe Tabelle 3) bereitstellen zu können, muss der Massenstrom an den Heizwert des jeweiligen Brennstoffs angepasst werden. Dieser wäre beim Einsatz der HKS (1.131,4 kg_{tr} h⁻¹) um den Faktor von zirka 1,9 kleiner als jener für die Altholzfraktion (2.188,2 kg_{tr} h⁻¹). Für den Betrieb der Anlage ist jedoch mit dem Heizwert der feuchten Substanz zu rechnen. In dem DFB-System wird die Wärmeleistung über das umlaufende Bettmaterial, welches im Verbrennungsreaktor die notwendige Wärmezufuhr erfährt, in den Vergasungsreaktor eingebracht. Der Anteil an flüchtigen Bestandteilen in mass.-%tr.af gibt Auskunft über die Menge an Brennstoff, die dem Verbrennungsreaktor zugeführt werden muss. Beide Brennstoffe weisen einen sehr hohen Anteil an flüchtigen Bestandteilen auf, weswegen hier mit einem größeren Brennstoffbedarf der Brennkammer (Zusatzbrennstoff, recycliertes Produktgas) zu rechnen ist. Der Anteil an flüchtigen Bestandteilen ist für die Altholzfraktion (96,45 mass.-%tr.af) geringfügig höher als jener der HKS-Fraktion (92,66 mass.-%tr,af), wobei jener der Altholzfraktion ungewöhnlich hoch ist (Vergleich SWP 85,57 mass.-%tr.af). Dies könnte auf die vereinzelten Kunststoffanteile in der Altholzfraktion zurückzuführen sein. Da es sich bei der Altholzfraktion um eine Mischung aus biogenem (holzartige Biomasse) und fossilem Anteil (Kunststoffe) handelt, könnten Synergieeffekte bei der Vergasung dieses Brennstoffs auftreten, wie es bei der Co-Vergasung aus [12] der Fall war.

Bereits bei optischer Begutachtung der Altholzfraktion fiel auf, dass der Anteil an anorganischen Bestandteilen sehr hoch ist. Dies schlägt sich erwartungsgemäß in dem hohen Aschegehalt von 60,30 mass.-%_{tr} nieder. Der Ascheanteil in der Kunststofffraktion hingegen liegt bei 30,14 mass.-%_{tr}. Verglichen mit den Ascheanteilen der Brennstoffe aus Tabelle 8 sind die Werte für die getesteten, alternativen Brennstoffe sehr hoch. Da die Asche für die thermische Verwertung einen Ballaststoff darstellt und sich bei hohen Anteilen lediglich der Brennstoffmassestrom bei gleichbleibendem Heizwert erhöht, wäre eine Abscheidung der groben, anorganischen

Bestandteile vor Einbringung in die DFB-Anlage anzudenken. Dies würde auch einen Vorteil in Hinblick auf die Fließ- und Transporteigenschaften des Brennstoffes mit sich bringen. Die Asche kann in weiterer Folge beispielsweise als Ersatzrohstoff eingesetzt werden, sofern die Aschezusammensetzung für den jeweiligen Prozess geeignet ist. Anderenfalls muss die Entsorgung der Asche vorgenommen werden, wobei die Entsorgungskosten von dem Ausmaß der Kontamination mit problematischen Elementen abhängig sind.

Die Analysenfeuchtigkeit liegt in der Größenordnung der hygroskopischen Feuchtigkeit des lufttrockenen Brennstoffs [26] und ist für HKS (0,28 mass.-%) deutlich geringer als jene der Altholzfraktion (4,69 mass.-%). Diese ist nicht mit dem Wassergehalt des Brennstoffs gleichzusetzen.

4.4 Elementare Zusammensetzung

Die Daten aus der Elementaranalyse der HKS aus der Elektronikschrottaufbereitung und des Altholzes sind in der Tabelle 15 ersichtlich.

 Tabelle 15: Elementaranalyse für Altholz und Hartkunststoffe aus der
 Elektronikschrottaufbereitung [76]

		HKS	Altholz
Prüfbericht-Nr.	-	PL-20009-A	PL-20009-B
C-Gehalt	mass%tr	39,72	28,67
H-Gehalt	mass%tr	4,98	3,06
O-Gehalt	mass%	13,553	6,028
N-Gehalt	mass%	0,21	1,31
S-Gehalt	mass%	0,028	0,041
Cl-Gehalt	mass%tr	11,369	0,591

Die Altholzfraktion zeigt aufgrund des hohen Kohlenstoff- (28,67 mass.- $\%_{tr}$; 72,22 mass.- $\%_{tr,af}$) und geringen Sauerstoffanteils (6,028 mass.- $\%_{tr}$; 15,18 mass.- $\%_{tr,af}$) nicht die typischen Eigenschaften biogener Brennstoffe hinsichtlich derer chemischen Zusammensetzung (siehe Kapitel 2.5.2.2.). Holzartige Biomasse weist für gewöhnlich Sauerstoffgehalte im Bereich von 40-45 mass.- $\%_{tr}$ auf. [45] Der Wasserstoffgehalt beträgt 7,71 mass.- $\%_{tr,af}$ und ist damit höher als jener der SWP aus Tabelle 8 (5,91 mass.- $\%_{tr,af}$). Abbildung 35 zeigt, dass einige Teilchen der Fraktion aus Bruchstücken von Spanplatten bestehen. Spanplatten enthalten zu 10 % Harnstoff-Formaldehydharze als Bindemittel [77], weswegen mit höheren Stickstoffanteilen zu rechnen ist. Dies könnte ein Grund für den hohen Stickstoffgehalt von 3,30 mass.- $\%_{tr,af}$ sein. Verglichen mit der Elementaranalyse der SWP fällt auf, dass der Stickstoffstoffgehalt des Altholzes um den Faktor 6,2 (15,7 bezogen auf den trockenen und aschefreien Brennstoff) höher ist. Der Schwefelgehalt der Altholzfraktion befindet sich im Kontrast zum Stickstoffgehalt im niedrigen Wertebereich (0,041 mass.- $\%_{tr}$; 0,103 mass.- $\%_{tr,af}$).
Der Sauerstoffgehalt der HKS ist mit 13,553 mass.-%_{tr} (19,40 mass.-%_{tr,af}) für eine Kunststofffraktion sehr hoch. Jener des SLF aus Tabelle 8 beträgt 3,22 mass.-%_{tr} (3,69 mass.-%_{tr,af}) und ist damit um den Faktor 4,2 (5,3 bezogen auf den trockenen und aschefreien Brennstoff) kleiner. Wie in Tabelle 13 ersichtlich, wird der Anteil des Polymers PC auf zirka 9,8 % des Gesamtkunststoffaufkommens in EAG geschätzt. In der Strukturformel des PC sind drei Sauerstoffatome enthalten (siehe Abbildung 37). Der Sauerstoffanteil in dem Polymer PC ist von der genauen Strukturformel (ergänzendes Molekül "R") abhängig.



Abbildung 37: Monomer des Polycarbonats

Weiters sind in 15,2 % des Gesamtkunststoffaufkommens (in EAG) andere Polymertypen enthalten. Es ist davon auszugehen, dass es sich mitunter auch um Polymere, dessen Monomere Sauerstoffatome miteingebunden haben, handelt. Vermutlich ist der hohe Sauerstoffgehalt in HKS auf einen hohen Anteil an Polymertypen wie beispielsweise PC zurückzuführen. Der Kohlenstoffgehalt ist bei Betrachtung der trockenen Substanz in den HKS (39,72 mass.-%_{tr}) höher als jener der Altholzfraktion (28,67 mass.-%_{tr}). Auf die trockene und aschefreie Substanz bezogen, ist der Kohlenstoffgehalt der HKS (56,86 mass.-%_{tr,af}) jedoch deutlich geringer. Der Wasserstoffgehalt der HKS errechnet sich auf 7,13 mass.-%_{tr,af}, wobei dieser geringer als jener des SLF (12,23 mass.-%_{tr,af}) ausfällt.

Während sich Stickstoff- und Schwefelgehalt im eher niedrigeren Prozentbereich befinden, ist der Chlorgehalt auffallend hoch (11,369 mass.-%_{tr}; 16,274 mass.-%_{tr,af}). Der Chloranteil in der HKS-Fraktion deutet darauf hin, dass der PVC-Gehalt sehr hoch ist. Aus den Daten in Tabelle 13 lässt sich ein PVC-Gehalt von lediglich 4 % des Gesamtkunststoffaufkommens in EAG errechnen. Der Chloranteil eines PVC-Materialmixes beträgt ungefähr 45 % [78], weshalb davon auszugehen ist, dass mehr als 4 % PVC in der HKS-Fraktion vorhanden sind (Annahme, dass der Chlorbestandteil im Brennstoff hauptsächlich auf das Vorkommen von PVC zurückzuführen ist). Beispielsweise sind in [10] Kabelschälreste bestehend aus 60 % PVC (mit Kontamination von Polychlorierten Biphenylen) als chlorierte Kunststoffabfälle angeführt. Die Rückrechnung des Chloranteils der HKS-Fraktion lässt auf einen möglichen PVC-Anteil von ungefähr 25 % schließen. Aufgrund dieser Tatsache sowie der unregelmäßigen, geknüllten Teilchenform der HKS, kann ein hoher Anteil an Kabelresten in der HKS-Fraktion vermutet werden.

5 Bewertung der alternativen Brennstoffe

In diesem Kapitel werden die alternativen Brennstoffe Altholz und HKS aus der Elektronikschrottaufbereitung hinsichtlich derer Eignung für die DFB-Vergasung beurteilt. Das erste Kriterium befasst sich mit der zu erwartenden Produktgasqualität. In weiterer Folge wird der Fokus auf die ökologischen Aspekte des Anlagenbetriebs mit den alternativen Brennstoffen gelegt. Schließlich wird auf ökonomische Kriterien für den Betrieb der DFB-Anlage und das Potential dieser Brennstoffe in Österreich eingegangen. Alle Daten wurden aufgrund des unbekannten Wassergehalts auf Basis der Trockensubstanz der jeweiligen Brennstoffe berechnet.

5.1 Produktgasqualität

Die Berechnung für die zu erwartende Produktgaszusammensetzung der Komponenten H_2 , CO, CO₂ und CH₄ wurde im Falle der HKS mit dem alternativen Modell für fossile Brennstoffe, Kunststoff- und Abfallfraktionen (siehe Anhang) durchgeführt. In Tabelle 16 sind die Ergebnisse aus der Berechnung zu sehen. Es ist zu beachten, dass die Korrelationen apparatespezifisch sind, weswegen die Daten aus Tabelle 16 der zu erwartenden Produktgaszusammensetzung aus der Vergasung des Brennstoffs in der 100 kW_{th} Pilotanlage der TU Wien entspräche.

-			Tolerar	zbereich
Parameter	Einheit	HKS	Untere Grenze	Obere Grenze
H ₂ /CO-Verhältnis	-	2,81	2,34	3,28
CH4-Gehalt	vol%tr	18,64	16,14	21,14
CO-Gehalt	vol%tr	12,18	9,78	14,58
CO ₂ -Gehalt	vol%tr	18,89		
H ₂ -Gehalt	vol%tr	34,29	22,89	47,82
Heizwert Produktgas		14.04	14.40	15.70
ohne Teer und Koks	MJ Nm ⁻³ tr	14,94	14,48	15,78

Tabelle 16: Anwendung des Prognosemodells für Hartkunststoffe aus der Elektronikschrottaufbereitung – Produktgashauptkomponenten und Heizwert

Für das H₂/CO-Verhältnis und jede Produktgashauptkomponente sowie dem Heizwert des Produktgases ohne Teer und Koks wurde ein Toleranzbereich mit unterer und oberer Grenze angegeben. Während der CH₄-Gehalt sehr hoch ist (18,64 vol.-%_{tr}), ist der H₂-Gehalt (34,29 vol.-%_{tr}) und CO-Gehalt (12,18 vol.-%_{tr}) deutlich geringer (verglichen mit den Daten aus der konventionellen Vergasung eines biogenen Brennstoffs wie SWP). Aufgrund des niedrigeren Sauerstoffgehaltes in der HKS-Fraktion sind geringere CO₂- und CO-Konzentrationen im Produktgas zu erwarten. Dies lässt sich durch Betrachtung der CO₂- (21,14 vol.-%_{tr}) und CO-Konzentrationen (22,62 vol.-%_{tr}) aus der Vergasung von SWP in Tabelle 8 bestätigen. Weiters zeigt sich bei der HKS-Fraktion wegen des niedrigeren Sauerstoffgehalts ein hoher Produktgasheizwert von 14,94 MJ Nm⁻³_{tr}. Die Berechnung von PGY auf Basis des Sauerstoffgehalts (laut Korrelation aus Abbildung 30) ergibt einen Wert von 1,87 Nm³_{tr} kg⁻¹_{tr,af}. Bei Erfüllung der Brennstoffwärmeleistung von 100 kW_{th} lässt sich mit gegebenem Heizwert ein Brennstoffmassenstrom von 14,64 kg_{tr,af} h⁻¹ berechnen. In weiterer Folge kann über den, aus dem Brennstoffmassenstrom und PGY resultierenden, Produktgasvolumenstrom die thermische Leistung des Produktgases im Falle der Vergasung in der 100 kW_{th} Pilotanlage errechnet werden. Diese beträgt für die Trockensubstanz der HKS 114 kW_{th}.

In Tabelle 17 sind die berechneten Daten für die zu erwartende Produktgaszusammensetzung der Komponenten H₂, CO, CO₂ und CH₄ auf Basis des regulären Modells (siehe Kapitel 3.3) im Falle der Altholzfraktion dargestellt.

Doromatar	Einheit	Althold	Toleranzbereich	
Farameter		Attionz	Untere Grenze	Obere Grenze
H ₂ /CO-Verhältnis	_	2,89	2,42	3,36
CH ₄ -Gehalt	vol%tr	12,78	10,28	15,28
CO-Gehalt	vol% _{tr}	16,37	13,97	18,77
CO ₂ -Gehalt	vol%tr	15,81		
H ₂ -Gehalt	vol%tr	47,38	33,81	63,07
Heizwert Produktgas	MI Nro-3	14.66	14.20	15 50
ohne Teer und Koks	IVIJ INIII ⁻ tr	14,00	14,20	13,30

Tabelle 17: Anwendung des Prognosemodells für Altholz – Produktgashauptkomponenten und Heizwert

Wie bereits erwähnt, zeigt die Altholzfraktion eine eher untypische elementare Zusammensetzung in Hinsicht auf dessen hohen biogenen Anteil (Referenz holzartige Biomasse). Aufgrund des niedrigen Sauerstoffgehalts, wie es eigentlich bei fossilen Brennstoffen oder Kunststofffraktionen der Fall ist, errechnet sich auch für die Altholzfraktion ein hoher Produktgasheizwert (14,66 MJ Nm⁻³_{tr}). Der CH₄-Gehalt ist für Altholz mit 12,78 vol.-%_{tr} zwar höher als jener aus der Vergasung von SWP (9,68 vol.-%_{tr}), dennoch wirkt der Heizwert für die obige Produktgaszusammensetzung zu hoch (Vergleich SWP 11,6 MJ Nm⁻³_{tr}). Da andere Bestandteile im Produktgas wie höhere Kohlenwasserstoffe sowie in geringem Maße auch N₂ enthalten sein können, ist die Nachrechnung des Produktgasheizwertes über die Heizwerte der einzelnen Produktgaskomponenten (H₂, CO und CH₄) nicht zulässig. Höhere Kohlenwasserstoffe weisen sehr hohe Heizwerte auf (Ethylen 59,458 MJ Nm⁻³; Ethan 64,345 MJ Nm⁻³) [26], weswegen eine solche Nachrechnung jedenfalls einen großen Fehler mit sich zieht.

Der geringe Sauerstoffgehalt der Altholzfraktion schlägt sich in der Berechnung des PGY (1,99 Nm³tr kg⁻¹tr,af) nieder. Der hohe Wert in Hinblick auf den niedrigen Sauerstoffgehalt stimmt mit den Erkenntnissen aus der Co-Vergasung von Kunststoffen und biogenen Brennstoffen überein (siehe Kapitel 3.3).

Der Vergleich zwischen den Versuchsdaten aus der Vergasung des Rejekts in der 100 kW_{th} Pilotanlage sowie den errechneten Daten anhand des Prognosemodells für HKS und Altholz ist in Abbildung 38 ersichtlich.



Abbildung 38: Vergleich der Daten aus dem Prognosemodell für die Brennstoffe Rejekt, HKS und Altholz

Es gilt zu beachten, dass die Daten für die Brennstoffe HKS und Altholz auf Basis der Trockensubstanz berechnet wurden. Aus diesem Grund wurden zum Vergleich nicht die Daten aus der Vergasung des Rejekts mit 24 mass.-% Wasseranteil herangezogen, sondern die errechneten Werte für die Trockensubstanz des Rejekts anhand des alternativen Modells für fossile Brennstoffe, Kunststoff- und Abfallfraktionen verwendet.

Das H₂/CO-Verhältnis liegt laut Berechnung für alle drei Brennstoffe in einem Wertebereich von 2,8-2,9. Der CO-Gehalt für den Brennstoff Altholz (16,37 vol.-%tr) ist geringfügig höher als jener für die Brennstoffe Rejekt (13,29 vol.-%_{tr}) und HKS (12,18 vol.-%_{tr}). Entsprechend dem H₂/CO-Verhältnis und CO-Gehalt, weisen das Rejekt und die HKS einen eher geringen H2-Gehalt auf, während jener der Altholzfraktion mit 47,38 vol.-%tr sehr hoch ist. Die CH4-Konzentrationen sind für die Kunststofffraktionen Rejekt (16,91 vol.-%tr) und HKS (18,64 vol.-%tr) deutlich höher als der CH4-Gehalt, der bei der Vergasung von Altholz (12,78 vol.-%tr) zu erwarten wäre. Interessant ist, dass sowohl für das Rejekt als auch für HKS der CH4-Gehalt dem CO2-Gehalt beinahe gleicht. Die Heizwerte des Produktgases für die verschiedenen Brennstoffe liegen, wie auch das H2/CO-Verhältnis, in einem engen Wertebereich. Das Produktgas aus der Vergasung des Rejekts besitzt den niedrigsten Heizwert mit 14,26 MJ Nm⁻³tr. Ob die Berechnung für den Heizwert des Produktgases, welches aus der Vergasung des Altholzes resultieren würde, realistisch ist, ist unklar. Jedenfalls ist der CO2-Gehalt (15,81 vol.-%_{tr}), welcher keinen Beitrag zum Heizwert liefert, deutlich geringer als jener der SWP aus Tabelle 8 (21,14 vol.-%_{tr}). Jedenfalls wäre laut Abbildung 38 ein ähnliches Produktgas, wie es aus der Vergasung des Rejekts hervorgehen würde, für den Brennstoff HKS zu erwarten. Die bei der Verbrennung des Produktgases entstehenden CO₂-Emissionen sind im Falle des Altholzes geringer (hierbei werden nur die Produktgashauptkomponenten CO, CO₂ und CH₄ betrachtet). Wie bereits erwähnt, ist die Konzentration an höheren KW nicht bekannt. Bei hohen Konzentrationen würde sich der CO₂-Ausstoß je Nm³tr Produktgas stark erhöhen (mehrere C-Atome, die bei der vollständigen Verbrennung zu CO2 oxidiert werden). Für den Brennstoff HKS wäre eine erhöhte Konzentration an höheren KW aufgrund der Ähnlichkeit zum Brennstoff Rejekt zu erwarten.

5.2 Ökologie

Die Berechnung der zu erwartenden Schadstoffemissionen wurden für die Brennstoffe HKS und Altholz entsprechend der Korrelationen aus Abbildung 41 (NH₃), Abbildung 42 (H₂S) und Abbildung 21 (HCl) durchgeführt. Aus der Betrachtung der Messpunkte der Pilotanlage 3. Generation und 4. Generation ergibt sich ein größerer Toleranzbereich für die Schadstoffemissionen NH₃ und H₂S. In Tabelle 18 sind die errechneten Werte für den Brennstoff HKS dargestellt.

Tabelle 18: Anwendung des Prognosemodells für Hartkunststoffe aus der Elektronikschrottaufbereitung – Schadstoffemissionen

	T ' 1 '		Tolera	anzbereich
Parameter	Einheit	HKS	Untere Grenze	Obere Grenze
NH ₃ -Gehalt	ppm _{tr}	2.622	1.500	4.000
H ₂ S-Gehalt	ppm _{tr}	125	50	200
HCl-Gehalt	ppm_{tr}	1.718	-	-

Sowohl NH₃- (2.622 ppm_{tr}) als auch H₂S-Gehalt (125 ppm_{tr}) befinden sich im Vergleich zu anderen Brennstoffen, die bereits an der Pilotanlage eingesetzt worden sind, im eher niedrigeren Wertebereich. Der große Toleranzbereich für den NH₃-Gehalt (1.500-4.000 ppm_{tr}) deckt weitgehend mögliche Abweichungen des tatsächlichen Wertes ab. Der HCl-Gehalt (1.718 ppm_{tr}) hingegen ist aufgrund des großen Chloranteils im Brennstoff sehr hoch. Weiters muss wegen der Flammschutzmittel von Bromanteilen im Brennstoff (siehe Kapitel 4.1.6) ausgegangen werden. Beispielsweise wurde mittels RFA ein Bromgehalt von 236,2 ppm in Kunststoffen aus EAG festgestellt. [79] Beispielsweise für EPS und XPS aus Abbruch sind weitaus höhere Bromanteile zu erwarten (5.219 ppm – Mittelwert aus 3 Proben [80]).

Die AVV schreibt für Brennstoffe, die einen Halogenanteil von > 1 mass.-% (berechnet als Chloride) besitzen, eine Nachverbrennung bei 1.100 °C und mehr als 2 Sekunden Verweilzeit vor. [20] Die Nachbrennkammer der DFB-Anlage Oberwart wurde bereits auf das Temperaturniveau von 850 °C ausgelegt. Demnach wäre die Co-Vergasung von HKS mit anderen Brennstoffen, die einen wesentlich geringeren Chlorgehalt aufweisen, anzudenken, um den Anteil an halogenierten organischen Substanzen von > 1 mass.-% nicht zu überschreiten. Da bereits Synergieeffekte hinsichtlich der Teerreduktion bei der Co-Vergasung von Kunststoffen und holzartiger Biomasse beobachtet werden konnten [12], wäre diese Variante nicht abwegig. Im Allgemeinen sollte bei der DFB-Vergasung von HKS ein hoher Kalkanteil im Bettmaterial vorliegen, damit eine Einbindung von HCl stattfinden kann.

Die berechneten Daten für den Brennstoff Altholz sind in Tabelle 19 aufgelistet. Es ist ersichtlich, dass der NH₃-Gehalt (16.354 ppm_{tr}) aufgrund des großen Stickstoffanteils in der Altholzfraktion sehr hoch ist. Der H₂S-Gehalt (183 ppm_{tr}) ist im Vergleich zu den Versuchsdaten für andere Brennstoffe gering, wohingegen der HCl-Gehalt (89 ppm_{tr}) geringfügig höher ist (Vergleich Versuche an der Pilotanlage 3. Generation). Wie auch bei dem Brennstoff HKS, ist der Toleranzbereich für den NH₃-Gehalt (9.500-24.000 ppm_{tr}) groß.

Damanaatan	T:1:4	A 141 1	Toleranzbereich	
Parameter	Einneit	Althoiz	Untere Grenze	Obere Grenze
NH ₃ -Gehalt	ppm _{tr}	16.354	9.500	24.000
H ₂ S-Gehalt	ppm _{tr}	183	50	300
HCl-Gehalt	ppm _{tr}	89	-	-

Tabelle 19: Anwendung des Prognosemodells für Altholz – Schadstoffemissionen

Der gemessene H₂S-Gehalt im Produktgas, resultierend aus der Vergasung des Rejekts, beträgt 566 ppm_{tr}. Im Falle der Vergasung der alternativen Brennstoffe HKS und Altholz würde eine Unterschreitung der obigen H₂S-Konzentration vorliegen. Aus der Vergasung des Altholzes würde bei Betrachtung der unteren Grenze ein geringfügig niedrigerer NH₃-Gehalt (9.500 ppm_{tr}) als bei der Vergasung des Rejekts (11.166 ppm_{tr}) hervorgehen. Die durch Korrelation berechnete NH₃-Konzentration (16.354 ppm_{tr}) ist jedoch um den Faktor 1,5 größer als jene des Produktgases aus dem Rejekt. Der aus der Vergasung der HKS-Fraktion zu erwartende NH₃-Gehalt ist jedenfalls geringer. Die HCl-Konzentration (93 ppm_{tr}) des Rejekts ist mit jener, welche sich aus der Vergasung des Altholzes ergeben würde, ähnlich. Der Vergleich der HCl-Konzentration aus den Brennstoffen HKS und Rejekte zeigt, dass die HCl-Konzentration für die Vergasung der HKS um den Faktor 18,5 höher wäre.

5.3 Ökonomie und Potential

Neben der technischen Machbarkeit und den ökologischen Aspekten, ist auch der kommerzielle Betrieb der DFB-Anlage von Bedeutung. Der Umbau der ehemaligen KWK-Anlage zur Erzeugung eines Erdgassubstituenten aus alternativen Brennstoffen hat bereits hohe Investitionskosten zur Erfüllung der Vorgaben gemäß AVV mit sich gebracht. Das Ziel der Auswahl eines adäquaten Brennstoffs bei ökonomischer Betrachtung ist der Anfall von möglichst geringen variablen Kosten beim Betrieb der Anlage. Aus diesem Grund können für die Auswahl eines alternativen Brennstoffs folgende Kriterien in Betracht gezogen werden:

- Beschaffungspreis des Brennstoffs ist im besten Fall negativ
- Geringe Kontamination der Asche, um Entsorgungskosten einzusparen
- Gegebenenfalls kann hohe Qualität der Asche den Einsatz als Ersatzrohstoff ermöglichen
- Geringe Kontamination des Brennstoffs mit Vorläufersubstanzen f
 ür Schadstoffemissionen, um die Menge an beladenen Adsorbens (Herdofenkoks und Kalk – siehe Abbildung 9) zu reduzieren
- Geringer Wassergehalt, um die thermische Effizienz zu erhöhen
- Geringes O/H-Brennstoff Verhältnis, um einen hohen Produktgasheizwert (siehe Abbildung 28) zu erreichen und zusätzliche Kosten f
 ür h
 öhere Mengen an Erdgas zur Co-Verbrennung in der Bindemittelproduktion einzusparen
- Stillstand der Anlage und Wartungen geringhalten (verursacht durch Anbackungen, Korrosion, ...)
- Hohe gravimetrische/volumetrische Energiedichte, damit Förder- und Transportkosten gering bleiben

Die Brennstoffe HKS und Altholz weisen sehr hohe Aschegehalte auf. Bei hoher Kontamination der Asche ist daher mit hohen Entsorgungskosten zu rechnen. Weiters sind die Transport- und Förderkosten für Brennstoffe mit hohen Aschegehalten zu beachten. Beispielsweise sind bei der Altholzfraktion 60,3 % der gesamten zur transportierenden Masse nicht brennbares Material, welches brennstofftechnisch inert durch das DFB-System in den Störstoffbehälter gelangt. Ein Abscheidesystem für leicht abtrennbare, anorganische Materialien vor der Beschickung des Vergasungsreaktors wäre zwar von Vorteil, würde jedoch nichts an den hohen Transportkosten ändern. Weiters bringt der Transport von Brennstoffen mit geringer gravimetrischer/volumetrischer Energiedichte einen verstärkten CO₂-Ausstoß mit sich. Demnach wäre die Abscheidung von inerten Störstoffen bereits bei der Aufbereitung des EBS aus ökologischer Sicht besser. Dies wäre allerdings mit einem preislichen Nachteil hinsichtlich der Brennstoff HKS zu favorisieren. Die durch den Brennstoff HKS eingetragene Vorläufersubstanz Chlor kann zur schnelleren Beladung des Adsorbens führen und damit die Betriebskosten für den langfristigen Betrieb der Anlage mit HKS als Brennstoff erhöhen. In diesem Fall wäre der Einsatz der Altholzfraktion wirtschaftlicher. Der Produktgasheizwert ist für beide untersuchten Brennstoffe HKS und Altholz relativ hoch und dadurch positiv zu bewerten.

Das Potential der alternativen Brennstoffe HKS, Altholz und EPS/XPS ist in Tabelle 20 dargestellt. Die für die Bio-Brennstoff GmbH verfügbaren Mengen wurden aus [52] entnommen. Die Berechnung des Marktanteils erfolgte anhand der in Österreich verfügbaren Mengen aus Kapitel 4.1 und den Daten aus [52]. Weiters wurde das Potential für die alternativen Brennstoffe aus dem jeweiligen Heizwert und den Betriebsstunden berechnet.

Wiederum ist zu beachten, dass es sich für die Betrachtung der Potentiale der HKS- und Altholzfraktion um die Trockensubstanz handelt.

	Einheit	HKS	Altholz	EPS/XPS
Prüfbericht-Nr.	-	PL-20009-A	PL-20009-B	-
Anteil vom Markt	%	22	5 - 19 ⁴⁴	50
Verfügbare Menge	t a ⁻¹	5.000	10.000 - 40.000	2.500
Potential ⁴⁵	$\mathrm{MW}_{\mathrm{th}}$	3,18	3,29 -13,16	3,5246

Tabelle 20: Potential für verfügbare Mengen der alternativen Brennstoffe

Der geschätzte, beziehbare Marktanteil an EPS/XPS ist in Relation zu jenem der Brennstoffe HKS und Altholz deutlich geringer. Trotz der geringen Menge an EPS/XPS ergibt sich wegen des hohen Heizwertes ein großes Potential von 3,52 MW_{th}. Die verfügbare Menge für HKS ist doppelt so hoch wie jene der EPS/XPS, das Potential von HKS geringfügig niedriger (3,18 MW_{th}). Aufgrund der hohen Schwankungsbreite, des möglich beziehbaren Marktanteils an Altholz, ergibt sich ein Potential von 3,29 bis zu 13,16 MW_{th}.

 ⁴⁴ Annahme: Marktanteil der Altholzfraktionen SN 17114, 17115, 17212, 17213, 17216, 17218 – Gesamtaufkommen 214.200 t im Jahr 2015

⁴⁵ Annahme: 7.500 Betriebsstunden (nach [81])

⁴⁶ Der Heizwert von EPS/XPS liegt bei ungefähr 38 MJ kg⁻¹. [59]

6 Conclusio

Die möglichen Tendenzen von Zusammenhängen für Produktgaseigenschaften in Abhängigkeit der elementaren Zusammensetzung des Brennstoffs sind in Abbildung 39 dargestellt. Diese sind in einem Van Krevelen Diagramm, welches das atomare H/C-Verhältnis dem O/C-Verhältnis im Brennstoff gegenüberstellt [26], aufgetragen. Biogene Brennstoffe befinden sich typischerweise in dem ovalen, grün hinterlegten Bereich. Der ovale, grau hinterlegte Bereich für Kunststoff- und Abfallfraktionen wurde passend für die Brennstoffe SLF, MWF, MWF/Lignit, Rejekt und HKS eingezeichnet. Da sich für Zusammenhänge der Produktgaseigenschaften und des H/C-Verhältnisses im Brennstoff keine eindeutigen Tendenzen ergeben haben, sind lediglich die Abhängigkeiten der Produktgaseigenschaften von dem O/C-Verhältnis dargestellt. In Hinblick auf das H2/CO-Verhältnis haben sich für Kunststoff- sowie Abfallfraktionen (links in Abbildung 39) und biogene Brennstoffe (rechts in Abbildung 39) andere Tendenzen ergeben. Es zeigt sich ein Anstieg des Produktgasheizwertes (in Abbildung 39 bezeichnet als LHV), PGY, GC/MS Teergehalts- und der CH₄-Konzentration mit sinkendem O/C-Verhältnis. Mit steigendem O/C-Verhältnis ist ein höherer CO- und CO₂-Gehalt im Produktgas zu erwarten. Interessant ist die abweichende Tendenz für das H₂/CO-Verhältnis im Produktgas hinsichtlich des O/C-Verhältnisses im Brennstoff. Dies könnte auf die verschiedenen Radikale, die im Zuge der pyrolytischen Zersetzung entstehen und für die Formierung verschiedener Produktgasbestandteile, zurückzuführen sein. Die in Abbildung 39 dargestellten Tendenzen stimmen beim Vergleich der berechneten Daten für die Brennstoffe Rejekt, HKS und Altholz beziehungsweise für die Versuchsdaten der Brennstoffe MWF und SLF nicht gänzlich überein (z.B. CH4-Gehalt oder H₂/CO-Verhältnis), da die Abhängigkeit von dem atomaren H/C-Verhältnis ebenfalls berücksichtigt werden muss.



Abbildung 39: Zusammenfassung der Ergebnisse in einem Van-Krevelen Diagramm

Trotz der vereinzelten Anteile an Kunststoffen in der Altholzfraktion, wäre eine Auftragung des H/C- und O/C-Verhältnisses in der Nähe des Bereichs für biogene Brennstoffe zu erwarten gewesen. Der Punkt befindet sich jedoch in unmittelbarer Nähe des Bereichs für Kunststoff- und Abfallfraktionen. Dies könnte ein Grund für die geringe Abweichung der Daten für den Brennstoff Altholz gegenüber den Daten für die Brennstoffe Rejekt und HKS aus Abbildung 38 sein (beispielsweise hoher zu erwartender Produktgasheizwert bei ähnlich geringem Brennstoff-O).

In Conclusio lässt sich hinsichtlich der Vergasertauglichkeit hervorheben, dass die Fließ- und Transporteigenschaften der Altholzfraktion aufgrund der unregelmäßig geformten Teilchen und stark variierenden Teilchengröße etwas schlechter als jene der HKS-Fraktion zu erwarten sind. Die unregelmäßig geformten Teilchen aus dem weitgehend inhomogenen Materialmix organischer und anorganischer Bestandteile kann im Brennstoffbunker zum Verkeilen der Teilchen und damit zur Brückenbildung führen. Im Falle der HKS-Fraktion könnte es wegen der geknüllten Teilchenform zu einem unerwünschten Kernfluss kommen.

Aufgrund der hohen Anteile an flüchtigen Bestandteilen in den Brennstoffen HKS (92,66 mass.-%tr.af) und Altholz (96,45 mass.-%tr.af), ist mit einem höheren Brennstoffbedarf in der Brennkammer, der für die zur Bereitstellung der notwendigen Wärmeleistung verantwortlich ist, zu rechnen. Der benötigte Brennstoffmassenstrom ist hinsichtlich der Brennstoffwärmeleistung der DFB-Anlage in Oberwart zu berücksichtigen. Bei geringem Heizwert und hohem Aschegehalt, wie es im Falle der Altholzfraktion zutrifft, muss eine größere Menge an Brennstoff dem Vergasungsreaktor zugeführt werden. Dies gilt bei der maximalen Auslastung der Förderaggregate zu berücksichtigen. Die zu erwartende Produktgasqualität (im Falle der Vergasung in der 100 kWth Pilotanlage der TU Wien) ist für die Brennstoffe Rejekt und HKS sehr ähnlich. Aus ökologischer Sicht ist der Brennstoff HKS wegen des hohen Chlorgehalts (16,27 mass.-%tr,af) und den damit verbundenen HCl-Emissionen (zu erwarten: 1.718 ppm_{tt}) weniger empfehlenswert. Dieser kann im Zuge einer Co-Vergasung lediglich beigemengt werden. Sofern der Heizwert des Produktgases (zu erwarten: 14,66 MJ Nm⁻³tr), welches aus der Vergasung der Altholzfraktion hervorgehen würde, ein realistischer Wert ist, ist die Altholzfraktion zu favorisieren. Sowohl H₂S- (zu erwarten: 183 ppmtr) als auch HCl-Emissionen (zu erwarten: 89 ppmtr) würden sich bei der Vergasung des Altholzes in Grenzen halten. Allerdings sind hohe NH₃-Emissionen (16.354 ppmt) zu erwarten, wobei NH₃ in dem RME-Wäscher der DFB-Anlage in Oberwart teilweise abgeschieden wird. Anhand des Abscheidegrades im RME-Wäscher sowie der Grenzwerte gemäß der AVV aus Tabelle 4 wäre eine Beurteilung bezüglich der NH₃-Emissionen vorzunehmen. In Anbetracht der ökonomischen Aspekte bezüglich der Transport- und Förderkosten des Brennstoffs sowie Entsorgungskosten der Asche bei möglicher Kontamination (hoher Aschegehalt), wäre die Wahl des Brennstoffs HKS von Vorteil. Das Potential der Altholzfraktion ist mit 3,29 -13,16 MW_{th} jedenfalls höher als jenes der HKS-Fraktion (3,18 MW_{th}).

7 Ausblick

Die Verwertung von Altholz und HKS in der DFB-Anlage Oberwart entspricht in Hinblick auf die brennstofftechnischen Eigenschaften (Aschegehalt und Heizwert) und ökologischen Aspekte (Altholz – NH₃-Konzentration, HKS – HCl-Konzentration) aus Sicht der Effizienz des Prozesses eher einer Entsorgung dieser Abfallfraktionen. Sofern die Abnahme der Abfallfraktionen aus ökonomischer Sicht (negative Preise) profitabel für den Betrieb der DFB-Anlage Oberwart ist, kann der Einsatz dieser Brennstoffe unter Beachtung der physikalisch-mechanischen Eigenschaften und des Eintrags von Vorläufersubstanzen für Schadstoffemissionen erfolgreich vorgenommen werden. Auf diesem Wege können die Abfallfraktionen stofflich zu einem mittelkalorischen Sekundärenergieträger für die Bindemittelproduktion und zu einem Ersatzrohstoff, wenn die Möglichkeit hinsichtlich der Aschezusammensetzung besteht, verwertet werden.

Die Korrelationen aus dem Modell sind apparatespezifisch und ermöglichen die Berechnung der zu erwartenden Eigenschaften des Produktgases, das aus der Vergasung des Brennstoffs in der 100 k W_{th} Pilotanlage der TU Wien hervorgehen würde. Bei bekannter Elementaranalyse eines neuen Brennstoffs, der für den Einsatz in die DFB-Anlage Oberwart angedacht ist, kann über dieses Modell eine erste Abschätzung für die Produktgaszusammensetzung erhalten werden. Demnach können die Versuchsdaten aus der Vergasung des Rejekts als Referenzdaten angesehen und so ein Vergleich zwischen dem neuen Brennstoff und Rejekt vorgenommen werden. Dies ermöglicht eine rasche Vorselektion von möglichen Brennstoffen. Weiters wäre es mithilfe der Elementaranalyse möglich im Falle von Brennstoffen mit biogenem Anteil (beispielsweise Altholz), den Anteil der CO₂-Emissionen, die aus dem biogenen Kohlenstoffanteil im Brennstoff stammen, zu bestimmen. Somit wäre es möglich CO₂-Einsparungen, die aus dem Einsatz von EBS zur Herstellung eines Sekundärenergieträgers anstelle der Nutzung fossiler Energieträger resultieren, nachzuweisen.

Wegen der hohen Anteile an Halogenen in alternativen Brennstoffen, wie beispielsweise bei HKS (PVC-Anteil) oder auch EPS/XPS (bromierte Flammschutzmittel), muss die Einhaltung der Emissionsgrenzwerte gemäß AVV für den Gehalt an Halogenen im Produktgas (HCl, HBr) berücksichtigt werden. Vorausberechnungen der zu erwartenden Konzentrationen an Schadstoffemissionen sowie bekannte Abscheidegrade des Schlauchfilters und RME-Wäschers ermöglichen eine erste Einschätzung, ob der Einsatz dieser Brennstoffe in der DFB-Anlage Oberwart den Forderungen der AVV gerecht werden kann. Beispielsweise errechnet sich für die HKS-Fraktion eine HCl-Konzentration von 282 g Nm⁻³tr (1.718 ppmtr). Eine Beimischung der heizwertreichen, aber stark halogenierten Brennstoffe zu anderen Brennstoffen, die beispielsweise geringe Anteile an Vorläufersubstanzen aufweisen, wäre im Sinne einer Co-Vergasung möglich. So könnten auch Reststoffe mit niedrigerem Heizwert, die eventuell einen besseren Abnahmepreis erzielen, eingesetzt werden. Jedenfalls kann aufgrund der Brennstoffflexibilität der Anlage eine breite Palette an biogenen Reststoffen und Abfällen für die DFB-Vergasung herangezogen werden. Jedoch müssen verschiedene Kriterien, die in dieser Arbeit aufgezeigt wurden, zur Vorselektion beachtet werden. Letztlich muss ein Kompromiss aus der technischen und ökonomischen Machbarkeit mit dem vorhandenen Potential, unter strenger Einhaltung der ökologischen Richtlinien, eingegangen werden. Dieser wird für jeden alternativen Brennstoff individuell zu finden sein.

- 74 -

8 Anmerkungen

8.1 Symbole

Tabelle 21: Symbolverzeichnis

Symbol	Bezeichnung	Einheit
A	Erweichungstemperatur	°C
В	Sphärischtemperatur	°C
В	Öffnungsbreite bei ebener Auslauföffnung	m
С	Halbkugeltemperatur	°C
D	Fließtemperatur	°C
D	Durchmesser bei rotationssymmetrischer Auslauföffnung	m
LHV _{PG}	Heizwert des Produktgases	MJ Nm ⁻³ tr
PGY	Produktgasausbeute	$Nm^3{}_{tr}kg^{-1}{}_{tr,af}$
φsc	Dampf-zu-Kohlenstoff Verhältnis	$kg_{steam}kg^{\text{-1}}{}_{\text{fuel},C}$
φsf	Dampf-zu-Brennstoff Verhältnis	$kg_{steam}kg^{\text{-1}}{}_{\text{fuel,tr,af}}$
η_{CG}	Kaltgaswirkungsgrad	%
$\eta_{CG,o}$	Gesamtwirkungsgrad des kalten Produktgases	%
X_{H2O}	Brennstoffbezogene Wasserkonversionsrate	$kg_{\rm H2O}~kg^{-1}_{\rm fuel,tr,af}$
X _{max}	Maximale Partikelgröße des Schüttguts	m
Ζ	Ordnungszahl im Periodensystem der Elemente	-
Index	Englische Bezeichnung	Deutsche Bezeichnung
af		aschefrei
fuel	fuel	Brennstoff
loss	loss	Verlust
0	overall	gesamt
steam	steam	Dampf
tr		trocken
th		thermisch
CG	Cold gas	Kaltgas
CR	Combustion reactor	Verbrennungsreaktor

H ₂ O Wasser	
SC Steam-to-carbon Dampf zu Kohlangto	
Se Stean-to-earbon Dampi-2u-Kollelisto	ff
SF Steam-to-fuel Dampf-zu-Brennstoff	2
Chemisches Bezeichnung	
Symbol	
CaCl ₂ Calciumchlorid	
CaF ₂ Calciumfluorid	
CaSO ₃ Calciumsulfit	
CaSO ₄ Calciumsulfat	
CH ₄ Methan	
C ₂ H ₂ Ethin (Acetylen)	
C ₂ H ₄ Ethen (Ethylen)	
C ₂ H ₆ Ethan	
C ₃ H ₈ Propan	
C ₄ H ₄ S Thiophen	
CO Kohlenstoffmonoxid	
CO ₂ Kohlenstoffdioxid	
COS Carbonylsulfid	
CS ₂ Schwefelkohlenstoff	
H ₂ Wasserstoff	
H ₂ O ₂ Wasserstoffperoxid	
H ₂ S Schwefelwasserstoff	
H ₂ SO ₄ Schwefelsäure	
HCl Salzsäure	
HBr Bromwasserstoff	
HCN Cyanid	
HF Fluorwasserstoff	
KCl Kaliumchlorid	
N ₂ Stickstoff	
N ₂ O Distickstoffoxid	
NaCl Natriumchlorid	
NH ₃ Ammoniak	
(NH ₄) ₂ SO ₄ Ammoniumsulfat	
(NH ₄) ₂ S ₂ O ₃ Ammouniumthiosulfat	
NO _x Stickoxide	
O ₂ Sauerstoff	
R-SH Thiol (Mercaptanschwefel)	
SO ₂ Schwefeldioxid	

8.2 Abkürzungen

Tabelle 22: Abkürzungsverzeichnis

Abkürzung	Englische Bezeichnung	Deutsche Bezeichnung
ABS		Acrylnitril-Butadien-Styrol
AG		Abgas
ASR	Automotive shredder residue	Reststoffe aus der Autoverwertung in
		Schredderanlagen
ATO		Antimontrioxid
AVV		Abfallverbrennungsverordnung
BA	Bark	Rinde
DFB	Dual fluidized bed	Zweibett-Wirbelschicht
EAG		Elektro- und Elektronikaltgeräte
EBS		Ersatzbrennstoffe
EOP	Exhausted olive pomace	Olivenbagasse
EPS		Expandiertes Polystyrol
GC/MS		Gaschromatographie gekoppelt mit
		Massenspektroskopie
HBCD		Hexabromcyclododecan
H-FCKW		Teilhalogenierte Fluor-
		Chlorkohlenwasserstoffe
HFKW		Teilfluorierte Kohlenwasserstoffe
HKS		Hartkunststoffe
HMW		Halbstundenmittelwert
KET		Konventionelle Energieträger
KW		Kohlenwasserstoff
KWK		Kraft-Wärme-Kopplung
LHV	Lower heating value	Heizwert
LIG		Lignit (Weichbraunkohle)
LSP	Lower sample point	Unterer Messpunkt
MWF	Municipal solid waste fraction	Hausmüllfraktion
ÖVGW		Österreichische Vereinigung für das
		Gas- und Wasserfach
ORC	Organic rankine cycle	
РАК		Polycyclische aromatische
		Kohlenwasserstoffe
PBDE		Polybromierte Diphenylether
PC		Polycarbonat

PCDD		Polychlorierte Dibenzodioxine
PCDF		Polychlorierte Dibenzofurane
PG		Produktgas
PGY	Product gas yield	Produktgasausbeute
РОР	Persistent organic pollutants	Persistente organische Schadstoffe
РР		Polypropylen
PS		Polystyrol
PVC		Polyvinylchlorid
RFA		Röntgenfluoreszenzanalyse
RH	Rice husk	Reisschalen
RME		Rapsmethylester
SCB	Sugar cane bagasse	Zuckerrohrbagasse
SER	Sorption enhanced reforming	
SLF	Shredder light fraction	Schredderleichtfraktion
SN		Schlüsselnummer
SNCR	Selective non-catalytic reduction	Selektive nichtkatalytische Reduktion
SNG	Synthetic natural gas	Ugs. Synthetisches Erdgas
SW	Soft wood	Weichholz
TMW		Tagesmittelwert
USP	Upper sample point	Oberer Messpunkt
WAM	With additional measures	Mit zusätzlichen Maßnahmen
XPS		Extrudiertes Polystyrol

9 Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1: Entwicklung des Bruttoinlandsverbrauches an Energie 1970-2017 & Potentiale für die Jahre 2030
& 2050 [3]
Abbildung 2: Energiefluss Österreich 2017 [3]
Abbildung 3: Anteil erneuerbarer Energieträger am Bruttoinlandsverbrauch mit & ohne Bioenergie 1970-2017 [3]
Abbildung 4: Kumulative Beiträge zum globalen Kohlenstoffbudget seit 1870 [3] 4
Abbildung 5: Links – Verwertung & Beseitigung von Abfällen (ohne Aushubmaterialien) in Österreich 2017 [13]
; Rechts – Abfallhierarchie [10]
Abbildung 6: Thermochemische Umwandlung eines Partikels (aus [14] entnommen und angepasst)7
Abbildung 7: Prinzip der Zweibett-Wirbelschicht-Vergasung (aus [14] entnommen und angepasst)
Abbildung 8: Verfahrensfließbild der KWK-Anlage in Oberwart (entnommen aus [16] und abgeändert)
Abbildung 9: Verfahrensfließbild der DFB-Anlage in Oberwart [21]15
Abbildung 10: Aufbau des DFB-Systems in Güssing (Links); Aufbau der Pilotanlage der TU Wien – 3. Generation
(Mitte) & 4. Generation (Rechts) [22] 16
Abbildung 11: Grundfließschema der neuartigen 100 kWth Pilotanlage (4. Generation) [23] 18
Abbildung 12: Produktgasreinigung vor der Online-Gasanalyse [23] 19
Abbildung 13: Aufbau zur Bestimmung des Teergehalts im Produktgas [23] 19
Abbildung 14: Verschiedene Brennstoffe für die Versuche an der 100 kWth Pilotanlage der TU Wien [33] 23
Abbildung 15: Energiebedarf der österreichischen Zementindustrie [8]
Abbildung 16: Einsatzmengen von EBS in Anlagen der österreichischen Zementindustrie im Zeitraum von 2008
bis 2018 (Daten aus [5, 37] entnommen)
Abbildung 17: Wechselwirkungen zwischen den physikalisch-mechanischen Eigenschaften von festen, biogenen
Brennstoffen [14]
Abbildung 18: Reaktionsnetzwerk für den im Brennstoff befindlichen Stickstoff (entnommen aus [43])
Abbildung 19: Lineare Korrelation des Brennstoff-N und der NH ₃ -Konzentration im Produktgas
Abbildung 20: Lineare Korrelation des Brennstoff-S und der H2S-Konzentration im Produktgas
Abbildung 21: Lineare Korrelation des Brennstoff-Cl und der HCl-Konzentration im Produktgas
Abbildung 22: Lineare Korrelation der C2H2-Konzentration und Teergehalts im Produktgas (Pilotanlage 4.
Generation)
Abbildung 23: Exponentielle Korrelation der C ₂ H ₄ -Konzentration und Teergehalts im Produktgas (Pilotanlage 4.
Generation)
Abbildung 24: Lineare Korrelation des Brennstoff-H und H_2 /CO-Verhältnisses im Produktgas (Pilotanlage 4.
Generation)
Abbildung 25: Lineare Korrelation des Brennstoff-H und der CH ₄ -Konzentration im Produktgas (Pilotanlage 4.
Generation)
Abbildung 26: Exponentielle Korrelation der CH ₄ - und CO-Konzentration im Produktgas (Pilotanlage 4.
Generation)

Abbildung 27: Korrelation des Brennstoff-C und der CO2-Konzentration im Produktgas (Pilotanlage
Generation)
Abbildung 28: Lineare Korrelation des Brennstoff-O/H-Verhältnisses und Heizwertes des Produktgases - ohn
Teer & Koks (Pilotanlage 4. Generation)
Abbildung 29: Lineare Korrelation des Brennstoff-O/H-Verhältnisses und GC/MS-Teergehalts im Produktga
(Pilotanlage 4. Generation)
Abbildung 30: Lineare Korrelationen des Brennstoff-O und brennstoffbezogene Wasserkonversionsrate sowi
PGY (Pilotanlage 4. Generation)
Abbildung 31: Rejekt
Abbildung 32: Monomer des Polystyrols (PS) [55]
Abbildung 33: Heizwert in Abhängigkeit des Wassergehalts des Klärschlamms [71] 5
Abbildung 34: Eigenschaften des Klärschlamms in Abhängigkeit vom Wassergehalt und Verfahren zu
Entwässerung [71]
Abbildung 35: Altholz
Abbildung 36: Hartkunststoffe aus der Elektronikschrottaufbereitung
Abbildung 37: Monomer des Polycarbonats
Abbildung 38: Vergleich der Daten aus dem Prognosemodell für die Brennstoffe Rejekt, HKS und Altholz 6
Abbildung 39: Zusammenfassung der Ergebnisse in einem Van-Krevelen Diagramm
Abbildung 40: Ausgabe des Python-Skripts
Abbildung 41: Lineare Korrelation des Brennstoff-N und der NH3-Konzentration im Produktgas
Gesamtbetrachtung
Abbildung 42: Lineare Korrelation des Brennstoff-S und der H2S-Konzentration im Produktgas
Gesamtbetrachtung
$Abbildung \ 43: Exponentielle \ Korrelation \ des \ Brennstoff-H \ und \ H_2/CO-Verhältnisses \ im \ Produktgas-Alternative \ Alternative \ $
Modell (Pilotanlage 4. Generation)
Abbildung 44: Exponentielle Korrelation der flüchtigen Bestandteile und CH4-Konzentration im Produktgas
Alternatives Modell (Pilotanlage 4. Generation)
Abbildung 45: Exponentielle Korrelation der CH4- und CO-Konzentration im Produktgas – Alternatives Mode
(Pilotanlage 4. Generation)
Abbildung 46: Darstellung Brennstoff-C und CO2-Konzentration im Produktgas – Alternatives Mode
(Pilotanlage 4. Generation)
Abbildung 47: Lineare Korrelation des Brennstoff-O/C-Verhältnisses und Heizwertes des Produktgases - ohn
Teer & Koks (Pilotanlage 4. Generation)
Abbildung 48: Korrelation des Brennstoff-H/C-Verhältnisses und Heizwertes des Produktgases (ohne Teer &
Koks) – Alternatives Modell (Pilotanlage 4. Generation)
Abbildung 49: Exponentielle Korrelation des Brennstoff-O/H-Verhältnisses und GC/MS-Teergehalts in
Produktgas – Alternatives Modell (Pilotanlage 4. Generation)

10 Tabellenverzeichnis

Tabelle 1: Ausgewählte Reaktionen in der DFB-Dampfvergasung und Verbrennung [12]
Tabelle 2: Kenndaten der KWK-Anlage Oberwart [17, 18] 11
Tabelle 3: Kenndaten der DFB-Anlage Oberwart [19, 21] 14
Tabelle 4: Grenzwerte für gereinigtes Produktgas aus der Vergasungs- oder Pyrolyseanlage [20, 38] 29
Tabelle 5: Gesamtemissionsgrenzwerte f Gesamtemissionsgrenzwerte f 29
Tabelle 6: Elementaranalyse des biogenen Brennstoffs
Tabelle 7: Anwendung des Prognosemodells für den biogenen Brennstoff und Validierung der Daten 50
Tabelle 8: Darstellung der Versuchsdaten für die Brennstoffe - Rejekt, MWF, SLF und SWP (* Daten aus IPSEpro)
Tabelle 9: Charakteristische Zusammensetzung von Säureteer [62]
Tabelle 10: Geschätzte Mengen an Säureteer- und -harzdeponien [68] 56
Tabelle 11: Aufkommen und Behandlung der kommunalen Klärschlämme im Jahr 2015 [10] 57
Tabelle 12: Aufkommen von Holzabfällen nach Abfallgruppen in den Jahren 2015 und 2017 [10, 72] 59
Tabelle 13: Schätzung des Kunststoffabfallaufkommens in EAG nach Polymertypen in 2015 [61]60
Tabelle 14: Immediatanalyse für Altholz und Hartkunststoffe aus der Elektronikschrottaufbereitung [76] 63
Tabelle 15: Elementaranalyse für Altholz und Hartkunststoffe aus der Elektronikschrottaufbereitung [76] 64
Tabelle 16: Anwendung des Prognosemodells für Hartkunststoffe aus der Elektronikschrottaufbereitung -
Produktgashauptkomponenten und Heizwert
Tabelle 17: Anwendung des Prognosemodells für Altholz – Produktgashauptkomponenten und Heizwert 67
Tabelle 18: Anwendung des Prognosemodells für Hartkunststoffe aus der Elektronikschrottaufbereitung -
Schadstoffemissionen
Tabelle 19: Anwendung des Prognosemodells für Altholz – Schadstoffemissionen
Tabelle 20: Potential für verfügbare Mengen der alternativen Brennstoffe
Tabelle 21: Symbolverzeichnis 75
Tabelle 22: Abkürzungsverzeichnis
Tabelle 23: Siebanalyse der Brennstoffe Altholz und Hartkunststoffe aus der Elektronikschrottaufbereitung 94

11 Literaturverzeichnis

- Bundesministerium f
 ür Nachhaltigkeit und Tourismus, "Energie in Österreich 2018 [Bericht]," Bundesministerium f
 ür Nachhaltigkeit und Tourismus, Wien, 2018.
- [2] P. Biermayr, C. Dißauer, M. Eberl, E. Monika, H. Fechner, L. Fischer, B. Fürnsinn, K. Leonhartsberger, S. Moidl, C. Schmidl, C. Strasser, W. Weiß, P. Wonisch und E. Wopienka, Innovative Energietechnologien in Österreich Marktentwicklung 2018 [Bericht], Wien: Bundesministerium für Verkehr, Innovation und Technologie, 2019.
- [3] Österreichischer Biomasse-Verband, Basisdaten Bioenergie Österreich, Wien: Österreichischer Biomasse-Verband, 2019.
- [4] I. Schindler und I. Szednyj, "Aktuelle Entwicklungen hinsichtlich Abfalleinsatz und Emissionsminderungstechniken in der Zementindustrie [Bericht]," Umweltbundesamt, Wien, 2004.
- [5] G. Mauschitz, "Emissionen aus Anlagen der österreichischen Zementindustrie Berichtsjahr 2018 [Bericht]," Wien, 2019.
- [6] Vereinigung der österreichischen Zementindustrie, "Energieeffizienz der österreichischen Zementindustrie [Bericht]," 2010.
- [7] T. Schwarzböck, H. Rechberger, P. Aschenbrenner, S. Spacek, S. Szidat und J. Fellner, "Klimarelevanz von Ersatzbrennstoffen - Anwendung und Vergleich verschiedener Bestimmungsmethoden," Österreichische Wasser- und Abfallwirtschaft Volume 70, 2018.
- [8] Vereinigung der österreichischen Zementindustrie, "Jahresbericht 2018/19 der österreichischen Zementindustrie [Bericht]," Wien, 2019.
- [9] "WKO," [Online]. Available: https://www.wko.at/service/umwelt-energie/kreislaufwirtschaft html. [Zugriff am 20 Juni 2020].
- [10] Bundesministerium f
 ür Nachhaltigkeit und Tourismus, "Bundesabfallwirtschaftsplan 2017 [Bericht]," Wien, 2017.
- [11] H. Rechberger, Thermische Abfallverwertung [Skriptum], Wien, 2019.
- [12] V. Wilk, Extending the range of feedstock of the dual fluidized bed gasification process towards residues and waste [Dissertation], TU Wien, 2013.
- [13] Bundesministerium für Nachhaltigkeit und Tourismus, "Die Bestandsaufnahme der Abfallwirtschaft Österreich [Bericht]," Wien, 2019.

- [14] M. Kaltschmitt, H. Hartmann und H. Hofbauer, Energie aus Biomasse Grundlagen, Techniken und Verfahren, Berlin: Springer-Verlag, 2016.
- [15] H. Hofbauer und M. Massimiliano, "Substitute Natural Gas from Waste," in Waste gasification processes for SNG production, Wien, London, Academic Press, 2019, pp. 105-160.
- [16] V. Wilk und H. Hofbauer, "Analysis of optimization potential in commercial biomass gasification plants using process simulation," *Fuel Processing Technology Volume 141*, 2016.
- [17] J. Kotik, Über den Einsatz von Kraft-Wärme-Kopplungsanlagen auf Basis der Wirbelschicht-Dampfvergasung fester Biomasse am Beispiel des Biomassekraftwerks Oberwart [Dissertation], TU Wien, 2010.
- [18] F. Benedikt, M. Kraussler, D. Konlechner, K. Bosch und M. Hackel, "Proceedings of the 23rd European biomass conference and exhibition," in *Polygeneration at the biomass steam gasification plant Oberwart – evaluation of process chains to produce hydrogen, electricity and heat*, Wien, 2018.
- [19] Bio-Brennstoff GmbH, "Darstellung des Versuchsbetriebs (Zukunftstechnik) [Technischer Bericht]," Wopfing.
- [20] "Rechtsinformationssystem des Bundes," [Online]. Available: https://www.ris.bka.gv.at/GeltendeFassung.wxe?Abfrage=Bundesnormen&Gesetzesnummer=20002239.
 [Zugriff am 9 Januar 2020].
- [21] F. Benedikt, F. Thelen und V. Gubin, "IPSE-Berechnung für einen Versuchsbetrieb der Gaserzeugungsanlage Oberwart [Technischer Bericht]," TU Wien, Wien, 2020.
- [22] J. C. Schmid, "Lange Nacht der Forschung [Poster]," TU Wien, 2016.
- [23] J. C. Schmid, F. Benedikt, J. Fuchs, A. M. Mauerhofer, S. Müller und H. Hofbauer, "Syngas for biorefineries from thermochemical gasification of lignocellulosic fuels and residues - 5 years' experience with an advanced dual fluidized bed gasifier design," *Biomass Conversion and Biorefinery*, 2019.
- [24] J. Fuchs, J. C. Schmid, S. Müller und H. Hofbauer, "Dual fluidized bed gasification of biomass with selective carbon dioxide removal and limestone as bed material," *Renewable and Sustainable Energy Reviews Volume* 107, 2019.
- [25] TU Wien, ICBlab: Integrated chemical and biological lab [Broschüre].
- [26] H. Hofbauer, Basic Engineering Auslegung verfahrenstechnischer Prozesse und Anlagen IV -Verbrennungsanlagen [Skriptum], Wien, 2018.
- [27] "DIN 51730 Pr
 üfung fester Brennstoffe Bestimmung der Asche-Schmelzverhaltens [Norm]," Deutsches Institut f
 ür Normung, 2019.
- [28] "DIN 51718 Pr
 üfung fester Brennstoffe Bestimmung des Wassergehalts und der Analysenfeuchtigkeit [Norm]," Deutsches Institut f
 ür Normung, 2002.

- [29] Universität wien, "Fakultät für Chemie Mikroanalytisches Laboratorium," [Online]. Available: https://www.univie.ac.at/Mikrolabor/chn.htm. [Zugriff am 23 Dezember 2019].
- [30] "DIN EN ISO 16994 Biogene Festbrennstoffe Bestimmung des Gesamtgehaltes an Schwefel und Chlor [Norm]," Deutsches Institut f
 ür Normung, 2016.
- [31] M. Otto, Analytische Chemie, Weinheim: Wiley VCH, 2014.
- [32] F. Wosnitza und H. G. Hilgers, Energieeffizienz und Energiemanagement [Bericht], Aachen: Springer-Verlag, 2012.
- [33] F. Benedikt, J. C. Schmid, J. Fuchs, A. M. Mauerhofer, S. Müller und H. Hofbauer, "Fuel flexible gasification with an advanced 100 kW dual fluidized bed steam gasification pilot plant," *Energy Volume* 164, 2018.
- [34] S. Knaus, Skriptum: Chemische Technologie nachwachsender Rohstoffe, Wien, 2019.
- [35] P. Knaack, Chemische Technologie II Organische Technologie und Makromolekulare Chemie [Skriptum], Wien, 2019.
- [36] J. Fellner, O. Cencic und H. Rechberger, "A New Method to Determine the Ratio of Electricity Production from Fossil and Biogenic Sources in Waste-to-Energy Plants," *Environmental Science & Technology Volume 41*, 2007.
- [37] G. Mauschitz, "Emissionen aus Anlagen der österreichischen Zementindustrie Berichtsjahr 2012 [Bericht]," Wien, 2013.
- [38] "Biogas Netzeinspeisung," [Online]. Available: http://www.biogas-netzeinspeisung.at/rechtlicheplanung/einspeisung-in-das-oeffentliche-gasnetz/gasbegleitstoffe-brenntechnische-daten html. [Zugriff am 9 Januar 2020].
- [39] S. Tuomi, E. Kurkela, I. Hannula und C.-G. Berg, "The impact of biomass drying on the efficiency of a gasification plant co-producing Fischer-Tropsch fuels and heat - A conceptual investigation," *Biomass and Bioenergy Volume 127*, 2019.
- [40] J. C. Schmid, Development of a novel dual fluidized bed gasification system for increased fuel flexibility [Dissertation], TU Wien, 2014.
- [41] M. Stieß, Mechanische Verfahrenstechnik Partikeltechnologie 1, Berlin Heidelberg: Springer Verlag, 2008.
- [42] I. G. Siefert, Stickstoff-, Chlor-, und Schwefelbilanzen über das Biomasse Block Heiz Kraftwerk Güssing [Dissertation], TU Wien, 2004.
- [43] F. Winter, Reaktionstechnik und Verbrennung [Skriptum], Wien, 2019.

- [44] J. Maric, T. B. Vilches, S. Pissot, I. C. Vela, M. Gyllenhammar und M. Seemann, "Emissions of dioxins and furans during steam gasification of Automotive Shredder residue; experiences from the Chalmers 2-4 MW indirect gasifier," *Waste Management Volume 102*, 2019.
- [45] S. Müller und M. Kuba, Thermische Biomassenutzung [Skriptum], Wien, 2020.
- [46] "Wikipedia," [Online]. Available: https://de.wikipedia.org/wiki/Rangkorrelationskoeffizient. [Zugriff am 12 März 2020].
- [47] S. J. Kern, Gasification and co-gasification of coal, biomass and plastics in a dual fluidized bed system [Dissertation], TU Wien, 2013.
- [48] F. Benedikt, M. Kuba, J. C. Schmid, S. Müller und H. Hofbauer, "Assessment of correlations between tar and product gas composition in dual fluidized bed steam gasification for online tar prediction," *Applied Energy Volume 238*, 2019.
- [49] J. C. Schmid, S. Müller, F. Benedikt und J. Fuchs, "Rejekt Gas [Technischer Bericht]," TU Wien, 2016.
- [50] M. Sieber, "Analysenbericht über zwei Brennstoffproben PL-16054-A [Technischer Bericht]," Pr
 üflabor f
 ür Feuerungsanlagen - TU Wien, 2016.
- [51] M. Kolbitsch, First fuel tests at a novel 100 kWth dual fluidized bed steam gasification pilot plant [Dissertation], TU Wien, 2016.
- [52] G. Nemetz, Verfügbare Mengenströme in Österreich [E-Mail vom 12 Mai 2020].
- [53] "Chemie.de," [Online]. Available: https://www.chemie.de/lexikon/Polystyrol html. [Zugriff am 19 Februar 2020].
- [54] L.Nierobis,"Wärmedämmstoffe,"2003.[Online].Available:http://www.waermedaemmstoffe.com/htm/polystyrol.htm.[Zugriff am 13 Februar 2020].
- [55] "Thieme Römpp," [Online]. Available: https://roempp.thieme.de/lexicon/RD-16-03589?searchterm=polystyrol. [Zugriff am 19 Februar 2020].
- [56] S. Knaus, Chemische Technologie organischer Stoffe [Skriptum], Wien, 2019.
- [57] F. Eibensteiner, "EPS/XPS Recycling Baubereich [Bericht]," Linz, 2016.
- [58] Bundesministerium für Land- und Forstwirtschaft, Umwelt und Wasserwirtschaft, "WKO," [Online]. Available: https://www.wko.at/branchen/information-consulting/entsorgungsressourcenmanagement/Merkblatt-HBCD.pdf. [Zugriff am 13 Februar 2020].
- [59] H. Dresch, B. Dima, J. Horn, W. Grüttner, F. E. Mark und J. Vehlow, "Verwertung von Polystyrol-Schaumstoff Abfällen mit HBCD [Technischer Bericht]," Plastics Europe, Brüssel, 2015.
- [60] R. Obernosterer, R. Smutny und E. Jäger, "Nachhaltige FCKW Bewirtschaftung Österreich [Bericht]," Ressourcen Management Agentur, Villach, 2007.

- [61] B. Stoifl, A. Bernhardt, B. Karigl, C. Lampert, M. Neubauer und P. Thaler, "Kunststoffabfälle in Österreich
 Aufkommen und Behandlung Materialien zum Bundes-Abfallswirtschaftsplan 2017 [Bericht],"
 Umweltbundesamt, 2017, Wien.
- [62] "Abfallbewertung," [Online]. Available: https://www.abfallbewertung.org/repgen.php?report=ipa&char_id=1911_Altoe&lang_id=de&avv=&syno n =&kapitel=2>active=no. [Zugriff am 22 Januar 2020].
- [63] H. Martens und D. Goldmann, "Recycling von speziellen flüssigen und gasförmigen Stoffen," in *Recyclingtechnik*, Wiesbaden, Springer-Verlag, 2016, pp. 229-250.
- [64] B. Bilitewski, G. Härdtle und K. Marek, Abfallwirtschaft, Heidelberg: Springer-Verlag, 1994.
- [65] G. Dehoust, P. Küppers, H. Stahl, H. Alwast, A. Häusler, R. Oetjen-Dehne, N. Buschow und H. Conrad, "Potenziale und Maßnahmen zur Vermeidung und insbesondere zur hochwertigen Verwertung gefährlicher Abfälle [Bericht]," Umweltbundesamt, Berlin, 2017.
- [66] "Altlasten," [Online]. Available: https://www.altlasten.gv.at/atlas/verzeichnis/Niederoesterreich/Niederoesterreich-N26.html. [Zugriff am 23 Januar 2020].
- [67] W. Foerst, Ullmanns Enzyklopädie der technischen Chemie Band 6 Dimethylether bis Extraktion, München: Urban & Schwarzenberg, 1955.
- [68] M. Worm, Verfügbare Mengenströme an Säureteer [E-Mail vom 14 Februar 2020].
- [69] J. Oliva, A. Bernhardt, H. Reisinger, M. Domenig und H.-J. Krammer, "Klärschlamm Materialien zur Abfallwirtschaft [Bericht]," Umweltbundesamt, Klagenfurt, 2009.
- [70] M. Pribyl, Untersuchung der Klärschlammveraschung für die zukünftige Phosphorrückgewinnung in den Prozessstrukturen eines Zementwerks [Diplomarbeit], TU Wien, 2019.
- [71] G. Tondl, Oxyfuel Verbrennung von Klärschlamm [Dissertation], TU Wien, 2013.
- [72] M. Höher und L. Strimitzer, "Stoffliche und energetische Verwertung von Holzabfällen [Bericht]," Bundesministerium für Nachhaltigkeit und Tourismus, Wien, 2019.
- [73] C. Edtmaier, Recycling [Skriptum], Wien, 2019.
- [74] A. Leisewitz, H. Kruse und E. Schramm, "Erarbeitung von Bewertungsgrundlagen zur Substitution umweltrelevanter Flammschutzmittel [Forschungsbericht]," Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Frankfurt, 2000.
- [75] "WKO," [Online]. Available: https://www.wko.at/service/umwelt-energie/S-ITU_130206_MB_Grenzueberschreitende_Verbringung_Kunststoff.pdf. [Zugriff am 28 Februar 2020].

- [76] H. Kohl, Vorabergebnisse der Brennstoffanalysen f
 ür Hartkunststoffe aus der Elektronikschrottaufbereitung und Altholz [E-Mail vom 26 Juni 2020].
- [77] M. Piringer und T. Fischer, "Kreislaufwirtschaft mit Produkten aus nachwachsenden Rohstoffen [Bericht]," GLOBAL 2000 Umweltforschungsinstitut, Wien, 2003.
- [78] Kommission der europäischen Gemeinschaften, GRUNBUCH zur Umweltproblematik von PVC, Brüssel, 2000.
- [79] A. Jandric, F. Part, N. Fink, M. Huber-Humer, S. Salhofer und C. Zafiu, "Bromierte Flammschutzmittel in Elektroaltgeräten: Untersuchung der Brom-Konzentration nach Kunststofftypen und Gerätekategorien mittels Röntgenfluoreszenzanalyse," Österreichische Wasser- und Abfallwirtschaft Volume 72, 2019.
- [80] T. Fehn, U. Teipel, R. Schweppe und D. Schulz, "Recycling von Wärmedämmverbundsystemen (WDVS) [Bericht]," Ministerium für Umwelt,Klima und Energiewirtschaft, Baden-Württemberg, 2019.
- [81] M. Hammerschmid, Entwicklung eines virtuellen Planungsraums anhand des Basic Engineering einer Zweibettwirbelschichtvergasungsanlage [Diplomarbeit], TU Wien, 2019.
- [82] "Römpp Thieme," [Online]. Available: https://roempp.thieme.de/lexicon/RD-01-01428?searchterm=aliphatisch. [Zugriff am 11 Juli 2020].

12 Anhang

Python-Skript

-*- coding: utf-8 -*-

Created on Mon Feb 10 11:59:48 2020

@author: vgubin

#Import der benoetigten Module
import pandas as pd
import seaborn as sns; sns.set(style="ticks", color_codes=True)
import matplotlib.pyplot as plt

 $data_file = "Parameterdarstellung_Brennstoffanalysen_Produktgasanalysen.xlsx"$

#Lesen der Excel-Datei als DataFrame object
df = pd read_excel(data_file)

#Plotten der Korrelationen ueber PairGrid
sns_plot = sns.PairGrid(df)
sns_plot = sns_plot.map_lower(sns.scatterplot, color = "orange", edgecolor = "black")
#sns_plot = sns_plot.add_legend()

#Ausgabe von R2 ueber Heatmap
df_corr_r = df.corr(method="kendall")
df_corr_r2 = df_corr_r**2
sns heatmap(df_corr_r2, cmap="coolwarm")

#Erstellen einer xlsx-Datei df_corr_r2.to_excel("Heatmap.xlsx")

#Erstellen einer png-Datei sns_plot.savefig("Output.png")

Beispiel der Ausgabe des Python-Skripts (113x113 Matrix)

In Abbildung 40 ist die gesamte 113x113 Matrix ("Output.png") dargestellt. In der Vergrößerung ist eine mögliche Variante der Ausgabe des Python-Skripts ersichtlich (die Diagonale wurde als Histogramm eingeblendet). In dem oben dargestellten Python-Skript wurde die Ausgabe der Histogramme in der Diagonale nicht implementiert, da die Rechenzeit für das Ausführen des Befehls *PairGrid()* so verkürzt werden konnte. Weiters sind in der Vergrößerung deutlich weniger Messpunkte vorhanden. Eine größere Darstellung der 113x113 Matrix ist aufgrund der hohen Anzahl an Diagrammen nicht möglich. Die Vergrößerung dient lediglich zur Veranschaulichung, wie die Ausgabe des Python-Skripts aussehen kann.



Abbildung 40: Ausgabe des Python-Skripts

Korrelationen



Abbildung 41: Lineare Korrelation des Brennstoff-N und der NH₃-Konzentration im Produktgas – Gesamtbetrachtung



Abbildung 42: Lineare Korrelation des Brennstoff-S und der H₂S-Konzentration im Produktgas – Gesamtbetrachtung



Abbildung 43: Exponentielle Korrelation des Brennstoff-H und H₂/CO-Verhältnisses im Produktgas – Alternatives Modell (Pilotanlage 4. Generation)



Abbildung 44: Exponentielle Korrelation der flüchtigen Bestandteile und CH₄-Konzentration im Produktgas – Alternatives Modell (Pilotanlage 4. Generation)







Abbildung 46: Darstellung Brennstoff-C und CO₂-Konzentration im Produktgas – Alternatives Modell (Pilotanlage 4. Generation)











Abbildung 49: Exponentielle Korrelation des Brennstoff-O/H-Verhältnisses und GC/MS-Teergehalts im Produktgas – Alternatives Modell (Pilotanlage 4. Generation)

Siebanalyse

Tabelle 23: Siebanalyse der Brennstoffe Altholz und Hartkunststoffe aus der Elektronikschrottaufbereitung

	Altholz		HKS	
Maschenweite [µm]	Überkornmasse [g]	Durchgang [g]	Überkornmasse [g]	Durchgang [g]
5.000 2.500	16,13	55,56	17,42	41,21
2.000	44,44	11,12	12,79	28,42
1.000	9,64	1,48	25,80	2,62
500	1,38	0,10	2,41	0,21
250	0,06	0,04	0,06	0,15
Siebpfanne	0,04	0,00	0,15	0,00
Summe	71,69		58,63	