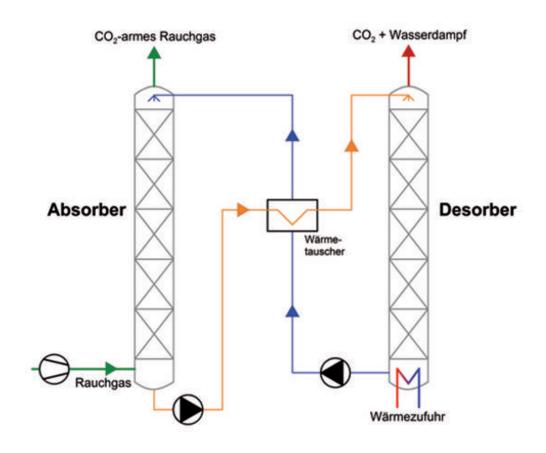
# Einfluss der Molekülstruktur auf die CO<sub>2</sub>-Abtrennung mit wässrigen Aminlösungen aus Rauchgasen fossil befeuerter Kraftwerke





# Einfluss der Molekülstruktur auf die CO<sub>2</sub>-Abtrennung mit wässrigen Aminlösungen aus Rauchgasen fossil befeuerter Kraftwerke

Von der Fakultät Energie-, Verfahrens- und Biotechnik der Universität Stuttgart zur Erlangung der Würde eines Doktors der Ingenieurwissenschaften (Dr.-Ing.) genehmigte Abhandlung

vorgelegt von
Kevin Brechtel
aus Annweiler

Hauptberichter: Prof. Dr. techn. Günter Scheffknecht Mitberichter: Prof. Dr.-Ing. habil. Klaus Görner

Tag der mündlichen Prüfung: 21.02.2011

Institut für Feuerungs- und Kraftwerkstechnik (IFK)
der Universität Stuttgart
2011

# Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek

Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte bibliografische Daten sind im Internet über http://dnb.d-nb.de abrufbar.

Aufl. - Göttingen : Cuvillier, 2011
 Zugl.: Stuttgart, Univ., Diss., 2011

978-3-86955-690-1

Dissertation der Universität Stuttgart - D93

© CUVILLIER VERLAG, Göttingen 2011

Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen

Telefon: 0551-54724-0 Telefax: 0551-54724-21

www.cuvillier.de

Alle Rechte vorbehalten. Ohne ausdrückliche Genehmigung des Verlages ist es nicht gestattet, das Buch oder Teile daraus auf fotomechanischem Weg (Fotokopie, Mikrokopie) zu vervielfältigen.

1. Auflage, 2011

Gedruckt auf säurefreiem Papier

978-3-86955-690-1

## **DANKSAGUNG**

Diese Arbeit entstand während meiner Tätigkeit als Mitarbeiter am Institut für Feuerungs- und Kraftwerkstechnik der Universität Stuttgart. Herrn Prof. Scheffknecht möchte ich für die Ratschläge zu dieser Arbeit und die Übernahme des Hauptberichts danken. Ebenso gilt mein Dank Herrn Prof. Görner für die Übernahme des Mitberichts.

Herzlich danken möchte ich Herrn Dr. Unterberger für die – wenn auch kurz – gemeinsame Zeit am IFK. Großen Dank gebührt ihm für die ausgiebigen und konstruktiven Diskussionen über die experimentellen Untersuchungen dieser Arbeit sowie seine stets freundliche und aufmunternde Art, mit all den Problemen des Forschungsalltags umzugehen. Des Weiteren möchte ich Herrn Dr. Thorwarth danken, der uns alle stetig antrieb, neue Ideen auszuprobieren.

Ein großes Dankeschön auch an meine Abteilung: Anke, Barna, Katharina, Katrin, Oliver, Paula, Silvio und Tobias sowie unser Laborteam Kay, Mario, Theres, Wiliana und Wolfgang. Danke für all die Ergebnisse, die Diskussionen und die Ideen, ohne die das Arbeiten nur halb so interessant und spannend wäre.

Ein Dankeschön auch an unser Werkstattteam, das unzählige Versuchsanlagen konstruieren durfte und mit meinen Konzepten hin und wieder seine Mühe hatte.

Danken möchte ich auch Vladimir, der während seiner Zeit am IFK als König des Technikums alles und jeden zum Laufen brachte und immer für Diskussionen und neue Ideen zu haben war.

"Unser Dieter" war und wird immer mit Rat und Tat zur Seite stehen. Mit seinen Ideen für messtechnische Fragestellungen, seinen Engagement und seiner Freundlichkeit war er nicht nur im Arbeitsalltag immer zur Stelle, wofür ich ihm herzlich danken möchte.

Danken möchte ich auch Herrn Dr. Greißl, der mir die Welt der Kraftwerkstechnik zeigen durfte und mein ständiges "Warum" ertragen musste. Dennoch hatte er immer eine Antwort und wusste auch stets die ein oder andere spannende Geschichte über Rehe und Jagd(un)glück zu erzählen.

Die "Bildungshappen" der Kafferunde und der Kochclub waren immer eine willkommene Abwechslung zur Arbeit und sicherlich weit mehr als gemeinsames Arbeiten. Nicht zu vergessen ist Uschi. Ohne Uschi wäre das IFK nicht das was es ist: Danke.

Der größte Dank gebührt sicherlich an Nancy, Ben und Pünktchen, die mir jeden Tag aufs neue zeigen, was eigentlich im Leben wirklich wichtig ist. Ohne sie, wäre dies alles nicht möglich gewesen.



# Inhalt

Α	BKÜRZ	UNGEN UND FORMELN	II
Α	BSTRA	Ст	ν
1	EIN	LEITUNG	1
2	GRI	JNDLAGEN	2
	2.1	WIRKUNGEN UND QUELLEN VON CO <sub>2</sub>	2
	2.1.1	EINFLUSS VON CO <sub>2</sub> AUF DAS KLIMA	2
	2.1.2	ENERGIEERZEUGUNG ALS QUELLE FÜR CO <sub>2</sub> -EMISSIONEN IN DEUTSCHLAND	2
	2.2	DIE ABTRENNUNG VON CO <sub>2</sub> BEI FOSSIL BEFEUERTEN KRAFTWERKEN	5
	2.2.1	Oxyfuel-Prozess	5
	2.2.2	PRE-COMBUSTION CAPTURE	6
	2.2.3	Post-Combustion Capture	7
	2.3	DAS VERFAHREN DER AMINWÄSCHE	
	2.3.1	FUNKTIONSWEISE DES VERFAHRENS DER AMINWÄSCHE	
	2.3.2	CHEMISCHE REAKTIONEN UND ENERGIEBEDARF BEI DER AMINWÄSCHE	
	2.3.3	BEKANNTE VERFAHREN IM BEREICH DER NACHGESCHALTETEN CO <sub>2</sub> -WÄSCHE	
	2.3.4	STAND DER FORSCHUNG IM BEREICH DER CO <sub>2</sub> -WÄSCHE	
	2.3.5	PROJEKTE ZUR DEMONSTRATION DER CO <sub>2</sub> -RAUCHGASWÄSCHE	
	2.4	VERANLASSUNG FÜR DIE DURCHGEFÜHRTE ARBEIT	36
3	EXF	ERIMENTELLE UNTERSUCHUNGEN VON AMINEN UND INTERPRETATION DE	R
Ε	RGEBN	ISSE	38
	3.1	GRUNDLAGEN DER EXPERIMENTE	38
	3.1.1	EXPERIMENTELLER AUFBAU UND VERSUCHSPARAMETER	
	3.1.2	UNTERSUCHTE AMINE UND BESTIMMUNG DER ABSORBIERTEN CO <sub>2</sub> -MENGE	
	3.2	GRUNDLEGENDE BETRACHTUNGEN MIT MONOETHANOLAMIN (MEA)	
	3.2.1	ABSORPTION VON CO <sub>2</sub> DURCH MEA	42
	3.2.2	TEMPERATUREINFLUSS AUF DIE CO <sub>2</sub> -AUFNAHME BEI MEA	
	3.2.3	THEORETISCHE ARBEITSKAPAZITÄT VON MEA	
	3.2.4	EINFLUSS DER MEA-KONZENTRATION AUF DIE BELADUNG	
	3.3	EINFLUSS DER MOLEKÜLSTRUKTUR AUF DIE CO <sub>2</sub> -ABSORPTION	
	3.3.1	EINFLUSS DER AMINKLASSE	
	3.3.2	EINFLUSS DER MOLEKÜLLÄNGE	
	3.3.3	EINFLUSS VON ALKYLSEITENKETTEN	
	3.3.4	CO <sub>2</sub> -Absorption durch Polyamine	
	3.3.5	EINFLUSS DER RÄUMLICHEN MOLEKÜL-STRUKTUR	
	3.4	Schlussfolgerungen	
	3.5	BEDEUTUNG DER ARBEIT FÜR DEN STAND DER FORSCHUNG UND WISSENSCHAFT	81
4	ZUS	AMMENFASSUNG UND AUSBLICK	83
	4.1	ZUSAMMENFASSUNG	
	4.2	AUSBLICK	86
LI	ITERAT	URVERZEICHNIS	89

# Abkürzungen und Formeln

# Abkürzungen

BHKW Blockheizkraftwerk

BImSchV Bundesimmisionsschutzverordnung
CASTOR From Capture to Storage (EU-Projekt)

CATO; CATO-2 CO<sub>2</sub> Capture, Transport and Storage in the Netherlands (Hollän-

dische Forschungsprojekte)

CESAR CO<sub>2</sub> Enhanced Separation and Recovery (EU-Projekt)

EOR Enhanced Oil Recovery

EU Europäische Union

IGCC Integrated Gasification Combined Cycle

KS-1; KS-2; KS-3 Kurzbezeichnung für spezielle Waschlösungen

KP-1 Kurzbezeichnung für spezielle Packung

MHI Mitsubishi Heavy Industries

REA Rauchgasentschwefelungsanlage

TNO Niederländische Forschungseinrichtung

## Kennwerte

 $\begin{array}{lll} A_{mol} & \text{fiktive Arbeitskapazität} & [\text{mol CO}_2/\text{ mol Amin}] \\ A_L & \text{fiktive Aufnahmekapazität} & [\text{g CO}_2/\text{ kg Lösung}] \\ \alpha_{40^{\circ}\text{C}} & \text{Gleichgewichtsbeladung bei } 40^{\circ}\text{C} & [\text{mol CO}_2/\text{ mol Amin}] \\ \alpha_{90^{\circ}\text{C}} & \text{Gleichgewichtsbeladung bei } 90^{\circ}\text{C} & [\text{mol CO}_2/\text{ mol Amin}] \\ \end{array}$ 

C<sub>"Amin"</sub> Aminanteil [%]

 $M_{CO2}$  Molare Masse  $CO_2$  [g/ mol]  $M_{Amin}^{\mu}$  Molare Masse des jeweiligen Amins [g/ mol]

P Potential des Amins [mol Amin/ mol CO<sub>2</sub>]

### **Indizes**

N Normzustand (0°C, 1013mbar)

mol Bezugsgröße "Mol"

Bezugsgröße "Waschmittelmasse"

40°C, 90°C Versuchstemperatur

# **Chemische Formeln und Stoffe**

B Base

 ${\sf CaCO_3}$  Calziumcarbonat CaO Calziumoxid CH2 Alkylgruppe

CO Kohlenstoffmonoxid CO<sub>2</sub> Kohlenstoffdioxid

 $\begin{array}{ll} \text{HCI} & \text{Salzs\"{a}ure} \\ \text{H}_2 & \text{Wasserstoff} \\ \text{H}_2 \text{O} & \text{Wasser} \end{array}$ 

H<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> Kohlensäure

HCO<sub>3</sub> Hydrogencarbonat-Ion/ Bicarbonat

 $HNO_3$  Salpetersäure  $H_2SO_4$  Schwefelsäure  $H^+$  Wasserstoffproton

HO-CH<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>-NHCOO Carbamat-Ion von MEA

HO-CH<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>-NH<sub>2</sub> MEA-Molekül N<sub>2</sub> Stickstoff

NO<sub>2</sub> Stickstoffdioxid

NO<sub>x</sub> Stickoxide/ Summenschreibweise für NO und NO<sub>2</sub>

 $O_2$  Sauerstoff  $OH^-$  Hydroxid-Ion

R<sub>1</sub>; R<sub>2</sub>; R<sub>3</sub> Molekülseitenketten

SO<sub>2</sub>, SO<sub>3</sub> Schwefeldioxid, Schwefeltrioxid AB Aminobutanol/ 2-Amino-1-butanol AP-Kette Aminopropanol/ 3-Aminopropanol

AEAE Aminoethylaminoethanol/ 2-(2-Aminoethylamino)-ethanol

AEE Aminoethoxyethanol/ 2-(2-Aminoethoxy)-ethanol

AMP Aminomethylpropanol/ 2-Amino-2-methyl-1-propanol

BAE Butylaminoethanol

DEA Diethanolamin/ 2,2'-Iminobisethanol

DETA Diethylaminoehtanol
EAE Ethylaminoethanol
MAE Methylaminoethanol

MDEA Methyldiaminoethanol/ 2,2'-Methyliminodiethanol

MEA Monoethanolamin/ 2-Aminoethanol

TETA Triethyltetramin
TEPA Triethylpentamin