

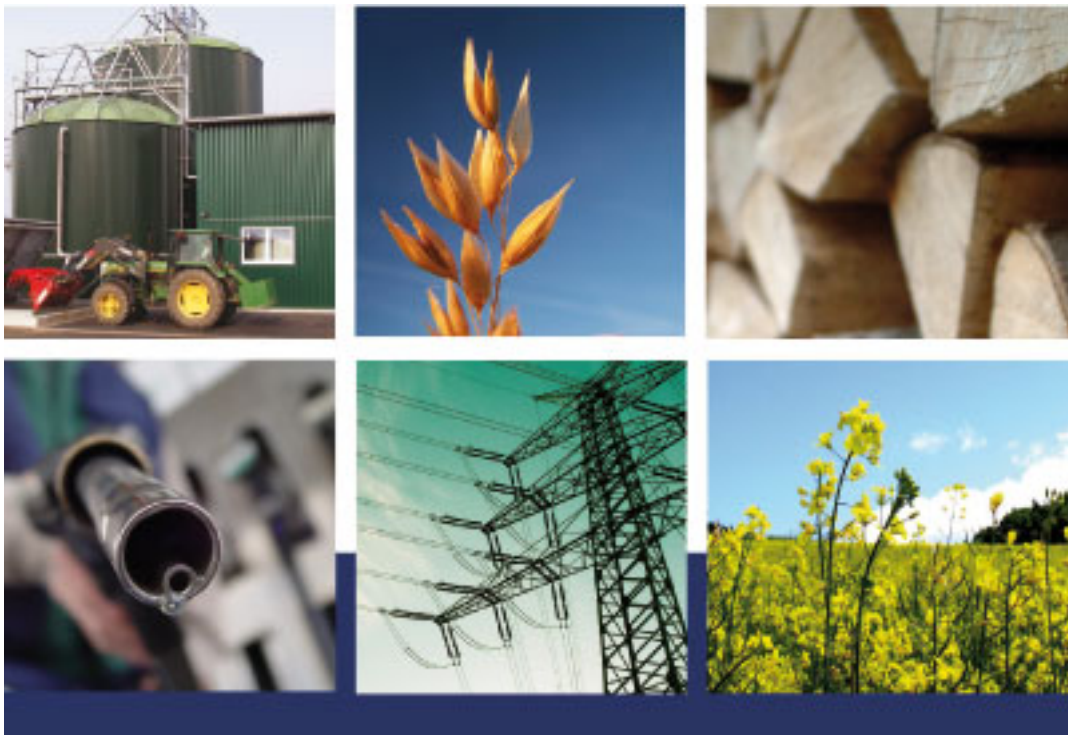
Abschlussbericht für das

BMBF-Verbundprojekt »Biogaseinspeisung«

»Beseitigung technischer, rechtlicher und ökonomischer Hemmnisse bei der Einspeisung biogener Gase in das Erdgasnetz zur Reduzierung klimarelevanter Emissionen durch Aufbau und Anwendung einer georeferenzierten Datenbank«

Band 3

Synthesegasmethanisierung. Verfahrenstechnische und ökonomische Analyse thermochemischer Gaserzeugungs- und Aufbereitungsverfahren



Oberhausen, Leipzig, Wuppertal, Bochum, Essen, Magdeburg, Trier
im Juni 2009

Der Gesamtabschlussbericht entstand im Rahmen des Verbundprojektes »Biogaseinspeisung« und wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Bildung und Forschung (BMBF) unter den Förderkennzeichen 01LS05039, 01LS05040, 01LS05041, 01LS05042, 01LS05043, 01LS05044, 01LS05045 gefördert. Die inhaltliche Verantwortung liegt bei den Autoren. Die Autoren danken dem Fördermittelgeber für die freundliche Unterstützung.

Der vorliegende Band 3 fasst die Ergebnisse der Arbeitspakete 2.3 und 2.4 zusammen. Band 3 wurde erstellt durch

Fraunhofer-Institut für Umwelt-, Sicherheits- und Energietechnik UMSICHT

Dipl.-Ing. Kai Girod
Dr. rer. nat. Christoph Unger
Osterfelder Straße 3

46047 Oberhausen

Telefon: 0208-8598-1410
Fax: 0208-8598-1423
E-Mail: christoph.unger@umsicht.fraunhofer.de
Internet: <http://www.umsicht.fraunhofer.de>

Weitere Ergebnisse finden sich in:

- Band 1 Kurzfassung (Executive Summary)
 - Band 2 Prozessüberwachung und -automatisierung zur Dynamisierung und Verbesserung der Effizienz des Biogasanlagenbetriebs
 - Band 3 Synthesegasmethanisierung. Verfahrenstechnische und ökonomische Analyse thermochemischer Gaserzeugungs- und Aufbereitungsverfahren
 - Band 4 Technologien und Kosten der Biogasaufbereitung und Einspeisung in das Erdgasnetz. Ergebnisse der Markterhebung 2007-2008
 - Band 5 Technische, rechtliche und ökonomische Hemmnisse und Lösungen bei der Einspeisung von Biomethan in das Erdgasnetz aus Sicht eines Gasunternehmens
 - Band 6 Entwicklung und Anwendung einer GIS-Applikation zur Standortfindung und Potenzialanalyse der Biomethanerzeugung. Räumliche, ökonomisch-ökologische Bilanzierung als Bewertungsgrundlage für Energiesystemszenarien
- Rechtlicher Rahmen der Biogaseinspeisung. Gesetzgeberische Ziele, Substraterzeugung, Raumordnung, Anlagengenehmigung, Netzzugang und Förderung

Das Projekt wurde gefördert durch:



Im Rahmen der Fördermaßnahme »klimazwei« – Forschung für den Klimaschutz und Schutz vor Klimawirkungen:



Bundesministerium für Bildung und Forschung (BMBF)
Forschung für Nachhaltigkeit, Wissenschaft und Gesellschaft
Heinemannstr. 2
53175 Bonn

Telefon: 01888 57-0
Fax: 01888 57-83601
Internet: www.bmbf.de

Die Arbeiten erfolgten in enger Kooperation mit Experten eines projektbegleitenden Ausschusses. Die intensiven Diskussionen mit den beteiligten Vertretern der Gaswirtschaft, Biogaswirtschaft, Landwirtschaft, Planungsbehörden, Vertretern von Bundes- und Landesministerien sowie weiterer öffentlicher Einrichtungen haben maßgeblich zum Erfolg des Projekts beigetragen.

Projektkoordination:



**Fraunhofer-Institut für Umwelt-,
Sicherheits- und Energietechnik
UMSICHT**

Institutsleiter:
Prof. Dr.-Ing. Eckhard Weidner

Geschäftsfeld Energieanlagentechnik
Geschäftsfeld Ressourcenmanagement
Geschäftsfeld Nachwachsende Rohstoffe

Osterfelder Straße 3
46047 Oberhausen

Name	Telefon	E-Mail
Dipl.-Ing. Wolfgang Urban	0208 8598-1124	wolfgang.urban@umsicht.fraunhofer.de
Dr.-Ing. Barbara Zeidler-Fandrich	0208 8598-1143	barbara.zeidler@umsicht.fraunhofer.de

Projektpartner:



alta4 Geoinformatik AG



Ruhr-Universität Bochum
Institut für Berg- und Energierecht



E.ON Ruhrgas AG



Hochschule Magdeburg – Stendal (FH)
FB Wasser- und Kreislaufwirtschaft,
Institut für Wasserwirtschaft und Ökotechnologie



**Deutsches Biomasseforschungszentrum
gGmbH**



**Wuppertal Institut für Klima, Umwelt, Energie
GmbH**

Inhalt

1	Zusammenfassung	1
2	Einleitung und Vorgehensweise	3
3	Vergaserauswahl	5
3.1	Taylor-Vergasungsprozess	9
3.1.1	Spezifische Vergaserdaten Taylor	10
3.2	Värnamo-Vergaser	11
3.2.1	Spezifische Vergaserdaten Värnamo	12
4	Aufbereitungskette zur SNG-Herstellung	14
4.1	Gasreinigung	15
4.2	CO-Konvertierung	18
4.3	Methanisierung	19
4.4	Gaskonditionierung	21
4.5	Verfahrenstechnische Umsetzung der Methanisierung	21
5	Planung der Verfahrensketten	23
5.1	Annahmen für die Simulationen	24
5.2	Optimierungskriterien für die Methanisierung	25
5.3	Allgemeine Verfahrenskette zur SNG-Erzeugung	26
5.4	Verschaltungsvarianten Taylor	28
5.4.1	Ergebniszusammenfassung der Taylor-Verfahrenskette	29
5.4.2	Darstellung der optimierten Taylor-Verfahrenskette	30
5.4.3	Übersicht Brennwertterhöhung Taylor	31
5.4.4	Stoff- und Energieströme des Taylor-Verfahrens	32
5.5	Verschaltungsvarianten Värnamo-Vergaser	35
5.5.1	Ergebniszusammenfassung Värnamo-Verfahrenskette	36
5.5.2	Darstellung der optimierten Värnamo-Verfahrenskette	39
5.5.3	Übersicht Brennwertterhöhung Värnamo	40
5.5.4	Stoff- und Energieströme des Värnamo-Verfahrens	41
6	Kosten der SNG-Erzeugung	45
6.1	Investitionskosten	45
6.2	Abhängigkeit der Gasgestehungskosten von den Rohstoffpreisen	48
6.3	Prognose der zukünftigen Gasgestehungskosten unter Berücksichtigung des technischen Fortschritts	52
6.4	Vergleich der Gasgestehungskosten mit fermentativ erzeugtem Methan-Gas	56
7	Literaturverzeichnis	59
8	Glossar	61
9	Anhang	62

1 Zusammenfassung

Auch durch Lignin an der Vergärung gehinderte Biomassen wie Holz oder Stroh können zur Herstellung des Erdgassubstitutes »Synthetic Natural Gas (SNG)« genutzt werden. Die Erzeugung eines einspeisefähigen Gases gliedert sich hierbei im Wesentlichen in zwei Schritte:

- Die thermochemische Umwandlung von Biomassen in ein sogenanntes Synthesegas und dessen Konditionierung für
- die Synthese zu Methan inklusive notwendiger Gasaufbereitung.

Hierbei richtet sich die verfahrenstechnische Konzeption und Auslegung des zweiten Schrittes nach der gewählten Art der Biomassevergasung. Die Schwerpunkte der Arbeiten im Rahmen des Projektes »Biogaseinspeisung« lagen daher auf der Konzeption geeigneter Synthesegasaufbereitungen in Abhängigkeit vom gewählten Vergaserkonzept und der Ermittlung belastbaren Kostendaten für die SNG-Produktion in Anlehnung an VDI 2067.

Die angestrebte Leistungsklasse des Biomassevergasers wird durch die limitierte Transportwürdigkeit des Holzes sowie durch den Aufwand der nachgeordneten Methanisierung bestimmt, der zwischen der Stromerzeugung und der Fischer-Tropsch-BtL-Synthese anzusiedeln ist.

Demzufolge muss sich die Feuerungswärmeleistung (FWL) der zu konzipierenden Vergasungsanlage im Leistungsbereich zwischen 15 MW FWL (bei KWK-Betrieb) und deutlich unterhalb von 600-MW FWL (bei BtL-Produktion) bewegen. Aus vorangegangenen Arbeiten ist bekannt, dass für ein Konzept mit 25 MWFWL die Konversionskosten von den Investitionskosten dominiert werden. Angesichts der mitteleuropäischen Standortrestriktionen wurde daher der Bereich von 60 bis 100 MW FWL als relevanter Leistungsbereich für Vergasungskonzepte zur SNG-Produktion ausgewählt.

In diesem Leistungsbereich sind Vergasungsverfahren nach dem Prinzip der zirkulierenden Wirbelschicht für Einsatzstoffe wie Holz / Stroh besonders vorteilhaft. Grundsätzlich lässt sich hier zwischen autothermen und allothermen Verfahren differenzieren. Während sich die erstgenannten Verfahren energetisch selbst versorgen, sind letztere auf die Zufuhr von Fremdwärme durch eine angeschlossene Verbrennung angewiesen. Weiterhin kann zwischen druckaufgeladenen und atmosphärischen Vergasern unterschieden werden.

Eine allotherme Druckvergasung mit korrespondierenden Wirbelschichten ist aufgrund ihrer Komplexität weit von einer technischen Realisation entfernt. Bei der autothermen Vergasung mit dem Ziel, SNG in Einspeisequalität bereitzustellen, ist als Vergasungsmittel Sauerstoff mit Reinheitsanforderungen > 98 Vol.-% erforderlich. Nach dem derzeitigen Stand der Technik kann dieser nur durch kryogene Luftzerlegung bereitgestellt werden.

Zum jetzigen Zeitpunkt verbleiben somit nur die autotherme Druckvergasung und die atmosphärische allotherme Vergasung als geeignete Verfahrensvarianten. Für beide Systeme existieren mit dem Chrisgasvergaser in Värnamo (Schweden) und dem Silvagas-Verfahren in Vermont (USA) Demonstrationsanlagen im entsprechenden Maßstab, sodass die technische Realisierbarkeit als gesichert gelten kann. Allerdings werden bei beiden Vergasern die Rohsynthesegase zur Stromerzeugung genutzt. Die Gaszusammensetzung des Roh-Synthesegases genügt zunächst nicht den Reinheitsanforderungen an ein Synthesegas für eine anschließende Methanisierung oder vorgelagerten Gaskonditionierungsschritten, wie z. B. einer CO-Konvertierung.

Daher wurde dem Chrisgasvergaser als Beispiel der druckaufgeladenen autothermen Vergasung eine katalytische Teerreformierung nachgeschaltet, die Methan und C₂-Kohlenwasserstoffe nicht umsetzt. Dieser Reformierungsschritt beeinflusst auch die Zusammensetzung der übrigen Gaskomponenten, sodass die neue Zusammensetzung Ausgangspunkt der weiteren Prozesskettenentwicklung wurde. Die Konzeption der gesamten Gasaufbereitung erfolgte hierbei nach Kriterien wie Einstellung eines weitgehend monoton sinkenden Temperaturprofils und sukzessiver selektiver Komponentenentfernung bei niedrigeren Betriebskosten (einschließlich Entsorgung), bei monoton fallendem Druckprofil. Für die Dimensionierung der Methanisierung wurden die Anforderungen der DVGW-Richtlinie G-260 zugrunde gelegt.

Analog erfolgte die Konzipierung der Gasaufbereitung beim allothermen Silvagas-Verfahren der Firma Ferco, das in Burlington (Vermont, USA) demonstriert wurde. Hier wird zur Teerminderung und Änderung der Gaszusammensetzung ein Wanderbettreaktor zwischen Verbrennung und Vergasung installiert, in dem das katalytisch aktive Wärmeträgermaterial den Rohgasen für eine hinreichend lange Verweilzeit für Reformierung und Shiftreaktion ausgesetzt ist. Aus der Literatur ist diese Modifikation als Taylorgasprozess bekannt. Der teermindernde und die Shiftreaktion begünstigende Einfluss des Bettmaterials bei gleichzeitiger Verweilzeiterhöhung wurde unter modifizierten Bedingungen bei Fraunhofer UMSICHT bestätigt. Ausgehend von der neuen Gaszusammensetzung wurde auch hier die Prozesskettenentwicklung betrieben, wobei das Ziel des minimalen Verdichtungsaufwandes berücksichtigt wurde.

Unter den Begriffen Värnamo- bzw. Taylor-Verfahren wurde in diesem Bericht das gesamte Verfahren zur Erzeugung von SNG ausgehend von den namensgebenden Vergasungsverfahren zusammengefasst. Im Falle des Värnamo-Verfahrens ist ein Sauerstoff geblasener und Druck geladener Vergaser mit anschließender Methanisierung und Gasreinigung gemeint. Im Falle des Taylor-Verfahrens ist eine Luft geblasene und bei Atmosphärendruck betriebene Vergasung mit der entsprechenden nachfolgenden Verfahrenskette zur SNG-Erzeugung gemeint.

Die Dimensionierung und Untersuchung möglicher Verfahrensketten der Gasaufbereitung erfolgte unter der Annahme einer Erstanlageninbetriebnahme eines Vergasers mit einer Feuerungswärmeleistung von

60 MW FWL im Jahr 2010. Bei beiden Verfahren wird der Prozess energieautark betrachtet. Unter dieser Prämisse wird bei beiden Anlagen etwa vergleichbar viel SNG mit einer Heizleistung von etwa 33 MW bezogen auf den unteren Heizwert produziert.

Die auf der Basis eines Basic Engineering und der Abfrage der Kosten für alle Großapparate ermittelten gesamten Investitionskosten liegen bei ca. 67,5 Mio. € für das Värnamo-Verfahren und bei ca. 48,35 Mio. € für das Taylor-Verfahren. Die Investitionsmehrkosten bei der Druckvergasung sind primär Folge der Kosten der Luftzerlegung sowie des aufwändigeren Druckvergasers und seiner mehrstufigen und redundanten Biomassezuführung.

Bedeutsamer als die spezifischen Investitionskosten sind aber die gesamten Konversionskosten, die zusammen mit den Brennstoffkosten die Gesteungskosten darstellen.

Betrachtet wurden außerdem die auf das Jahr 2010 normierten Kostendegressionspotenziale durch technischen Fortschritt unter der Annahme einer Anlagenlaufzeit von 20 Jahren sowie einer Anlagenhäufigkeit von eins im Jahr 2010, drei im Jahr 2015 bis hin zu 30 Anlagen im europäischen Raum, einschließlich Deutschlands bis 2050.

Die spezifischen Konversionskosten sinken unter dieser Voraussetzung für eine 60 MW-Anlage (FWL) von 3,2 auf ca. 2 ct/kWh ($H_{i,N}$) und für 100 MW im Jahr 2050 auf 1,57 ct/kWh ($H_{i,N}$). Der spezifische Holzbedarf (absolut trocken) liegt bei energieautarker Betriebsweise bei 0,34 kg/kWh ($H_{i,N}$) für den Taylorvergaser bzw. 0,36 kg/kWh ($H_{i,N}$) für den Värnamo-Vergaser. Unter der Annahme des heutigen Preises von 70 €/t Holz für ca. 100.000 t/a ergeben sich so für die Inbetriebnahme in 2010 Gesteungskosten von ca. 5,8 ct/kWh ($H_{i,N}$). Die Konkurrenzfähigkeit von SNG aus holzartiger Biomasse hängt somit stark von der Relation des Biomassepreises zum Erdgaspreis und damit von der jeweiligen alternativen Nutzung ab. Ein Vergleich mit den Gasgestehungskosten von Erdgassubstituten, welche aus fermentativ erzeugtem Biogas hergestellt sind, zeigt dass thermochemisch erzeugtes SNG bei vergleichbaren Kosten zu produzieren ist. Tendenziell sind die Gasgestehungskosten für thermo-chemisch erzeugtes SNG sogar geringer.

2 Einleitung und Vorgehensweise

Vor dem Hintergrund immer knapper werdender fossiler Ressourcen, Klimaschutzverpflichtungen und des gegenwärtigen Rohstoffwandels stellen Biomasse-basierte Energieträger eine Alternative oder Ergänzung zu fossilen Energieträgern dar. Allgemein wird dazu Biomasse unter Anwendung von chemischen und physikalischen Konvertierungs- und Konditionierungsschritten in eine leichter anwendbare Form eines Energieträgers umgewandelt. Neben flüssigen Treibstoffen, wie z. B. BtL-Kraftstoffen und Me-

thanol, weist auch die Bereitstellung gasförmiger Energieträger in Form von Erdgassubstituten (SNG) ein hohes Marktpotential auf.

So erstrecken sich die Nutzungsmöglichkeiten von methanhaltigen Gasen von der Nutzung im Transportsektor über stationäre Anwendungen zur Strom- und Wärmeerzeugung bis hin zu einer stoffliche Nutzung. Weiterhin können methanhaltige Gase nach einer entsprechenden Reinigung und Aufbereitung als Erdgassubstitute (SNG) in das Erdgasnetz eingespeist und unter Nutzung der bereits installierten Verteilungs- und Nutzungsinfrastruktur (Erdgasnetz) energetisch oder stofflich genutzt werden. Vorteilhaft ist hierbei insbesondere die räumliche und zeitliche Entkopplung von Produktion und Nutzung des Energieträgers.

In diesem Zusammenhang gerät die thermochemische Erzeugung biogenen Methans zunehmend in den Blickpunkt des Interesses. Sie stellt eine Ergänzung und keine Konkurrenz zur klassischen kalten Vergärungsrouten dar, da mit ihrer Hilfe die aufgrund ihres Ligninanteils schlecht bis gar nicht vergärbaren Biomassen/-anteile genutzt werden können. Ein Aufschluss solcher Lignocellulose-Biomasse (LCB) zum Zweck der Vergärung zu Methan wäre aufgrund der Nichtumwandlung des Ligninanteils nur bei signifikant niedrigeren spezifischen Ausbeuten möglich.

Das Ziel des hier dokumentierten Teilprojektes ist die Entwicklung geeigneter Verfahrenskonzepte zur Produktion eines einspeisefähigen Gases (SNG) entsprechend den Qualitätsanforderungen des DVGW für H-Gas; ausgehend von einer thermochemischen Umwandlung von lignocellulosehaltiger Biomasse mit anschließender Reinigung und Aufbereitung des entstandenen Synthesegases. Die verschiedenen Konzepte sollen hinsichtlich ihrer Effizienz und Betriebs- sowie Investitionskosten verglichen und bewertet werden.

Der Vergasungsschritt ist das zentrale Element der Verfahrenskette und beeinflusst entscheidend die Wirtschaftlichkeit der Biomassennutzung und alle darauf folgenden Umwandlungs- und Reinigungsschritte. Daher erfolgte in einem ersten Schritt die Auswahl von zwei geeigneten Vergasungsverfahren. Ausgehend von den Betriebszuständen sowie der Gaszusammensetzung am Vergasungsaustritt wird eine jeweils abgestimmte Verfahrenskette entwickelt. Die Auswahl geeigneter Verfahrensschritte und Verschaltungsvarianten erfolgte anhand geeigneter, im Rahmen des Teilprojektes definierter Kriterien. So wurden u. a. thermodynamische Gleichgewichtsberechnungen durchgeführt, die für jede Konversionsstufe den Einfluss der Prozessparameter Druck, Temperatur und Eingangsgaszusammensetzung auf die Gaszusammensetzung nach der Methanisierung und CO-Konvertierung aufzeigen. Für die Verfahrensbereiche, für die Daten von real erreichten Gaszusammensetzungen verfügbar waren, wie z. B. bei den Vergasern, oder kinetische Modelldaten, wie bei der CO₂-Abtrennung, wurden diese Ergebnisse bevorzugt verwendet. Auf diese Weise wurden verschiedene Verschaltungsvarianten simuliert und verglichen. Unter Berücksichtigung definierter Auswahlkriterien konnte so für jedes der beiden Vergasungsverfahren je eine optimierte Verfahrenskette identifiziert werden.

Um diese beiden Verfahrensketten auch unter wirtschaftlichen Gesichtspunkten miteinander vergleichen zu können, wurde in Zusammenarbeit mit dem Ingenieurunternehmen IPSC GmbH Schwedt (IPSC) ein komplettes Basic-Engineering für eine Leistungsklasse vom 60 MW Feuerungswärmeleistung für den Einsatzstoff Holz durchgeführt. Die so ermittelten Stoff- und Energieströme und Abmessungen aller Hauptkomponenten bildeten die Grundlage für die Bestimmung der Gasgestehungskosten. Hierbei basieren die Daten der zu erwartenden Investitionskosten soweit möglich auf Herstellerangeboten für die Hauptaggregate. Abschließend erfolgte ein Vergleich der Gasgestehungskosten der unterschiedlichen Verfahrenskonzepte.

Die in diesem Projekt ermittelten Kosten beziehen sich dabei nur auf die Vergasung von Biomasse in Form von Holzhackschnitzeln, da gegenwärtig nur für diesen Eingangsstoff hinreichende Betriebserfahrungen vorliegen. Für weitgehend ähnliche Lignocellulose-Biomassen z. B. aus Kurzumtriebsplantagen sind wahrscheinlich nur geringe Modifikationen im Basic Engineering bei moderat erhöhten Betriebskosten zu erwarten. Halmgutartige Biomassen wie Stroh erfordern aufgrund ihres hohen Ascheanteils und niedrigen Ascheschmelzpunktes wesentliche Änderungen in den Bereichen Vergasung und Gasbehandlung und sind durch die hier präsentierten Arbeiten nicht abgedeckt.

3 Vergaserauswahl

Die Auswahl der für die SNG-Produktion prinzipiell geeigneter Vergasungsverfahren erfolgte anhand mehrerer Kriterien, die nachfolgend kurz erläutert werden.

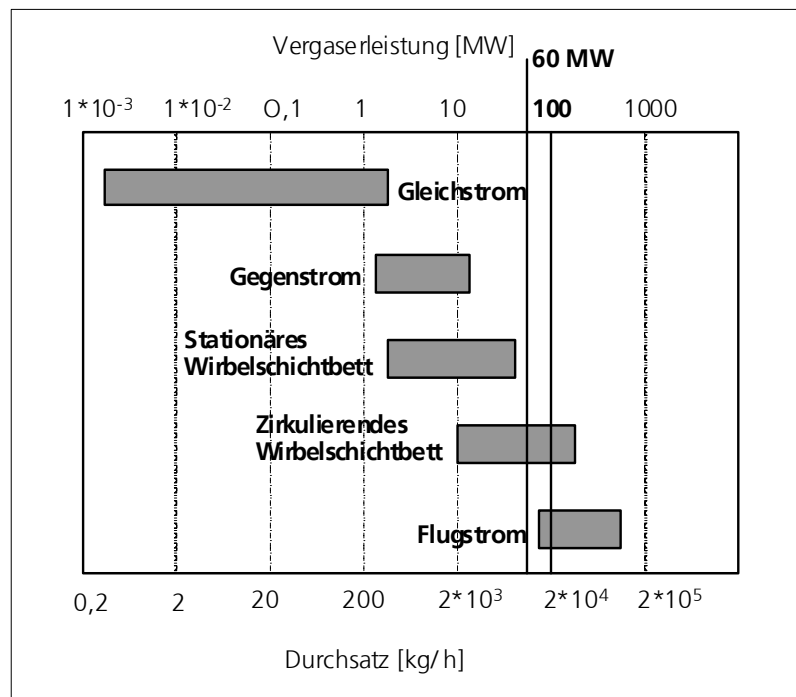
Eines der wichtigsten Kriterien bei der Festlegung der zur SNG-Produktion geeigneten Vergasertypen ist die geplante Größe des Vergasers. So ist z. B. aus vorangegangenen Betrachtungen und Berechnungen im BGW-End-Bericht »Analyse und Bewertung der Nutzungsmöglichkeiten von Biomasse« [BGW05] bekannt, dass bei einer Vergasergröße mit einer Feuerungswärmeleistung (FWL) von 25 MW der Investitionskostenanteil an der SNG-Erzeugung unverhältnismäßig hoch ist. Ein wirtschaftlicher Anlagenbetrieb ist nur für größere Vergaser möglich, da eine Maßstabsvergrößerung i. d. R. mit einer Kostendegression der spezifischen Kosten einhergeht. Gleichzeitig ergibt sich die Möglichkeit eines spezifisch verringerten Einsatzes an Biomasse, da mit einer Maßstabvergrößerung auch ein verbesserter Wirkungsgrad erreicht wird.

Andererseits ist der maximal realisierbare Anlagenmaßstab vor allem durch die Biomassebereitstellung limitiert. Die obere Grenze liegt für Mitteleuropa bei etwa 100 MW und bei etwa 250 MW für den skandinavischen Raum, da in dieser Dimension eine Holzlogistik dauerhaft installiert werden kann, wie das Beispiel der Zellstoffwerke zeigt. Eine Anlage mit 100 MWWL würde sich für Mitteleuropa eher im oberen Bereich des Machbaren befinden; aus logistischer Sicht ist an Standorten in Mitteleuropa ohne Seehafen eine Anlagengröße von 60 MWWL gut zu realisieren. Diese Anlagengröße wird

daher als Auslegungsgröße für die im Rahmen des Projektes zu bilanzierenden Verfahrensketten verwendet.

Wie in Bild 3-1 veranschaulicht, können Vergaserleistungen zwischen 60 und 100 MW FWL nur mit einer zirkulierenden Wirbelschicht oder einer Flugstromvergasung realisiert werden. Bei der Flugstromvergasung stellt der Leistungsbereich um 100 MW FWL die kleinste denkbare Vergasergröße dar. Sie könnte daher für deutlich größere Anlagenkapazitäten als 100 MW FWL interessant sein. Aufgrund der hohen Vergasungstemperatur von ca. 1.300 °C kommt es bei der Flugstromvergasung zusätzlich zu dem ungünstigeren thermischen Wirkungsgrad und der ungünstigeren Gaszusammensetzung zu einer internen Vergasung der Asche, so dass diese nicht mehr bioverfügbar ist. Die Flugstromvergasung schneidet somit auch unter Nachhaltigkeits- und Kreislaufaspekten deutlich ungünstiger ab als die Wirbelschichtvergasung und wird daher im Weiteren nicht mehr betrachtet. Für den Leistungsbereich um 60 MW FWL mit der Option eines möglichen Scale-Ups kommt nur ein Wirbelschichtverfahren in Frage. Die derzeit installierten Anlagen mit Wirbelschichttechnologien weisen eine deutlich kleinere FWL auf. Um dennoch eine geeignete Technologie auswählen zu können, liegt das Hauptaugenmerk auf Verfahren, die über Referenzanlagen verfügen und deren Verfahrenskonzept für ein Scale-Up auf deutlich über 25 MW FWL geeignet ist.

Bild 3-1: Leistungsbereiche der Vergasungsverfahren [Bau06]



Ein ebenfalls entscheidender Faktor bei der Auswahl geeigneter Verfahrenskonzepte ist eine für eine SNG-Erzeugung geeignete Zusammensetzung des entstehenden Synthesegases. Es kommen nur Vergasungsverfahren in Frage, die ein Synthesegas mit geringem Stickstoffanteil erzeugen, da eine Gasaufbereitung auf Erdgasqualität bei hohen Stickstoffgehal-

ten nicht wirtschaftlich darstellbar ist. Bei vertretbarem Reinigungsaufwand würde sich der Stickstoff im Produktgas anreichern und den Heizwert so stark verringern, dass die Spezifikationen für Erdgas (H-Gas) nicht erreicht wären [BGW05].

Vor diesem Hintergrund kommen nur autotherme Vergaser mit dem Vergasungsmittel Sauerstoff-Wasserdampf oder allotherme Vergaser mit dem Vergasungsmittel Luft-Wasserdampf in Frage. In beiden Vergasungsverfahren wird ein Stickstoffeintrag weitgehend vermieden. Bei der mit Sauerstoff geblasenen Variante wird der Eintrag von Stickstoff in das System von vornherein nahezu komplett vermieden. Bei der Luft geblasenen allothermen Variante werden Vergasung und Koks-Verbrennung räumlich voneinander getrennt, sodass kaum Stickstoff in das Roh-Synthesegas gelangt. Für nähere Erläuterungen siehe Kapitel 3.1 und 3.2 sowie Bild 9-1 und Bild 9-3 im Anhang.

Der Energieverbrauch der Prozessgasverdichtung vor der Methanisierung unter Standardbedingungen stellt einen erheblichen Kostenfaktor dar [BGW05]. Den theoretischen Betrachtungen liegt dabei ein unter Atmosphärendruck betriebener Vergaser zugrunde, für den eine anschließende Verdichtungsstufe erforderlich ist. Im Folgenden soll nun auch die Option einer Druckvergasung betrachtet werden. Der Grundgedanke hierzu besteht darin, das bei der Vergasung erreichte Druckniveau über die Prozesskette zu halten und für die Methanisierung und die CO₂-Abtrennung zu nutzen. Die Menge an zu verdichtendem Vergasungsmittel ist dabei deutlich geringer als das Synthesegasvolumen. Es lässt sich so insgesamt ein erheblicher Teil an Verdichtungsarbeit einsparen. Wird der Sauerstoff zur Vergasung durch kryogene Luftzerlegung gewonnen, was hinsichtlich des tolerablen Stickstoffrestgehaltes im Sauerstoff angezeigt erscheint, kann die Verdampfung nahezu auf beliebigem Druckniveau erfolgen, ohne dass noch einmal zusätzliche Verdichtungsarbeit hierfür bereitgestellt werden muss.

Ein weiterer zu berücksichtigender Aspekt bzgl. der Gasqualität ist der Gehalt an permanent gasförmigen Kohlenwasserstoffen, vornehmlich Methan und Ethen. Je höher ihr Anteil im Synthesegas ist, desto geringer sind die Gesamtverluste bei der exothermen Methanisierung [Köp07]. Ein weiteres Kriterium bei der Auswahl eines geeigneten Wirbelschichtvergasungsverfahrens ist somit die Erzeugung einer für die Methanisierung vorteilhaften Gaszusammensetzung. Eine zirkulierende Wirbelschicht vergast Biomasse bei Temperaturen um 900 °C. Das erzeugte Gas weist üblicherweise C_xH_y-Anteile (überwiegend Methan, Ethen und Benzole) von etwa 50 % bezogen auf den Heizwert der Gaszusammensetzung auf, bei einem Volumenanteil von etwa 12,5%. Berechnungen des ECN (Energy Research Centre of the Netherlands) zeigen die unterschiedlichen Wirkungsgrade verschiedener Vergasertypen unter Berücksichtigung einer nachfolgenden Methanisierung auf [ECN051]. Bei der Berechnung der Gesamtwirkungsgrade ist die Erzeugung von Sauerstoff als Vergasungsmittel noch nicht mit berücksichtigt.

Tabelle 3-1: Gesamtwirkungsgrade verschiedener Vergasertypen [ECN051]

Vergasertyp	Vergasungsmittel	Gesamtwirkungsgrad
Hochtemperatur-Vergasung (Flugstom)	Sauerstoff	64 %
CFB (Zirkulierende Wirbelschicht)	Sauerstoff	66 %
Allotherme Vergasung	Luft	71%

Der hohe Gesamtwirkungsgrad der allothermen Vergasung resultiert dabei überwiegend aus der erzeugten Gaszusammensetzung. Das Gas besteht bereits zu einem erheblichen Anteil aus Komponenten (überwiegend in Form von CH₄), für die keine mit Verlusten behaftete Umwandlung zur Bildung eines SNG erforderlich ist.

Unabhängig vom Vergasertyp werden für die Betrachtungen einer Feuerungswärmeleistung von 60 und 100 MW folgende Annahmen getroffen:

- Es wird für den Rohstoffbedarf von einer angestrebten Betriebsstundenzahl von 8.000 h/a ausgegangen.
- Die tatsächlich erreichbaren Volllaststunden weichen nach unten ab und wurden unter Berücksichtigung einer Laufzeit von 20 Jahren für die ersten Anlagen zu 15.2500 h kumuliert.
- Für die Berechnung der Methangestehungskosten wurden diese kumulierten Stunden als Basis gewählt.
- Die resultierenden Gasvolumenströme (sowohl Synthesegas als auch SNG) sind abhängig vom Vergasertyp und werden bei der Beschreibung des jeweiligen Vergasers aufgezeigt.

Aus den oben genannten Gründen werden zwei Verfahrensketten betrachtet, wobei die eine von einem atmosphärisch betriebenen Vergaser ausgeht und die andere von einer Druckvergasung.

Die einzigen Wirbelschichtverfahren, die aus Biomasse sowohl ein stickstoffarmes Gas erzeugen als auch über Referenz-Anlagen im angestrebten Maßstab verfügen, sind das CHRISGAS-Vergasungsverfahren in Värnamo (Schweden) und die Taylor-Vergasung der Fa. Taylor Biomass Energy (New York, USA). Das CHRISGAS Verfahren wurde bisher nur in einer luftgeblasenen Variante als BIGCC betrieben; eine Umrüstung zum Sauerstoff-Betrieb ist prinzipiell möglich und in Vorbereitung. Die Anlage in Värnamo hat mit 18 MW FWL Demonstrationscharakter. Ein kommerzielles Scale-Up auf 60 - 200 MW FWL ist nach Angaben des Verfahrensgebers problemlos möglich und soweit fortgeschritten, dass ein orientierender Preis benannt werden konnte.

Der Taylorprozess stellt eine Weiterentwicklung des SilvaGas-Prozesses der Fa. FERCO basierend auf dem Batelle-Prozess dar, welches erstmals in Burlington (Vermont, USA) technisch umgesetzt wurde. Durch diese Weiterentwicklung (Implementierung eines Wanderbettreaktors zwischen die korrespondierenden Wirbelschichten) ist eine bessere Anpassung der

Gaszusammensetzung hinsichtlich Haupt- und Nebenkomponenten (insbesondere der Teere) an die Anforderungen der Methanisierung möglich. Mit dem SilvaGas-Vergasungsverfahren konnten für eine 55 MW FWL Demonstrationsanlage positive Betriebserfahrungen gesammelt werden. Ein Neubau kann ohne Probleme auch um den Faktor zwei oder größer realisiert werden. Beide Verfahren wurden für den Einsatzstoff Holz(-hackschnitzel) entwickelt und wurden daher als Referenz gewählt.

Andere prinzipiell aussichtsreiche Verfahren sind bisher nicht im technisch aussagekräftigen Maßstab realisiert worden, weisen keine signifikanten Betriebszeiten auf, oder verfügen nur über Erfahrungen von Holz als Zusatzbrennstoff (bei der Braunkohlevergasung). Eine detaillierte Verfahrensbetrachtung sowie eine entsprechende aussagekräftige Kostenschätzung sind unter diesen Voraussetzungen für solche Prozesse nicht möglich.

Tabelle 3-2: Gasvolumenstrom und Brennstoffdurchsatz für eine FWL von 60 MW und 100 MW

	60 MW	100 MW
Feuerungswärmeleistung	60 MW	100 MW
Brennstoffdurchsatz (Holz, trocken):	12.000 kg/h	20.000 kg/h
jährlicher Holzbedarf	96.000 t _{atro}	160.000 t _{atro}

Nachfolgend erfolgt eine detaillierte Beschreibung der ausgewählten Vergasertypen und der notwendigen Modifikationen zum Erhalt eines verwendungsfähigen Rohsynthesegases für die Methanisierung. Die Szenarien und Berechnungen beziehen sich hierbei ausnahmslos auf den Einsatz eines Vergasers mit einer Feuerungswärmeleistung von 60 MW.

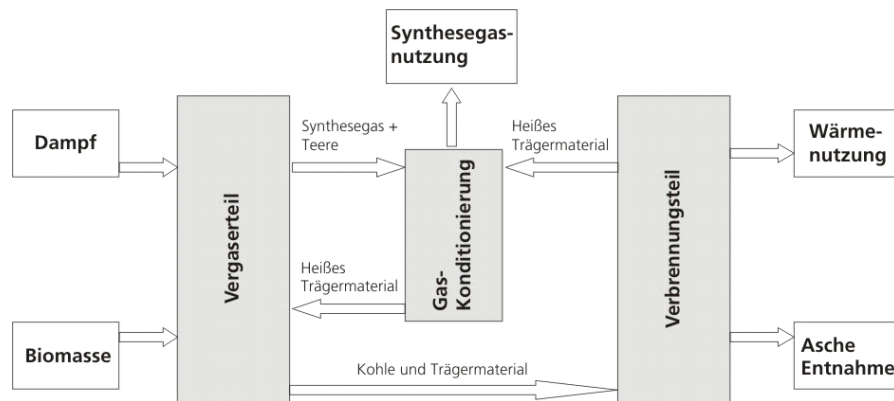
3.1 Taylor-Vergasungsprozess

Das Vergasungsverfahren der Fa. Taylor Biomass Energy [Pai07] ist eine unter Atmosphärendruck betriebene allotherme Wirbelschichtvergasung. Beim dargestellten Taylor-Vergasungsprozess wird durch eine in situ geschaltete Gaskonditionierung eine Zersetzung von höherkettigen C_xH_y (Teere) durchgeführt. Versuche zeigten, dass durch die Gaskonditionierung gleichzeitig eine Erhöhung des H₂/CO-Verhältnisses erreicht wurde. Die Werte zu der Gaszusammensetzung des Taylor-Vergasers stammen aus der kleinmaßstäblichen Gaskonditionierung mit der Eingangszusammensetzung des bereits installierten 55 MW Vergasers (siehe Tabelle 3-3). Laut Fa. Taylor Biomass Energy sind in naher Zukunft Installationen von Vergasern größer 100 MW vorgesehen (Stand: 07/ 2007).

Der Taylor-Vergasungsprozess besteht aus einem Vergasungs- und einem Verbrennungsteil. Eine zirkulierende Wirbelschicht transportiert die Wärme vom Verbrennungsteil in den Vergaserteil, bzw. die noch nicht umgewan-

delte Biomasse aus dem Vergaserteil in den Verbrennungsteil. In Bild 3-2 ist der Aufbau des Taylor-Prozesses schematisch dargestellt.

Bild 3-2: Schematischer Aufbau des Taylor-Vergasungs-Prozesses



Im Vergaserteil wird die Biomasse mit dem aufgeheizten Trägermaterial der Wirbelschicht und zugeführtem Heißdampf vergast. Durch den Ausschluss von Sauerstoff finden keine Verbrennungsreaktionen statt. Die Temperatur im Vergaserteil beträgt ca. 850 °C. Das erzeugte Vergasergas wird von den festen Rückständen separiert und der nachgeschalteten Gaskonditionierung zugeführt. Der nicht vergaste feste Biomasseanteil (Koks) wird dem Verbrennungsteil zugeführt.

Im Verbrennungsteil wird der Koks mit Luft verbrannt und das Trägermaterial ($\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$) auf ca. 1.000 °C aufgeheizt. Das aufgewärmte Trägermaterial wird vom Gasstrom getrennt und dem Vergaserteil zugeführt.

Die Gaskonditionierung ist zwischen dem Vergaserteil und dem Verbrennungsteil angeordnet. Im Gaskonditionierungsteil wird der Teeranteil im Synthesegas durch Dampfreformierung in niedrig-molekulare Komponenten umgewandelt. Die für die Reformierung benötigte thermische Energie wird durch Verbrennung im Verbrennungsteil bereitgestellt. Als Katalysator dient dabei das Trägermaterial.

Der Teerreformer hat außerdem den Vorteil, dass bei entsprechender Verweilzeit das thermodynamische Gleichgewicht nahezu erreicht wird. Daraus resultiert ein erhöhter H_2 -Gehalt (bzw. größeres H_2/CO -Verhältnis) im Synthesegas. Das erzeugte Synthesegas weist nach der Gaskonditionierung eine Temperatur von ca. 970 °C auf.

3.1.1 Spezifische Vergaserdaten Taylor

Im National Renewable Energy Laboratory (Golden, Colorado, USA) wurden Untersuchungen zur Teerreformierung durchgeführt. Nach Paisley

[Pai07-1] sind aus vorherigen Untersuchungen spezifische Daten des zum Einsatz kommenden Vergasers bekannt. Bisher wurden jedoch noch keine Untersuchungen am vollständigen Taylor-Prozess durchgeführt. Basierend auf der von der Fa. Taylor Biomass Energy [Pai07-2] angegebenen trockenen Gaszusammensetzung (ohne H₂O) und den angegebenen Stoffströmen wurde bilanziell die feuchte Gaszusammensetzung berechnet, welche für die nachfolgenden heißen Aufbereitungsstufen relevant ist. In Tabelle 3-4 ist die Gaszusammensetzung des Produktgases aufgeführt.

Tabelle 3-4: Gaszusammensetzung des Taylor-Vergasers (für 60 MW WL und 100 MW FWL)

Komponente	Vol.-%	kmol/h (für 60 MW FWL)	kmol/h (für 100 MW FWL)
H ₂	31,4	210,3	350,5
CO	11,9	79,5	132,5
CH ₄	7,8	52,2	87,0
CO ₂	12,9	86,0	143,3
C ₂ H ₄	1,4	9,2	15,3
C ₂ H ₆	0,4	2,3	3,9
H ₂ O	32,5	217,5	362,5
N ₂	1,8	12,2	20,4

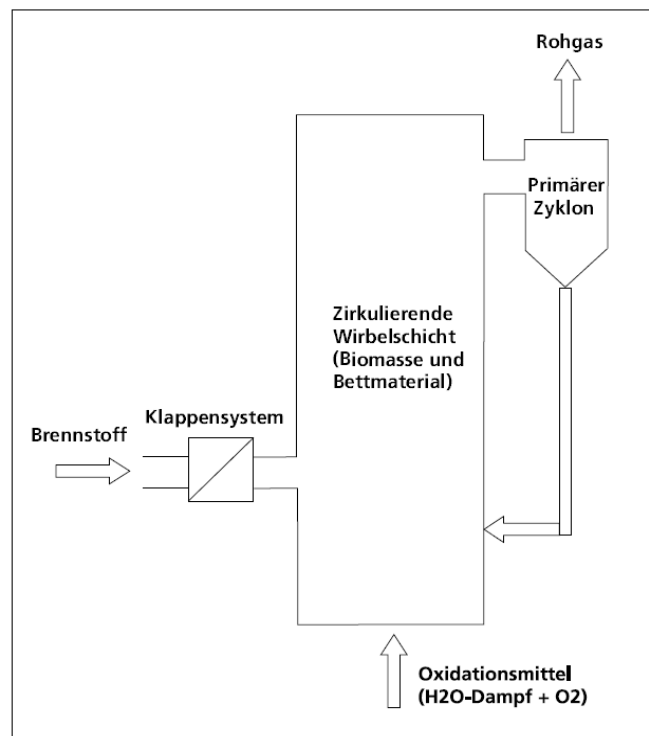
Der heiße Produktgasstrom aus der Wasserdampfvergasung enthält eine große Wasserfracht. Bei der Planung der einzelnen Verfahrensschritte stellt der Taupunkt von Wasser eine zu beachtende Größe dar. Bei Unterschreitung des Taupunktes und einer weiteren Kühlung des Synthesegases kann es zu Kondensation kommen. Zur Kondensationsvermeidung wird der Gasstrom bis einige Grad Celsius über den Taupunkt abgekühlt. In den Prozessstufen mit gezielter Teilkondensation wird der Gasstrom hinter der Kondensationsstelle um wenige Grad erwärmt, um ein Verschleppen von Kondensat zu vermeiden. Für die Gaszusammensetzung am Austritt des quasi-drucklos betriebenen Taylor-Vergasers ergibt sich eine Taupunkttemperatur von etwa 72 °C.

3.2 Värnamo-Vergaser

Bei der autothermen CFB-Vergasung (CFB: Circulating Fluidised Bed) des CHRISGAS-Konsortiums am Standort Värnamo (Schweden) handelt es sich um eine Druckvergasung in einer zirkulierenden Wirbelschicht (20 – 30 bar). Nachfolgend wird dieser Vergaser als Värnamo-Vergaser bezeichnet. Da die Vergasung bei 20 – 30 bar erfolgt, muss die Biomasse über ein Schleusensystem in die zirkulierende Wirbelschicht eingeführt werden. Nicht umgesetzte Biomasse bzw. Koks wird im Zyklon abgeschieden und in die Vergasungszone zurückgeführt. Bisher wurde als Vergasungsmittel

ein Luft/Wasserdampf-Gemisch eingesetzt. Laut Herstellerangaben ist diese Vergasung bereits erfolgreich praktiziert worden. Die installierte Demonstrationsanlage hat eine FWL von 18 MW. Der Vergaser weist eine Betriebszeit von 8.500 Stunden vor [Wal06]. Der Brennstoffdurchsatz (Biomasse) wird mit 4 t/h angegeben. Ähnlich zu Taylor musste auch hier der Datensatz zu den benötigten Stoffströmen durch Bilanzrechnungen vervollständigt werden. Tabelle 3-6 zeigt die resultierenden Massenströme in der Übersicht. Die aufgeführte Gaszusammensetzung entstammt der publizierten Literatur [San06].

Bild 3-3: Schematischer Aufbau der autothermen CFB-Vergasung in Värnamo



3.2.1 Spezifische Vergaserdaten Värnamo

Die in Tabelle 3-6 angegebene Gaszusammensetzung bezieht sich auf einen Vergaser ohne Teereformierung. Die Teereformierung ist jedoch für einen störungsfreien Betrieb der Gasaufbereitung erforderlich. Ihr Konzept basiert auf den am Fraunhofer-Institut UMSICHT gemachten Entwicklungen und erlaubt im Gegensatz zum originalen Verfahrensansatz von CHRISGAS die Beaufschlagung des Katalysators mit dem staubbeladenen Rohgas [ISI02]. Die für die nachfolgende Verfahrenskette relevante Gaszusammensetzung nach der Teereformierung ist in Tabelle 3-6 dargestellt.

Mit der Festlegung der Vergasergröße und den getroffenen Annahmen bezüglich der Brennstoffmenge aus Tabelle 3-2 lassen sich folgende spezifische Daten für die Värnamo-Vergasung berechnen:

Tabelle 3-5: Spezifische Basisdaten des Värnamo-Vergasers im Chrisgasbetrieb mit O₂- als Vergasungsmittel

Spezifische Vergaserdaten Värnamo (60 MW FWL)	
Biomassedurchsatz	12.000 kg/ h
Ges. Volumenstrom Produktgas	20.071 Nm ³ / h
zugeführtes Vergasungsmittel O ₂	161,6 kmol/ h
zugeführtes Vergasungsmittel N ₂	3,9 kmol/ h

Tabelle 3-6: Gaszusammensetzung des Värnamo-Vergasers (für 60 MW und 100 MWFWL) [San06]

Komponente	Vol.-%	60 MW (kmol)	100 MW (kmol)
CH ₄	8,2	55	91
CO	11,9	80	133
CO ₂	27,9	187	311
H ₂	11,8	79	132
H ₂ O	37,7	252,3	420,5
C ₂ H ₄ ^{*1)}	1,5	10	16,7
C ₂ H ₆ ^{*1)}	0,1	0,7	1,1
Teere (C ₁₀ H ₈)	0,3	2	3,3
N ₂	0,6	4	6,7

*1) In Quelle [San06] sind die Anteile von C₂H₄ und C₂H₆ unter C₂H_y zusammengefasst. Die Aufteilung in einen Ethen- und Ethananteil wurde an die Erfahrungswerte der Güssinganlage und von GCMS offline-Untersuchungen an den Wirbelschicht-Vergasern von Fraunhofer-Institut UMSICHT angepasst.

Neben der Teerfraktion enthält das Roh-Synthesegas weitere unerwünschte Stoffkomponenten, die es für weitere Konvertierungs- und Konditionierungsschritte ungeeignet machen.

In Tabelle 3-7 sind die Stoffkomponenten aufgelistet, die neben der Teerfraktion mittels einer Gasreinigung aus dem Produktgas entfernt werden müssen. Die Literatur [Wal06] gibt eine Spannbreite für die unerwünschten Begleitkomponenten im Produktgas an. Bei den in Tabelle 3-7 aufgezeigten Werten handelt es sich um durchschnittliche Gehalte an Gasbegleitstoffen.

Tabelle 3-7: Simultane Reduktion von Gasbegleitstoffen durch Teer-Reformierung im Rohgas des Vergasers [Wal06]

Stoffkomponente	nach Vergasung [Mol-%]	nach Teerreformierung [Mol-%]
COS	0,0014	0,0004
H ₂ S	0,015	0,011
Ammoniak (NH ₃)	0,4	0,3
HCN	1/20 des NH ₃ -Gehaltes	

Bezogen auf die Produktgaszusammensetzung der Värnamo-Vergasung mit einer FWL von 60 MW ergeben sich folgende Stoffmengenströme für die oben aufgelisteten Komponenten. Unter der Annahme, dass die Staubbelastung 30 g/Nm³ beträgt, ergibt sich ein Staubmassenstrom von 602,16 kg/h (0,03 kg/Nm³ * 20.072 Nm³/h).

Tabelle 3-8: Stoffmengenströme der in Tabelle 3-7 beschriebenen Gasbegleitstoffe im Produktgas

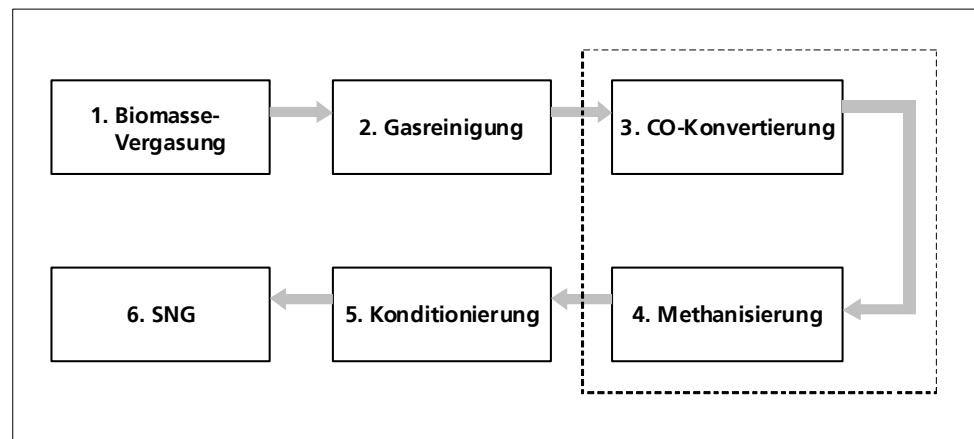
Stoffkomponente	nach Vergasung		nach der Teerreformierung	
	kmol/h	kg/h	kmol/h	kg/h
COS	0,01254	0,777	0,003838	0,2379
H ₂ S	0,1344	4,5696	0,1055	3,587
Ammoniak (NH ₃)	3,582	60,854	2,8785	48,94
HCN	0,1791	4,8357	0,1439	3,8859

Die Verfahrenskette zur Erzeugung eines SNG ausgehend vom Värnamo-Vergaser nutzt das bereits beim Vergasungsprozess aufgebaute Druckniveau. Für die Prozessstufe der Methanisierung wird ein konstanter Druck von 20 bar angenommen. Ein Druckverlust über der Prozesskette wurde bei den Gleichgewichtsberechnungen zunächst vernachlässigt, im Basic Engineering hingegen berücksichtigt. An ausgewählten Prozessschritten wurde gezeigt, dass diese Vereinfachung keinen auslegungsrelevanten Einfluss hat.

4 Aufbereitungskette zur SNG-Herstellung

Die Verfahrensschritte vor der Methanisierung beinhalten sowohl Reinigungs- als auch Aufbereitungsschritte, um ein für die Methanisierung optimales Synthesegas herzustellen. Die Konditionierungsschritte nach der Methanisierung stellen eine Art Schlussreinigung dar, um die Gasqualitäten eines einspeisefähigen SNG zu erreichen. Bild 4-1 zeigt ein Blockfließbild, in dem schematisch die Aufbereitungskette zur SNG-Erzeugung dargestellt ist.

Bild 4-1: Blockschaltbild der Aufbereitungskette zur SNG-Erzeugung



Biomasse-Vergasung

In diesem Bericht wird ausschließlich die Vergasung von Holz betrachtet. Details zur Auswahl geeigneter Vergasungstypen sowie ihrer Funktionsweise sind in Kapitel 3 erläutert. Die Anforderungen an die Art und besonders den Umfang der anschließenden Gasreinigung hängen dabei vor allem von der Vergasungsart ab.

4.1 Gasreinigung

Die abzureinigenden Komponenten setzen sich überwiegend aus Teeren, Stäuben, Schwefelverbindungen in Form von Schwefelwasserstoff (H_2S) und Carbonylsulfid (COS), Ammoniak (NH_3), Chlorwasserstoff (HCl) und Fluorwasserstoff (HF) zusammen. Abscheidegrad und Reinigungsaufwand der zu entfernenden Komponenten müssen für jede Komponente spezifisch beurteilt werden und beziehen sich auf die Reinheitsanforderungen der nachfolgenden Prozessstufen, insbesondere der Methanisierung.

Teerabscheidung

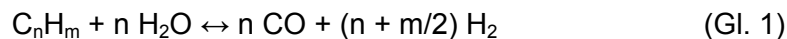
Bei der Vergasung fallen Teere als unerwünschte Nebenprodukte an. Sie können ab einer bestimmten Temperatur flüssige oder hoch viskose bis feste Ablagerungen bilden. Die meisten Teersubstanzen weisen Siedepunkte unter 250 °C auf. Bei einer langsamen Abkühlung besteht allerdings auch schon bei höheren Temperaturen die Problematik von festen bzw. hochviskosen Ablagerungen. Eine Kondensation bzw. Resublimation der Teere kann bereits bei $350 - 400\text{ °C}$ einsetzen. Um eine Schädigung der nachfolgenden Prozesseinheiten durch Teerablagerung zu verhindern, müssen diese zu Beginn der Aufbereitungskette entfernt werden [BGW05].

Zur Beseitigung der Teerverbindungen bestehen im Allgemeinen drei Möglichkeiten. Bei der ersten Variante findet eine thermische Zersetzung der Teere statt. Dazu wird unter Eintrag von z. B. elektrischer Energie der Gasstrom auf hohe Temperaturen erhitzt. Untersuchungen haben gezeigt,

dass für einen nahezu vollständigen Umsatz Temperaturen von über 1.300 °C erforderlich sind. Eine weitere Variante zur Beseitigung der Teerfraktion besteht in der stofflichen Abtrennung der Teere durch Waschung. Dazu werden unter Verwendung eines wässrigen oder organischen Waschmediums die Teere aus dem Gasstrom ausgewaschen. Eine weitere Möglichkeit besteht in der Beseitigung der Teerverbindungen durch katalytische Spaltung (Reformierung). Nickelbasierte Katalysatoren reformieren die Teere und wirken sich gleichzeitig positiv auf einen Ammoniakabbau aus. Ein zusätzlicher Vorteil der katalytischen Reformierung besteht in der höheren Ausbeute von H₂ und CO, den Ausgangsstoffen für die Methanisierung.

Katalytische Teerreformierung

Das katalytisch aktive Nickel kann auf einen keramischen Träger, beispielsweise mit Wabenstruktur aufgebracht werden. Dieser Reformierungskatalysator wirkt selektiv auf die Teerreduzierung und ist robust gegenüber einer Beaufschlagung mit staubhaltigem Rohgas. Für eine wasserdampf- und kohlendioxidhaltige Gasatmosphäre lassen sich folgende stark endotherme Reformierreaktionen formulieren:



Zusätzlich zum Abbau der Teere sind nickelbasierte Reformerkatalysatoren sehr effektiv in Bezug auf einen Ammoniakabbau.

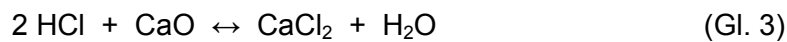
Partikelabtrennung

Die Staubpartikel im Synthesegasstrom setzen sich aus den während der Vergasung freigesetzten und mitgerissenen Aschepartikeln, den nicht vergasteten Restanteilen der eingesetzten Biomasse und gegebenenfalls aus Feinabrieb des Bettmaterials zusammen [BGW05]. Die Partikelbeladung ist abhängig vom verwendeten Vergasungsverfahren und beträgt im Allgemeinen zwischen 10 und 100 g/Nm³. Staubpartikel können die nachfolgenden Prozessstufen verstopfen und schädigen. Aus diesem Grund bedarf es einer Partikelabscheidung möglichst unmittelbar nach der Vergasung. Ideal ist eine Staubabtrennung bei einer Temperatur, bei der eine Kondensation der Teerfraktion und des Wasserdampfes ausgeschlossen werden kann. Filtermedien wie keramische Filterkerzen und Sintermetallkerzen gewährleisten eine Abtrennung bei den vorherrschenden hohen Temperaturen. Textile Gewebefilter sind für den Hochtemperatureinsatz ungeeignet (max. 180 °C). Metallgewebefilter gewährleisten eine Abtrennung bis zu einer Betriebstemperatur von 450 °C und sind mechanisch robuster als Textilgewebe. Filterkerzen weisen eine Anfälligkeit gegenüber abrupten Druckstößen und Temperaturanstiegen auf, was zu einer Zerstörung sowohl der Kerzen als auch der nachgelagerten Anlagenteile durch die dann durchbrechenden Gasinhaltsstoffe und Trümmer der (keramischen) Kerzen führen kann [BIGCC02].

Durch die Installation eines Fliehkraftabscheiders vor dem Filtermedium können große Anteile der Partikelfracht bereits vorab entfernt werden. Zu berücksichtigen sind bei der Partikelabtrennung mit einem Zyklon die erwünschte Trennschärfe und der Druckverlust. Bezogen auf das nachfolgende Filter kann eine Filterkuchenbildung die Abtrenneigenschaften auch positiv beeinflussen.

H₂S-, COS-, HCl- und HF-Abscheidung

Vor der Gasfiltrierung kann eine Entfernung von HCl aus dem Gasstrom mittels Calciumoxid (CaO) erfolgen [She01]. Möglich ist die Eindosierung von pulverförmigen CaO in den Gasstrom vor dem Metallfilter. Dabei findet nach folgender Reaktionsgleichung eine Chemisorption an CaO statt und das entstehende Produkt CaCl₂ wird anschließend am Metallfilter auf dem Gasstrom entfernt.



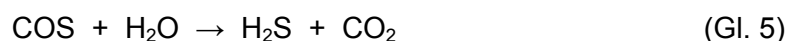
Die Gleichgewichtslage der Reaktion ist dabei temperaturabhängig. Tendenziell wirkt sich eine Erniedrigung der Temperatur positiv auf die Umsetzung von CaO aus. Für den hier betrachteten Anwendungsfall ist ein Temperaturbereich von etwa 300 – 400 °C vorteilhaft, um einen hohen HCl-Umsatz zu erzielen.

Die Entfernung von Schwefelwasserstoff kann mit ZnO als Adsorbens erfolgen. Dabei wird Schwefel nach folgender Reaktionsgleichung gebunden.



Die Sorption mit ZnO hat den Vorteil, dass sehr hohe Endreinheiten von unter 1 ppm H₂S erreicht werden können. Ein hoher Abscheidegrad ist wichtig, um eine Vergiftung von schwefelempfindlichen Katalysatoren zu verhindern. Die zur Methanisierung verwendeten Nickelkatalysatoren erfordern unbedingt eine vorgeschaltete Feinentschwefelung.

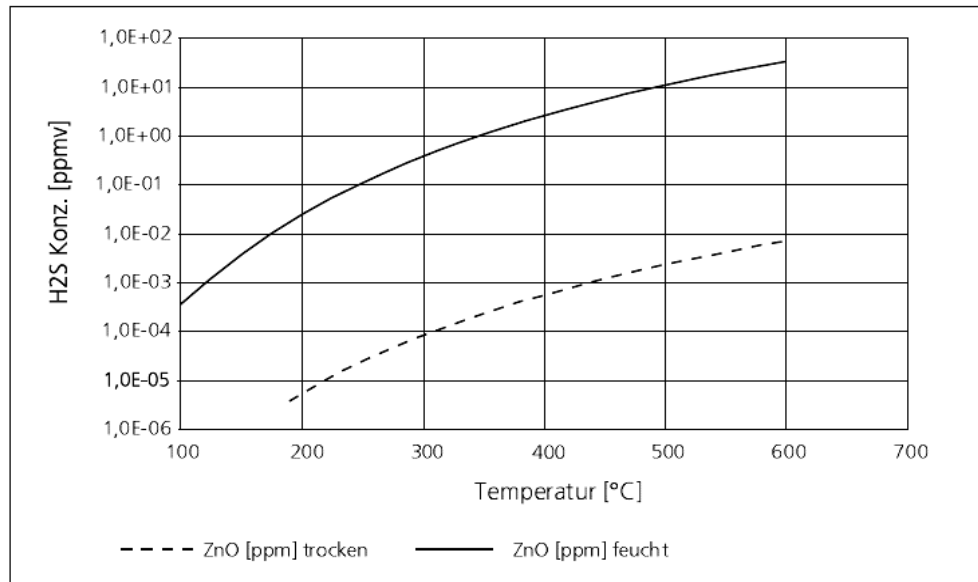
Da im Produktgas auch COS vorliegt und eine Umsetzung von COS an Zinkoxid nicht erfolgen kann, muss vor der eigentlichen Entschwefelung mit Zinkoxid COS mit Wasser katalytisch in H₂S und CO₂ umgewandelt werden. Möglich ist dies durch eine Beimischung von CuO oder auch Al₂O₃ zum ZnO-Sorbens.



Allgemein können mittels ZnO die sauren Komponenten wie H₂S, COS, HCl und HF aus dem Gasstrom entfernt werden. In dem folgenden Bild 4-2 sind die Grenzen der Heißgasentschwefelung durch das Sorbens ZnO dargestellt. Die zwei aufgetragenen Graphen beziehen sich auf einen trockenen und einen feuchten Gasstrom mit einem Wassergehalt von 50 Vol.-%. Beide Graphen zeigen die minimal erreichbare H₂S-Restkonzentration in Abhängigkeit von der Temperatur. Der Synthesegasstrom weist vor der Entschwefelungsstufe einen H₂O-Gehalt von etwa 30 – 40 Vol.-% auf. Die

zu erreichende Abtrennschärfe liegt daher voraussichtlich zwischen den zwei aufgezeigten Graphen.

Bild 4-2: Grenzen der Heißgasentschwefelung im Bereich zwischen 50 Vol.-% Wassergehalt und trockenem Gas (0 Vol.-%) [Hoh06]



4.2 CO-Konvertierung

Eine vor der Methanisierung angeordnete CO-Konvertierung (Shift-Reaktion) dient dazu, eine stöchiometrische Synthesegaszusammensetzung für die Methanisierung von $H_2/CO = 3$ zu erzeugen. Die Einstellung des benötigten H_2/CO -Verhältnis kann dabei in unterschiedlichen Verfahrensvarianten realisiert werden.

Die CO-Konvertierung wird in der Regel heterogen katalysiert durchgeführt.



Der Reaktionsdruck hat keinen Einfluss auf die Einstellung des Reaktionsgleichgewichts, da durch die Reaktion keine Molzahländerung eintritt. Aufgrund der Exothermie der CO-Konvertierung ist die Gleichgewichtskonstante umso größer, je niedriger die Reaktionstemperatur ist. Es gibt grundsätzlich zwei unterschiedliche Katalysatortypen, die in unterschiedlichen Temperaturbereichen einsetzbar sind. Allgemein wird die CO-Konvertierung in die folgenden zwei Temperaturbereiche unterteilt [BGW05]:

Hochtemperatur-Shiftreaktion (HTS): Temperaturbereich: 250 – 500 °C

Tieftemperatur-Shiftreaktion (LTS): Temperaturbereich: 180 - 250 °C

4.3 Methanisierung

Die Methanisierung ist innerhalb der Verfahrenskette zur Reinigung und Umwandlung des durch Holzvergasung erzeugten Synthesegases der zentrale Prozessschritt. Die vorherigen Verfahrensschritte müssen auf die erforderlichen Prozessbedingungen der Methanisierung angepasst bzw. abgestimmt werden.

Bei der Methanisierung handelt es sich um eine katalytische Reaktion von Wasserstoff mit Kohlenmonoxid/Kohlendioxid, die als Produkte Methan und Wasser liefert. Neben der eigentlichen Methanisierungsreaktion (trockene Methanisierung) gibt es weitere Parallelreaktionen (u. a. Kohlenstoffbildung, C_xH_y -Reformierung, CO-Konvertierung), die bei einer Auslegung zu berücksichtigen sind. So gilt es, Reaktionsbedingungen zu identifizieren, durch die das Produkt Methan mit hoher Ausbeute erzeugt wird und gleichzeitig unerwünschte Nebenprodukte wie die Bildung von festem Kohlenstoff vermieden werden.

Das für die Methanisierungsreaktion ideale stöchiometrische Verhältnis von H_2 und CO liegt bei drei zu eins. In diesem Fall findet bevorzugt die in Gleichung 7 beschriebene chemische Reaktion statt



Für die Erreichung eines großen Synthesegasumsatzes ist ein hoher Prozessdruck förderlich, da nach dem Prinzip des kleinsten Zwanges (Le Chatelier Prinzip) das thermodynamische Gleichgewicht der Methanisierungsreaktion mit zunehmendem Druck auf die Seite der Produkte verschoben wird.

Liegt eine Gaszusammensetzung vor, deren H_2/CO -Verhältnis kleiner als drei ist und wird das für eine in situ Shiftreaktion am Methanisierungskatalysator benötigte Wasser nicht bereitgestellt, fällt die CH_4 -Ausbeute kleiner gegenüber der ideal stöchiometrischen Methanisierung aus. Zudem besteht die Gefahr der Verkokung durch Zerfall von überschüssigem CO gemäß der Boudouard-Reaktion.

Eine Methanisierung mit einem H_2/CO -Verhältnis von eins läuft bevorzugt nach folgender Reaktionsgleichung ab:



Das Produkt der trockenen Methanisierung ist dabei CO_2 und nicht H_2O wie bei der ideal stöchiometrischen Methanisierung. Bei nicht idealem H_2/CO -Verhältnis findet fern verstärkt die parallele H_2 -Bildung durch die exotherme Wassergas-Shift-Reaktion (CO-Konvertierung oder Shift-Reaktion) statt (siehe Kapitel 4.2), die jedoch durch eine geringe Wasserkonzentration in dem Reaktionssystem wird die CO-Konvertierung zurückgedrängt wird.

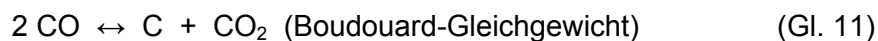
Nach folgender Gleichung kann auch CO₂ zu Methan konvertiert werden. Aufgrund der Reaktionsträgheit und der thermodynamischen Stabilität von CO₂ stellt diese Reaktion mengenmäßig aber einen relativ unbedeutenden Anteil an der Methan-Bildung dar.



Die Bildung von Kohlenstoff ist eine äußerst unerwünschte Nebenreaktion, da sie zu einer Schädigung der Katalysatoren führt. Sie läuft prinzipiell nach folgender Gleichgewichtsreaktion ab:

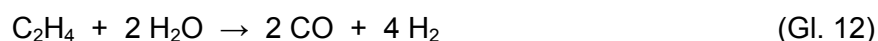


Mit einer Zugabe von Wasser verschiebt sich die Gleichgewichtslage in die Richtung CO und H₂. Die Zugabe von Wasser fördert zusätzlich die CO-Konvertierung (siehe Gleichung 6) in Richtung CO₂ und H₂. Mit einer verstärkten Umsetzung von CO verschiebt sich auch die Gleichgewichtslage des Boudouard-Gleichgewichts in Richtung von CO und vermindert die Kohlenstoffbildung.

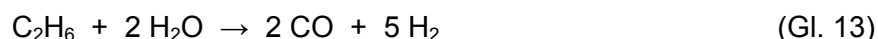


Bei erhöhter Temperatur und unter Anwesenheit von Wasserdampf im Gasmisch muss ferner die Dampfreformierung von Kohlenwasserstoffen (C_xH_y) während der Methanisierung beachtet werden.

Ethen-Reformierung:



Ethan-Reformierung:



Hohe Temperaturen und die Anwesenheit von Wasserdampf können ferner zu einer Methanreformierung führen.



bzw.



Da Methan das erwünschte Produkt darstellt, sind Prozessbedingungen zu wählen, die eine Methanreformierung unterdrücken. Gleichzeitig ist ein Methan-Zerfall zu vermeiden. Untersuchungen zum heterogenen Methanzerfall von Jakubith [Jak75] zeigten, dass zur Spaltung von Methan Temperaturen von über 800 °C benötigt werden. Um eine Methanzerersetzung zu vermeiden, müssen bei einer optimalen Reaktionsführung Temperaturspit-

zen innerhalb des Methanisierungsreaktors vermieden werden. Diese lokalen Temperaturspitzen (Hot-Spots) führen zu einem Methan-Zerfall und schädigen den Katalysator



4.4 Gaskonditionierung

Nach der Methanisierung ist eine Gaskonditionierung notwendig, um ein einspeisefähiges SNG zu erzeugen. Nach der aktuellen Gasnetzzugangsverordnung (GasNZV) ist für die Gewährleistung der Erdgasqualität in dem jeweiligen Erdgasnetz der Netzbetreiber verantwortlich. Der Erzeuger von Methan aus Biomasse muss für sein erzeugtes Gas lediglich die Richtlinien nach DVGW G-260 und G-262 einhalten und es dem Netzbetreiber in dieser Form übergeben [GNZ08]. Hierzu müssen die durch die Methanisierung und CO-Konvertierung entstandenen Nebenprodukte wie Kohlendioxid und Wasser nach der Methanisierung aus dem Gasstrom entfernt werden. Der Gasnetzbetreiber muss anschließend gegebenenfalls eine weitere Gaskonditionierung, beispielsweise durch eine Beimischung von Flüssiggas (LPG) zur Brennwertanpassung vornehmen, um das eingespeiste SNG an die spezielle, im Ergasnetz verteilte Gasqualität anzupassen.

4.5 Verfahrenstechnische Umsetzung der Methanisierung

Aus der Literatur sind mehrere Verfahren zur Methanisierung eines mit H_2 , CO und CO_2 angereicherten Gases bekannt. In den 70er und 80er Jahren des 20. Jahrhunderts wurden in Deutschland mehrere großtechnische Untersuchungen zur Methanisierung durchgeführt. Dabei galten die Untersuchungen überwiegend einer Methanisierung von Synthesegasen aus der Kohlevergasung. Da die Kohlevergasung üblicherweise unter hohem Druck stattfindet, konzentrierten sich die Untersuchungen damals fast ausschließlich auf Methanisierungsverfahren unter hohen Drücken (20 – 100 bar). Einmal, um sich dem Verfahrensdruck der Kohledruckvergasung anzupassen, zum anderen um das thermodynamische Gleichgewicht zu höheren Methangehalten zu verschieben. In den frühen 70er Jahren wurden in den USA (North Dakota) umfangreiche Untersuchungen zur SNG-Erzeugung aus Kohle durchgeführt. Heutzutage verfügt dort eine Anlage über Kapazitäten von 54 Mrd. Nm^3 SNG pro Jahr [Dak07]. Erst in jüngerer Zeit werden Untersuchungen im Rahmen der SNG-Erzeugung aus Biomasse intensiviert. Da Biomassevergasungsverfahren häufig unter Atmosphärendruck durchgeführt werden, betrachten aktuelle Untersuchungen die Möglichkeit einer Reduzierung des Prozessdruckes für die Methanisierung gegenüber den der Kohledruckvergasung entstammenden Standardbedingungen von 20-25 bar, um den energetischen Aufwand zur Synthesegasverdichtung zu minimieren. Zurzeit widmen sich in Europa in einem größeren Rahmen das Zentrum für Sonnenenergie- und Wasserstoff-Forschung (ZSW) in Stutt-

gart [Stü07], das Energy Research Centre of the Netherlands (ECN) in Petten, Niederlande [ECN051], [ECN052], sowie das Paul Scherrer Institut (PSI) in Villigen, Schweiz der Umwandlung von Biomasse in ein SNG.

Die Gemeinsamkeit aller Methanisierungsverfahren besteht darin, die stark exotherm verlaufende Methanisierung in Richtung großer CH_4 -Ausbeute (hoher Wobbeindex) zu lenken. Weiterhin werden

- ein hoher CO-Umsatz (niedriger CO-Restgehalt) und
- ein hoher H_2 -Umsatz (niedriger H_2 -Restgehalt)

angestrebt. Die Restkonzentrationen an H_2 und CO im Gasmisch am Rektorausgang müssen so niedrig sein, dass nach einer Gasreinigung die nach DVGW G-260, G-262 geforderten maximalen Konzentrationen nicht überschritten werden. Da die Entfernung des CO aus dem Roh-SNG nicht mit vertretbarem Aufwand möglich ist, muss die Methanisierung zu hinreichend niedrigen CO-Konzentrationen führen. Dies ist von den Gleichgewichtsbedingungen her möglich und wurde auch vielfach experimentell erreicht. Gleiches gilt für den H_2 -Restgehalt. Der H_2 -Restgehalt kann durch eine Gaskonditionierung nicht mehr vermindert werden. Da der Grenzwert für H_2 5-fach höher ist als der für CO, werden die Anforderungen an die Produktgasqualität der Methanisierung so gewählt (hoher CO-Umsatz), dass in Kombination mit einer anschließenden Gaskonditionierung (CO_2 -Abtrennung und Trocknung) ein einspeisefähiges Gas hergestellt werden kann. Dies stellt ein Pflichtkriterium dar, das bei der Planung der Verfahrenskette zur SNG-Erzeugung zwingend zu erfüllen ist.

Für die Prozesseinheit der Methanisierung von Synthesegasen sind generell unterschiedliche Verfahrensweisen denkbar. Ein Hauptaugenmerk liegt dabei insbesondere auf der Temperaturkontrolle des Methanisierungsverfahrens. Die Verfahren unterscheiden sich allgemein nach Art der Reaktorführung (adiabatisch, isotherm, gemischt) und dem verwendeten Reaktortyp (Wirbelbett, Festbett, Kaskadenreaktoren, Blasensäule, Rieselphase, Rohrreaktor, sonstige Reaktoren). Alle Verfahren sind heterogen katalysiert. Die Qualitätsanforderungen der Vorkonditionierung des Gases für die Methanisierung sind aber im Wesentlichen ähnlich. Bei weitergehendem Interesse zu einzelnen Verfahren der Methanisierung sei die nachfolgende Literatur empfohlen: Hedden [Hed86], [Hed77]; Molerus [Mol78]; Lommerzheim [Lom39], [Lom77], [Lom82]; Stucki [PSI05]; [Eco03, S.15]; von Olsbye [Ols02]; Harms [Har80]; Pennline [Pen79]; Senkan [Sen76]; Bellag [Bel84] sowie die folgenden Patentschriften [Pat79], [Pat80].

Aufgrund der starken Exothermie der Methanisierungsreaktion muss durch die Reaktorbauweise eine gute Auskopplung von Reaktionswärme gewährleistet werden. Ideal ist eine Reaktionsführung bei konstantem Temperaturniveau, durch die ein Umsatz nahe des theoretischen Gleichgewichtsumsatzes [Stü07] erzielt werden kann. Hierzu ist pro kmol umgewandeltem Kohlenmonoxid eine Energie von etwa 55.500 kcal (232.367 kJ) abzuführen [Pat73]. Lommerzheim [Lom77] gibt für eine adiabatische Umsetzung von 1 Vol.-% Kohlenoxid einen Temperaturanstieg des Reaktionsgasmisches von ca. 70 °C an.

Um einen hohen Synthesegasumsatz zu erreichen, muss der Temperaturverlauf innerhalb des Methanisierungsreaktors möglichst konstant gehalten werden. Dies kann durch eine Aufteilung des Katalysatorvolumens in mehrere Stufen mit Zwischenkühlung erfolgen. Hierdurch werden die Verweilzeit und der Umsatz pro Reaktorstufen gering gehalten (Hordenreaktor mit Zwischenkühlung). Eine weitere Möglichkeit besteht in der Verringerung der Verweilzeit am Katalysator durch Rückführung des Produktgases bei entsprechend hohem Umlaufverhältnis.

Die eingesetzten Methanisierungskatalysatoren weisen erst ab einer bestimmten Temperatur eine ausreichend große Aktivität auf. Untersuchungen von Hedden et al. [Hed86, S.140] zeigten, dass der Gleichgewichtsumsatz mit dem verwendeten Katalysator im Temperaturbereich zwischen 375 °C und 425 °C unmittelbar erreicht wird. Untersuchungen zur Methanisierung am PSI [Eco03, S.15] zeigten, dass im Temperaturbereich zwischen 325 °C und 425 °C der CO-Umsatzgrad am größten ist. Die Methanselektivität ist zwischen 325 °C und 375 °C am größten. Die Firma Süd-Chemie gibt für den Katalysator C13-3 (Meth-134) eine Betriebstemperatur von ca. 350 °C an. Der Katalysator ist gegenüber CO und CO₂ unselektiv und setzt sowohl CO als auch CO₂ zu Methan um [Anf07]. Um eine Katalysatorschädigung zu vermeiden, soll eine Temperatur von 510 °C nicht überschritten und eine Temperatur von 150 °C und ein Druck von 1bar wegen der Gefahr einer Ni(CO)₄-Bildung nicht unterschritten werden [Stü07].

Die unerwünschte Kohlenstoffbildung kann schon in geringem Umfang zu einer Deaktivierung durch Verkokung der Methanisierungskatalysatoren führen [BGW05]. Im Bericht zur SNG-Erzeugung des ECN [ECN052] wird beschrieben, dass die Kohlenstoffbildung unter Anwesenheit von Wasserdampf im Gasstrom unterdrückt wird. Aus diesem Grund wird in den Berechnungen möglicher Verschaltungsvarianten besonders intensiv die Kohlenstoffbildung betrachtet und auf die benötigte Wasserdampfmenge (Wasserdampfverhältnis) eingegangen. Der Einfluss von Wasser auf die Reaktionsmechanismen der Kohlenstoffbildung wurde bereits weiter oben erläutert. Darüber hinaus können hohe Temperaturen (> 450 °C) bzw. lokale Temperaturspitzen zur Kohlenstoffbildung führen.

5 Planung der Verfahrensketten

Um den Einfluss verschiedener Prozessparameter auf die Methanisierung und die CO-Konvertierung des Reaktionssystems zu ermitteln, werden in dieser Arbeit thermodynamische Gleichgewichtsberechnungen (TD-GG) durchgeführt. Die Gleichgewichtsberechnungen werden nach der Methode der Minimierung der gesamten freien Enthalpie ΔG durchgeführt. Ihr liegt das Prinzip zugrunde, dass die freie Enthalpie ΔG eines Systems im thermodynamischen Gleichgewicht bei konstanter Temperatur und konstantem Druck gleich null sein muss. Die Berechnungen wurden mit HSC Chemistry 5.11 [HSC02] durchgeführt.

Die den Berechnungen zugrunde liegenden Temperaturbereiche wurden so ausgewählt, dass sie den zulässigen Anwendungsbedingungen kommerzieller, für diese Reaktionen verfügbarer Katalysatoren entsprechen. Variiert wurden primär die Gaszusammensetzung und dabei bevorzugt die CO_2 - und H_2O -Gehalte der Eduktströme, da diese relativ leicht vom Hauptgasstrom abgetrennt und prozessinterne Anwendungen bereitgestellt werden können. Eine Bereitstellung von Wasserdampf kann z. B. gezielt zur Begünstigung der in situ Shift-Reaktion und zur Verkokungsunterdrückung am Methanisierungskatalysator genutzt werden. Des Weiteren wird CO_2 als Sperrgas beim Feststoff-Ein- und Austrag benötigt und gelangt so in den Prozess. Ein größerer zusätzlicher Eintrag von CO_2 führt zu einer negativen Beeinflussung des TD-GG und sollte deshalb weitestgehend begrenzt werden.

Zu beachten ist, dass alle simulierten Ergebnisse die theoretischen Gaszusammensetzungen im thermodynamischen Gleichgewicht wiedergeben. Hierbei handelt es sich um eine Idealisierung, die sich experimentell bestätigt hat. Untersuchungen zur Methanisierung zeigten, dass sich die theoretischen Berechnungen in der Praxis reproduzieren ließen. So wird im Untersuchungsbericht von Hedden [Hedd86] angegeben, dass unter bestimmten Prozessbedingungen nahezu thermodynamisches Gleichgewicht erreicht wird. Das Zentrum für Sonnenenergie- und Wasserstoff-Forschung (ZSW) zeigte in einem direkten Vergleich, dass die im Versuch erzielten Produktgaskonzentrationen mit den berechneten Gleichgewichtskonzentrationen übereinstimmen und sich die Gesamtreaktion nahe dem thermodynamischen Gleichgewicht (TD-GG) bewegt. Inwieweit die theoretischen Berechnungen zum TD-GG in der Praxis erreicht werden, ist maßgeblich von der Wärmeabfuhr der exothermen Reaktionen und den hieraus resultierenden lokal an der Katalysatoroberfläche herrschenden Temperaturen abhängig.

5.1 Annahmen für die Simulationen

Die folgende Aufzählung zeigt die vorgenommenen Annahmen für die Gleichgewichtsberechnungen der chemischen Umwandlungsstufen der Methanisierung und der CO-Konvertierung. Die Annahmen zur nachgeschalteten Teer-Reformierung bei der Värnamo-Vergasung sind in Abschnitt 5.5 beschrieben.

Methanisierung

Für die Methanisierung werden die Komponenten H_2 , CO , CH_4 , CO_2 , C_2H_4 , C_2H_6 , H_2O und N_2 betrachtet. Zusätzlich wird bei der Berechnung die Stoffkomponente Kohlenstoff (elementar) mit berücksichtigt. Als Eingangswert wird für Kohlenstoff der Wert Null angenommen. Die betrachteten Temperaturen für die Prozessstufe der Methanisierung beziehen sich auf einen Temperaturbereich von 250 °C bis 400 °C für die Verfahrenskette der Taylor-Vergasung und einen Temperaturbereich von 250 °C bis 450 °C für die

Verfahrenskette der Värnamo-Vergasung. Die simulierten Temperaturbereiche liegen somit innerhalb der Einsatzgrenzen der Katalysatoren.

Die durchgeführten Simulationen zeigen ferner, dass eine C_xH_y -Reformierung schon bei geringen Temperaturen parallel zur Methanisierung ablaufen kann. Erste Untersuchungen in Zusammenarbeit mit dem ZSW an einem kommerziell verfügbaren Festbettkatalysator zeigten, dass selbst bei Atmosphärendruck keine C_2 -Kohlenwasserstoffe mehr am Ausgang des Methanisierungsreaktors nachweisbar waren.

CO-Konvertierung

Die betrachteten Komponenten der Eingangs- und Ausgangsströme für die CO-Konvertierung sind H_2 , CO, CO_2 und H_2O . Unter der Annahme, dass die CO-Konvertierung bis zum TD-GG abläuft und unter Beachtung der vom Katalysator maximal tolerierten Temperaturen, wird eine Temperatur von 230 °C für die Niedertemperatur CO-Konvertierung (LT-Shift) angenommen. Für die Hochtemperatur CO-Konvertierung (HT-Shift) wird eine ideale Temperatur von 380 °C angenommen.

5.2 Optimierungskriterien für die Methanisierung

Für die Verfahrenskette ausgehend von der Värnamo-Vergasung ist eine Bereitstellung von überhitztem Dampf bei 20 bar sowie oberhalb der Eingangstemperatur der Gasstromes vor der Methanisierung notwendig (etwa 250 – 300 °C). Die Wasserdampfmenge am Reaktoreingang muss richtig bemessen werden, da eine zu hohe Wasserkonzentration mit einem hohen Energiebedarf für die Dampfbereitstellung einhergeht und eine zu geringe Dampfkonzentration die Verkokung begünstigt. Eine zu hohe Wasserkonzentration verschiebt das Gleichgewicht außerdem hin zu den Edukten und vermindert die Methanausbeute.

Um den Umfang einer LPG-Zugabe nach der Methanisierung gering zu gestalten bzw. einzusparen, ist die Erzeugung eines SNG mit einem hohen Brennwert erstrebenswert. Ein hoher Wobbeindex der Gaszusammensetzung nach der Methanisierung stellt somit das zweite Optimierungskriterium dar.

Ein weiteres Optimierungskriterium besteht in dem durch die Arbeitsblätter DVGW G-260 und G-262 festgelegten Grenzwert bezüglich des H_2 -Restgehaltes ($H_2 < 5$ Vol.-%) im SNG. Das Hauptaugenmerk liegt dabei auf dem Unterschreiten des Grenzwertes und nicht auf dem niedrigsten H_2 -Restgehaltwert.

Der gesamte Volumenstrom beeinflusst die Apparatedimensionen. Ein geringer Volumenstrom am Eingang der Methanisierungsstufe wirkt sich positiv auf die Reaktorgröße und die benötigte Katalysatormenge aus und reduziert somit die Investitionskosten. Für den Taylor-Vergasungsprozess stellt das Druckniveau der Methanisierung ein weiteres Optimierungskriterium dar. Das drucklos aus dem Taylor-Vergaser austretende Gas muss auf den Betriebsdruck des Methanisierungsreaktors gebracht werden. Die

hierzu benötigte Verdichterleistung und die damit verbundenen Kosten steigen mit zunehmendem Prozessdruck im Methanisierungsreaktor.

Darüber hinaus müssen die erforderlichen Temperaturniveaus der einzelnen Prozessstufen möglichst so aufeinander abgestimmt werden, dass die im Gasstrom befindliche thermische Energie möglichst gut genutzt wird. Ein häufiges Abkühlen bzw. Erwärmen des Synthesegasstromes geht mit einem Verlust an thermischer Energie einher. Zusätzlich steigt der apparative Aufwand mit der Zahl der Wärmetauscher und stellt somit einen zusätzlichen Kostenfaktor dar. Es wird prinzipiell ein fallendes Temperaturniveau über der Prozesskette angestrebt. Eine genauere Analyse einer möglichen Wärmeintegration, z. B. durch eine Pinch-Analyse wird jedoch nicht durchgeführt.

Zusammenfassend ergeben sich nachfolgend genannte Optimierungskriterien:

- Gaszusammensetzung SNG (DVGW-Grenzwerte einhalten)
- optimale Nutzung des Temperaturniveaus innerhalb der Verfahrenskette (möglichst wenige Wärmetauscher bzw. Temperaturwechsel (Abkühlen/Erwärmen) innerhalb der Verfahrenskette installieren)
- minimale Wasserdampfungsdosierung
- bei Taylor: minimaler Einsatz von Verdichterleistung
- Überprüfung: Einfluss und Notwendigkeit der Installation einer vor die Methanisierung geschalteten CO-Konvertierung. Einfluss einer CO₂-Abtrennung vor der Methanisierung bzw. Einfluss des CO₂-Abtrenngrades
- möglichst monoton fallendes Temperaturniveau entlang der Prozesskette

5.3 Allgemeine Verfahrenskette zur SNG-Erzeugung

In den folgenden Kapiteln werden verschiedene Verschaltungsvarianten der einzelnen Prozesseinheiten für die Verfahrenskette zur SNG-Erzeugung, ausgehend vom jeweiligen Vergasungsverfahren, dargestellt. Das Ziel ist, eine bezüglich der Verschaltungssequenz der einzelnen Verfahrensschritte optimale Verschaltung zu finden und grundlegende Prozessparameter zu optimieren.

Hierbei ist anschließend an die Vergasung zunächst eine CaO-Eindüsung und eine Partikelabscheidung vorgesehen. Beim Värnamo-Vergaser ist ferner eine katalytische Teerreformierung vor der CaO-Eindüsung zu planen. Diese Verfahrensschritte müssen in jedem Fall durchgeführt werden und werden als fix betrachtet.

Ein besonderer Schwerpunkt der Untersuchungen liegt auf der nachfolgenden CO₂-Abtrennung sowie einer Zudosierung bzw. Abtrennung von

Wasserdampf und der Installation einer CO-Konvertierung vor der Methanisierung. Hier werden verschiedene Verschaltungsvarianten untersucht, um ein Optimum bzgl. der Prozessführung zu identifizieren. Für den Taylor-Vergasungsprozess wird zusätzlich der Einfluss des Druckniveaus auf die Methanisierung betrachtet. Bei einer CO₂-Abtrennung durch Waschverfahren wirkt sich ein höheres Druckniveau positiv auf die Abtrenneigenschaften einer CO₂-Wäsche aus. Bei höherem Druck weisen die meisten Waschmittel höhere Beladungsgrenzen auf, wodurch sich die benötigte Waschmittelmenge, bzw. die Apparatedimensionen verringern. Die Verdichtung sollte bei dem Taylor-Verfahren somit möglichst vor der CO₂-Abtrennung realisiert werden.

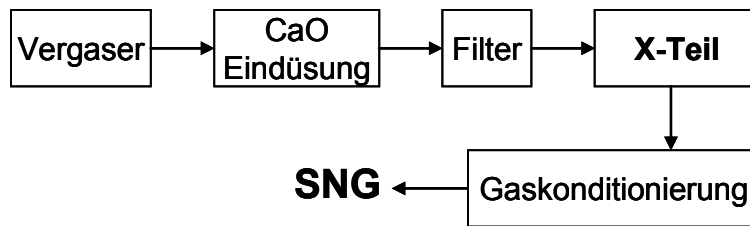
Weitere Annahmen betreffen die CO₂-Abtrennung/Kondensation, die bevorzugt bei niedrigen Temperaturen durchgeführt wird, da das Lösungsvermögen von CO₂ im verwendeten Waschmittel bei geringen Temperaturen höher ist. Hier wird die Annahme getroffen, dass der Gasstrom vor der CO₂-Abtrennung auf min. 35 °C abgekühlt werden muss. Da diese Temperatur vermutlich unter der Taupunkttemperatur liegt, geht mit der CO₂-Abtrennung eine vorherige Kondensation von Wasser einher. In dem vor der CO₂-Abtrennung angeordneten Wärmetauscher wird die gewünschte Temperatur eingestellt und eine Vortrocknung ermöglicht. Die verbleibende Restwassermenge im Synthesegasstrom bildet somit den Eingangsgehalt für die folgenden Prozessschritte.

Aufgrund der zu beachtenden Schwefelempfindlichkeit muss eine Feinentschwefelung vor die Methanisierung sowie gegebenenfalls vor eine CO-Konvertierung geschaltet werden. Als Entschwefelungsmodul wird ein ZnO-Adsorber angenommen (siehe auch Kapitel 4)

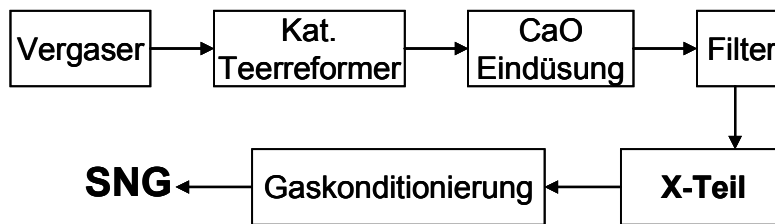
Hinter der Methanisierung werden für die Gaskonditionierung eine CO₂-Abscheidung und eine Trocknung vorgesehen, die ebenfalls bzgl. der Anordnung in der Prozesskette als fix betrachtet und nicht variiert werden. Es ergeben sich somit die in dem folgenden Bild 5-1 gezeigten Verfahrensketten zur SNG-Erzeugung, in denen der Teil für den verschiedene Verschaltungsvarianten untersucht wurden als X-Teil bezeichnet ist.

Bild 5-1: Anordnung des zu optimierenden Teils X in den Verfahrensketten

Taylor-Verfahrenskette



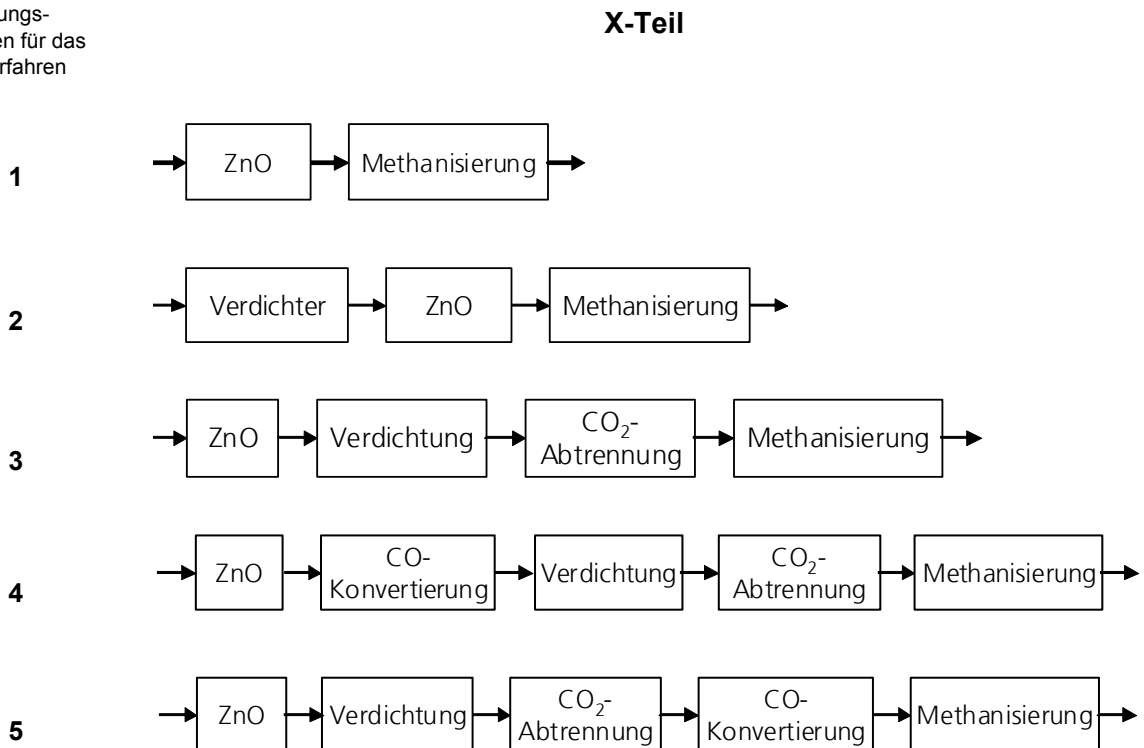
Värnamo-Verfahrenskette



5.4 Verschaltungsvarianten Taylor

Für den Tylor-Vergaser wurden insgesamt 5 Verschaltungsvarianten untersucht, die in dem nachfolgenden Bild 5-2 dargestellt sind.

Bild 5-2: Untersuchte Verschaltungs-Sequenzen für das Taylor-Verfahren



5.4.1 Ergebniszusammenfassung der Taylor-Verfahrenskette

In der folgenden Tabelle 5-1 sind die einzelnen Verschaltungsvarianten bzgl. der Erfüllung der geforderten Kriterien zum Wobbeindex und H₂-Restgehalt zusammengefasst dargestellt. Darüber hinaus ist angegeben, bei welcher Temperatur und ab welchem Prozessdruck in der Methanisierung diese Kriterien erfüllt sind.

Tabelle 5-1: Zusammenfassender Vergleich der Verschaltungsvarianten

Verschaltungs- variante	Anzahl CO ₂ - Abtrennstufen	CO- Konv.	Wobbe- Index	H ₂ -Grenzwert eingeh. ab ...bar bei ...°C			
				250°C	280 °C	300 °C	320 °C
1)	1	nein	nein	Nein	-	-	-
2)	1	nein	nein	2 bar	4 bar	7 bar	-
3)	2	nein	ja	1 bar	2 bar	4 bar	7 bar
4) und 5)	2	ja	ja	1bar	2bar	4 bar	7 bar

Verschaltungsvariante 1) ist eine unter Atmosphärendruck betriebene Methanisierung. Mit der nach dem Vergasungsprozess unverändert vorliegenden Gaszusammensetzung ist eine kohlenstofffreie Methanisierung erst ab einer Temperatur von 580 °C möglich. Um die Methanisierung im Temperaturbereich handelsüblicher Katalysatoren betreiben zu können (280 – 350 °C), ist ein D_v-Wert von fast 0,75 notwendig. Dazu muss Wasserdampf zusätzlich bereitgestellt werden. Hierdurch wird zwar eine Methanisierung bei 280 °C ermöglicht, allerdings verbleibt ein H₂-Restgehalt von 9,12 Vol.-% im erzeugten Gas.

Verschaltungsvariante 2) beinhaltet die gleiche Gaszusammensetzung wie Variante 1) allerdings unter erhöhtem Druck und unterscheidet sich bezüglich Variante 3), 4) und 5) in der Anzahl der CO₂-Abtrennstufen. Mit einem höheren Druck verringert sich der H₂-Restgehalt im erzeugten Gas. Die benötigte Wassermenge zur Kohlenstoffunterdrückung und der erreichte Wobbeindex sind dabei unabhängig vom Druckniveau bei konstanter Methanisierungstemperatur. Sowohl Verschaltungsvariante 2) wie auch Variante 1) erzeugen im gesamten betrachteten Druckbereich ein Gas, welches den nach der DVGW-Richtlinie G-260 geforderten Wobbeindex nicht erreicht und sind somit unter den gegebenen Randbedingungen nicht für die Erzeugung eines einspeisefähigen SNG geeignet.

Verschaltungsvariante 4) und 5) ähneln sich in der Gaszusammensetzung am Eingang der Methanisierung sehr. Beide Verfahren beinhalten im Unterschied zu den Varianten 1), 2) und 3) vor der Methanisierung eine CO-Konvertierung. Für einen Vergleich mit den anderen Varianten werden diese beiden Varianten deshalb zusammengefasst als 4) und 5) betrachtet.

Ein Aspekt, der gegen Verschaltungsvariante 4) spricht, ist die energetisch ungünstigere Verschaltung der einzelnen Prozesseinheiten. Nach der CO-Konvertierung muss für die CO₂-Atrennung eine Abkühlung des Gas-

stromes auf 35 °C erfolgen. Vor der Methanisierung muss der Gasstrom erneut aufgeheizt werden. Die Installation einer Hochtemperatur-CO-Konvertierung zeigt zwar eine Optimierung bezüglich der Nutzung des bereits im Gasstrom befindlichen Wassers, allerdings ist bei dieser Verschaltungsvariante ein mehrmaliges Abkühlen und Erwärmen des Gasstromes notwendig. Sie stellt damit eine energetisch ungünstigere Verschaltung dar.

Für eine weitere Betrachtung werden lediglich die Verschaltungsvarianten 3) und 5) verglichen. Ein Vergleich der Verschaltungsvariante 5) mit CO-Konvertierung und Verschaltungsvariante 3) ohne CO-Konvertierung zeigt, dass bezüglich Wobbeindex, H₂-Restgehalt und dem D_v-Wert kaum Unterschiede erkennbar sind. Beide Verfahrenssequenzen erfüllen die Anforderungen bezüglich der geforderten Gasqualität. Die Verschaltungsvariante 3) weist jedoch aufgrund des geringeren prozesstechnischen Aufwandes ökonomische Vorteile gegenüber der Verschaltungsvariante 5) auf.

Aufgrund der Tatsache, dass durch eine CO-Konvertierung keine signifikante Verbesserung bezüglich der Optimierungskriterien festzustellen ist, werden Verschaltungsvariante 4) und 5) für die Planung der Verfahrenskette nicht berücksichtigt. Da ferner die Verschaltungsvarianten 1) und 2) den geforderten Wobbeindex nicht erreichen, stellt Verschaltungsvariante 3) die optimierte Verfahrenskette bezüglich der in diesem Bericht bestimmten Optimierungskriterien dar.

5.4.2 Darstellung der optimierten Taylor-Verfahrenskette

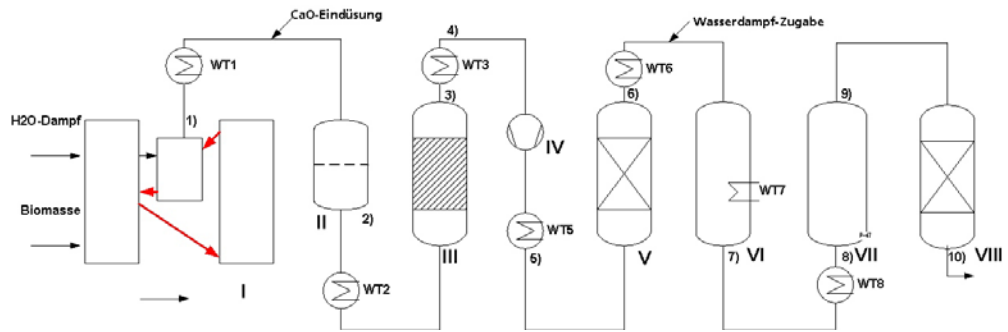
In Bild 5-3 ist die optimierte Verschaltungsvariante 3) noch einmal schematisch und darauf aufbauend die Verfahrenskette zur SNG-Erzeugung ausgehend von der Taylor-Vergasung in Bild 5-4 als Fließbild dargestellt. Ein detailliertes Verfahrensfliessbild mit allen Hauptausrüstungen befindet sich im Anhang des Berichtes (siehe Bild 9-1 und Bild 9-2).

Bild 5-3: Optimale Verschaltungssequenz für das Taylor-Verfahren (3)



Bild 5-4: Fließbild der optimierten Taylor-Verfahrenskette

- I: Vergaser
- II: Metallgewebefilter
- III: ZnO
- IV: Verdichter
- V: CO₂-Abtrennung
- VI: Methanisierung
- VII: Trocknung
- VIII: CO₂-Abtrennung

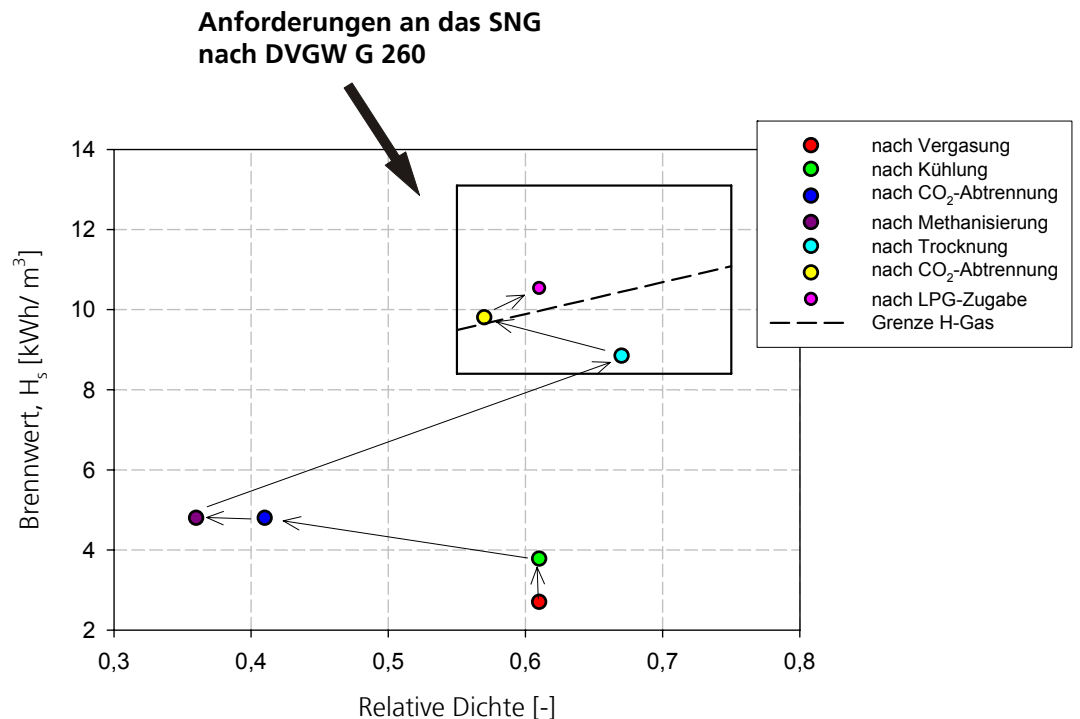


Die Auswirkungen dieser Verschaltung auf die Gasqualität entlang der Prozesskette werden nachfolgend beschrieben.

5.4.3 Übersicht Brennerhöhung Taylor

Das Bild 5-5 zeigt übersichtlich die durch die Verfahrenskette erzielte Brennerhöhung, ausgehend vom Produktgas der Taylor-Vergasung bis hin zu einem einspeisefähigen SNG.

Bild 5-5: Brennerhöhung entlang der Verfahrenskette



Mit Verschaltungsvariante 3) lässt sich ein SNG erzeugen, welches gerade die Anforderungen für H-Gas nach DVGW G-260 erfüllt. Zusätzlich ist als letzter Verfahrensschritt eine LPG-Zugabe von 300 kg/h dargestellt. Eine solche Maßnahme kann erforderlich sein, um das SNG der im Gasnetz verteilten Qualität anzupassen. Diese Maßnahme obliegt jedoch dem Gasnetzbetreiber, solange die Anforderungen für H-Gas nach DVGW G-260 erfüllt sind [GNZ08].

5.4.4 Stoff- und Energieströme des Taylor-Verfahrens

Um das Temperaturniveau der jeweiligen Prozesseinheit bereitzustellen, sind zwischen den einzelnen Verfahrensschritten Wärmetauscher angeordnet. Im Folgenden sind die Temperaturen vor bzw. nach den Wärmetauschern aufgezeigt. WT7 führt den Wärmestrom ab, der bei isothermer Betriebsweise der Methanisierung (bei 300 °C) als Reaktionswärme frei wird.

Tabelle 5-2: Temperaturniveaus und Wärmeströme des Taylor-Verfahrens

Wärmetauscher	Temp.(EIN) [°C]	Temp.(AUS) [°C]	ΔH (MJ/h)
WT1	970	300	-18.264
WT2	300	165	-3.293
WT3	160	35	-11.245
WT5	abkühlen auf 35 ° nach der Verdichtung		
WT6	35	250	+2.529
H ₂ O-Zugabe (93 kmol)	15	250	+4.882
WT7	Reaktionsenthalpie abführen		-39.356
WT8	300	35	-3.363

WT1 kühlt den Gasstrom auf das benötigte Temperaturniveau zur HCl-Sorption mit CaO. Der Wärmetauscher WT2 kühlt den Gasstrom soweit herunter, dass die Temperatur noch über der Taupunkttemperatur liegt und das Temperaturniveau für die Entschwefelung mit ZnO erreicht ist. Der Wärmetauscher WT3 vor dem Verdichter kühlt den Gasstrom unter die Taupunkttemperatur ab und führt zu einer Kondensation der Komponente Wasser. Mit dem Wärmetauscher WT5 soll die durch die Verdichtung verursachte Temperaturerhöhung wieder auf das benötigte Temperaturniveau von 35 °C für die CO₂-Abtrennung gebracht werden. Die zugeführte Wärmemenge in WT6 ist abhängig von der Temperatur der Methanisierung. Für diese Verfahrenskette (Verschaltungsvariante 3) wird eine isotherme Methanisierung bei 300 °C angenommen. Es wird angenommen, dass WT6 den Gasstrom auf eine Temperatur von 250 °C erwärmt. WT8 kühlt den Gasstrom ab, um eine Teiltrocknung durch Kondensation von Wasser zu erreichen. Für eine Methanisierungstemperatur von 300 °C wird stünd-

lich eine Wasserdampfmenge von 93 kmol zur Vermeidung einer C-Bildung benötigt. Der hierfür notwendige Energiebedarf beläuft sich auf 4.882 MJ/h.

Aufbauend auf der Ermittlung der benötigten und frei werdenden Wärmen wurde unter Berücksichtigung der Temperaturniveaus und von Arbeitsgradienten von mindest 50 °C im Wärmetauscher deren sinnvolle Verschaltung festgelegt, wobei ein Kompromiss zwischen dem Erhalt von möglichst viel Hochtemperatur-Wärme und baulichem Aufwand getroffen werden musste. Die gesamte verbleibende freiwerdende Wärmeenergie wird zur Bereitstellung von 40 bar Prozessdampf genutzt, sofern es die Temperaturniveaus erlauben und anschließend in eine entsprechend dimensionierte Turbine zwecks Eigenstromversorgung gespeist. Niedertemperaturwärmen dienen der Brennstofftrocknung.

Bild 5-6 verdeutlicht die mit der Veredelung von Holz zu Methan verbundenen Massenströme, wobei nur die Brutto-Massenströme dargestellt werden. Alle intern rezyklierten Ströme, wie Bettmaterialumläufe in den Wirbelschichten, oder geschlossene Dampfkreisläufe sind aus Gründen der Übersichtlichkeit nicht aufgeführt. Es wird deutlich, dass verglichen mit der produzierten Methanmenge etwa der 5-fache Massenstrom (im Rauchgas und den beiden Trennstufen) an klimaneutralem CO₂ aus der Biomasse entsteht. Dies unterstreicht die Notwendigkeit einer nachhaltigen Holzbereitstellung.

Im hier dargestellten Szenario wird das zur Dampferzeugung benötigte Frischwasser dem öffentlichen Netz entnommen und das Kondensat nach einer Vorbehandlung an die Kanalisation abgegeben. Wenn langfristig die Kondensatbelastung, insbesondere mit Ammoniak und Kohlenwasserstoffen weiter gesenkt werden kann, ist eine Vollklärung zur Kesselspeisewasserbereitstellung denkbar, wodurch nur noch 0,7 l Kondensat pro kg Methan zur Ausschleusung anfallen würden.

Bild 5-7 zeigt die Energieströme analog zu den in Bild 5-6 dargestellten Stoffströmen. Die Rückverschaltung der Wärmeströme sowie die Brennstofftrocknung von 50 auf 20 Mas.-% Wassergehalt, die mit Restwärmen versorgt wird, ist nicht berücksichtigt. Trotz dieser Vereinfachungen gibt diese Darstellung ein differenzierteres Bild, verglichen mit der ausschließlichen Angabe von zahlenmäßigen Wirkungsgraden. Zudem bilden die Stoff- und Energieströme, auch in Zusammenwirken mit den jeweiligen Dichten, insbesondere der Gasströme unter Prozessbedingungen, die Grundlage für die Dimensionierung von Apparaten und Rohrleitungen.

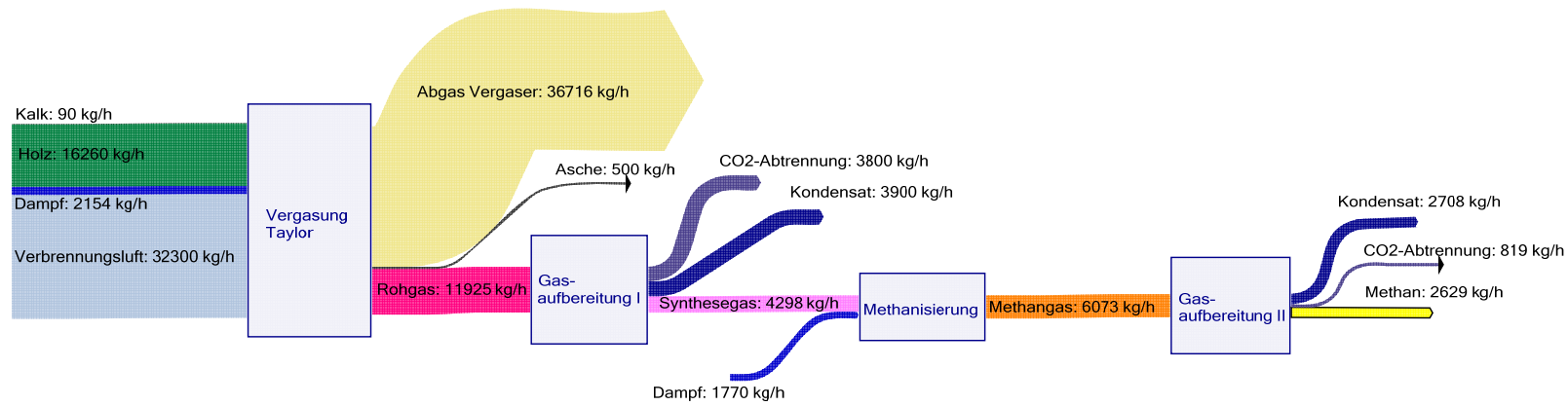


Bild 5-6: Stoffströme Taylor-Verfahren

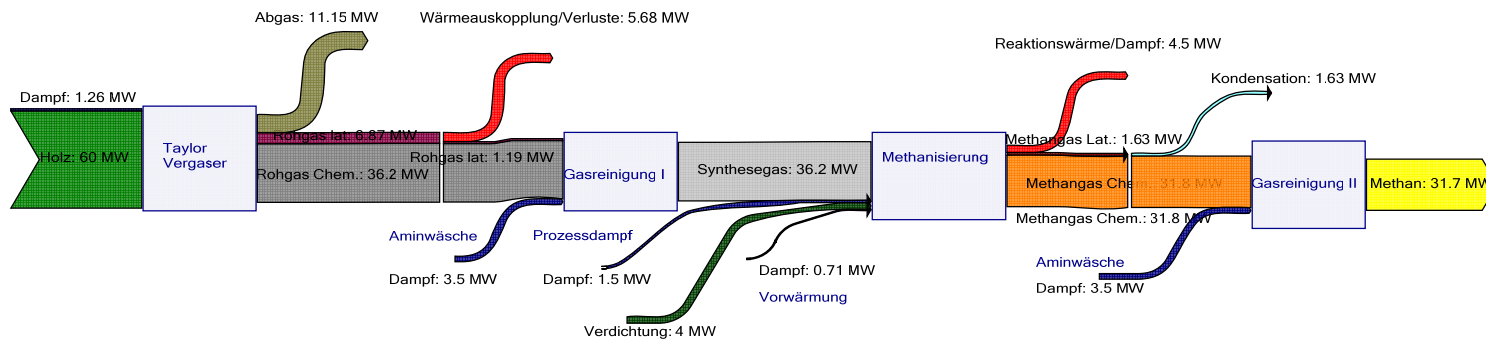


Bild 5-7: Energieströme Taylor-Verfahren

5.5 Verschaltungsvarianten Värnamo-Vergaser

In diesem Kapitel werden unterschiedliche Verschaltungsvarianten für die Verfahrenskette zur SNG-Erzeugung ausgehend von der Värnamo-Vergasung betrachtet. Aufgrund des bereits vorhandenen Druckniveaus von 20 bar durch die Vergasung wird das Druckniveau nicht variiert. Zur Eliminierung der durch die Vergasung entstehenden höherkettigen C_xH_y (Teere) ist eine anschließende Reformierung unumgänglich. Der Värnamo-Vergaser mit anschließender Teerreformierung liefert verglichen zum Taylor-Vergaser eine unterschiedliche Eingangszusammensetzung für die folgenden Verfahrensschritte. Der größte Unterschied besteht dabei in einem kleineren H_2/CO -Verhältnis.

Zur Ermittlung der Gaszusammensetzung nach der Teerreformierung wurden Berechnungen unter folgende Annahmen durchgeführt: Durch die Reformierung ändert sich die Stoffmenge der Komponenten CH_4 , C_2H_4 , C_2H_6 und C. Die prozentuale Reduzierung der Komponenten bezieht sich auf Erfahrungswerte und Untersuchungen zur katalytischen Teerspaltung am Fraunhofer-Institut UMSICHT (1999-2003) ausgehend von einer Vergasung in einer zirkulierenden Wirbelschicht. Für CH_4 wurde eine prozentuale Minderung durch die Reformierung von 11 Mol-% und für C_2H_4 und für C_2H_6 von ca. 28,5 Mol-% angenommen. Zur Beschreibung der Teerumsetzung wurde Naphthalin ($C_{10}H_8$) als Modellkomponente verwendet. Die Zusammensetzung nach dem Reformier entspricht der zu erwartenden Gaszusammensetzung unter der Voraussetzung, dass die vier Hauptkomponenten H_2 , CO, H_2O und CO_2 sich im Gleichgewicht befinden. Diese Annahme konnte ab einer Gasverweilzeit von $> 0,3$ Sekunden im Reformier auf experimenteller Basis nachgewiesen werden. Das thermodynamische Gleichgewicht im Reformier wurde für eine Temperatur von 900 °C und einen Betriebsdruck von 20 bar berechnet. Die nachfolgende Tabelle 5-3 zeigt die berechnete Gaszusammensetzung nach der katalytischen Teer-Reformierung.

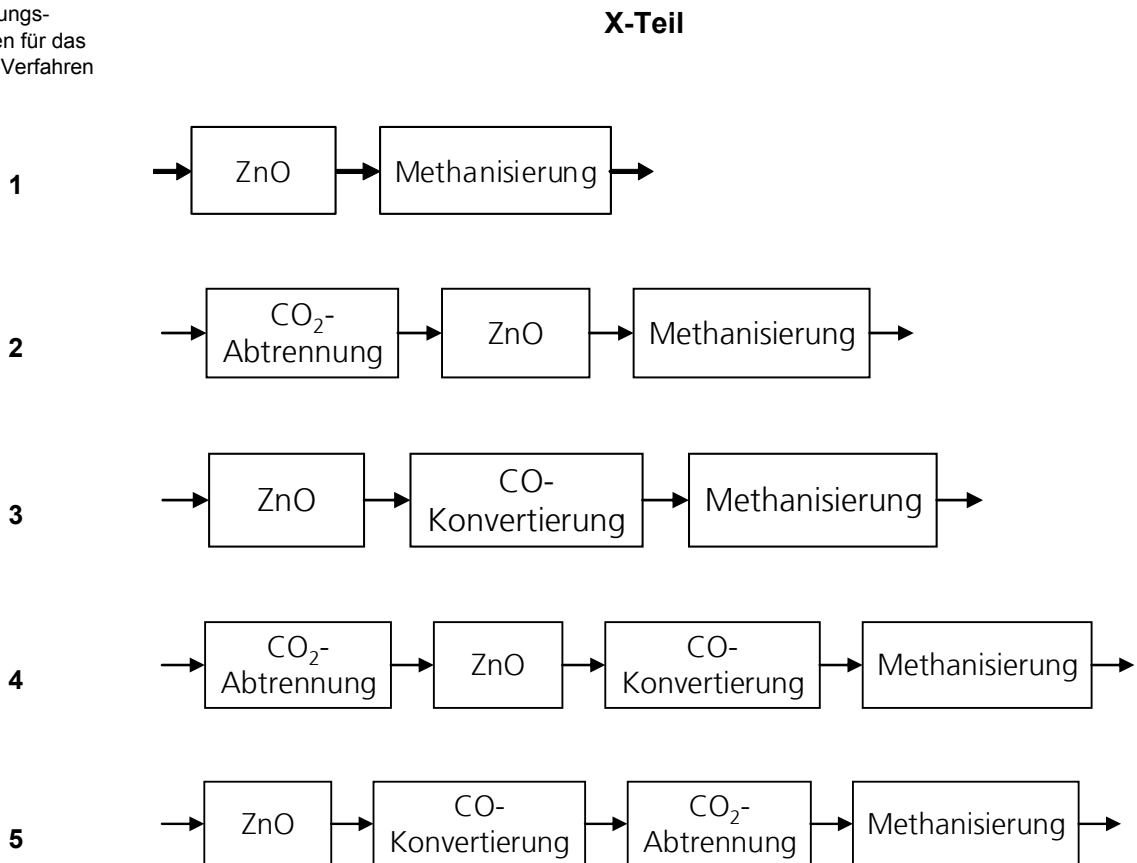
Tabelle 5-3: Gaszusammensetzung vor und nach der Teer-Reformierung

Komponente	nach Vergaser [kmol/h]	nach Reformier [kmol/h]
CO	107	166
H_2	106	168
CO_2	250	234
H_2O	337,6	310
CH_4	73	65,19
C_2H_4	13,4	9,58
C_2H_6	0,9	0,64
$C_{10}H_8$	2,7	0
N_2	5,4	5,4

5.5.1 Ergebniszusammenfassung Värnamo-Verfahrenskette

Die folgende Bild 5-8 zeigt die untersuchten Verschaltungsvarianten innerhalb der Gesamtverfahrenskette (siehe Bild 5-1). Innerhalb des X-Teils werden die Prozessschritte CO₂-Abtrennung, Entschwefelung mit ZnO, Wasserabtrennung durch Kondensation, bzw. Wasserzugabe, CO-Konvertierung und Methanisierung betrachtet.

Bild 5-8: Untersuchte Verschaltungs-Sequenzen für das Värnamo-Verfahren



Die Zugabe von Wasserdampf kann die Kohlenstoffbildung unterdrücken und somit eine Schädigung des Methanisierungskatalysators verhindern. Aus dieser Erkenntnis resultierend wurde für sämtliche Berechnungen zum thermodynamischen Gleichgewicht der Methanisierung die Wassermenge variiert. Die Gaszusammensetzung mit der jeweils geringsten Wasserdampfzugabe ohne Kohlenstoffbildung ist in der Ergebniszusammenfassung aufgeführt. Für jede Verschaltungsvariante ist somit das Kriterium, eine Kohlenstoffbildung im thermodynamischen Gleichgewicht zu unterdrücken, eingehalten worden.

Tendenziell zeigt sich, dass sich bei den Verschaltungsvarianten 2), 4) und 5) mit zwei CO₂-Abtrennstufen (eine vor der Methanisierung und eine nach der Methanisierung) ein höherer Wobbeindex erzielen lässt.

Tabelle 5-4: Anzahl der CO₂-Abtrennstufen der jeweiligen Verschaltungsvariante

Verfahrenskette	Anzahl der CO ₂ -Trennstufen
Verschaltungsvariante 1)	1
Verschaltungsvariante 2)	2
Verschaltungsvariante 3)	1
Verschaltungsvariante 4)	2
Verschaltungsvariante 5)	2

Bei einer SNG-Erzeugung unter Anwendung der Verschaltungsvarianten 1) und 3) kann der geforderte Wobbeindex von 12,8 kWh/Nm³ nicht erreicht werden. Mit einem höheren CO₂-Abtrenngrad von 98 % nach der Methanisierung lässt sich allerdings ein SNG mit einem ausreichend hohen Wobbeindex erzeugen. Wird z. B. für Verschaltungsvariante 3) bei einer Methanisierungstemperatur von 300 °C der CO₂-Abtrenngrad von 95 % auf 98% erhöht, so steigt der Wobbeindex von 11,99 auf 13,14 kWh/Nm³ an und der geforderte Grenzwert nach DVGW G-260 wird überschritten. Das erzeugte Gas weist allerdings immer noch einen niedrigeren Wert auf als bei den Verschaltungsvarianten mit zwei CO₂-Abtrennstufen.

Ein weiterer Vorteil einer CO₂-Abtrennung besteht in der Verringerung des Volumenstromes am Eingang der Methanisierung. So kann bei einer Verschaltungsvariante mit zwei CO₂-Abtrennstufen der Reaktor kleiner konstruiert werden.

Durch eine CO₂-Abtrennung vor der Methanisierung muss zur Vermeidung einer Kohlenstoffbildung eine geringere Wasserdampfmenge bereitgestellt werden, als bei den Verschaltungsvarianten ohne vorherige CO₂-Abtrennung. So benötigen Verschaltungsvariante 1) und 3) zwischen 595 und 800 kmol/h H₂O im Gasstrom, unter Berücksichtigung des H₂-Grenzwertes und bei Vermeidung einer Kohlenstoffbildung am Katalysator. Für die Verschaltungsvarianten 2), 4) und 5) beläuft sich die benötigte Wassermenge im Gasstrom auf Werte zwischen 90 und 450 kmol/h.

Bei den Verschaltungsvarianten mit nur einer CO₂-Abtrennung nimmt Volumenstrom durch den großen CO₂-Gehalt am Eingang der Methanisierung deutlich größere Werte an. Hierdurch erhöht sich tendenziell auch der D_v-Wert. Allgemein zeigt sich, dass bei den Verschaltungen ohne CO₂-Abtrennung vor der Methanisierung der H₂-Restgehalt im erzeugten Gas größer ist als bei den anderen Verschaltungen. Dies ist eine Folge des zur Verkokungsvermeidung erhöhten Wasserdampfbedarfs, der als Nebenreaktion die CO-Konvertierung hin zu mehr H₂ verschiebt.

Einfluss der CO-Konvertierung

Durch die CO-Konvertierung lässt sich das H₂/CO-Verhältnis auf das optimale Verhältnis von drei einstellen. Darüber hinaus können in Verbindung mit einer anschließenden CO₂-Abtrennung das Produkt CO₂ abgetrennt werden und die bereits erwähnten negativen Einflüsse eines großen CO₂-Gehaltes auf den Wobbeindex, den H₂-Restgehalt und die zur Vermeidung einer Kohlenstoffbildung benötigte Wassermenge reduziert werden.

Vergleich der Verschaltungsvarianten

Um die Verschaltungen untereinander zu vergleichen wurde ein Gütekriterium eingeführt, das die drei wichtigsten Vergleichsgrößen (Optimierungskriterien) H₂-Restgehalt im SNG, den erzielten Wobbeindex und das benötigte Wasserdampfverhältnis (D_v-Wert) zur Kohlenstoffvermeidung beinhaltet. Dabei führen ein geringer H₂-Gehalt und ein kleiner D_v-Wert zu einer hohen Güte. Ein kleiner Wobbeindex hingegen zu einer geringen Güte. Dabei wird für x_{min} der Wert mit der geringsten Güte angenommen. Für x_{max} wird der Wert mit der höchsten Güte verwendet.

Die normierten Werte für den Wobbeindex (NW1) werden nach folgender Gleichung berechnet:

$$\frac{x - x_{\min}}{x_{\max} - x_{\min}} \quad (\text{Gl. 17})$$

Für die Berechnung der normierten Werte für den H₂-Restgehalt (NW2) und für den D_v-Wert (NW3) werden die Gleichungen 18 und 19 herangezogen.

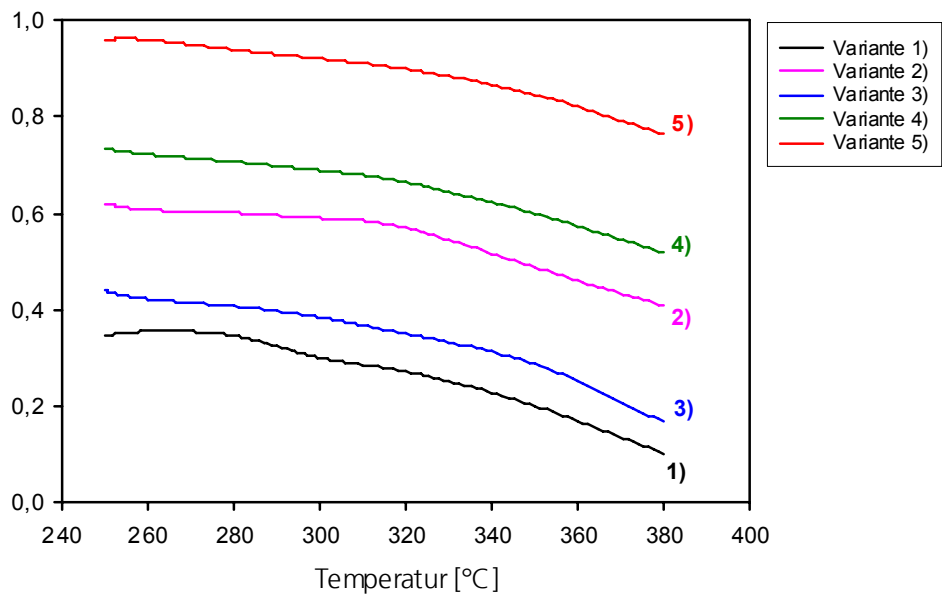
$$1 - \left(\frac{x - x_{\min}}{x_{\max} - x_{\min}} \right) \quad (\text{Gl. 18})$$

Zur Bestimmung des Gütekriteriums werden alle drei Werte gleich gewichtet und nach folgender Gleichung addiert:

$$\text{Gütekrit.} = 0,33 \cdot \text{NW1} + 0,33 \cdot \text{NW2} + 0,33 \cdot \text{NW3} \quad (\text{Gl. 19})$$

In Bild 5-9 sind die Gütekriterien aller Verschaltungsvarianten vergleichend dargestellt. Verschaltungsvariante 5) zeigt das bei weitem größte Gütekriterium auf und stellt somit ein Optimum der betrachteten Varianten dar.

Bild 5-9: Vergleich der Verschaltungsvarianten



5.5.2 Darstellung der optimierten Värnamo-Verfahrenskette

In Bild 5-10 ist die optimierte Verschaltungsvariante 5) schematisch dargestellt. Darauf basierend zeigt Bild 5-11 die Prozesskette zur SNG-Erzeugung ausgehend von der Värnamo-Vergasung als Fließbild. Ein detailliertes Verfahrensfliessbild mit allen Hauptausrüstungen befindet sich im Anhang des Berichtes (siehe Bild 9-3 und Bild 9-4).

Bild 5-10: Optimale Verschaltungs-Sequenz für das Värnamo-Verfahren (5)

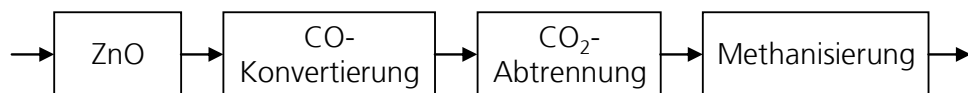
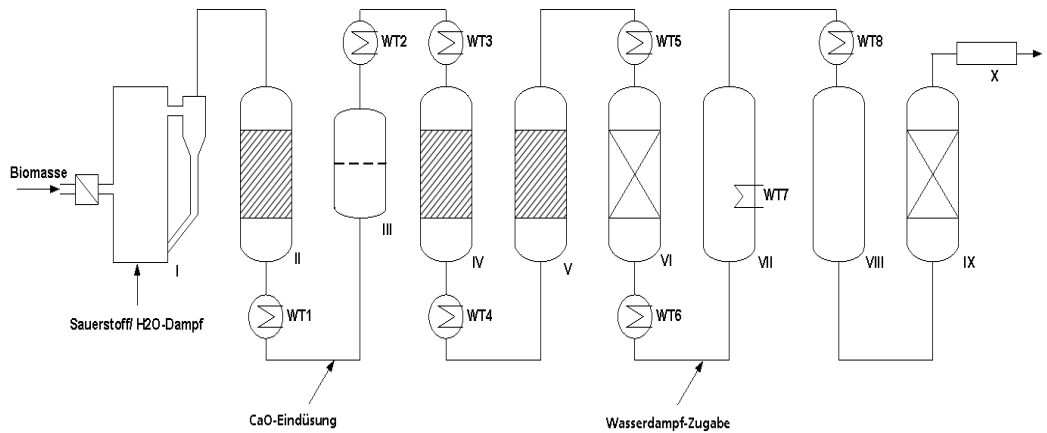


Bild 5-11: Värnamo-Prozesskettenfließbild
Fließbild der Verfahrenskette zur SNG-Erzeugung ausgehend von der Värnamo-Vergasung

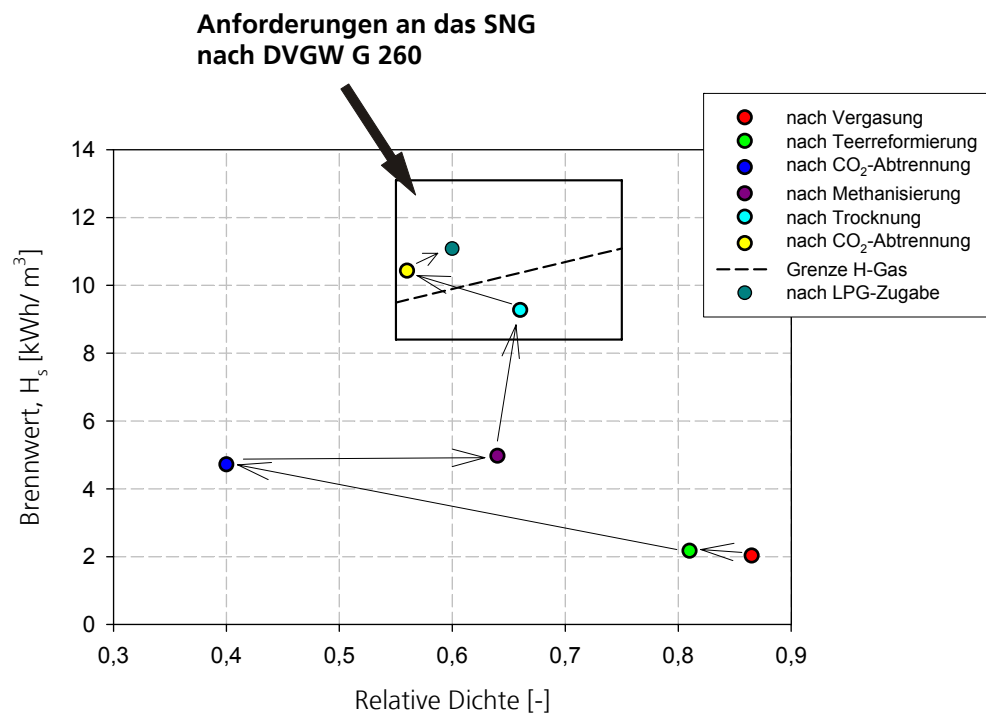
- I: Vergaser
- II: Kat. Teerreformer,
- III: Metallgewebefilter,
- IV: ZnO,
- V: CO-Konvertierung,
- VI: CO₂-Abtrennung,
- VII: Methanisierung,
- VIII: Trocknung,
- IX: CO₂-Abtrennung,
- X: evtl. LPG-Zugabe



5.5.3 Übersicht Brennerhöhung Värnamo

Bild 5-12 zeigt übersichtlich die durch die Verfahrenskette erzielte Brennerhöhung ausgehend vom Produktgas der Värnamo-Vergasung bis hin zu einem einspeisefähigen SNG. Die dargestellte Brennerhöhung berücksichtigt dabei eine Methanisierung bei einer Prozessstemperatur von 320 °C.

Bild 5-12: Erzielte Brennerhöhung entlang der Värnamo-Verfahrenskette



Nach der Trocknung hinter der Methanisierung entspricht das Gas den Anforderungen nach DVGW G-260 für L-Gas. Mit einer zusätzlichen CO₂-Abtrennung nach der Methanisierung entsteht ein Gas, welches die Anforderungen bezüglich H-Gas einhält. Allerdings weist die Gaszusammensetzung eine relative Dichte auf, die an der Grenze des zulässigen Bereiches liegt.

Exemplarisch ist in Bild 5-12 eine angenommene LPG-Zugabe von 300 kg/h dargestellt. Die resultierende Gaszusammensetzung nach der LPG-Zugabe weist einen Brennwert von 11,08 kWh/Nm³ und einen Wobbeindex von 14,33 kWh/Nm³ auf.

5.5.4 Stoff- und Energieströme des Värnamo-Verfahrens

In der folgenden Tabelle 5-5 sind die zuzuführenden bzw. abzuführenden Wärmeströme für das gesamte Verfahren dargestellt. Im Wärmetauscher WT7 wird der durch die Reaktionswärme der Methanisierung entstehende Wärmestrom abgeführt. Für die Methanisierung ist in Variante a) bei einer zugeführten Wassermenge von 93 kmol/h eine Gaseintrittstemperatur von 250 °C und eine isotherme Reaktionsführung bei 320 °C angenommen worden, bei der 17.715 MJ/h über WT 7 abgeführt werden müssen. Für Variante b) mit einer Gaseintrittstemperatur von 300 °C, einer zugeführten etwas geringeren notwendigen Wassermenge von 83 kmol/h und einer isothermen Betriebsweise bei 350 °C beläuft sich die abzuführende Wärmemenge auf 18.135 MJ/h. In dieser Variante erhöht sich der zuzuführende Enthalpiestrom in WT6 für eine Erwärmung des Gasstromes auf 300 °C auf 6.166 MJ/h.

Tabelle 5-5: Temperaturniveaus und Wärmeströme (Värnamo)

Wärmetauscher	Temp.(EIN) [°C]	Temp.(AUS) [°C]	ΔH [MJ/ h]
WT1	900	300	- 24.249
WT2	300	125	- 15.037
WT3	40 über Satttdampf	165	+1.036
WT4	165	230	+1.733
WT5	230	35	-4.447
WT6 a)	35	250	+4.932
WT6 b)	35	300	+6.166
H ₂ O-Zugabe (93kmol)	15 (flüssig)	250	+4.882
H ₂ O-Zugabe (83kmol)	15 (flüssig)	300	+4.505
WT7 a)	Reaktionsenthalpie abführen (isotherm.: 320 °C)		-17.715
WT7 b)	(isotherm: 350 °C)		-18.135
WT8	320	35	-11539

Der Wärmetauscher WT2 kühlt den Gasstrom unter die Taupunkttemperatur, wodurch Wasser auskondensiert. Bei einer Abkühlung auf 125 °C verbleiben 85 kmol/h H₂O im Gasstrom, welche für die spätere CO-Konvertierung benö-

tigt wird. In WT3 wird der Gasstrom so weit über die Sattdampf­temperatur erwärmt, dass das benötigte Temperaturniveau für die Entschwefelung mit ZnO erreicht wird und Tröpfchenbildung ausgeschlossen ist. WT4 erwärmt den Gasstrom auf die Reaktoreingangstemperatur der CO-Konvertierung von 230 °C. Nach der Konvertierung kühlt WT5 den Gasstrom für die nachfolgende CO₂-Abtrennung ab und es kommt zur weiteren Teilkondensation von Wasser. Die zugeführte Wärmemenge in WT6 ist abhängig von der Temperatur der Methanisierung. Das Temperaturniveau kann dabei bis zu 70 °C unter der geplanten Temperatur für die isotherme Betriebsweise liegen. WT8 kühlt den Gasstrom hinter dem Reaktorausgang ab, um das Temperaturniveau für die CO₂-Abtrennung zu erreichen. Mit WT8 erfolgt gleichzeitig eine Teiltrocknung durch Kondensation von Wasser. Aus Optimierungsgründen wird die CO-Konvertierung separat installiert. Das ECN [ECN06, S.38] beschreibt diese Art der Verschaltung als vorteilhaft. Der Methanisierungsprozess kann hierdurch besser an die idealen Prozessparameter der Methanisierung angepasst werden. Grundsätzlich besteht das Problem, dass bei einer im Methanisierungsreaktor angenommenen CO-Konvertierung (in-situ) das ideale H₂/CO-Verhältnis von drei nur mit relativ wenig H₂O erreicht wird. Wenig Wasser bedeutet allerdings eine Zunahme der C-Bildung. Mit der Zugabe einer großen Wassermenge wird die C-Bildung zwar unterdrückt, allerdings wird dadurch die CO-Konvertierung sehr stark gefördert und das H₂/CO-Verhältnis auf über drei angehoben. Daraus können unerwünscht hohe H₂-Restgehalte im Produktgas resultieren.

Bild 5-13 zeigt das Massenflussdiagramm einer SNG-Erzeugung mittels einer holzbetriebenen Värnamo-Vergasung. Es werden nur die Brutto-Massenströme dargestellt; alle intern rezyklierten Stoffströme wie Bettmaterialumläufe in der Wirbelschicht, oder die geschlossenen Dampfkreisläufe, wurden aus Gründen der Übersichtlichkeit nicht berücksichtigt. So entsteht aus dem Rauchgas und den beiden Trennstufen etwa in Summe der 5-fache Massenstrom an klimaneutralem CO₂ relativ zum produzierten SNG, was die Notwendigkeit einer strikten Nachhaltigkeit der Holzbereitstellung anschaulich werden lässt. Da das gesamte CO₂ in nahezu reiner Form anfällt, ist hier eine über die CO₂-Neutralität hinausgehende Senke durch die stoffliche Nutzung oder die Sequestrierung von CO₂ denkbar.

Bezüglich des Wasserhaushaltes gilt Analoges zum Talyor-Verfahren. Im hier dargestellten Szenario wird das zur Dampferzeugung benötigte Frischwasser dem öffentlichen Netz entnommen und das Kondensat nach einer Vorbehandlung an die Kanalisation abgegeben. Die Dampfmengen sind signifikant niedriger als beim Taylor-Verfahren. Eine Nutzung des Kondensats zur Dampferzeugung erscheint aufgrund des verglichen mit dem Taylor-Verfahren geringeren Eigenbedarfs an Frischdampf und der damit verbundenen längeren Amortisationszeit einer Eigenklärung eher unwahrscheinlich.

Bild 5-14 zeigt das Energiestromdiagramm der Värnamo-Vergasung. Die Rückverschaltung der Wärmeströme ist analog zur Betrachtung der Taylorvergasung nicht berücksichtigt. Auch die Brennstofftrocknung von 50 auf 20 Mas.-% Wassergehalt, die mit Restwärme versorgt wird, wurde nicht betrachtet. Trotz dieser Vereinfachungen liefert die Darstellung ein differenzier-

teres Bild verglichen mit der ausschließlichen Angabe von zahlenmäßigen Wirkungsgraden.

Auch hier bilden die Stoff- und Energieströme, im Zusammenwirken mit den jeweiligen Dichten, insbesondere der Gasströme unter Prozessbedingungen, die Grundlage für die Dimensionierung von Apparaten und Rohrleitungen. Aufgrund des höheren Verfahrensdruckes sind die Apparatvolumina deutlich kleiner, die erforderlichen Wandstärken jedoch größer.

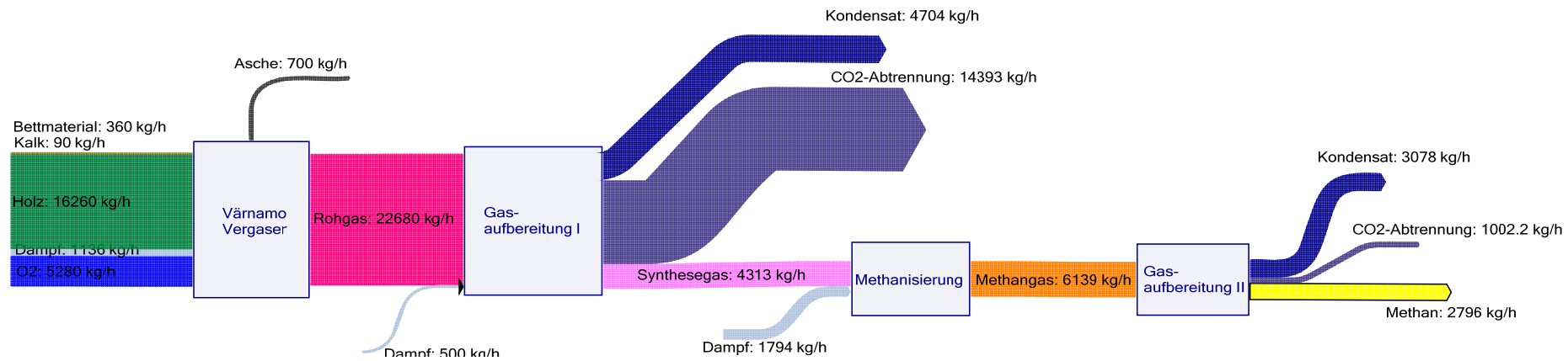


Bild 5-13: Stoffströme Värnamo-Verfahren

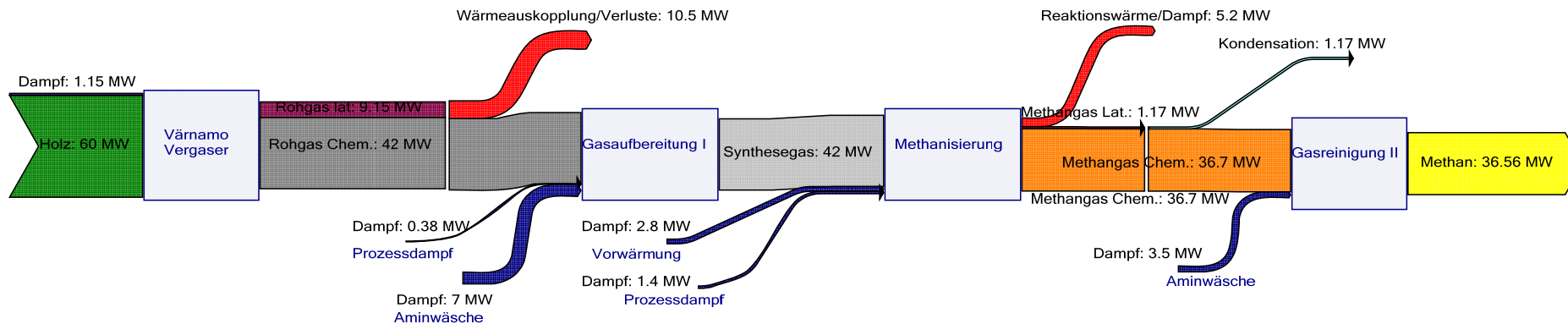


Bild 5-14: Energieströme Värnamo-Verfahren

6 Kosten der SNG-Erzeugung

Die Kosten einer SNG-Erzeugung durch Holzvergasung setzen sich aus den Kosten der Biomasse, den Kosten der Gaserzeugung und den Kosten der Gasreinigung zusammen. Ausgehend von einer vorgegebenen thermischen Leistung des betrachteten Vergasers von 60 MW Feuerungswärmeleistung wurden die Verfahrensprinzipien Biomassevergasung nach dem Taylor- und nach dem Värnamo-Vergasungsprinzip bezüglich der Stoff- und Wärme-ströme bilanziert. Prinzipiell sind für die Verfahrenskette, die zur Bereitstellung von Methan-Gas erforderlich ist, verschiedene Verschaltungen der Umwandlungs- und Reinigungsschritte denkbar. Unterschiedliche Varianten wurden simuliert und basierend auf diesen Ergebnissen eine optimierte Verfahrenskette für das Taylor- und das Värnamo-Verfahren ausgewählt (siehe Kapitel 5.4 und 5.5). Die optimierten Verfahrensketten wurden anschließend mit Kosten hinterlegt. Hierzu wurde ein komplettes Basic-Engineering durchgeführt. Alle Hauptausrüstungen wurden dimensioniert und bei entsprechenden Herstellern angefragt. Zu diesem Zweck wurden von über 40 Herstellern Angebote angefordert. Als Ergebnis der Planungen liegt ein vollständiges R&I Schema inklusive aller Stoffströme vor. Sämtliche Hauptausrüstungen sind mit Kosten hinterlegt. Die Kosten der verbleibenden Anlagenkomponenten wie MSR-Technik, Baumaßnahmen etc. wurden durch Kostenschätzverfahren ermittelt, beispielsweise durch Zuschlagsfaktoren zu Maschinen und Apparaten. Die detaillierte Kostenaufstellung sämtlicher Einzelausrüstungen liegt den Autoren vor und ist in die Berechnung der gesamten Investitionskosten und der spezifischen Gasgestehungskosten eingegangen. Eine Übersicht über die kumulierten Investitionskosten findet sich in Bild 6-1 und Bild 6-2.

Das Basic-Engineering inklusive der Investitionskostenschätzung wurde in Zusammenarbeit mit der Ingenieurfirma IPSC (Schwedt/Oder) durchgeführt. Wenn im Folgenden von dem Värnamo- bzw. Taylor-Verfahren gesprochen wird, ist das gesamte Verfahren zur Gasbereitstellung (Erzeugung von SNG) gemeint. Im Falle des Värnamo-Verfahrens ist ein mit Sauerstoff geblasener und druckaufgeladener Vergaser mit anschließender Methanisierung und Gasreinigung gemeint. Die genaue Verfahrensbeschreibung der beiden Gaserzeugungspfade befindet sich in Kapitel 5.

6.1 Investitionskosten

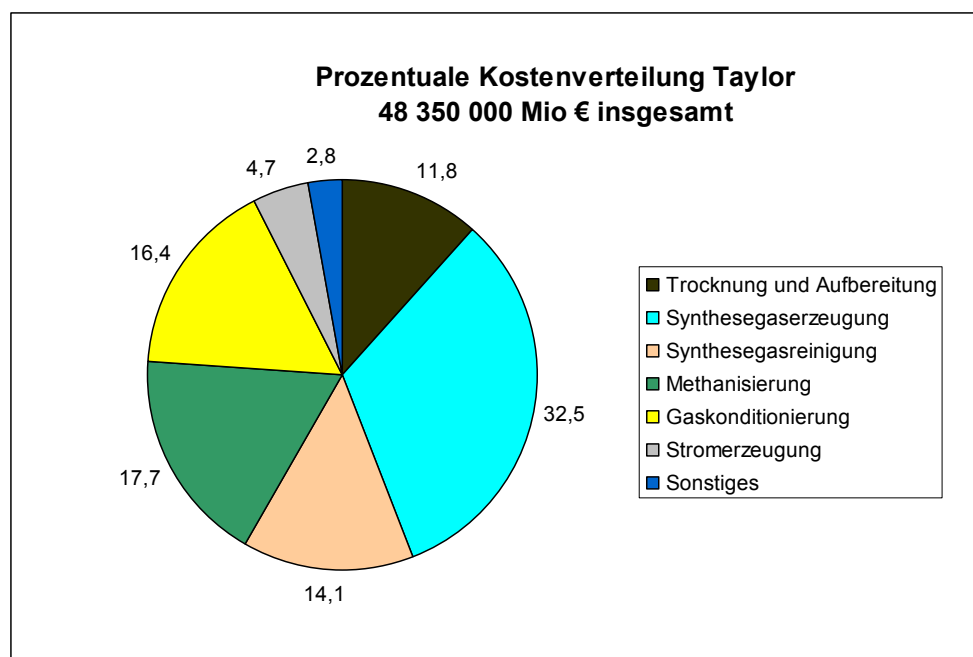
Für jedes untersuchte Verfahrensprinzip werden jeweils zwei MDEA-Wäschen zur CO₂-Abtrennung vorgesehen. Darüber hinaus wurde auch die Möglichkeit einer Druckwasserwäsche zur CO₂-Abtrennung untersucht. Diese erfüllte jedoch nicht die geforderten Anforderungen, da für einen hohen CO₂-Abscheidegrad extrem große Wasser-Umlaufmengen erforderlich wären. Die Möglichkeit einer Druckwasserwäsche wurde daraufhin verworfen. Die MDEA-Waschlösung besitzt eine wesentlich größere CO₂-Löslichkeit als reines Wasser, woraus geringere Waschmittelmengen resultieren [Fra05]. Gegenüber rein organischen Wäschen ist der Agenz-

verbrauch geringer bzw. sind die Regenerierungsaufwendungen kleiner. Da die Reinigungsanforderungen hinsichtlich der CO₂-Abtrennung moderat sind, erscheint diese Wäsche als Verfahren der Wahl. Des Weiteren ist für das Taylor-Vergasungsprinzip die Möglichkeit einer Druckabsenkung gegenüber den typischen Arbeitsbedingungen in der MDEA CO₂-Wäsche untersucht worden. Eine Absenkung des Absorptionsdruckes führte zu stark erhöhten CO₂-Konzentrationen im Reingas, sodass dieser Ansatz nicht weiter verfolgt wurde. Für die Gaserzeugung nach dem Värnamo-Vergasungsprinzip ist keine zusätzliche Verdichtung erforderlich, da das Druckniveau der Vergasung im Wesentlichen über die gesamte Prozesskette erhalten bleibt. Um die geforderten Gasqualitäten zu erreichen, muss auch schon das Synthesegas vor der Methansierung CO₂ abgereichert werden. Die zweite Wäsche trennt dann das SNG von seinem Koppelprodukt CO₂.

Die Simulationen der Gaswäschen wurden mit dem Programm ChemCAD durchgeführt. Der sich aus den Reinheitsanforderungen ergebende erforderliche CO₂-Abtrenngrad von 95 % wird mit den für diese Kostenbetrachtung zugrunde gelegten Anlagenkonfigurationen sicher erreicht. Die erzeugten Gasqualitäten genügen den Anforderungen der Arbeitsblätter [G-260]/[G-262] des DVGW zur Gasbeschaffenheit von Erdgas beziehungsweise zur Nutzung von Gasen aus regenerativen Quellen in der öffentlichen Gasversorgung.

Zur anschaulichen Gestaltung der Aussagen wurden die Investitionskosten entsprechend der Prozesskette dargestellt, wobei kumulativ ermittelte Kosten wie z. B. für die MSR-Technik, prozentual den Anlagenteilen zugeordnet wurden. Die Darstellung umfasst somit die vollständigen zu erwartenden Kosten mit Ausnahme der Kosten für das Grundstück. Bei beiden Anlagen wurde zur besseren Vergleichbarkeit von einem energieautarken Betrieb ausgegangen. Dies gilt nicht nur für die Wärmeversorgung, sondern auch für den Strombedarf. Beide Verfahren wurden daher mit Dampfsammelsystemen und der entsprechenden Turbinentechnik konzipiert.

Bild 6-1: Investitionskostenverteilung für die Herstellung von SNG aus Holz gemäß der für das Taylor-Verfahren optimierten Verfahrenskette bei 60 MW FWL

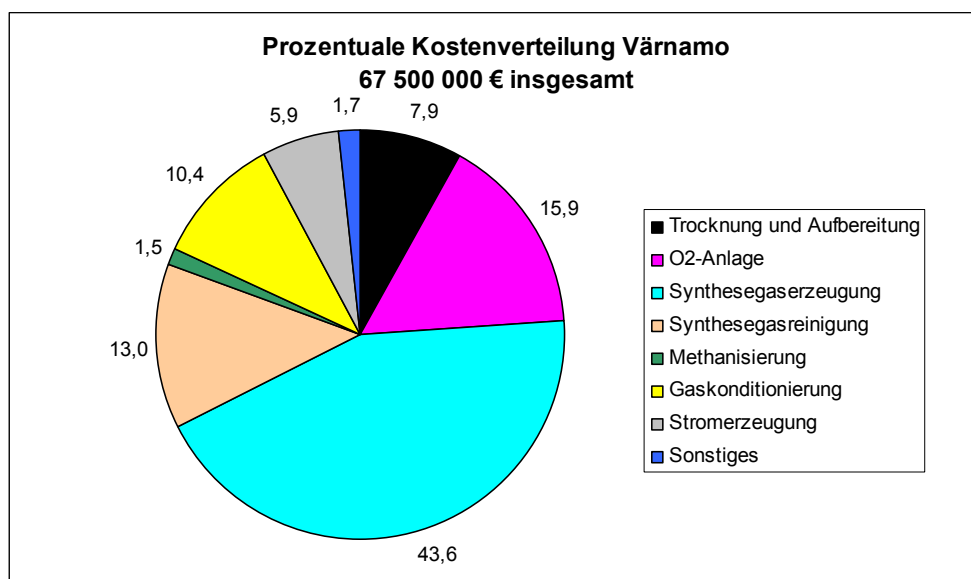


Ein Vergleich der Investitionskosten beider Verfahren zeigt, dass das Värnamo-Vergasungsprinzip deutlich höhere Investitionskosten aufweist. Die Mehrkosten von ca. 19 Mio. € (28%) resultieren hauptsächlich aus den zusätzlichen Kosten für die Sauerstoffanlage (Kryogene Luftzerlegungsanlage nach dem Linde-Verfahren) des Värnamo-Vergasungsreaktors und vor allem aus der aufwändigen mehrstufig und redundant zu bauenden Schleusentechnik zur Beschickung des Druckvergasers. Die in den später folgenden Kalkulationen zu den Betriebsstunden getroffenen Annahmen lassen sich nur mit einem redundanten Schleusensystem erreichen.

Das Taylor-Vergasungsprinzip arbeitet nahezu bei Umgebungsdruck, sodass ein einfaches Schleusensystem genügt und Störungen kurzzeitig behoben werden können. Für hohe CO₂-Abscheidegrade in der Gaswäsche muss der Druck des Rohgases erhöht werden. Eine Druckerhöhung ist sowohl für die Methanisierung als auch für die CO₂-Abtrennung erforderlich. Die Kosten für die Gasverdichtung sind bei der Taylor-Variante der Methanisierungsstufe zugeschlagen, was hier die höheren Investitionskosten für diesen Anlagenteil erklärt. In der Gesamtsumme der Investitionskosten ist für beide Verfahrensvarianten jeweils ein Sicherheitszuschlag von 17 % für Unvorhergesehenes und für Preissteigerungen enthalten. In den Einzelkosten wurden soweit vorhanden konkrete Richtpreisangebote oder auch vergleichbare Kosten ähnlich dimensionierter Bauteilgebote bis hin zu Schätzungen auf Basis guter Ingenieurspraxis berücksichtigt, wobei mit steigender Datenunsicherheit für einzelne relevante Bauteile spezifische Sicherheitszuschläge auf die einzelnen Aggregate erhoben wurden. Die Sicherheitsreserve von 17% wurde anschließend den ermittelten Gesamtkosten aufgeschlagen, sodass gute Chancen bestehen, mit den angegebenen Aufwendungen tatsächlich den Bau einer solchen Erstanlage realisieren zu können. Kurzfristige Preisüberhö-

hungen, wie sie Anfang 2008 z. T. im Anlagenbau auftraten sind allerdings unberücksichtigt geblieben.

Bild 6-2: Investitionskostenverteilung für die Herstellung von SNG aus Holz gemäß, der für das Värnamo-Verfahren optimierten Verfahrenskette bei 60 MWFWL



Die Anlagenteile Trocknung und Aufbereitung sowie Gaskonditionierung liegen trotz der unterschiedlichen Prozessketten bezüglich der Investitionskosten in einer ähnlichen Größenordnung. Prozentual ist ihr Anteil an den Gesamtkosten jedoch aufgrund der geringeren Gesamtsumme bei dem Taylor-Verfahrensprinzip höher.

6.2 Abhängigkeit der Gasgestehungskosten von den Rohstoffpreisen

Die Gasgestehungskosten werden nachfolgend in Konversionskosten und Biomassenkosten unterteilt, wobei in den Konversionskosten auch die Tilgung der Investition enthalten ist. Für die Kostenschätzung wird von einer Anlagengröße von 60 MW Feuerungswärmeleistung ausgegangen (vgl. Bild 6-3 & Tabelle 6-1). Bezüglich der zugrunde gelegten Betriebsstundenzahl wird angenommen, dass durch technische Verbesserungen und zunehmende Erfahrung während des Betriebs der Anlage die Anlagenverfügbarkeit gesteigert werden kann. Folgendes Szenario wird für die Betriebsstundenzahl über die Anlagennutzungsdauer angenommen.

1. Jahr:	6.200 h/a
2. Jahr:	6.800 h/a
3. Jahr:	7.200 h/a
4. Jahr:	7.500 h/a
5.-20. Jahr:	7.800 h/a

Die angegebenen spezifischen Kosten in ct/kWh ($H_{i,N}$) beziehen sich auf die produzierte Menge gereinigtes CH_4 am Ausgang der Gasreinigung. Für beide Gaserzeugungspfade wird zugrunde gelegt, dass der Eigenstrombedarf durch die prozessinterne Stromerzeugung bereitgestellt wird. Zum An- und Abfahren muss gegebenenfalls externer Strom bezogen werden. Die Bestimmung der spezifischen Investitionskosten erfolgt unter Verwendung eines Annuitätzinssatz von 6%/a.

In die Nebenkosten für Hilfsstoffe und Entsorgung gehen die Kosten für das Bettmaterial, CaO (Filterhilfsmittel), ZnO (Entschwefelung), Feststoffdeponierung, MDEA (Waschmittel), Wasseraufbereitung (Eigenstromerzeugung), Wasser und Abwasser ein. Zur Bestimmung der Personalkosten wird von einem Fünfschichtbetrieb ausgegangen. Pro Schicht müssen bei dem Värnamo-Verfahren zwei Techniker, drei Anlernkräfte und ein Schichtführer vorgehalten werden. Darüber hinaus wird mit einem Ingenieur und einer Verwaltungskraft kalkuliert, die nicht in das Schichtsystem eingebunden sind. Für das Taylor-Verfahren wird eine weitere Anlernkraft kalkuliert, unter anderem weil der häufigere Bettmaterialaustausch und die aufwändigere Dampfbereitstellung einen größeren Arbeitsaufwand verursachen. Für Wartung und Instandhaltung wird für die ersten Anlagen eine Pauschale von 5 % der Investitionssumme pro Jahr angesetzt. In den Szenarienbetrachtungen vermindert sich diese Pauschale schrittweise auf in diesem Bereich übliche 2% für bekannte Technik.

Die Ergebnisse der Kostenschätzung sind für die Taylor- und Värnamo-Variante in Tabelle 6-2 als auf die kWh ($H_{i,N}$) produziertes und gereinigtes CH_4 -Gas dargestellt. Die dargestellten Kosten beziehen sich auf eine Anlage, die 2010 in Betrieb genommen wird. Die im Vorfeld der Studie angefragten Kosten für Maschinen und Apparate wurden mit einer 3%igen inflationsbedingten Preissteigerung berücksichtigt.

Ein Vergleich der spezifischen Gasgestehungskosten zeigt, dass sich trotz der deutlich höheren absoluten Investitionskosten für den Värnamo-Vergaser ähnliche Gasgestehungskosten für die Värnamo- und Taylor-Variante in der Größenordnung von 5,8 ct/kWh ($H_{i,N}$) ergeben. Sie unterscheiden sich lediglich um ca. 0,12 ct/kWh ($H_{i,N}$). Die spezifischen Investitionskosten der beiden untersuchten Vergasertypen unterscheiden sich weniger stark, als es die unterschiedlichen absoluten Investitionssummen vermuten lassen, da der Värnamo-Vergaser bei konstanter Brennstoffleistung also konstantem Holzbedarf eine höhere Gasausbeute liefert. Allerdings wird in dem hier betrachteten Szenario ein Teil des Gases zur Eigenstromversorgung, insbesondere für die Sauerstoffanlage verwendet, sodass ein autarker Betrieb bezüglich der elektrischen Energieversorgung möglich ist. Würde die gesamte produzierte Gasmenge (keine Stromproduktion mit Gas aus der Biomassevergasung) zur Verfügung stehen, wären die spezifischen Biomassekosten des Värnamo-Verfahrens deutlich niedriger. Aufgrund des Eigenbedarfs sind die spezifischen Biomassekosten sogar höher als bei der Taylor-Variante. Die nachfolgende Tabelle liefert einen Überblick über die Aufteilung der Kosten auf einzelne Kostenpositionen, wobei von einem Biomassepreis von 70€/Tonne Holz wasserfrei ausgegangen wurde. Die notwendige Trocknung der angelieferten Biomasse von einem Wassergehalt von bis zu 50 Mas.-%

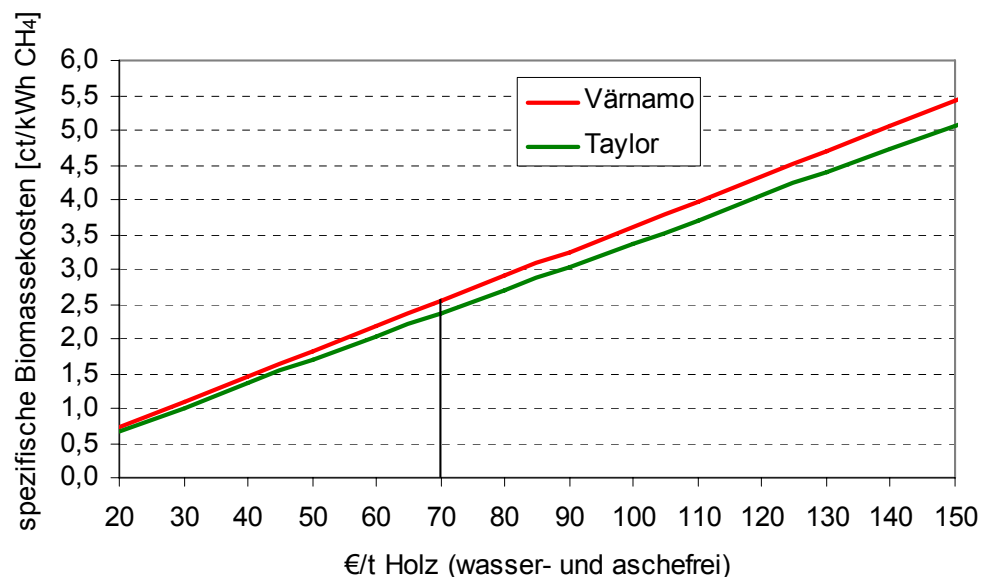
auf 20 Mas.-% am Vergasereintritt erfolgt unter Einsatz prozessinterner Niedertemperaturrestwärme.

Tabelle 6-2: Spezifische Gasgestehungskosten Taylor- und Värnamo-Verfahren (Bezug: kWh ($H_{i,N}$) gereinigtes CH₄-Gas)

	Taylor	Värnamo
Gesamte Investitionskosten in €	48.350.000	67.500.000
Spezifische Kosten (Inbetriebnahme 2010)	ct/kWh($H_{i,N}$) _i	ct/kWh($H_{i,N}$) _i
spezifische Investkosten	1,76	2,02
Nebenkosten Hilfsstoffe+Entsorgung	0,58	0,37
Wartung und Instandhaltung	0,05	0,06
Spezifische Personalkosten	0,78	0,57
Sonstiges (Hilfsenergien für An- und Abfahrprozesse)	0,25	0,20
Summe spezifischer Konversionskosten	3,42	3,21
Spezifische Biomassekosten (70 €/t _{atro})	2,47	2,53
Summe spezifischer Gestehungskosten	5,88	5,75

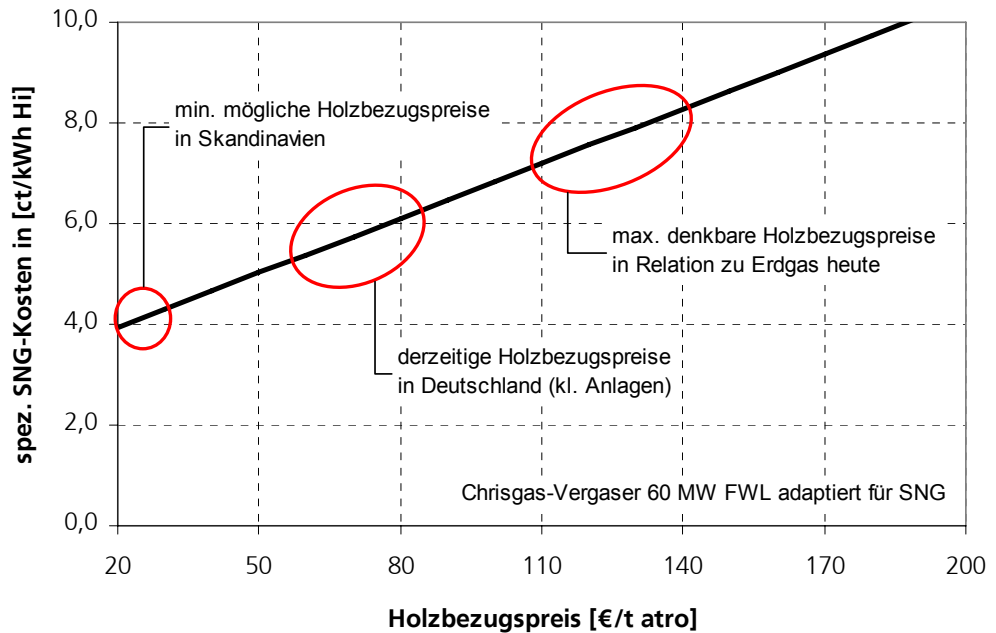
Der Beitrag der Biomassekosten zu den Gasgestehungskosten ist in Bild 6-4 dargestellt. Unter den oben genannten Voraussetzungen liegen die spezifischen Biomassekosten für den Värnamo-Vergaser stets über denen des Taylor-Vergasers. Bei einer Preissteigerung der Biomasse um 10 €/t ergeben sich für den Taylor-Vergaser zusätzliche Gasgestehungskosten von 0,334 ct/kWh ($H_{i,N}$) und für den Värnamo-Vergaser von 0,362 ct/kWh ($H_{i,N}$). Der für die dargestellte Kostenkalkulation angenommen Biomassebereitstellungspreis von 70 €/t ist in Bild 6-4 markiert.

Bild 6-4: Einfluss des Holzpreises auf die Gasgestehungskosten



In Bild 6-5 sind die gesamten Gasgestehungskosten in Abhängigkeit vom Holzpreis beispielhaft für das Värnamo-Verfahren dargestellt. Bei derzeitigen Holzbezugspreisen ergeben sich Gasgestehungskosten unter 6 ct/kWh ($H_{i,N}$). Bei sehr niedrigen Holzbezugspreisen, wie sie in bestimmten skandinavischen Ländern gegeben sind, können die Gasgestehungskosten bis auf knapp über 4 ct/kWh ($H_{i,N}$) gesenkt werden. Wird von einem Szenario ausgegangen, bei dem beispielsweise aufgrund stark gestiegener Erdgaspreise die Nachfrage nach Holz und damit auch die Holzpreise auf Werte deutlich über 100 €/t steigen, kann von Gasgestehungskosten um 7 ct/kWh ($H_{i,N}$) ausgegangen werden, wobei dann allerdings auch der SNG-Erlös entsprechend steigt.

Bild 6-5: Gasgestehungskosten in Abhängigkeit von den Biomassekosten am Beispiel des Värnamo-Verfahrens



6.3 Prognose der zukünftigen Gasgestehungskosten unter Berücksichtigung des technischen Fortschritts

Die im vorigen Kapitel dargestellten Investitionskosten beziehen sich auf eine im Jahr 2010 in Betrieb genommene Anlage, für die es in dieser speziellen Anlagenkonfiguration bisher keine Referenzanlagen gibt. Für die Kostenkalkulation wurde deshalb ein konservativer Ansatz gewählt, bei dem ein hoher Sicherheitszuschlag beispielsweise für Investitionskosten inkludiert ist. Wird eine steigende Anzahl zukünftig errichteter Anlagen vorausgesetzt, so kann auch von einem technischen Fortschritt und damit einhergehend einer Effizienzsteigerung bzw. einem Kosteneinsparungspotenzial ausgegangen werden. In Tabelle 6-3 und Tabelle 6-4 wird versucht, dieses Fortschrittpotenzial und seinen Einfluss auf die Gasgestehungskosten für ein hypothetisches Szenario zu berücksichtigen, in dem sich die Anzahl der Anlagen bis zum Jahr 2050 auf insgesamt 30 Anlagen erhöht. In dem Zeitraum von 2010 bis 2015 ergibt sich zunächst ein besonders großes Kosteneinsparungspotenzial bezüglich der Investitionskosten, da für die ersten fünf Jahre von einem besonders hohen Erkenntnisgewinn ausgegangen wird. Der für das Jahr 2010 angenommene Sicherheitszuschlag für Unvorhergesehenes bei den Investitionskosten fällt für das Jahr 2015 weg. Ab diesem Jahr wird ein kleineres, sich – bezogen auf den jeweils vorhergehenden Zeitraum – stetig verringendes Kosteneinsparungspotenzial angenommen.

Die spezifischen Konversionskosten werden aber in der Zukunft nicht nur durch den verminderten Kapitalbedarf reduziert. Zunehmende Erfahrungen beim Betrieb der Anlagen haben positive Effekte auf die zu erreichende Betriebsstundenzahl während der Lebensdauer der Anlagen. In der Folge erhöht sich die produzierte Gasmenge und es kommt zu einer Senkung der

spezifischen Gasgestehungskosten. Die aufgezeigten Kostendegressionspotentiale beziehen sich auf die nominalen Kosten von 2010, beschreiben den technischen Fortschritt und berücksichtigen keine Preissteigerung. Weiterhin sind keine, mit starken Unsicherheiten behafteten Szenarien/Verfahren zur Wirkungsgradsteigerung, wie z. B. die Sauerstoffbereitstellung ohne kryogene Luftzerlegung, oder die Implementierung des AER-Prozesses, eines Verfahrens zur Gleichgewichtsverschiebung in der Vergasung durch CO₂-Loop Prozesse [BMBF07], betrachtet worden.

Tabelle 6-3: Taylor -Verfahren: Prognose spezifischer Konversionskosten für zukünftige Inbetriebnahmezeitpunkte

Inbetriebnahmejahr	2010	2015	2020	2030	2050
Betriebsstunden (20 Betriebsjahre)	152.500	155.000	157.100	159.500	162.800
Anlagenzahl	1	3	10	19	30
Degressionspotenzial je Stufe	1	0,75	0,85	0,9	0,95
Degressionspotenzial kumuliert seit 2010	1	0,75	0,64	0,57	0,55
spezifische Investkosten [ct/kWh (H _{i,N})]	1,76	1,30	1,09	0,96	0,90
Nebenkosten Hilfsstoffe+Entsorgung [ct/kWh (H _{i,N})]	0,58	0,57	0,44	0,42	0,40
Wartung und Instandhaltung [ct/kWh (H _{i,N})]	0,05	0,03	0,02	0,02	0,02
Spezifische Personalkosten [ct/kWh (H _{i,N})]	0,78	0,77	0,76	0,75	0,73
Sonstiges (Hilfenergie An- und Abfahren) [ct/kWh (H _{i,N})]	0,25	0,20	0,18	0,17	0,16
Spezifische Konversionskosten [ct/kWh (H _{i,N})]	3,42	2,87	2,50	2,32	2,21

Bei den Nebenkosten werden Einsparungen in der Wasserbehandlung bzw. Abwasserentsorgungstechnik infolge eines stabileren Betriebs angenommen. Des Weiteren führt eine Optimierung der Holzvergasung zu Ausbrandverbesserungen, wodurch Teerkondensation zunehmend vermieden wird. Die auszuschleusenden Feststoffe können hierdurch kostengünstiger entsorgt werden. Für Wartung und Instandhaltung wurde für das Jahr 2010 eine Pauschale von 5 % der Investitionssumme angesetzt. Diese Pauschale wird bis zum Jahr 2015 auf 3,5 % abgesenkt. Eine weitere schrittweise Reduzierung auf 2 % findet bis zum Jahr 2050 statt. Die Anzahl der benötigten Arbeitskräfte bleibt nahezu konstant; durch die zunehmende produzierte Gasmenge sinken die spezifischen Personalkosten stetig. Bei den sonstigen Kosten wirkt sich die Abnahme der Störanfälligkeit auf die Zahl der An- und Abfahrvorgänge aus. Ein abnehmender Bedarf an Hilfsenergie senkt ebenfalls die spezifischen Kosten. Bei den mittelfristigen Szenarienbetrachtungen ist es durchaus denkbar, dass einzelne Standorte auch mit Anlagenleistungen um 100 MW FWL ausgerüstet werden, wobei die spezifischen Investitions- und Personalkosten weiter sinken würden. Hieraus ergeben sich im

günstigsten Fall spezifische Konversionskosten von 1.57 ct/kWh ($H_{i,N}$), was in etwa einer Halbierung der spezifischen Konversionskosten entspricht.

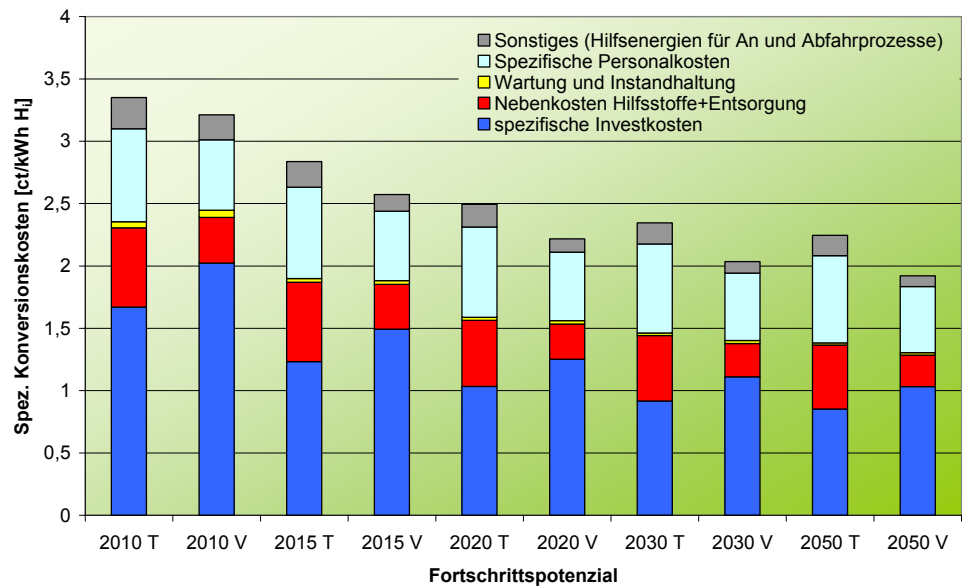
Tabelle 6-4: Värnamo-Verfahren: Prognose spezifischer Konversionskosten für zukünftige Inbetriebnahmezeitpunkte

Inbetriebnahmejahr	2010	2015	2020	2030	2050
Betriebsstunden (20 Betriebsjahre)	152.500	155.000	157.100	159.500	162.800
Anlagenzahl	1	3	10	19	30
Degressionspotenzial je Stufe	1	0,75	0,85	0,9	0,95
Degressionspotenzial kumuliert seit 2010	1	0,75	0,64	0,57	0,55
spezifische Investkosten [ct/kWh ($H_{i,N}$)]	2,02	1,49	1,25	1,11	1,03
Nebenkosten (Hilfsstoffe + Entsorgung) [ct/kWh ($H_{i,N}$)]	0,37	0,36	0,28	0,27	0,25
Wartung und Instandhaltung [ct/kWh ($H_{i,N}$)]	0,06	0,03	0,03	0,02	0,02
Spezifische Personalkosten [ct/kWh ($H_{i,N}$)]	0,57	0,56	0,55	0,54	0,53
Sonstiges (Hilfenergie An- und Abfahren) [ct/kWh ($H_{i,N}$)]	0,20	0,13	0,11	0,09	0,09
Spezifische Konversionskosten [ct/kWh($H_{i,N}$)]	3,21	2,57	2,22	2,04	1,92

In Bild 6-6 ist der zeitliche Verlauf der spezifischen Konversionskosten für beide Verfahren graphisch gegenübergestellt. Die spezifischen Konversionskosten sinken für beide Verfahren stetig unter der Annahme späterer Inbetriebnahmezeitpunkte. Die Tendenz, dass die Konversion mit dem Värnamo-Verfahren geringfügig niedrigere spezifische Kosten verursacht, bleibt auch für zukünftig in Betrieb genommene Anlagen bestehen.

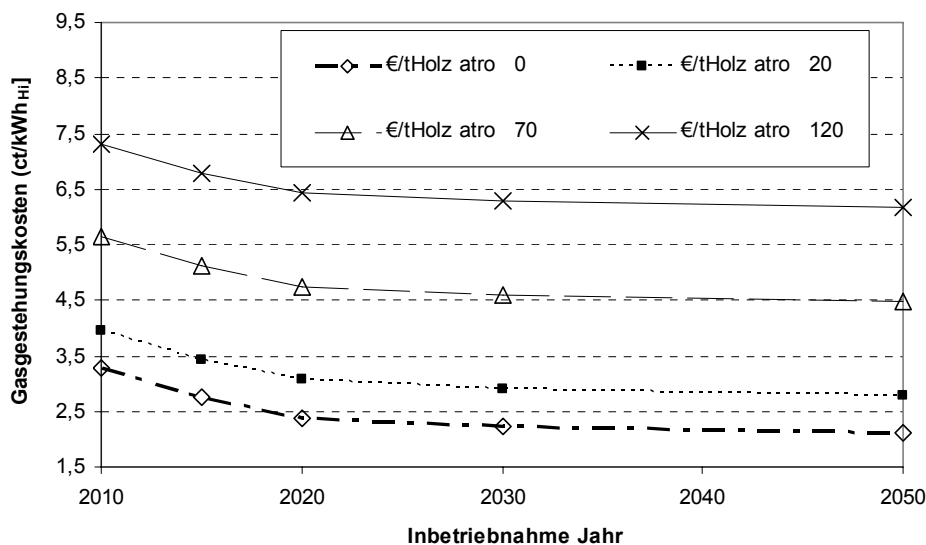
Bild 6-6: Spezifische Konversionskosten unter Berücksichtigung des Fortschrittpotenzials

T: Taylor
V: Värnamo:



Eine zusammenfassende Darstellung der zuvor dargestellten Einflussfaktoren Inbetriebnahmezeitpunkt und Holzbezugspreise auf die Gasgestehungskosten befindet sich in Bild 6-7. Die Gasgestehungskosten sinken bei ansonsten unveränderten Annahmen zwischen einer Inbetriebnahme im Jahr 2010 und einer Inbetriebnahme im Jahr 2050 um ca. 1,2 ct/kWh ($H_{i,N}$). Einen deutlich größeren Einfluss auf die Gasgestehungskosten haben die Holzbezugspreise. Eine extreme Holzpreiserhöhung von 20 €/t_{atro} auf 120 €/t_{atro} erhöht die Gasgestehungskosten um ca. 3,3 ct/kWh ($H_{i,N}$) und übertrifft damit die gesamten spezifischen Konversionskosten.

Bild 6-7: Gasgestehungskosten in Abhängigkeit vom Inbetriebnahmezeitpunkt und von den Holzbezugspreisen beispielhaft für das Taylor-Verfahren



Wie von anderen Autoren [ECN06], [Brä08] postuliert, könnte die wirtschaftliche Optimierung durch kombinierte SNG- und Stromproduktion, über den Eigenbedarf hinaus, weiter verbessert werden, doch sind die Voraussetzungen für jedes EU-Land signifikant unterschiedlich und zum Teil nicht über die Anlagenlaufzeit gesichert, sodass in diesem Bericht von einer detaillierteren Betrachtung Abstand genommen wurde.

6.4 Vergleich der Gasgestehungskosten mit fermentativ erzeugtem Methan-Gas

Um einen Vergleich der Gasgestehungskosten mit Methan-Gas aus fermentativ erzeugtem Biogas einer NawaRo-Anlage zu erhalten, zeigt Tabelle 6-5 typische Gasgestehungskosten. Die Tabelle beinhaltet in Anlehnung an Tabelle 5-19 aus »Technologien und Kosten der Biogasaufbereitung und Einspeisung in das Erdgasnetz. Ergebnisse der Markterhebung 2007-2008; Urban et al.; Fraunhofer Umsicht 2008« spezifische Gasgestehungskosten für gereinigtes Biogas verschiedener Anlagengrößen. Um eine Vergleichbarkeit der spezifischen Kosten zu erzielen, wurden die Kosten für Netzanschluss, BHKW und vermiedene Netznutzungsentgelte nicht berücksichtigt. Für die detaillierten Annahmen und Randbedingungen, die den aufgeführten Kosten zugrunde liegen, sei auf Band 4 dieser Studie verwiesen. Die spezifischen Gasgestehungskosten für fermentativ erzeugtes Methan-Gas aus NawaRo-Biomasse liegen für alle betrachteten Anlagengrößen über den Gasgestehungskosten des Taylor- und des Värnamo-Verfahrens, sofern von einem Holzpreis von 70 €/t_{atro} oder darunter ausgegangen wird (siehe Bild 6-7).

Tabelle 6-5: Spezifische Gasgestehungskosten für Methan-Gas aus Biogas für einen bestimmten Modellfall

NawaRo-BGA, PSA Typ Carbo-Tech	Anlagendurchsatz - Nm ³ /h Rohgas				
	250	500	1.000	1.500	2.000
spez. Kosten [ct/kWh (H _{i,N})]					
Biogaserzeugung (aus NawaRo)	6,4	6,05	5,8	5,64	5,55
Grobentschwefelung	0,09	0,09	0,06	0,04	0,03
CO ₂ -Abtrennung	2,26	1,64	1,31	1,24	1,2
Gasgestehungskosten	8,75	7,78	7,17	6,92	6,78

Vergleich mit bereits früher getroffenen Aussagen zur SNG-Produktion

In Tabelle 6-6 sind Kosten und Wirtschaftlichkeitskenngrößen des Taylor- und Värnamo-Verfahrens dem Vergaser-Konzept, wie es in Güssing (Österreich) realisiert wurde, gegenübergestellt. Die in Güssing betriebene Anlage besitzt derzeit eine Feuerungswärmeleistung von 8 MW. Die dargestellten Kosten wurden geschätzt und beziehen sich auf eine 25 MW Anlage inklusive einer Gasaufbereitung auf H-Gas Qualität. Die angegebenen Daten beziehen sich auf die für den DVGW erstellte Studie unseres Hauses, wobei Abweichungen durch die Betrachtung eines ebenfalls energieautarken Szenarios, zwecks Vergleichbarkeit zum Taylor- und Värnamo-Verfahren, zustande kommen. So wurden die Investitionskosten um einen Synthesegasmotor zur Eigenstromerzeugung erhöht und auch der Mehrbedarf an Holz für diesen Synthesegasstrom berücksichtigt. Auf der anderen Seite wurden die Kosten für den Fremdstrombezug von den Betriebskosten abgezogen. Die so angepassten Konversionskosten sind in Tabelle 6-6 dargestellt.

Tabelle 6-6: Gegenüberstellung unterschiedlicher Holzvergasungspfade inklusive Gasaufbereitung zu H-Gas

	Taylor	Värnamo	Güssing
Feuerungswärmeleistung [MW]	60	60	25
Invest	48.350.000	67.500.000	29.400.000
Gasleistung [MW (H _{i,N}) Produktgas]	32,90	35,55	19,14
Thermischer Wirkungsgrad [MWCH ₄ /MWHolz]	0,55	0,51	0,68
spezifische Investkosten [€/kW CH ₄ (H _{i,N}) Produktgas]	1.470	1.898	1.534
spezifische Investkosten [€/kW Holz(H _{i,N})]	806	1.125	1.174
spezifische Konversionskosten [ct/kWh (H _{i,N})]	3,42	3,21	3,82
spezifische Biomassekosten [70 €/t _{atro}]	2,47	2,53	2,05
spezifische Gasgestehungskosten [ct/kWh (H _{i,N})]	5,88	5,75	5,87

Die spezifischen Konversionskosten sowie die spezifischen Investitionskosten, bezogen auf die eingesetzte Holzmenge, sind bei der Güssing-Variante am höchsten. Dies liegt neben dem großen Investitionskostenanteil auch an den hohen Betriebskosten der Gasaufbereitung. Aufgrund des extrem guten angenommenen thermischen Wirkungsgrades (hohe Gasausbeute) liegen jedoch die auf die produzierte Gasmenge bezogenen spezifischen Investitionskosten zwischen denen der für den Taylor- und den Värnamo-Vergaser ermittelten. Unter dieser Voraussetzung ergäben sich bei einem Scale-Up des Güssing-Konzeptes auf eine Feuerungswärmeleistung von 60 MW wahrscheinlich aufgrund der Kostendegression der Investitionskosten und der geringeren spezifischen Biomassekosten weitere Kostenvorteile. Bei hohen Biomassepreisen besitzen Verfahren mit hoher Methan-Ausbeute einen wirtschaftlichen Vorteil, der die höheren Konversionskosten gegebenenfalls überkompensieren kann. Die hohen angenommenen Wirkungsgrade müssen sich jedoch im Langzeitbetrieb in der Praxis noch betätigen.

7 Literaturverzeichnis

- [Bau06] Bauermeister, U.: Gaserzeugung aus fester Biomasse - Marktfähigkeit heute, GNS – Gesellschaft für nachhaltige Stoffnutzung mbH, 2006
- [Bel84] Bellagi, A.; Hammer, H.: Methanisierung von Kohlenmonoxid in der Wirbelschicht, Chemie Ingenieur Technik 56, Nr. 2, S.122-123, 1984
- [BGW05] Analyse und Bewertung der Nutzungsmöglichkeiten von Biomasse: Untersuchung im Auftrag von BGW und DVGW, Endbericht, Band 3, 2005
- [BIGCC02] Pitcher, K.; Paterson, B; Weekes, A., Neergard, M. ; Stahl, K.: Progress Archived in BIGCC Projects and Projectives; Proceed. 12th European Conference on Biomass for Energy, Industry and climate protection, Amsterdam 17-22 June 2002 p 71-76
- [Bmbf07] Zentrum für Sonnenenergie- und Wasserstoff-Forschung: Aufbereitung von Rohgas aus der Biomassevergasung zu Erdgasqualität - Methanisierung, Endbericht zum BMBF-Projekt 01SF0306, 2007
- [Brä08] Bräkow, D.; Oettel, E.: Konditionierung von Dendromasse - für die Erzeugung von synthetischen Kraftstoffen in BMBF-Abschlussbericht DENDROM- Zukunftsrohstoff Dendromasse, 2008.
- [Dak07] Dakota Gasification Company, www.dakotagas.com, Stand: 11/2007
- [ECN051] van der Drift, A.; van der Meijden, C.M.; Boerrigter, H.: MILENA gasification technology for high efficient SNG production from biomass, Published at 14th European Biomass Conference & Exhibition, Paris, 2005
- [ECN052] Deurwaarder, E.; Boerrigter, H.; Mozaffarian, H.; Rabou, L.; Drift, B.: Methanation of Milena product gas for the product gas for the production of bio-SNG, 14th European Biomass Conference & Exhibition, 17-21 October 2005, Paris, France (2005).
- [ECN06] Zwart, R.W.R.; Boerrigter, H.; Deurwaarder, E.P.; van der Meijden, C.M.; van Paasen, S.V.B.: Production of Synthetic Natural Gas (SNG) from Biomass, November 2006
- [Eco03] Projektleiter: Prof. Dr. A. Wokaun, Paul Scherrer Institut, Schlussbericht ECOGAS, Teilprojekt: Methan aus Holz, 2003
- [Fra05] Bewertung von Verfahren zur CO₂-Abscheidung und –Deponierung, Fraunhofer ISI, Karlsruhe, Hannover, 2005
- [G-260] DVGW-Regelwerk, Technische Regeln Arbeitsblatt G-260, Gasbeschaffenheit, Januar 2000
- [GNZ08] Verordnung über den Zugang zu Gasversorgungsnetzen (Gasnetzzugangsverordnung - GasNZV) vom 25. Juli 2005 (BGBl. I S. 2210), letzte Änderung durch Artikel 2 Abs. 3 der Verordnung vom 17. Oktober 2008 (BGBl. I S. 2006)
- [Har80] Harms, H.; Höhle, B.; Skov, A.: Methanisierung kohlenmonoxidreicher Gase beim Energie-Transport, Chemie Ingenieur Technik 52, Nr. 6, S. 504-515, 1980
- [Hed77] Hedden, K.; Anderlohr, A.: Untersuchungen zur Methanisierung und gleichzeitigen Konvertierung CO-reicher Gase, gwf-gas/erdgas, Heft 10, S. 422-426, 118. Jahrgang 1977
- [Hed86] Hedden, K.; Anderlohr, A.; Becker, J.; Zeeb, H.-P.; Cheng, Y.-H.: Gleichzeitige Konvertierung und Methanisierung CO-reicher Gase, BMFT-Forschungsbericht-T 86-044, März 1986
- [Hoh06] Hohenwarter, U.: Überblick über die Aufbereitung von biogenen Gasen für Brennstoffzellen an der TU Graz, Institut für Wärmetechnik, 2006
- [HSC02] Software Outokumpu: HSC Chemistry 5.11
- [ISI02] Ising, M.: Zur katalytischen Spaltung teerartiger Kohlenwasserstoffe bei der Wirbelschichtvergasung von Biomasse, Dissertation, Universität Dortmund, Fraunhofer IRB Verlag, 2002

- [Köp07] Köppel, W.; Bajohr, S.; Graf, F.; Reimert, R.: SNG aus Biomasse – Verfahrenstechnische Grundlagen und Herausforderungen, GWF Gas – Erdgas 148 Nr. 2, S. 87-94, 2007
- [Lom39] Lommerzheim, W.: The Pilot Development Stage of the COMFLUX-Process for Methanation of Coal Gas, Section 39, Thyssengas GmbH, Duisburg
- [Lom77] Lommerzheim, W.: Methanisierung von CO/H₂-Gemischen im Wirbelschicht-Reaktor, Verlag R. Oldenbourg München, gwf-gas/erdgas, Heft 10, S. 417-420, 118. Jahrgang 1977
- [Lom82] Lommerzheim, W.: Von der Kohle zum synthetischen Erdgas, Erdöl-Erdgas Zeitschrift, 98. Jg., 1982
- [Mol78] Molerus, O.; Bock, J.: Bericht des Instituts für Mechanische Verfahrenstechnik d. Universität Erlangen-Nürnberg vom 05.01.1978 (unveröff.)
- [Ols02] Olsbye, U., Moen, O., Slagtern, A., Dahl, I.: An investigation of the coking properties of fixed and fluid bed reactors during methane-to-synthesis gas reactions, Applied Catalysis A: General 228, p. 289-303, 2002
- [Pai07-1] Paisley, M.A.; Corley, R.N.; Dayton, D.C.: Advanced Biomass Gasification for the Economical Production of Biopower, Fuels, and Hydrogen, National Renewable Energy Laboratory, Montgomery, New York
- [Pai07-2] Paisley, M.: persönliche schriftliche Mitteilung, Taylor Biomass Energy, LCC, Juli 2007
- [Pat73] Patent DE 2403608; Verfahren zur Herstellung von Methan in einer Sumpffase, Anmelder: Chem Systems, Inc., New York, 1973
- [Pat79] Patent GB 2 018 818 A, A process for preparing a methane-rich gas, 1979
- [Pat80] Patent DE 2432887; Verfahren zur Erzeugung eines Erdgas austauschbaren Gases, Metallgesellschaft AG, Frankfurt, 1980
- [Pen79] Pennline, H. W.; Schehl, R.R.; Haynes, W.P.: Operation of a Tube Wall Methanation Reactor, Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev., Vol. 18, No. 1, p. 156-162, 1979
- [PSI05] Biollaz, S.; Seemann, M.; Schildhauer, T.J.; Stucki, S.: Methan-aus-Holz: Phase 1, Erzeugung von synthetischem Erdgas aus Holz zur Nutzung als Biotreibstoff (CNG/CMG), Schlussbericht, November 2005
- [San06] Sanati, M.; Brandin, J.: The Technical Feasibility of Biomass Gasification for Hydrogen Production, PP-Präsentation, Fachhochschule Flensburg, 2006
- [Sen76] Senkan, S.M.; Evans, L.B.; Howard, Jack B.: An Analysis of the Tube-Wall Reactor under Diffusion Limiting Conditions, Ind. Eng. Chem., Process Des. Dev., Vol. 15, No. 1, S. 184-187, 1976
- [She01] Shemwell, B.; Levendis, Y.; Simons, G.A.: Laboratory study on high-temperature capture of HCl gas by dry-injection of calcium-based sorbents, Chemosphere 42, p. 785 – 796, 2001
- [Stü07] Stürmer, B.: persönliche schriftliche Mitteilung, Zentrum für Sonnenenergie- und Wasserstoff-Forschung (ZSW) Stuttgart, Oktober 2007
- [Wal06] Waldheim, L.: CHRISGAS: Clean Hydrogen-rich Synthesis Gases, PP-Präsentation, IEA Workshop, Dresden, 06/ 2006

8 Glossar

AER	Absortion Enhanced Reforming
Atro	absolut trocken (bei 105 °C bis zur Massenkonstanz getrocknet)
BIGCC	Biomass integrated Gasification combined cycle
BtL	Biomass to Liquid
CFB	Circulating Fluidised Bed
FWL	Feuerungswärmeleistung
GC-MS	kombiniert Gaschromatographie mit Massenspektroskopie
H_{i,N}	unterer Heizwert unter Normalbedingungen
LCB	Lignocellulose-Biomasse
SNG	Synthetic Natural Gas
TD-GG	thermodynamischen Gleichgewicht

9 Anhang

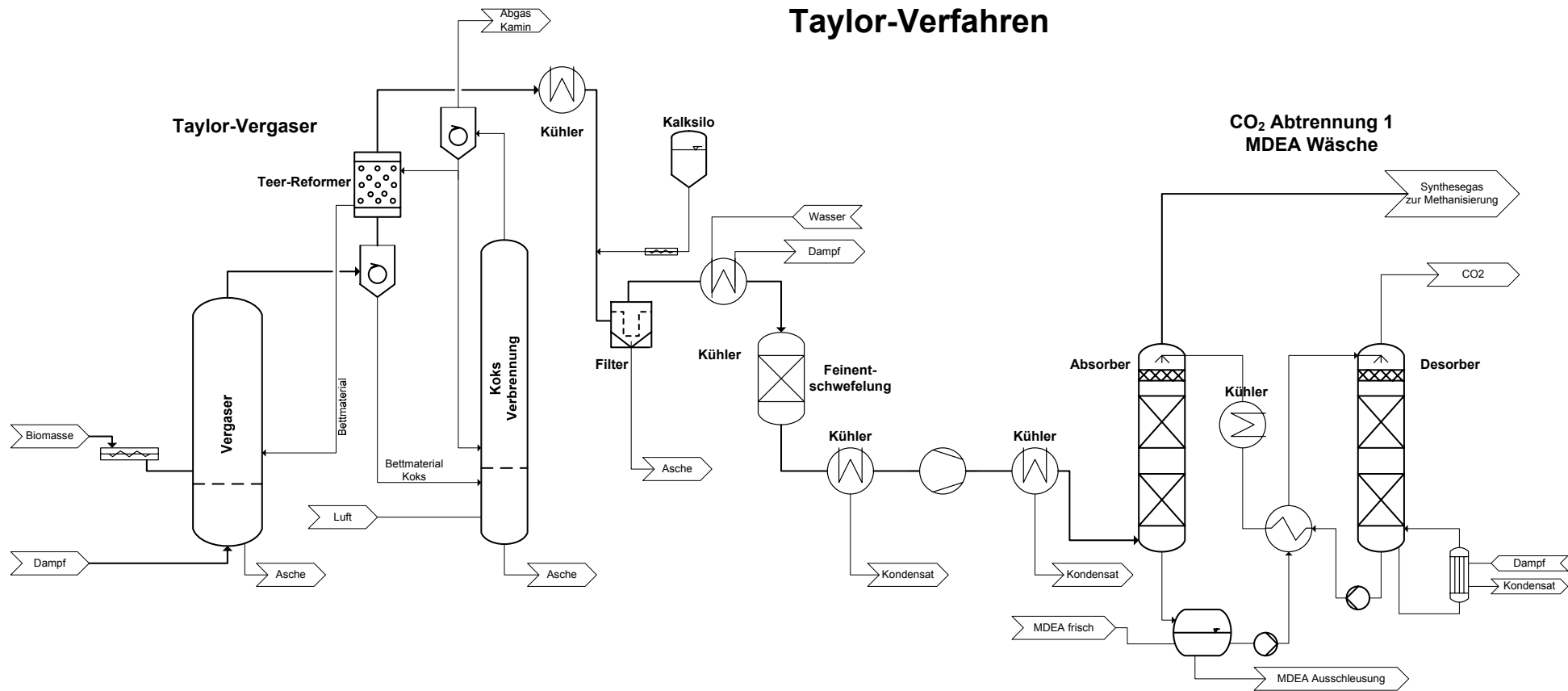


Bild 9-1: Verfahrensfießbild Taylor-Verfahren – Teil 1

Taylor-Verfahren

CO₂ Abtrennung 2 MDEA Wäsche

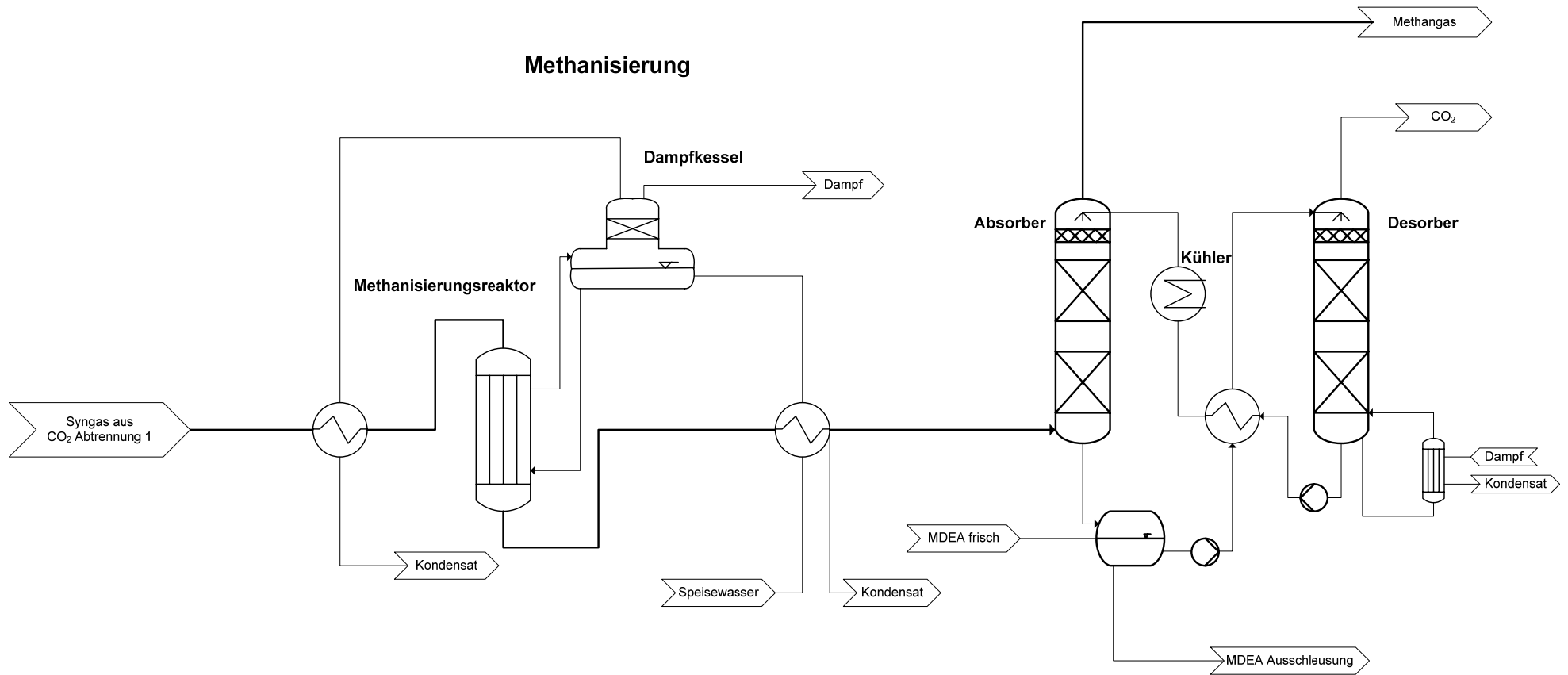


Bild 9-2: Verfahrensfließbild Taylor-Verfahren - Teil 2

Värnamo-Verfahren

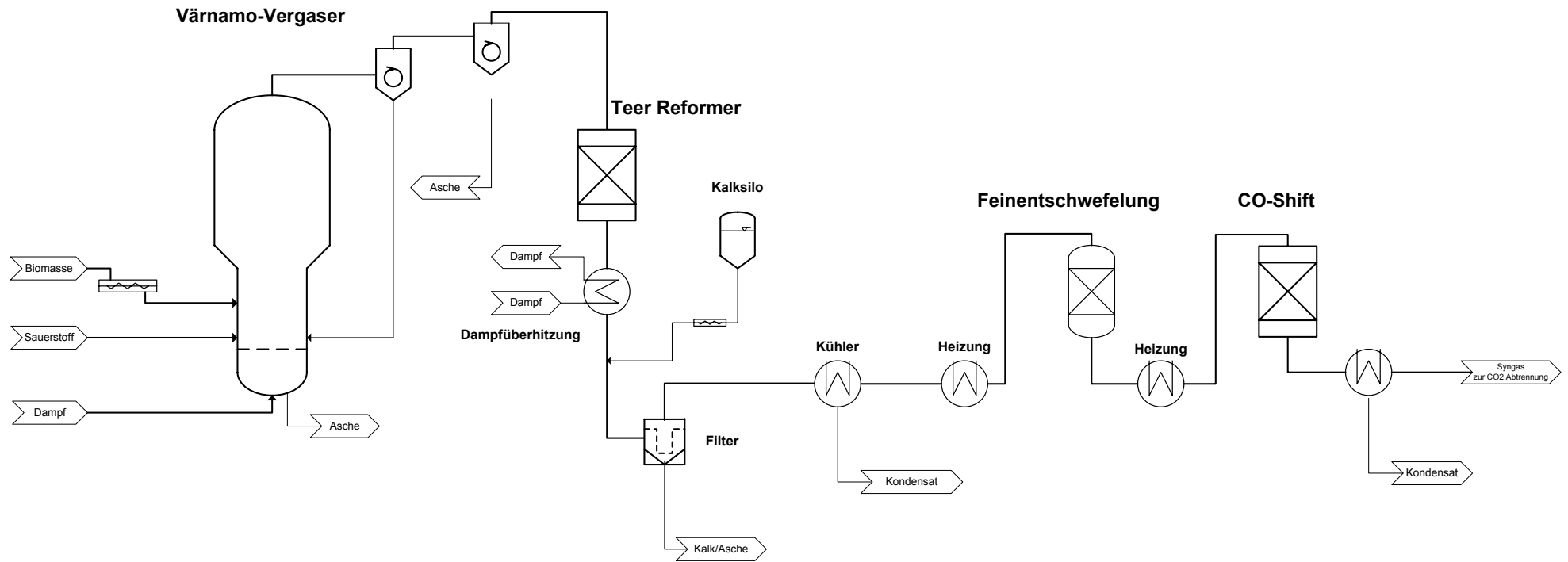


Bild 9-3: Verfahrensfließbild Värnamo-Verfahren - Teil 1

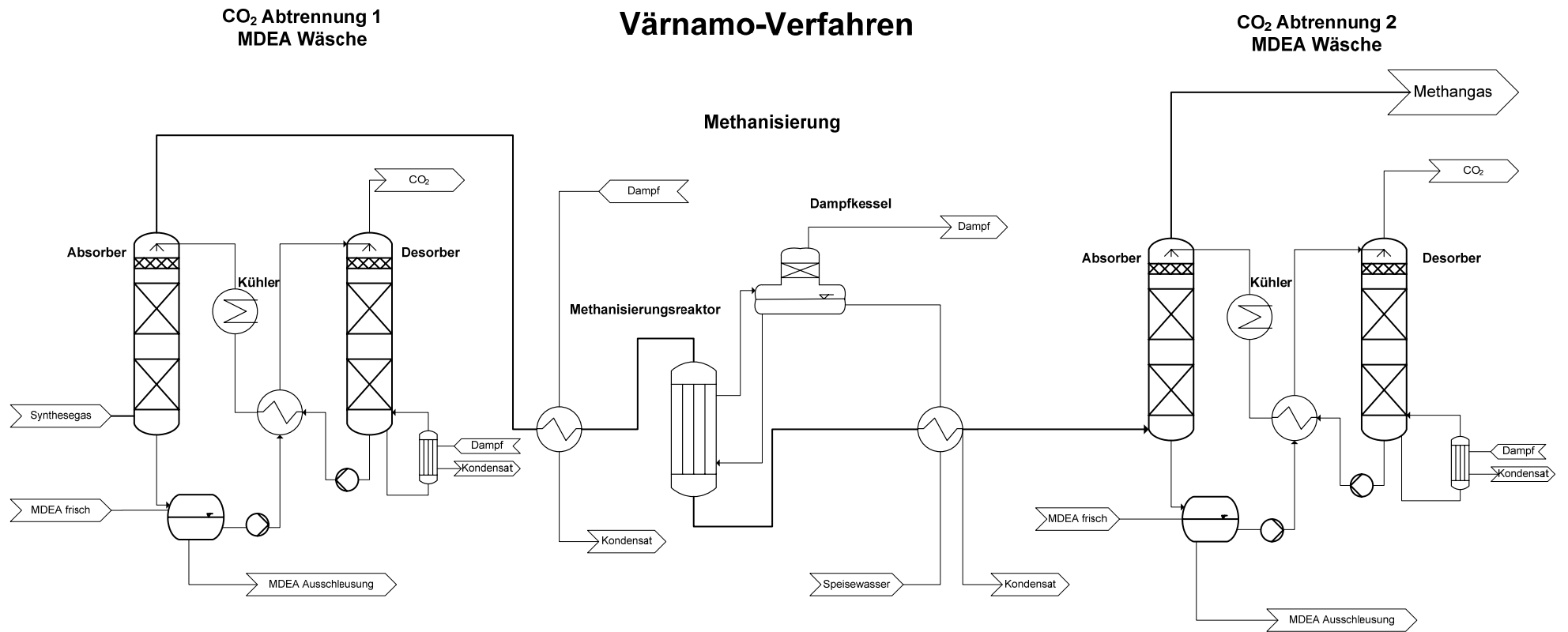


Bild 9-4: Verfahrensfießbild Värnamo-Verfahren - Teil 2