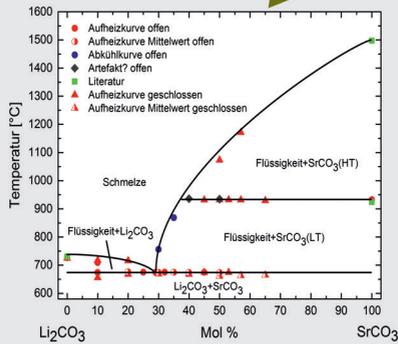
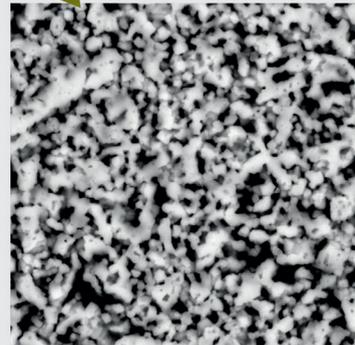


Membranfunktion



Phasendiagramm



REM-Bild
gesintertes CGO (1100°C)

Thermochemische Beständigkeit von Carbonat-Keramik-Membranen für die CO₂-Abtrennung in Wassergas-Shift-Reaktoren

Ursula Gude

Energie & Umwelt / Energy & Environment

Band / Volume 576

ISBN 978-3-95806-626-7

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis	VII
Tabellenverzeichnis	VIII
Abkürzungsverzeichnis	X
1 Kurzfassung	1
2 Abstract	2
3 Einleitung und Motivation	3
4 Theoretische Grundlagen	5
4.1 Anlagenkonzepte für die CO ₂ -Abtrennung	5
4.1.1 Der IGCC-Prozess	5
4.1.2 Wassergas-Shift-Reaktion	9
4.1.3 CO ₂ -Trenntechniken in IGCC-Kraftwerken	9
4.1.3.1 Post-Combustion-Prozess	10
4.1.3.2 Pre-Combustion-Prozess	10
4.2 Membranen	11
4.2.1 Allgemeines	12
4.2.2 Anforderungen	13
4.2.3 Flüssige Membranen	14
4.2.4 Pertraktion	16
4.2.5 Stofftransportmechanismus in Membranen	16
4.2.5.1 Feste Membranen	17
4.2.5.2 Flüssige Membranen	17
4.2.6 Porosität	19
4.2.7 Relative Dichte	19
4.2.8 Kapillarkräfte	20
4.3 Membranreaktor	21
4.3.1 Allgemeines	21
4.3.2 Wassergas-Shift-Membranreaktor	22
4.4 Funktionsweise der Carbonat-Keramik-Membran	23
4.5 Stand des Wissens zur Carbonat-Keramik-Membran	24
4.6 Membranmaterialien	27
4.6.1 Sauerstoff-Ionenleiter	27
4.6.1.1 Werkstoffe mit Fluoritstruktur	29
4.6.1.2 Kristallstruktur	29
4.6.2 Carbonate	31
4.6.3 Eisen-Chrom-Katalysator	31
5 Auswahl der (verwendeten) Membranmaterialien	32
5.1 Materialanforderungen	32

5.2	Materialwahl	32
5.2.1	Sauerstoff-Ionenleiter	32
5.2.1.1	CGO	34
5.2.1.2	CSO	34
5.2.1.3	Ausschluss von YSZ	35
5.2.2	Carbonatschmelze	37
6	Experimentelles und Charakterisierung	41
6.1	Methoden	41
6.1.1	Differenzthermoanalyse (DTA)	41
6.1.2	Dynamische Differenzkalorimetrie (DSC)	44
6.1.3	Röntgenpulverdiffraktometrie (XRD)	45
6.1.4	Rasterelektronenmikroskop (REM)	47
6.1.5	Thermochemische Modellierung	48
6.2	Materialien und Probenpräparation	49
6.2.1	Herstellung der Sauerstoff-Ionenleiter-Tabletten	49
6.2.2	Herstellung der getränkten Membran	49
6.2.3	Probenpräparation für die Oberflächenmorphologie	49
6.2.4	Herstellung des Katalysator	50
6.3	Versuchsaufbauten und -durchführungen	50
6.3.1	4-Rohr Ofen	50
6.3.2	Erhitzungsmikroskopie	55
6.3.3	Dualgas-Stabilitätsmessung	59
7	Ergebnisse und Diskussionen	61
7.1	Sauerstoff-Ionenleiter	61
7.1.1	Materialuntersuchung	61
7.1.2	Porositätsbestimmung	63
7.1.3	Messung der chemischen Stabilität	71
7.1.3.1	Atmosphären ohne Verunreinigung	71
7.1.3.2	Atmosphäre mit H ₂ S-Verunreinigung	78
7.2	Carbonatschmelze	81
7.2.1	Materialuntersuchung	81
7.2.2	Zersetzungs- und Verdampfungsraten	82
7.2.3	Zersetzungs- und Schmelztemperatur	84
7.2.4	Dampfdrucksimulation	86
7.2.5	Bestimmung der Phasengleichgewichte	90
7.2.5.1	Li ₂ CO ₃ /CaCO ₃	91
7.2.5.2	Li ₂ CO ₃ /SrCO ₃	106
7.3	Sauerstoff-Ionenleiter und Carbonatschmelze	120
7.3.1	Eindringverhalten der Carbonatschmelze in den Sauerstoff-Ionenleiter und Untersuchung des Porenhaltes	120
7.3.1.1	Theoretische Überlegung	120
7.3.1.2	CGO	121
7.3.1.3	CSO	139

7.3.2	Messung der chemischen Stabilität des infiltrierten Sauerstoff-Ionenleiters mit und ohne H ₂ S-Verunreinigung	157
7.3.3	86 Gew.-% Fe ₂ O ₃ /14 Gew.-% Cr ₂ O ₃ -Katalysator	165
7.3.4	Messung der chemischen Stabilität unter Dualgasatmosphäre	167
8	Zusammenfassung	173
9	Ausblick	176
10	Anhang	XI
10.1	Parameter vor und nach dem Sintern für CGO und CSO	XI
10.2	Auslagerung der Sauerstoff-Ionenleiter mit Verunreinigung	XIII
10.2.1	CGO nach Auslagerung in der Gaszusammensetzung I	XIII
10.2.2	CGO nach Auslagerung in der Gaszusammensetzung II	XIV
10.2.3	CGO nach Auslagerung in der Gaszusammensetzung V	XV
10.2.4	CSO nach Auslagerung in der Gaszusammensetzung II	XVI
10.2.5	CSO nach Auslagerung in der Gaszusammensetzung IV	XVII
10.2.6	CSO nach Auslagerung in der Gaszusammensetzung V	XVIII
10.3	Auslagerung des infiltrierten Sauerstoff-Ionenleiter mit und ohne H ₂ S	XIX
10.4	EDX-Punktanalysen und -Elementverteilungen zur Porositätsbestimmung	XXXI
	Literaturverzeichnis	XLII
	Danksagung	LXI
11	Publikationen und Konferenzbeiträge	LXIII

Energie & Umwelt / Energy & Environment
Band / Volume 576
ISBN 978-3-95806-626-7

Mitglied der Helmholtz-Gemeinschaft

