

Holzverbrennung 2015

Vorstudie zur Untersuchung der Möglichkeiten zur Minimierung der Schadgas- und Feinstaubemissionen eines Stückholzkessels

Förderprojekt der Deutschen Bundesstiftung Umwelt, Osnabrück

Projektlaufzeit: 15. Sept. 09- 14. März. 2010

Projektpartner:

Institut für Feuerungs- und Kraftwerkstechnik, IFK (Dr. M. Struschka), Universität Stuttgart,

Institut für Raumfahrtssysteme, IRS (Dr. F. Hammer), Universität Stuttgart,

Institut für Sensorik und Informationssysteme, ISIS (Prof. Dr. H. Kohler, Projektkoordination),
Hochschule Karlsruhe – Technik und Wirtschaft

Beratende Partner:

Ritter Energie- und Umwelttechnik GmbH (REUT), Karlsbad

Marquardt-Mechatronik GmbH (MM), Rietheim-Weilheim

Abschlussbericht

Autoren: MSc, Dipl.-Ing. (FH) Johannes Brodbeck (IFK)

Dipl.-Ing. (FH) Dominik Glesing (ISIS)

Dr.-Ing. Frank Hammer (IRS)

Prof. Dr. Heinz Kohler (ISIS)

Dr.-Ing. Michael Struschka (IFK)

26. März 2010

Einleitung

Die Forschungsinitiative „Holzverbrennung 2015“ hat als Gesamtvorhaben zum Ziel, in einem ganzheitlichen Lösungsansatz die Qualität der Scheitholzverbrennung substanziell zu verbessern, um die Emissionen von toxischen Abgasen und Feinstäuben wirksam abzusenkten. Dieses Ziel soll am Beispiel eines Stückholz-Heizkessels erreicht werden, in dem

- die Verbrennungsräume optimiert werden (konstruktiver Aspekt),
- die automatische Regelung des Primär- und Sekundärluftstromes in jeder Phase der Verbrennung durch Parametrierung von in Vorarbeiten neu entwickelten Regelungs-algorithmen unter Verwendung der neuesten Gassensorprinzipien, d.h. bei Erfassung der Restsauerstoffkonzentration und des CO/HC-Gehaltes, realisiert wird (Prozessführung),
- ein für die Stückholzverbrennung geeigneter Oxidationskatalysator in die Feuerungs-anlage integriert wird und
- die Verbrennungsanlage erstmals mit einem Feuerungsmonitor ausgerüstet wird, der sowohl die Regelungsaufgaben als auch die aktuelle Darstellung und Protokollierung der Verbrennungsqualität übernimmt, um auf diese Weise qualitätssteigernden Einfluss über das Betreiberverhalten zu nehmen.

Das Forschungsvorhaben unterteilt sich in drei Phasen, in eine Vorstudie und in die Projektphasen I und II. Die in diesem Abschlussbericht vorgestellten Ergebnisse der Vorstudie (unterteilt in Arbeitspakete (AP)) haben zum Ziel, die Projektphasen I und II vorzubereiten, d.h.

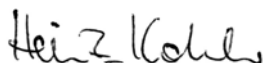
- den aktuellen Stand der Feuerungstechnik in Hinblick auf die Gestaltung des Stückholz-heizkessels aufzuarbeiten und neue feuerungstechnische Konzepte zu entwerfen, die eine wirkungsvolle Reduktion der Emissionen erwarten lassen (AP1 bis 3),
- zu prüfen, welche Abgassensoren zum Monitoring des Restsauerstoffgehaltes und des CO/HC-Gehaltes in Frage kommen, diese Sensoren zu beschaffen und anschließend zur Charakterisierung mit für die Holzfeuerung relevanten Modellgasen zu beaufschlagen und in Abgasen von Stückholzfeuerungsanlagen Tests durchzuführen, um eine fundierte Auswahl der geeignetsten Sensorprinzipien treffen zu können (AP 4 bis 6),
- die überaus positiven Erfahrungen mit Abgaskatalysatoren zur Nachverbrennung der Rauchgase zu vertiefen, indem alternative Katalysatormaterialien bzw. Katalysator-Trägerstrukturen recherchiert werden (AP7),
- die Entwicklung eines Feuerungsmonitors vorzubereiten, d.h. dessen Merkmale zu definieren und ein Grob-Konzept zur Umsetzung zu entwerfen (AP8),
- eine besonders attraktive Neuentwicklung einer Ein-Chip-Kombisensor-Lösung für Rest-sauerstoffkonzentration und CO/HC-Gehalt bis zur Einsatzfähigkeit im Feuerungsprozess zu qualifizieren und dessen Funktionalität experimentell zu prüfen und ggfls. zu modifizieren, um sie anschließend weiteren Sensitivitätstests zu unterziehen (AP9).

Ökologische und ökonomische Bilanzierung des Verfahrens

Ökologischer Aspekt: Das eingangs genannte Entwicklungsgesamtziel „Holzverbrennung 2015“ orientiert sich, ausgehend von den aktuellen Defiziten des Standes der Verbrennungstechnik, am nach neuesten wissenschaftlich-technologischen Erkenntnissen Machbaren unter Einbeziehung von ökonomischen Randbedingungen. Die Scheitholzverbrennung in Holzfeuerungsanlagen sehr kleiner Leistung (Nennwärmeleistung von Anlagen in Privathaushalten typisch kleiner 50kW) soll hinsichtlich der Emissionen an toxischen Gaskomponenten und Feinstaub unter Nutzung modernster Sensorik zur Prozessführung und neuester Erkenntnisse zur Gestaltung der Verbrennungsräume grundlegend in allen Phasen der Verbrennung optimiert werden. Ziel ist, die Emissionen hinsichtlich der toxischen Gaskomponenten um mindestens den Faktor 10 abzusenken und die Feinstaubemissionen sowohl in ihrer Quantität zu reduzieren und qualitativ hinsichtlich ihrer Organikbeladung Verbesserungen zu erzielen, d.h. ihr toxikologisches Potenzial erheblich zu verringern. Die Projektpartner haben sich zum Ziel gesetzt, einen Scheitholz-Heizkessel neuer Generation zu entwickeln, der hinsichtlich seiner Emissionen weit unter den neu festgelegten Grenzwerten der 1. BImSchV liegt und diese niedrigen Werte möglichst ohne Feinstaubfilterung erreicht.

Ökonomischer Aspekt: Die obigen Ziele werden nicht ohne zusätzliche Kosten erreicht werden können. Wie aus den Gespräche mit den Projektpartnern gefolgert werden kann, scheinen jedoch - entsprechende Stückzahlen vorausgesetzt - Herstellungskosten von ca. 300€ für Sensorik incl. Monitor realistisch. Hinzu kommt die zusätzliche Implementierung des Abgaskatalysators, dessen Preis deutlich unsicherer abzuschätzen ist (Geometrie, Größe, Material, etc.), jedoch keinesfalls über 500€ liegen sollte. Dies bedeutet, dass die Kosten für diese Primärmaßnahmen zur grundlegenden Steigerung der Verbrennungsqualität in Summe niedriger liegen als die zur Zeit diskutierten Kosten für die Installation eines Feinstaubfilters (1.200 – 1.500€).

Karlsruhe, den 26. März 2010

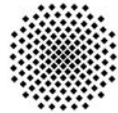


Prof. Dr. Heinz Kohler

Inhalt des Schlussberichtes

1	Grundlagen der Emissionsbildung bei der Verbrennung von Holz	6
2	Möglichkeiten der feuerungsseitigen Emissionsminderung	10
3	Emissionen bei der Verbrennung von Holz in Stückholzkesseln	12
4	Gerätetechnischer Stand von Stückholzkesseln	20
5	Zusammenfassung AP1	27
6	Konzeptentwicklung optimierter Stückholzkessel	30
7	Zusammenfassung und Ausblick der AP 1 - 3	35
8	Literatur AP 1 – 3	39
9	Sensorkonzepte zur potenziellen Anwendung in Holzfeuerungsabgasen	42
10	Detaillierte Untersuchungen zur Eignung der Gassensoren	46
11	Recherche nach verfügbaren Abgaskatalysatoren	53
12	Verbrennungsprozess-Monitor	54
13	Zusammenfassung des Standes der AP4 - 8	56
14	Literatur AP 4 - 8	58
15	Zielsetzung und Anlass zur Entwicklung eines Kombinationssensors	61
16	Darstellung der Arbeitsschritte und der angewandten Methoden	62
17	Ergebnisse und Diskussion für AP 9	63
18	Literatur AP 9	75

Arbeitspakete 1 bis 3



Universität Stuttgart



Universität Stuttgart
Institut für Feuerungs- und Kraftwerkstechnik
Pfaffenwaldring 23, 70569 Stuttgart (Vaihingen), Germany
Tel.: +49-(0)-711-685-63487, Fax: +49-(0)-711-685-63491
Email: ifk@ifk.uni-stuttgart.de

Dr.-Ing. M. Struschka
M.Sc. Dipl.-Ing. (FH) J. Brodbeck

März 2010

Inhaltsverzeichnis der Arbeitspakete AP1 bis AP3

1	Grundlagen der Emissionsbildung bei der Verbrennung von Holz	6
1.1	Kohlenwasserstoffe.....	7
1.2	Partikel.....	9
2	Möglichkeiten der feuerungsseitigen Emissionsminderung	10
3	Emissionen bei der Verbrennung von Holz in Stückholzkesseln	12
3.1	Emissionsbildung	12
3.2	Emissionstechnischer Stand.....	15
4	Gerätetechnischer Stand von Stückholzkesseln	20
4.1	Stückholzkessel nach dem Sturzbrandprinzip	22
4.2	Stückholzkessel mit seitlichem Abbrand.....	25
4.3	Geometrische Abmessungen von Stückholzkesseln	27
5	Zusammenfassung AP1	27
6	Konzeptentwicklung optimierter Stückholzkessel	30
6.1	Teilfunktion TF01	32
6.2	Teilfunktion TF02	33
6.3	Teilfunktion TF03	35
6.4	Teilfunktion TF04	35
7	Zusammenfassung und Ausblick der AP 1 - 3.....	35
8	Literatur AP 1 - 3	39

1 Grundlagen der Emissionsbildung bei der Verbrennung von Holz

Der Verbrennungsprozess von holzartiger Biomasse kann grundsätzlich in drei Teilprozesse unterteilt werden (Abbildung 1.1).

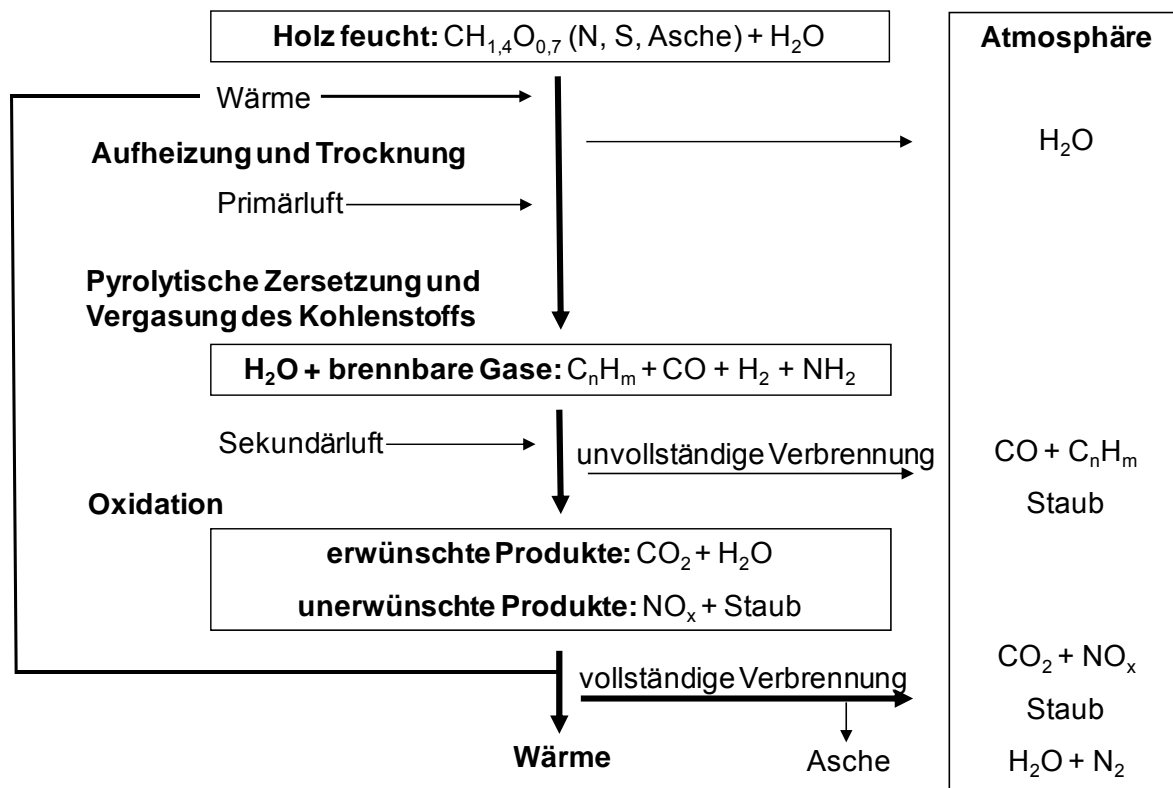


Abbildung 1.1: Abbrandverhalten von Holz [Kaltschmitt et al., 2001]

Die Verbrennung von Holz beginnt mit der Erwärmungsphase. In der anschließenden Trocknungsphase, die hauptsächlich über $100\text{ }^\circ\text{C}$ stattfindet, wird das am Holz anhaftende oder eingeschlossene Wasser verdampft. Dabei, wie auch bei den anderen Verbrennungsstufen, schreitet der Prozess von außen nach innen fort. Während der Brennstoff innen noch trocknet, beginnt außen bereits die pyrolytische Zersetzung der Holzbestandteile.

Unter Pyrolyse versteht man den chemischen Prozess, bei dem ausschließlich Wärme bei Sauerstoffausschluss zugeführt wird. Dabei kommt es zu einer Aufspaltung der langkettigen organischen Verbindungen in kürzerkettige Verbindungen. Es werden brennbare Gase in Form von Kohlenstoffmonoxid (CO) und gasförmigen Kohlenwasserstoffen sowie Pyrolyseöle (Teere) gebildet. Dieser Vorgang benötigt keinen Sauerstoff. Da Sauerstoff aber in chemisch gespeicherter Form (bei Holz ca. 44 % der Trockenmasse) oder durch Luftzuführung stets vorhanden ist, kommt es unter Wärmefreisetzung unmittelbar nach der Aufspaltung zu mehr oder weniger vollständigen Oxidationsreaktionen.

Um den Prozess der Entgasung durch die Wärmefreisetzung in Gang zu halten und in der Leistung zu steuern, wird in Feuerungsanlagen gezielt an den Ort der pyrolytischen Zersetzung (z. B. Glutbett) Luftsauerstoff als so genannte Primärluft zugeführt. Dieser Teilprozess wird auch als Vergasung bezeichnet. Dabei wird die benötigte Wärme aus unvollständigen Reaktionen der gasförmigen Pyrolyseprodukte mit Sauerstoff bereitgestellt. Zur Reaktion der festen und flüssigen Pyrolyseprodukte (Kohle, Teere) sind im Vergleich zur pyrolytischen Zersetzung mit zum Teil über $500\text{ }^\circ\text{C}$, merklich höhere Temperaturen notwendig.

Im Teilprozess der Oxidation haben sich die Brenngase schon teilweise im Feuerraum ausgebreitet. Durch die gezielte Zuführung von Luftsauerstoff in diesem Teilprozess (Sekundärluft) kann hier eine mehr oder weniger vollständige Oxidation der freigesetzten gasförmigen Produkte stattfinden. Dabei entsteht Kohlenstoffdioxid (CO_2) und Wasser (H_2O). Der Abbau der Kohlenwasserstoffe erfolgt hierbei über die Bildung von CO als Zwischenprodukt, das in einer weitergehenden Oxidation zu CO_2 reagiert.

Außer der von Flammenbildung gekennzeichneten Oxidation ist bei biogenen Festbrennstoffen ebenso die flammenlose Verbrennung bedeutsam, die im Endstadium des Verbrennungsvorganges auftritt. Der als Endprodukt der pyrolytischen Zersetzung gebildete feste Kohlenstoff (Holzkohle) wird dabei im Glutbett zuerst vergast (Feststoffvergasung) und anschließend in der Gasphase oxidiert. Als Verbrennungsrückstand verbleibt die Asche [Kaltschmitt et al., 2001].

Bei der Verbrennung von naturbelassenem Holz werden mit dem Abgas Verbrennungsprodukte emittiert, die je nach Verbrennungszustand, in Produkte aus vollständiger bzw. unvollständiger Verbrennung unterteilt werden können. Stoffe aus der vollständigen Verbrennung der biogenen Hauptbrennstoffbestandteile (C, H, O) sind Kohlenstoffdioxid, Wasserdampf, Stickstoffoxide (NO_x) und anorganische Staub- und Aschepartikel. Stoffe aus der unvollständigen Verbrennung der Hauptbrennstoffbestandteile (C, H, O) sind im Wesentlichen Kohlenstoffmonoxid (CO), Kohlenwasserstoffe (C_nH_m oder VOC), sowie Partikel (Ruß, Teere und bei Umgebungstemperatur kondensierbare organische Verbindungen).

Als Ursache für eine unvollständige Verbrennung ist eine ungenügende Sauerstoffzuführung nur selten allein ausschlaggebend. Oft ist auch die Verbrennungstemperatur in der Ausbrandzone (Oxidationszone) zu gering. Dadurch laufen die Reaktionen zu langsam ab, besonders dann, wenn zu feuchte Brennstoffe verwendet werden. Weiterhin kommt es zu einer unvollständigen Verbrennung, wenn die Verweilzeit der Reaktionspartner in der heißen Zone zu gering ist (z. B. auf Grund zu klein dimensionierter Feuerräume). Zu hohe Wassergehalte im Brennstoff reduzieren die Verbrennungstemperatur und führen zu einer Erhöhung des Abgasvolumens. Dadurch ist die Aufenthaltszeit der Brenngase im Brennraum herabgesetzt. Eine zu geringe Durchmischung der Brenngase mit der Verbrennungsluft kann außerdem zu einer lokalen Unterversorgung von Sauerstoff führen. Die Folge ist auch hier eine unvollständige Verbrennung [Kaltschmitt et al., 2001].

Nachfolgend wird auf die Emissionsbildung der Kohlenwasserstoffe und Partikel näher eingegangen.

1.1 Kohlenwasserstoffe

Bei der unvollständigen Verbrennung von Kohlenwasserstoffen kann im Abgas eine Vielzahl von Substanzen auftreten, welche einen ketten- oder ringförmigen Grundkörper aus Kohlenstoff und Wasserstoff aufweisen. Zusätzlich können neben diesen Elementen auch Heteroatome wie z.B. Sauerstoff vorhanden sein. Zu solchen organischen Verbindungen gehören Alkohole, Aldehyde und organische Säuren, wie z. B. Methan, Propan, Methanol, Formaldehyd, und Ameisensäure [Baumbach, 1994]. Viele dieser organischen Substanzen sind flüchtige Verbindungen und befinden sich im Abgas in gas- oder dampfförmigem Zustand. Andere dagegen kondensieren aus und können an Asche- bzw. Rußpartikeln adsorbiert werden, wie

z.B. die nachfolgend beschriebenen polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffe (PAK), oder liegen als teerartige Aerosole vor.

Läuft die Verbrennung mit unzureichender O₂-Zufuhr oder schlechter Vermischung der Verbrennungsluft mit den Pyrolysegasen ab, können auch höhermolekulare Stoffe wie polyzyklisch aromatische Kohlenwasserstoffe im Abgas von Holzfeuerungsanlagen auftreten. Dabei sind zwei oder mehr Benzolringe miteinander verknüpft (Abbildung 1.2).

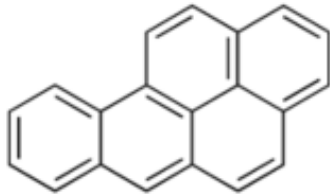


Abbildung 1.2: Strukturformel von Benzo[a]pyren

Die Polyzyklenbildung läuft in folgenden Teilschritten ab [Baumbach, 1994]:

1. Addition von kleineren aliphatischen Verbindungen und Zyklisierung zu hydroaromatischen Kohlenwasserstoffen mittlerer Molekülgröße
2. Überführung der hydroaromatischen Kohlenwasserstoffe in vollaromatische
3. Bildung größerer aus kleineren polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen.

Die wichtigsten polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffe wurden von der amerikanischen Umweltbehörde EPA (Environmental Protection Agency) in einer Liste zusammengefasst (Tabelle 1-1). Darin werden insgesamt 16 Einzelverbindungen benannt, die nach Vorkommen, Bedeutung, Umweltrelevanz und toxikologischen Gesichtspunkten als Leitsubstanzen unter den PAK anzusehen sind. Wobei sowohl die Toxizität als auch der Siedepunkt der PAK mit der Anzahl der Benzolringe zunimmt.

Tabelle 1-1: PAK-Liste der amerikanischen Bundesumweltbehörde (EPA)

Einzelverbindung	Anzahl Benzolringe	Einzelverbindung	Anzahl Benzolringe
Naphthalin	2	Benzo[a]anthracen	4
Acenaphthylen	3	Chrysen	4
Acenaphthen	3	Benzo[b]fluoranthen	5
Fluoren	3	Benzo[k]fluoranthen	5
Phenanthren	3	Benzo[a]pyren	5
Anthracen	3	Dibenz[ah]anthracen	5
Fluoranthen	4	Benzo[ghi]perylen	6
Pyren	4	Indeno[1,2,3-cd]pyren	6

1.2 Partikel

Das entstehende Abgas aus der Holzverbrennung besteht nicht nur aus gasförmigen Komponenten, sondern enthält auch feste und flüssige Bestandteile, sogenannte Aerosole. Die physikalischen und chemischen Eigenschaften dieser Aerosole werden hauptsächlich durch die vorherrschende Verbrennungsqualität beeinflusst. Außerdem können Partikel durch das Mitreißen von Brennstoff- oder Ascheteilchen ins Abgas gelangen (Tabelle 1-2).

Tabelle 1-2: Partikelarten aus der Holzverbrennung, eingeteilt nach Verbrennungsqualität [Nussbaumer, 2003]

Partikel aus vollständiger Verbrennung	Partikel aus unvollständiger Verbrennung
mineralische Bestandteile des Holzes (z.B. CaO)	elementarer Kohlenstoff (Holzkohle)
Fremdteile, die am Holz anhaften (Sand, Erde)	organischer Kohlenstoff in Form von unverbrannten Holzbestandteilen
Salze (Sulfate, Chloride, Karbonate, Hydroxide, Oxide, Nitrate, ionische Verbindungen)	organischer Kohlenstoff in Form von Teer
Metalloxide (z.B. Al ₂ O ₃)	organischer Kohlenstoff in Form von Ruß

Bei der Verbrennung von Holz kommt es zu verschiedenen Partikelbildungsmechanismen, welche in Abhängigkeit von den Verbrennungsbedingungen unterschiedlich stark zu den Gesamtstaubemissionen beitragen (Abbildung 1.3). Unter nahezu **vollständigen Verbrennungsbedingungen** gehören folgende Partikelbildungspfade zu den wichtigsten:

- Fest-Dampf-Partikel-Pfad anorganischer Bestandteile: Hierbei verdampfen die Komponenten im Glutbett (> 600 °C) und bilden, bei der Temperaturabnahme im Abgas, über Nukleation, Koagulation und heterogene Kondensation Partikel. Bei den so entstandenen Partikeln handelt es sich um anorganische Salze, im Größenbereich von 0,1 µm (=100 nm), hauptsächlich um Kaliumverbindungen wie K₂SO₄ und KCl.
- Fest-Partikel-Pfad anorganischer Bestandteile: Diese schwerflüchtigen anorganischen Komponenten des Holzes gelangen als feste Komponenten ins Abgas und können dort durch Kondensation und Koagulation wachsen. Diese Salze, meist Kalziumverbindungen wie CaO, haben einen Aerodynamischen Durchmesser im Bereich von 1 µm. Dieser Partikelbildungsmechanismus spielt jedoch lediglich bei der Rindenverbrennung eine Rolle.

Läuft die **Verbrennung unvollständig** ab werden Kohlenstoff-Partikel mit dem Abgas emittiert, die bei der pyrolytischen Zersetzung freigesetzt wurden und anschließend nicht vollständig oxidiert sind. Dabei kann zwischen den Kohlenstoff(C)-haltigen festen oder flüssigen Zersetzungsprodukten sowie den C-haltigen Syntheseprodukten unterschieden werden:

- C-haltige (kondensierte) Zersetzungsprodukte sind organische Verbindungen (z.B Tee-re), welche aus Fragmenten der Holzbestandteile Cellulose, Hemicellulose und Lignin bestehen.
- Zu den kohlenstoffhaltigen Syntheseprodukten gehört z.B. Ruß. Die Rußbildung wird durch Sauerstoffmangel in der Flammenwurzel, z.B. durch ungenügende Vermischung

von Brennstoff und Luft, und durch hohe Temperaturen in dieser Phase begünstigt [Baumbach, 1994].

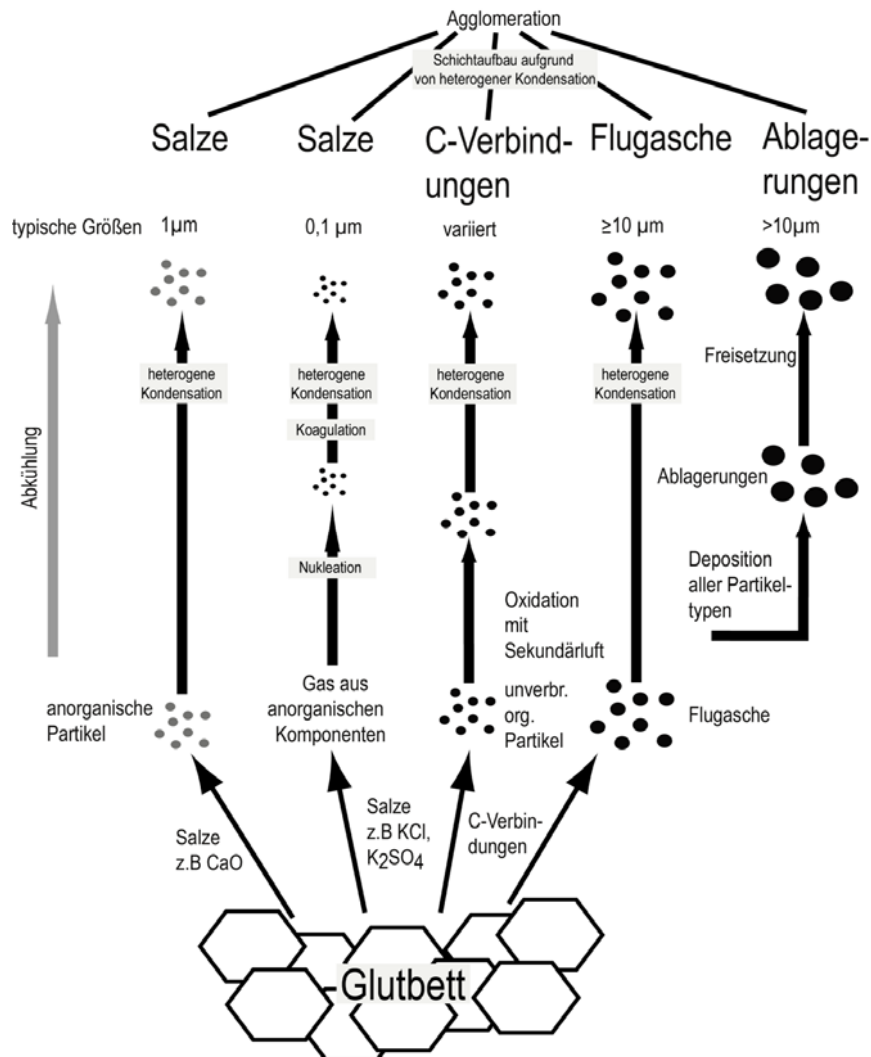


Abbildung 1.3: Schematische Darstellung der Partikelbildung in Holzfeuerungen [Nussbaur, 2003]

Durch schwankende Gasgeschwindigkeiten können sowohl Aschepartikel mitgerissen (Flugasche) als auch Ablagerungen abgelöst und freigesetzt werden. Diese Partikel liegen im Größenbereich $\geq 10 \mu\text{m}$ und sind für die Gesamtstaubemissionen von untergeordneter Bedeutung, da sie meist schon, durch entsprechende Abgasführung, in der Feuerungsanlage abgedungen werden können.

2 Möglichkeiten der feuerungsseitigen Emissionsminderung

Für einen vollständigen Ausbrand und niedrige Emissionen müssen im Feuerraum bestimmte Verbrennungsbedingungen vorhanden sein. Von besonderer Bedeutung ist hierbei die Sekundärbrennkammer oder Nachbrennkammer. In ihr werden die Brenngase bei möglichst hohen Temperaturen, ausreichender Verweilzeit und guter Durchmischung mit der Sekundärluft mehr oder weniger vollständig verbrannt. In der Regel gelten für eine vollständige Brennstoffumsetzung im Feuerraum folgende Einflussgrößen:

- Oxidationsmittel, d.h. Sauerstoff im Überschuss (λ i.d.R. zwischen 1,4 und 2,2)
- Räumliche Trennung von Feststoffvergasung und heißer Gasphasenoxidation (Primär- und Sekundärluft)
- homogene Vermischung der Gase mit dem Sauerstoff der Verbrennungsluft
- ausreichende Verweilzeit in der heißen Zone (i.d.R. ca. 2s)
- ausreichend hohe Temperaturen ($> 850^\circ\text{C}$).

Bei der Auslegung und Konstruktion einer Nachbrennkammer kann der Ausbrand z.B. durch die Erhöhung der Verweilzeit in der heißen Zone oder durch die Erhöhung der Turbulenz verbessert werden. Eine Verbesserung der Durchmischung kann durch aktive Elemente wie Prallplatten und Düsen oder durch rein strömungstechnische Maßnahmen (z.B. Anwendung von Drall, Rückströmung) erfolgen. Der Einfluss wird in Abbildung 2.1 deutlich, demnach ist eine ideale Mischung der Ausbrandluft mit den heißen Brenngasen anzustreben.

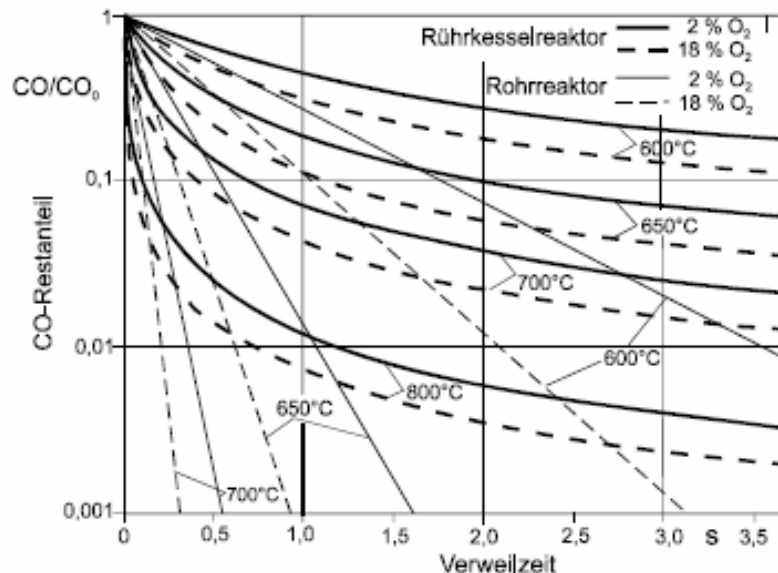


Abbildung 2.1: CO-Restanteil in Abhängigkeit der Verweilzeit für verschiedene Temperaturen, Reaktortypen und O_2 -Konzentrationen [Kaltschmitt et al., 2001]

Für niedrige Partikelemissionen reicht, aufgrund der unterschiedlichen Partikelbildungsmechanismen (vgl. Abschnitt 1.2), ein vollständiger Ausbrand allein nicht aus. Untersuchungen an einer automatischen Holzfeuerung zeigen, dass die über den Fest-Dampf-Partikel-Pfad entstandenen Partikel (bei konstantem Betrieb) den größten Anteil (ca. 60%) der Partikelmasse ausmachen und der Anteil des Kohlenstoffs unter 7 Massen-% liegt. Bei Phasen mit unvollständigen Verbrennungszuständen nimmt der Anteil der Kohlenstoff-Partikel zu. Um den anorganischen Partikelanteil, der hauptsächlich aus Kaliumverbindungen besteht, zu reduzieren, muss im Glutbett eine gewisse Sauerstoffarmut erzeugt werden, so dass bevorzugt schwerflüchtige Kaliumverbindungen entstehen. Bei einem Glutbett-Luftüberschuss von $\lambda = 0,2$ bis $0,4$ und einem Gesamt-Luftüberschuss zwischen $\lambda = 1,3$ und $1,4$ kann sowohl die Gesamtstaubemission (Faktor 5-6) als auch die Partikelanzahl reduziert werden [Nussbaumer, 2003]. Die Verbrennungstemperatur ist für die Partikelbildung über den Fest-Dampf-Partikel-Pfad von untergeordneter Bedeutung.

3 Emissionen bei der Verbrennung von Holz in Stückholzkesseln

3.1 Emissionsbildung

Bei der Verbrennung von stückigem Holz in einer Feuerungsanlage erfolgt die Brennstoffzufuhr von Hand, d.h. der Brennstoff wird vom Betreiber diskontinuierlich in den Brennraum eingebracht. Dementsprechend ausgeprägt ist der zeitliche Verlauf der Verbrennung (Chargenabbrand, Abbildung 3.1), wobei die physikalischen und chemischen Prozesse der Holzverbrennung gleichzeitig, aber mit unterschiedlicher Intensität ablaufen. Um diesen ausgeprägten Verbrennungsverlauf zu glätten, besitzen moderne Stückholzkessel heutzutage ein Gebläse zur Anpassung an den momentanen Verbrennungszustand. Außerdem wird durch geeignete Feuerungskonstruktionen versucht, einen möglichst gleichmäßigen Abbrand mit konstanter Leistung und geringen Emissionen zu erreichen.

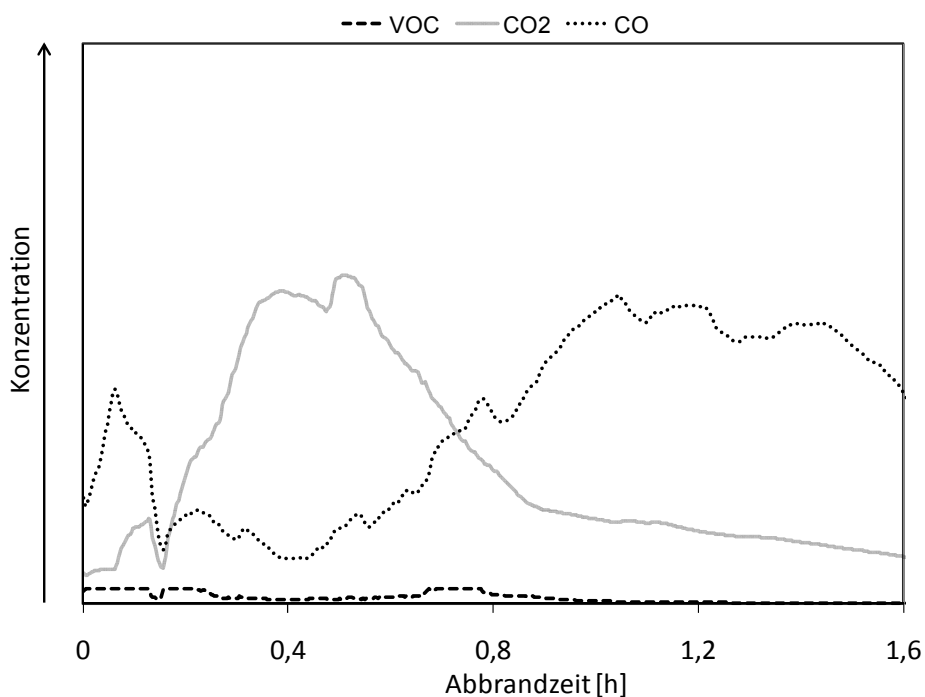


Abbildung 3.1: Typischer Konzentrationsverlauf der Abgasemissionen eines Chargenabbrands vom Auflegen des Brennstoffs bis zum Abbrand auf Grundglut

Der Verbrennungsverlauf eines Stückholzkessels lässt sich anhand dreier Hauptabbrandphasen unterscheiden, welche charakteristische Emissionsverläufe aufweisen. Hierbei ist eine scharfe Trennung der einzelnen Verbrennungsphasen, wie sie in Abbildung 3.2 dargestellt ist, nicht bei allen Stückholzfeuerungen zu finden, vielmehr sind die Übergänge fließend.

In der Anheizphase ist die Feuerraumtemperatur noch relativ niedrig und die CO₂-Konzentration nimmt, aufgrund des langsam steigenden Brennstoffumsatzes, langsam zu. Diese Phase, in der noch keine optimalen Verbrennungsbedingungen vorherrschen (3-T-Regel), weist meist hohe CO- und VOC-Konzentrationen im Abgas auf.

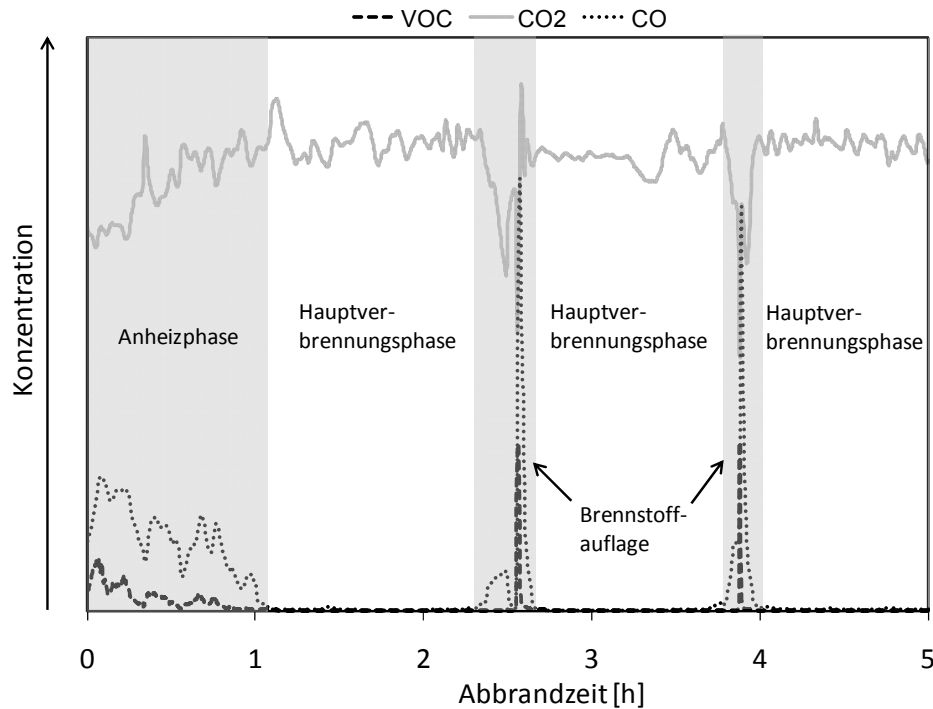


Abbildung 3.2: Zeitlicher Verlauf der CO_2 -, CO - und VOC -Konzentrationen im Abgas eines modernen Stückholzkessel mit unterem Abbrand im Vollastbetrieb. Der Ausbrand wurde hier nicht dargestellt, entspricht aber in etwa dem Verlauf der Anheizphase

Der Anteil dieser Verbrennungsphase an der Dauer des Gesamtabbrandes und bezüglich der Gesamtemissionskonzentrationen kann, abhängig von der regelungs- und verbrennungstechnischen Ausführung der Feuerung, des Betriebszustandes (kalter oder warmer Kessel) und der Holzaufgabemenge, bei wenigen Prozenten oder im dominierenden Bereich liegen.

Anschließend geht die Feuerung in eine relativ stationäre Verbrennungsphase (Hauptverbrennungsphase) über, welche durch hohe CO_2 -Konzentrationen (= hoher Brennstoffumsatz und konstante Feuerungsleistung) und niedrige CO - und VOC -Emissionen charakterisiert werden kann. Während dieser Hauptverbrennungsphase kann es zu zufälligen, von der Brennstoffstapelung abhängigen örtlichen Luftmangelsituationen kommen, die den stationären Verbrennungsablauf stören und zu erhöhten Emissionen von Produkten unvollständiger Verbrennung (CO , VOC , Partikel) führen [Struschka et al., 2004]. Des Weiteren entstehen ungünstige Verbrennungsbedingungen z.B. durch:

- Veränderungen der Primär- und Sekundärluftmengen zur Leistungsanpassung (z.B. Teillastbetrieb bis 50% der Nennwärmeleistung)
- Gluthaltebetriebsphasen und der anschließenden Start- und Stabilisierungsphase
- Brückenbildung des Brennstoffes im Füllschacht (sogenannter Hohlbrand). Dabei entsteht zwischen Glutbett und Brennstoff ein Hohlraum, wodurch der Kontakt zwischen dem Brennstoff und der heißen Grundglut unterbrochen wird. Dies hat zur Folge, dass der Brennstoffumsatz und hiermit auch die Verbrennungstemperaturen abnehmen und der Luftüberschuss stark ansteigt. Verursacht wird ein Hohlbrand durch eng bemessene Füllschächte in denen das Holz nicht ausreichend nachrutscht, aber auch bestimmte Holzarten, wie z.B. Fichte, erhöhen die Hohlbrandgefahr.

Bei der Brennstoffauflage bewirken der kalte und noch nicht vollständig getrocknete neue Brennstoff, sowie das Öffnen der Fülltüre eine Abkühlung der Feuerraumtemperatur. Hierbei kommt es zu erheblichen CO- und VOC-Emissionen (vgl. Abbildung 3.2).

Während der abschließenden Ausbrandphase wird die verbleibende Holzkohle verbrannt, wobei die Feuerraumtemperatur und die CO₂-Konzentration im Abgas abnehmen. Die sinkende Verbrennungstemperatur geht einher mit steigenden CO-Konzentrationen und - befinden sich noch Brennholzstücke im Feuerraum - mit hohen VOC-Konzentrationen. In Abhängigkeit von der Dauer der Ausbrandphase kann diese einen großen Teil zu den CO- und VOC-Gesamtemissionen beitragen.

Die Partikelkonzentration im Abgas ist ebenfalls von den charakteristischen Verbrennungsphasen einer Stückholzfeuerung abhängig. Besonders in der Anheizphase, bei niedrigen Verbrennungstemperaturen und suboptimalen Verbrennungsbedingungen, kommt es zu erhöhten Partikelemissionen, wobei dann der Anteil der Kohlenstoffpartikel an der Gesamtpartikelmasse deutlich zunimmt. Am niedrigsten ist die Partikelkonzentration während der stationären Hauptverbrennungsphase. Es ist davon auszugehen, dass der Fest-Dampf-Partikel-Pfad (anorganische Salze, vgl. Abschnitt 1.2) den maßgeblichen Bildungsmechanismus darstellt. Die so entstandenen Partikel haben typischerweise eine Durchmesser im Bereich < 100 nm (Abbildung 3.3).

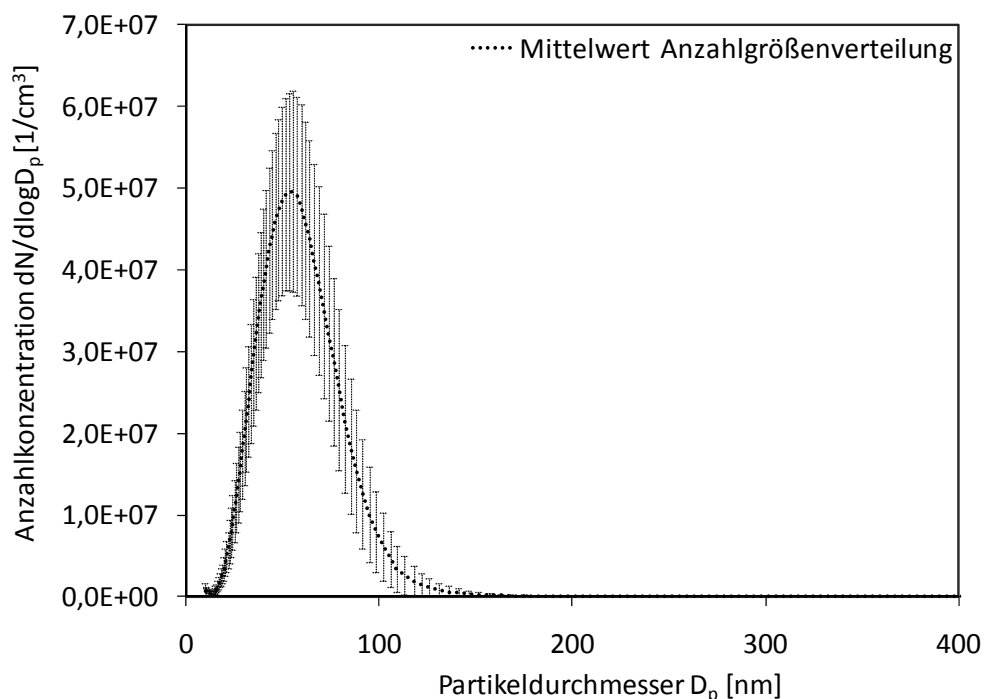


Abbildung 3.3: Mittelwert der Partikelanzahlgrößenverteilung im Abgas eines Stückholzkessels während der Hauptverbrennungsphase

Störungen während der Hauptverbrennungsphase, wie z. B. Hohlbrände, haben bei gleichzeitigen CO Emissionen von < 1000 mg/m³ wenig Einfluss auf die Höhe der Partikelemission [Hartmann et al, 2006]. Eigene Erfahrungen haben aber gezeigt, dass Hohlbrände zu einem erheblichen Anstieg der Staubemissionen führen.

Die hier beschriebenen Verbrennungsphasen eines Stückholzkessels und die damit verbundenen Emissionen unterscheiden sich je nach feuerungstechnischer und regelungstechni-

scher Ausführung der Anlage. Außerdem haben brennstoffspezifische Eigenschaften (z.B. Holzart, oder Brennstoffwassergehalt) Einfluss auf die Emissionen. In der Praxis hat die Systemintegration, hierzu zählen

- die Auswahl einer Heizanlage mit ausreichender Leistungsanpassung
- die Verwendung eines Pufferspeicher und
- der Einsatz der Holzfeuerung in Kombination mit anderen Wärmeerzeugern (z.B. Solarthermie)

ebenfalls großen Einfluss auf die Gesamtemissionen. Nachfolgend soll anhand eigener Untersuchungen, Untersuchungen von Prüfinstituten und anderen wissenschaftlichen Studien, der emissionstechnische Stand von Stückholzkesseln aufgezeigt werden.

3.2 Emissionstechnischer Stand

Zum emissionstechnischen Stand von Stückholzkesseln finden sich in wissenschaftlichen Studien, aus Messungen von Prüfinstituten und aus den Überwachungsmessungen von Kaminkehrern zahlreiche Emissionswerte. Für die Vergleichbarkeit, Aussagefähigkeit und Interpretation der Emissionswerte sind Informationen über die Versuchsdurchführung von elementarer Bedeutung. Von besonderem Interesse sind die anlagenspezifischen Informationen während bzw. vor der Messung:

- Betriebsart der untersuchten Feuerungsanlage, z.B. Nennwärmeleistung, Teillast oder praxisnaher Betrieb mit Start-/Stopp-Vorgängen
- Betriebszustand der untersuchten Feuerungsanlage vor der Messung, z.B. kalter oder heißer Kessel.

Für Emissionsmessungen an Stückholzkesseln gibt es unterschiedliche Messvorschriften, wie z.B. die Anforderungen für die Emissionsmessungen nach 1. BImSchV zur Grenzwertüberwachung oder die Anforderungen für Typenprüfungen nach z.B. ÖNORM EN 303-5.

Typenprüfungen, wie sie die Bundesanstalt für Landtechnik (BLT) in Österreich durchführt, werden nach ÖNORM EN 303-5 bei Nennwärmeleistung und kleinster Leistung vorgenommen. Bei den Messungen der Nennwärmeleistung werden die Feuerung vor Messbeginn mindestens 3 Stunden im Bereich der Nennwärmeleistung betrieben. Die Messungen selbst erfolgen bei Nennwärmeleistung über zwei aufeinander folgende Abbrandperioden und bei kleinster Leistung über eine Abbrandperiode. Gasförmige Emissionen werden dabei über die gesamte Abbrandperiode gemittelt. Der Staubgehalt wird aus mehreren Halbstundenmittelwerten, gleichmäßig über die Versuchsperiode verteilt, bestimmt. Es kann davon ausgegangen werden, dass Typenprüfungen von anderen Prüfinstituten in vergleichbarer Weise oder nach DIN EN 303-5 durchgeführt werden.

Die Überwachungsmessungen der Kaminkehrer nach 1. BImSchV sollen im ungestörten Dauerbetrieb der Feuerungsanlage bei Nennwärmeleistung durchgeführt werden. Bei handbeschickten Feuerungsanlagen wird mit den Messungen fünf Minuten, nachdem die Größte vom Hersteller in der Bedienungsanleitung genannte Brennstoffmenge auf eine für die Entzündung ausreichende Glutschicht aufgegeben wurde, begonnen. Die Emissionen werden als Viertelstundenmittelwert ermittelt.

Messungen für die Typenprüfung und Überwachungsmessungen nach 1. BImSchV

Die auf dem Markt angebotenen Stückholzkessel weisen einen breiten anlagentechnischen Stand auf. Dementsprechend groß sind die Unterschiede bezüglich der Emissionen und beim Kesselwirkungsgrad. Vergleichende Messungen an einem modernen Stückholzkessel und einem Stückholzkessel aus den Anfängen der technologischen Entwicklung verdeutlichen den Fortschritt in der Entwicklung von Stückholzkesseln (Tabelle 3-1). Die Staub-Emissionen konnten ca. 4-fach, die CO-Emissionen gar 14-fach reduziert werden [Hartmann et al., 2003].

Tabelle 3-1: Vergleichende Emissionsmessungen unter Vollastbetrieb an Stückholzkesseln mit moderner bzw. alter Anlagentechnik

Feuerungstyp	CO-Emission bei Nennwärmeleistung [mg/m ³ bei 13 Vol.% O ₂)	Staub-Emission bei Nennwärmeleistung [mg/m ³ bei 13 Vol.% O ₂)
Stückholzkessel „modern“	324	36
Stückholzkessel „alte Technik“	4724	143

Zur Ermittlung des emissionstechnischen Standes wurden die in Tabelle 3-2 dargestellten Messungen ausgewertet. Diese wurden nach standardisierten Messverfahren (Prüfstandsmessungen im Rahmen von Normprüfungen und Kaminkehrermessungen) ermittelt.

Tabelle 3-2: Übersicht der ausgewerteten Quellen zur Darstellung des emissionstechnischen Standes

Quelle	Art	Anzahl der Kessel	Messvorschrift
Bundesanstalt für Landtechnik (BLT Wieselburg)	Prüfberichte	33	ÖNORM EN 303-5
Marktübersicht Stückholzkessel der Fachagentur Nachwachsende Rohstoffe (FNR) [FNR, 2007]	Prüfberichte verschiedener Prüfinstitute	238	ÖNORM EN 303-5, DIN EN 303-5
Liste der förderfähigen Stückholzkessel des Bundesamts für Wirtschaft und Ausfuhrkontrolle (BAFA, 2009)	Prüfberichte verschiedener Prüfinstitute	272	ÖNORM EN 303-5, DIN EN 303-5
Kaminkehrermessungen aus dem Jahr 2005	Inbetriebnahmemessungen	11848	1. BImSchV

Die CO-Emissionen der gemessenen Stückholzkessel (Vollastbetrieb) aus Prüfberichten zur Typenprüfung liegen im Mittel bei 123 mg/m³ (BAFA), 178 mg/m³ (BLT Wieselburg) und 235 mg/m³ (FNR), jeweils bezogen auf 13 Vol.% O₂. Im Teillastbetrieb sind die Emissionsmittelwerte für Kohlenmonoxid (jeweils bezogen auf 13 Vol.% O₂) mit 203 mg/m³ (BAFA), 344 mg/m³ (BLT Wieselburg) und 291 mg/m³ (FNR), prinzipiell etwas höher. Mit 1675 mg/m³ (bezogen auf 13 Vol.% O₂) ist der Mittelwert für Kohlenmonoxid aus den Kaminkehrermessungen (Inbetriebnahmemessungen) aus dem Jahr 2005 gegenüber den Prüfstandsmes-

sungen der BLT Wieselburg ca. 9-fach höher (siehe Abbildung 3.4). Die große Spannweite der FNR-Marktübersicht zeigt, dass auch Stückholzkessel mit CO-Emissionen bis zu 2800 mg/m³ (bezogen auf 13 Vol.% O₂) auf dem Markt sind. Die große Masse der geprüften Stückholzkessel liegt, gemäß den Messungen der Prüfinstitute, allerdings in einem CO-Bereich zwischen 0 bis 400 mg/m³ (bezogen auf 13 Vol.% O₂).

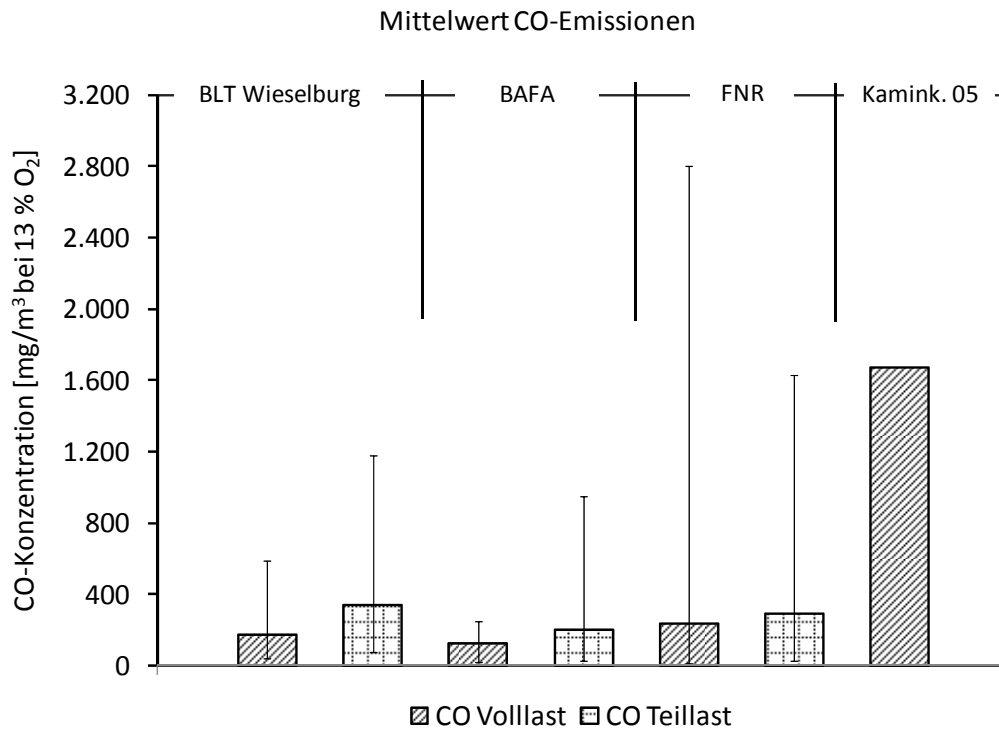


Abbildung 3.4: CO-Konzentrationen, emissionstechnischer Stand aus Prüfberichten und Kaminkehrermessungen

Anders sieht die Verteilung der Kaminkehrermessungen aus, siehe Abbildung 3.5. Dort sind ca. 43% der in Betrieb genommen Kessel im CO-Bereich bis 400 mg/m³ und immerhin noch ca. 39% im CO-Bereich > 1000 mg/m³ (jeweils bezogen auf 13 Vol.% O₂).

Die mittleren Staubemissionen der Stückholzkessel betragen, unabhängig von Voll- oder Teillast, ca. 20 mg/m³ (bezogen auf 13 Vol.% O₂, BLT Wieselburg, BAFA und FNR). Gegenüber den Prüfstandsmessungen sind die Kaminkehrermessungen mit Staubemissionswerten von 108 mg/m³ (bezogen auf 13 Vol.% O₂) um einen Faktor 5 höher (Abbildung 3.6). Die Min-Max-Werte (Spannweite) der FNR Marktübersicht verdeutlicht, dass auch Kessel mit Staubemissionen von 5 bis 65 mg/m³ (bezogen auf 13 Vol.% O₂) getestet wurden. Allerdings emittieren 94% - 98% der geprüften Stückholzkessel weniger als 40 mg/m³ Staub, 55% - 60% sogar weniger als 20 mg/m³ (jeweils bezogen auf 13 Vol.% O₂, siehe Abbildung 3.7).

Bei den Kaminkehrermessungen sind die nach Staub-Klassen sortierten Messungen gleichmäßiger verteilt. Ca. 37% der Stückholzkessel weisen Staubemissionen größer 60 mg/m³ (bezogen auf 13 Vol.% O₂) auf, davon 14% größer 150 mg/m³ (bezogen auf 13 Vol.% O₂). Rund die Hälfte der in Betrieb genommenen Stückholzkessel haben Staubemissionswerte bis 40 mg/m³ (bezogen auf 13 Vol.% O₂; siehe Abbildung 3.7).

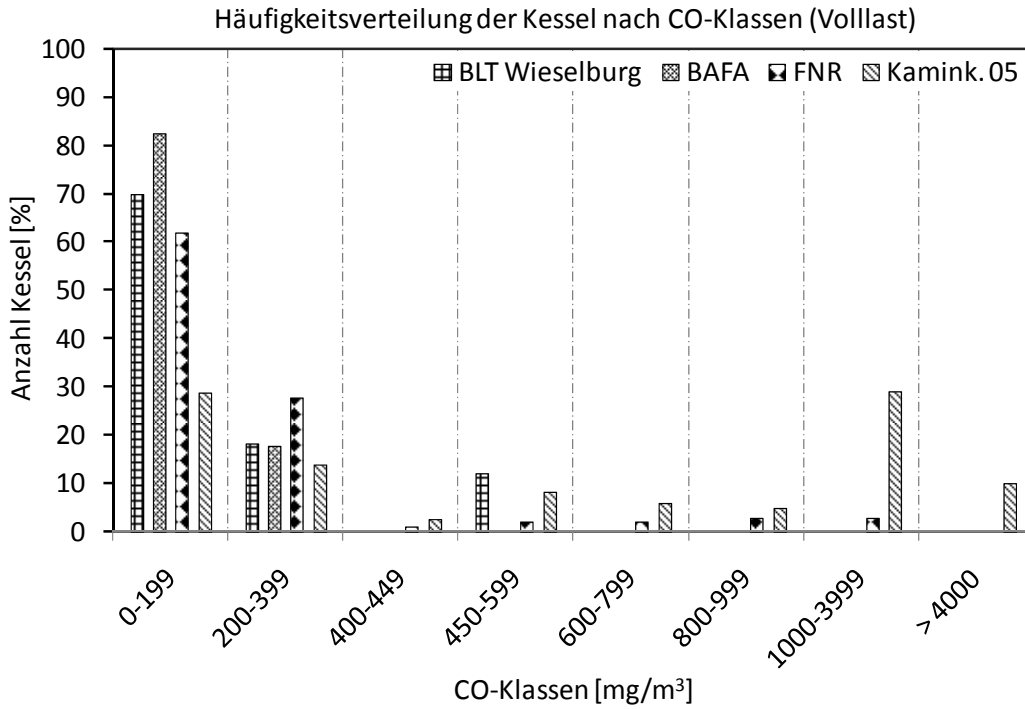


Abbildung 3.5: Häufigkeitsverteilung nach CO-Klassen für CO-Messungen der Prüfinstitute (Normprüfungen) und der Kaminkehrer (Inbetriebnahmemessungen)

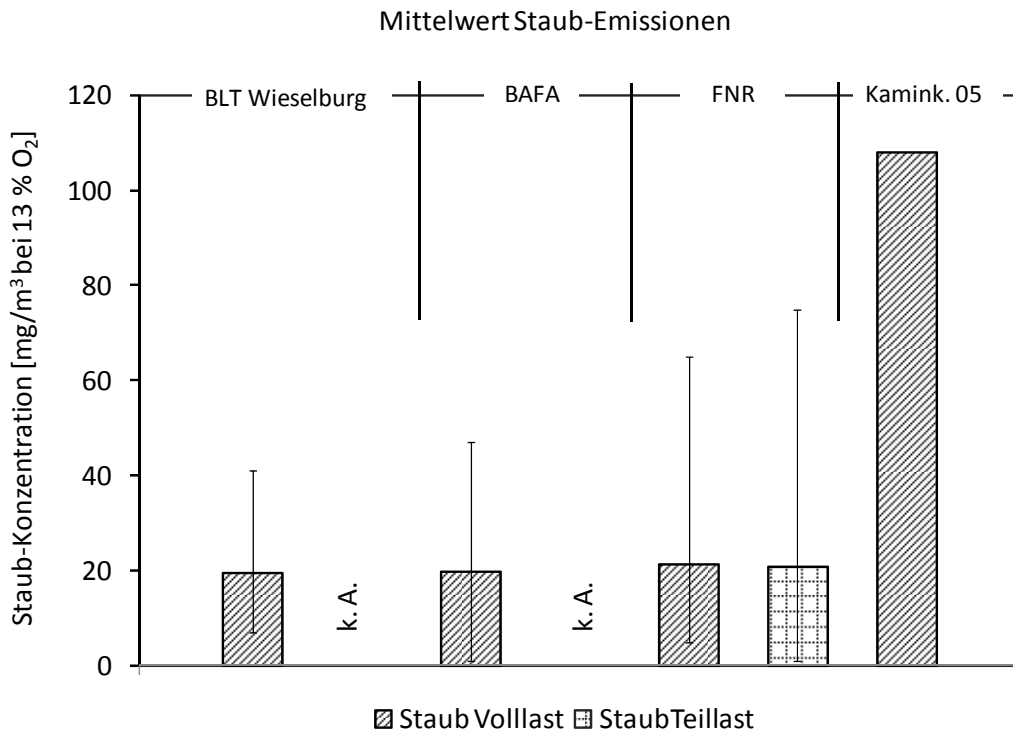


Abbildung 3.6: Staubkonzentrationen, emissionstechnischer Stand aus Prüfberichten und Kaminkehrermessungen

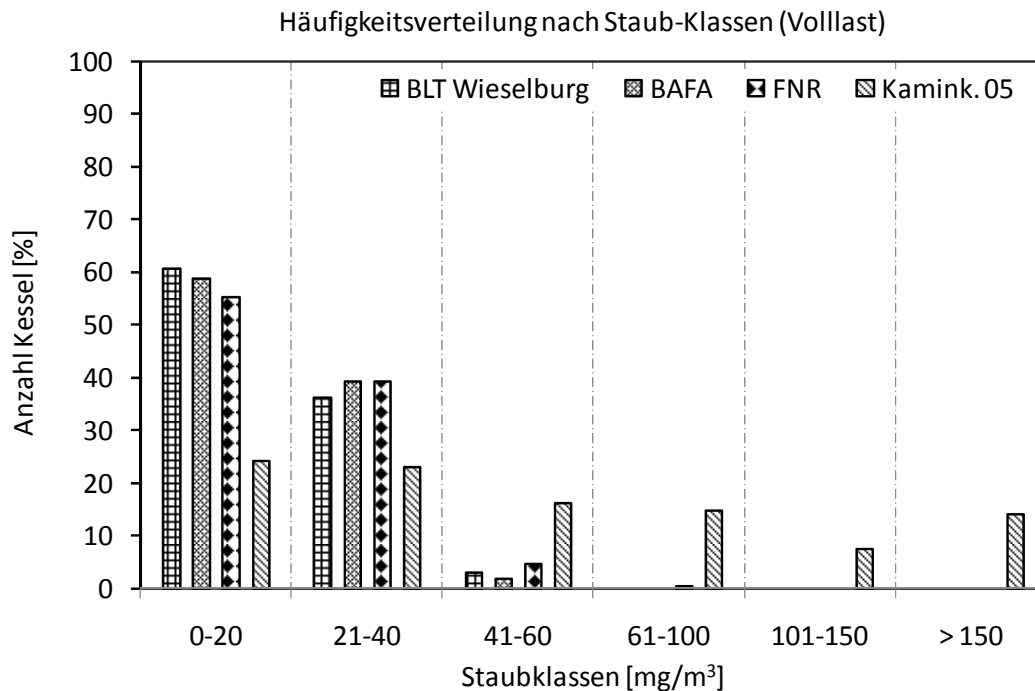


Abbildung 3.7: Häufigkeitsverteilung nach Staub-Klassen für Staubmessungen der Prüfinstitute (Normprüfungen) und der Kaminkehrer (Inbetriebnahmemeasureungen)

Prüfstandmessungen unter praxisnahen Bedingungen

Moderne Stückholzkessel sind in der Regel teillastfähig, d.h. diese Kessel können die Wärmeleistung in einem Bereich von z.B. 50% bis 100% der Nennwärmeleistung an den aktuellen Wärmebedarf anpassen. Liegt der Wärmebedarf unterhalb des Regelbereichs wechselt die Feuerung in den Gluthaltebetrieb, wobei die Luftzufuhr stark vermindert wird, um möglichst lange ein Glutbett bei geringer Wärmeleistung zu erhalten. Je nachdem wie optimal die Systemintegration (Leistungsdimensionierung, Leistungsregelbereich, Kombination des Kessels mit einem ausreichend dimensioniertem Pufferspeicher) und das Betreiberverhalten sind, desto länger kann der Stückholzkessel bei Volllast bzw. Teillast betrieben werden und desto seltener werden die Hauptverbrennungsphasen durch einen Gluthaltebetrieb unterbrochen. Während den Gluthaltebetriebsphasen ist der Brennstoffumsatz minimal und dies führt, aufgrund der sinkenden Verbrennungstemperaturen, zu erhöhten Emissionen von Produkten unvollständiger Verbrennung. Wird der Kessel aus dem Gluthalt wieder gestartet, dauert es eine gewisse Zeit, bis sich gute Verbrennungsbedingungen im Kessel einstellen. Dies hat erhöhte Emissionen von Produkten unvollständiger Verbrennung während der Start- und Stabilisierungsphase zur Folge. Wird ein teillastfähiger Stückholzkessel ohne einen Pufferspeicher betrieben, so sind beispielsweise die CO-Emissionen 2-fach, die Staubemissionen sogar 5-fach überhöht (Tabelle 3-3) [Struschka et al., 2004]. Verantwortlich für die überhöhten Staubemissionen ist hierbei der gestiegene Anteil an Kohlenstoffpartikel.

Wird bei einem teillastfähigen Stückholzkessel mit Pufferspeicher die Teillastregelung deaktiviert, so wäre ein Anstieg von Produkten unvollständiger Verbrennung zu erwarten, da der Kessel öfters in den Gluthaltebetrieb schalten muss. Untersuchungen an einem Stückholzkessel zeigen das Gegenteil auf, dort führen schlechtere Verbrennungsbedingungen während des Teillastbetriebs zu höheren Gesamtemissionen.

Tabelle 3-3: Emissionswerte eines Stückholzkessels unter Prüfstand- und praxisnahen Betriebsbedingungen

	Emissionswerte eines Stückholzkessels			
	Prüfstandmessung	Messung unter praxisnahen Bedingungen		
	Volllast	mit Teillastregelung		ohne Teillastregelung
	ohne Speicher	ohne Speicher	mit Speicher	mit Speicher
CO in mg/m ³ bei 13 Vol.% O ₂	170	5055	2484	1891
VOC in mgC/m ³ bei 13 Vol.% O ₂	-	424	132	56
Staub in mg/m ³ bei 13 Vol.% O ₂	38	197	36	66

Prüfstandbedingungen: stationärer Betrieb bei Nennwärmeleistung

praxisnahe Bedingungen: Betrieb des Heizkessels mit Wärmebedarfsprofilen

Die CO-Emissionswerte ein und desselben Stückholzkessels sind im praxisnahen Betrieb mit Wärmebedarfsprofilen und unter Verwendung eines Pufferspeichers rund 15-fach höher als unter Prüfstandbedingungen, d.h. beim stationären Betrieb mit Nennwärmeleistung. Bei einer unzureichenden Systemintegration in der Praxis können die Unterschiede der Abgasemissionen zwischen Prüfstand- und Praxisbetrieb natürlich noch gravierender ausfallen, wenn der Heizkessel z.B. mit Teillastregelung und ohne Pufferspeicher betrieben wird.

4 Gerätetechnischer Stand von Stückholzkesseln

Bei handbeschickten Stückholzkesseln zur zentralen Gebäudebeheizung (über Heizwasserkreise) wird heute ausschließlich der untere Abbrand als Feuerungsprinzip eingesetzt. Hierbei wird der Feuerraum in eine Primär- und Sekundärkammer unterteilt, welche auch als Füllraum (Brennstoffreservoir) und Brennkammer bezeichnet werden können. In der Primärkammer erfolgt mittels Primärluftzugabe die Feststoffvergasung, wobei jeweils nur die unterste Schicht des Brennstoffs umgesetzt wird. Das über dem Glutbett liegende Holz dient als Brennstoffreserve, welches selbstständig nachrutscht und somit einen quasi-kontinuierlichen Brennstoffnachschub ermöglicht. Über die Menge der zugeführten Verbrennungsluft (Primärluft) kann die Feuerungswärmeleistung entsprechend dem aktuellen Wärmebedarf angepasst werden. Die in der Primärkammer freigesetzten Brenngase werden meist über ein Saugzuggebläse entweder nach unten (Sturzbrand) oder zur Seite (seitlicher Unterbrand) in die Sekundärkammer (Brennkammer) befördert und dort unter Sekundärluftzugabe mehr oder weniger vollständig verbrannt (Abbildung 4.1). Feuerungen mit Sturzbrand besitzen keinen Verbrennungsrost, dort bleibt die Asche im Füllraum liegen. Beim seitlichen Unterbrand kann die Primärluftzugabe teils auch über einen Bodenrost erfolgen, dies ermöglicht eine komfortablere Entaschung und einen vollständigen Holzkohleabbrand.

Nach der Sekundärkammer werden die heißen Abgase durch den Wärmetauscher geleitet. Je mehr Schikanen (Turbulatoren) die heißen Abgase hierbei im Wärmetauscher überwinden müssen, desto besser erfolgt die Wärmeabgabe an das Heizwasser und desto höher ist folglich der Kesselwirkungsgrad. Dieser liegt im Volllastbetrieb durchschnittlich bei ca. 90% (laut FNR-Marktübersicht, 2007).

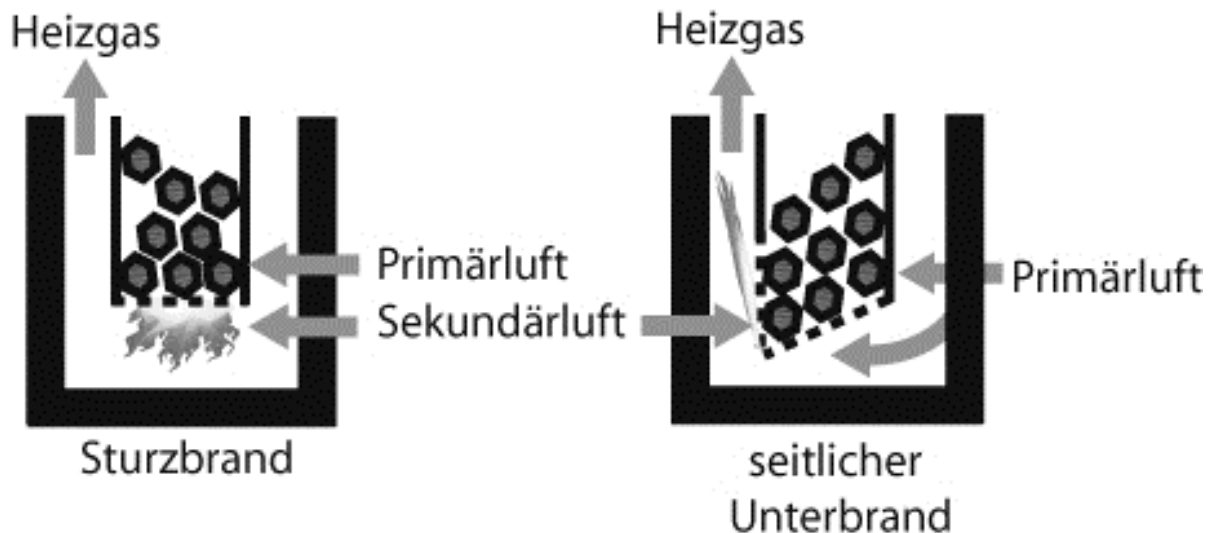


Abbildung 4.1: Feuerungsprinzipien bei Stückholzkesseln

Ein weiteres gerätetechnisches Unterscheidungsmerkmal ist die Ausführung der Regelung. Bei handbeschickten Stückholzkesseln hat eine Regelung folgende Ziele:

- Anpassung der Feuerungswärmeleistung an den aktuellen Wärmebedarf, wodurch lange Abbrandzeiten erreicht werden
- Anpassung von Primär- und Sekundärluft um möglichst optimale Verbrennungsbedingungen während der unterschiedlichen Verbrennungsphasen zu erreichen
- bei Systemen mit Speicher: Integrierte Speicherbewirtschaftung mit Restwärmenutzung.

Abhängig von der Regelung lassen sich Stückholzkessel in reine Vollastkessel, leistungsregelte Stückholzkessel und leistungs- und verbrennungsgeregelte Stückholzkessel unterscheiden. Vollastkessel besitzen keine Regelung, die Primär- und Sekundärluftmengen sind fest eingestellt. Bei einem leistungsregelmäßigem Stückholzkessel kann der Verbrennungsprozess entsprechend der Wärmeabnahme angepasst werden. Die modernste Entwicklungsstufe für die Verbrennung von Stückholz stellen die leistungs- und verbrennungsgeregelten Stückholzkessel dar. Zur Verbrennungsüberwachung kommt hier meist eine Lambdasonde zur Messung der O_2 -Konzentration am Kesselausgang bzw. im Abgasrohr zum Einsatz (siehe auch Arbeitspakete 4/5). Ziel der Verbrennungsregelung ist es, durch die Anpassung der Primär- und/oder Sekundärluftmenge möglichst optimale Verbrennungsbedingungen und niedrige Emissionswerte zu erreichen.

Nachfolgend wird auf die verschiedenen Verbrennungskonzepte, Detaillösungen zur Feuerungsraumgestaltung, zur Führung und Verteilung der Verbrennungsluft sowie auf die bisherigen Entwicklungsansätze zur Verbrennungsoptimierung der verschiedenen Hersteller eingegangen.

4.1 Stückholzkessel nach dem Sturzbrandprinzip

Eine gebräuchliche Bauform von Stückholzkesseln beruht auf dem Sturzbrand-Feuerungsprinzip (Abbildung 4.2). Sie besteht aus einem großen Füllschacht für 33, 50 oder auch 100 cm langem Scheitholz, in den eine bestimmte Menge Holz aufgegeben werden kann. Damit möglichst nur die Brennstoffschicht direkt über dem Glutbett an der Verbrennung teilnimmt, werden verschiedene konstruktive Maßnahmen ergriffen. So wird z.B. der Füllschacht durch einen Wassermantel gekühlt. Eine zusätzliche Innenauskleidung des Füllraums soll den Teer- und Rußniederschlag an kalten Flächen im Füllraum begrenzen. Die Primärluftzugabe in den unteren Teil des Füllschachts erfolgt über zahlreiche seitliche Öffnungen, siehe auch Abbildung 4.3. Der Füllschachtboden muss grundsätzlich folgenden materialspezifischen Anforderungen gerecht werden:

- robust gegen mechanische Beanspruchung aufgrund herabfallender Holzscheite beim Befüllen des Stückholzkessels
- hohe Wärmespeicherkapazität für ein hochreaktives und heißes Glutbett unmittelbar vor der Brennkammer.

Meist kommen bei der Konstruktion von Füllschachtböden für Stückholzkessel mit Sturzbrand z.B. Feuerbetone, Schamottesteine oder hitzebeständige Gussplatten zum Einsatz. Über eine Öffnung im Füllschachtboden werden die freigesetzten Brenngase unter Zugabe von Sekundärluft in die Brennkammer gesaugt. Füllraumseitig sind diese (schlitzförmigen) Öffnungen meist mit Stahl- oder Gussbauteilen ausgekleidet. Dies dient zum einen als Kantenschutz der sehr stoßempfindlichen Feuerfestmaterialien, zum anderen wird durch eine entsprechende geometrische Gestaltung verhindert, dass Holzkohle in die Brennkammer gelangt bzw. die Sekundärluftöffnungen verstopfen (siehe Abbildung 4.4).

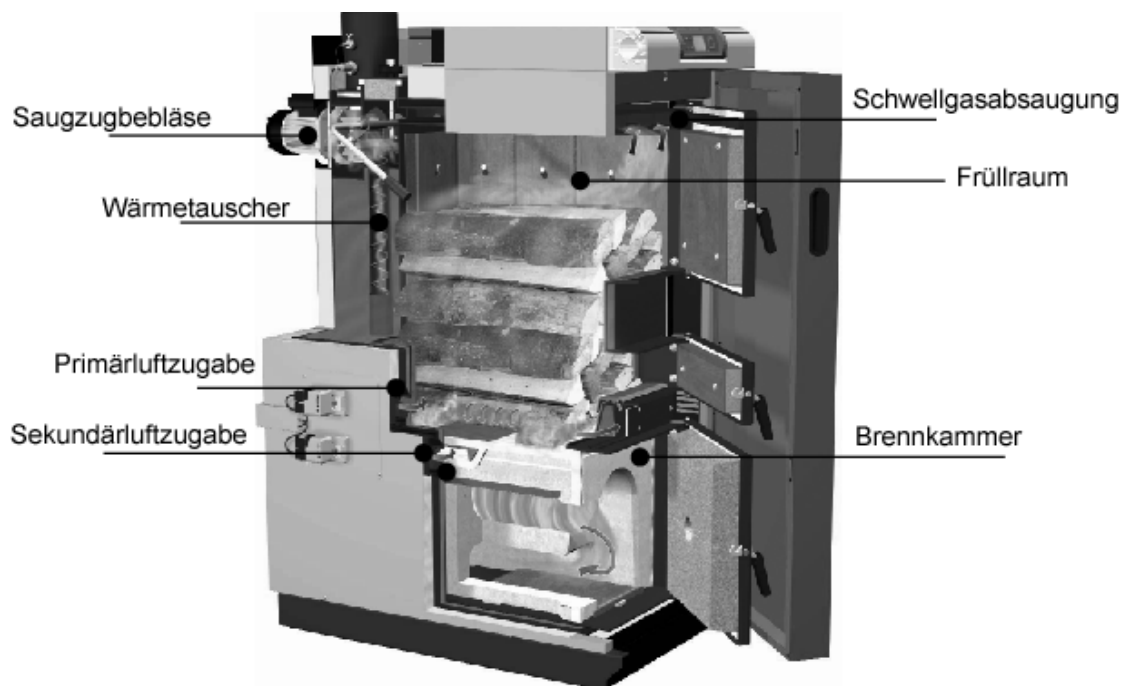


Abbildung 4.2: Aufbau eines Stückholzkessels nach dem Sturzbrandprinzip

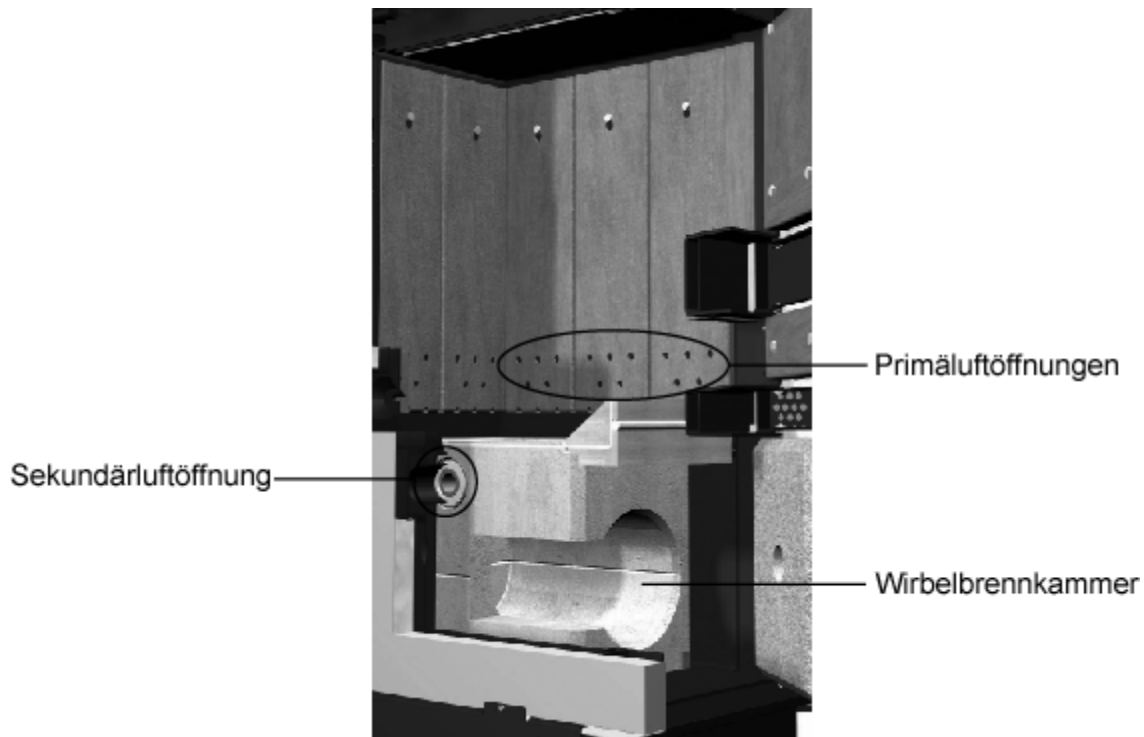


Abbildung 4.3: Primärluft- und Sekundärluftöffnungen eines Sturzbrand-Stückholzkessels



Abbildung 4.4: Beispiel für Füllschachtboden mit Durchgangsöffnung für die Brenngas in die darunterliegende Brennkammer

Die geometrische Gestaltung im weiteren Verlauf der Durchgangsöffnung (nach der Sekundärluftzugabe) ist für eine intensive Durchmischung der Brenngase mit der Sekundärluft in der Brennkammer sehr wichtig. Dies kann z.B. durch eine Verjüngung der Durchgangsöffnung (Düseneffekt) erreicht werden, wie in Abbildung 4.5 beispielhaft dargestellt ist.

Durch die zylindrische (siehe Abbildung 4.2 und Abbildung 4.3) oder rechteckige Bauform (siehe Abbildung 4.5) der Brennkammer werden heiße Gaswirbel erzeugt, so dass eine heiße Zone mit sehr guter Durchmischung entsteht. Aufgrund der sehr hohen Temperaturen, die bis ca. 1000 °C erreichen können, kommen auch hier Feuerfestmaterialien wie Schamotte, Feuerbetone, Lava Tone oder Keramikfasermaterialien und Feuerfestmaterialien aus Siliziumcarbid zum Einsatz.

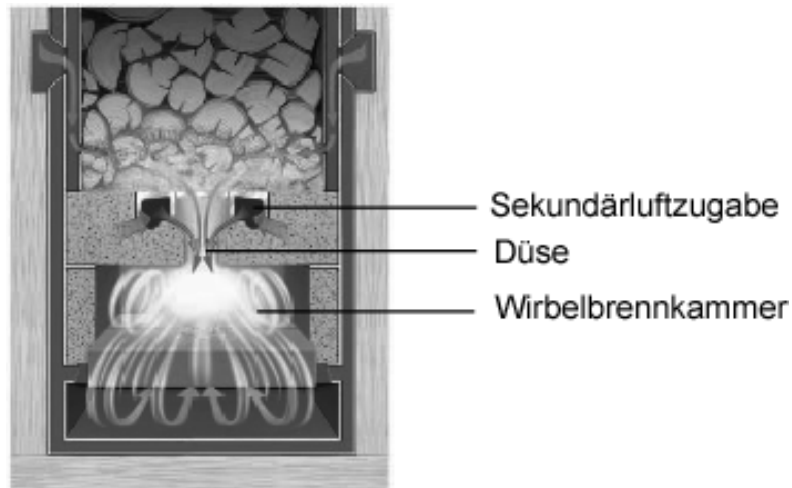
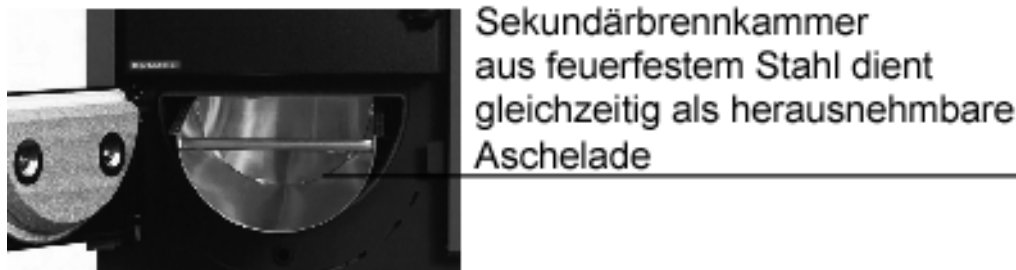
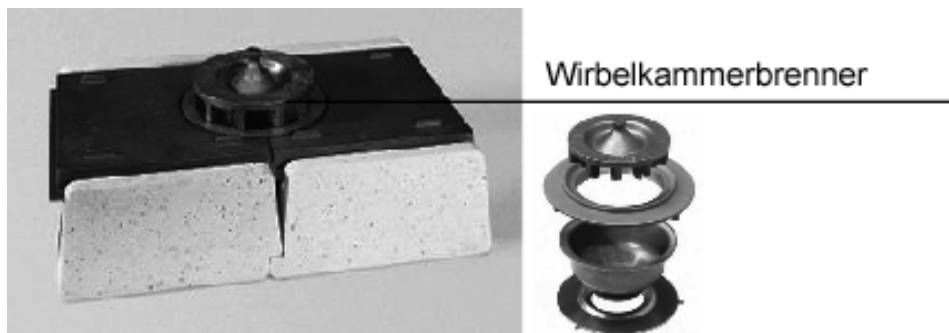


Abbildung 4.5: Geometrische Gestaltung der Durchgangsöffnung zur Brennkammer eines Stückholzkessels nach dem Sturzbrandprinzip

Manche Hersteller versuchen durch eine horizontale Zweiteilung der Brennkammer die Verweilzeit der Brenngase deutlich zu erhöhen (vgl. Abbildung 4.3 gegenüber Abbildung 4.2). Eine weitere Möglichkeit, eine Vermischung der Brenngase mit der Sekundärluft zu erreichen, beruht auf einer Art Brennerprinzip. Hierbei erfolgt die Vermischung direkt beim Zusammentreffen der beiden Gasströme (Brenngas und Sekundärluft) und nicht in der Nachbrennkammer. Dieses Prinzip wird derzeit, soweit bekannt, von einem Hersteller angewandt, was eine keramikfreie Konstruktion der Nachbrennkammer ermöglicht, so dass diese auch als herausnehmbare Aschelade verwendet werden kann (siehe Abbildung 4.6).



Sekundärbrennkammer aus feuerfestem Stahl dient gleichzeitig als herausnehmbare Aschelade



Wirbelkammerbrenner

Abbildung 4.6: Keramikfreie Sekundärbrennkammer und Wirbelkammerbrenner

Die Wärmeabgabe der heißen Verbrennungsgase an das Heizwasser erfolgt dann im anschließenden Wärmetauscher. In Rohrwärmetauschern sorgen z.B. Wirbulatorien, die gleichzeitig zur Reinigung der abgasseitigen Wärmetauscherflächen dienen, für hohe Wirkungsgrade (Abbildung 4.7).

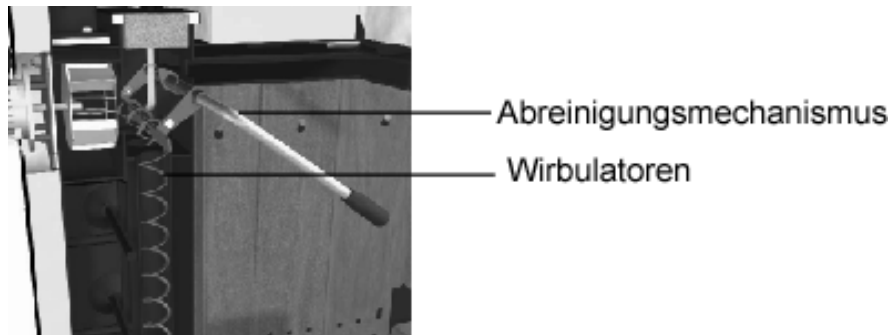


Abbildung 4.7: Wärmetauscher mit Wirbulatorien eines Stückholzkessels

4.2 Stückholzkessel mit seitlichem Abbrand

Als weiteres häufig eingesetztes Feuerungsprinzip kommt der seitliche Abbrand zum Einsatz, wobei die Brenngase seitlich in die Sekundärkammer geleitet werden (Abbildung 4.8).

Die Primärluftzuführung erfolgt über seitliche Öffnungen im Füllraum und von unten über einen Rost. Sekundärluft wird im Übergang zur Sekundärkammer beigemischt. Abhängig von der Füllraumgeometrie (Länge x Breite) ist die Sekundärkammer seitlich (Abbildung 4.8 und Abbildung 4.9) oder rückseitig (Abbildung 4.10) angeordnet. Wobei es stehende und liegende Ausführungen gibt.

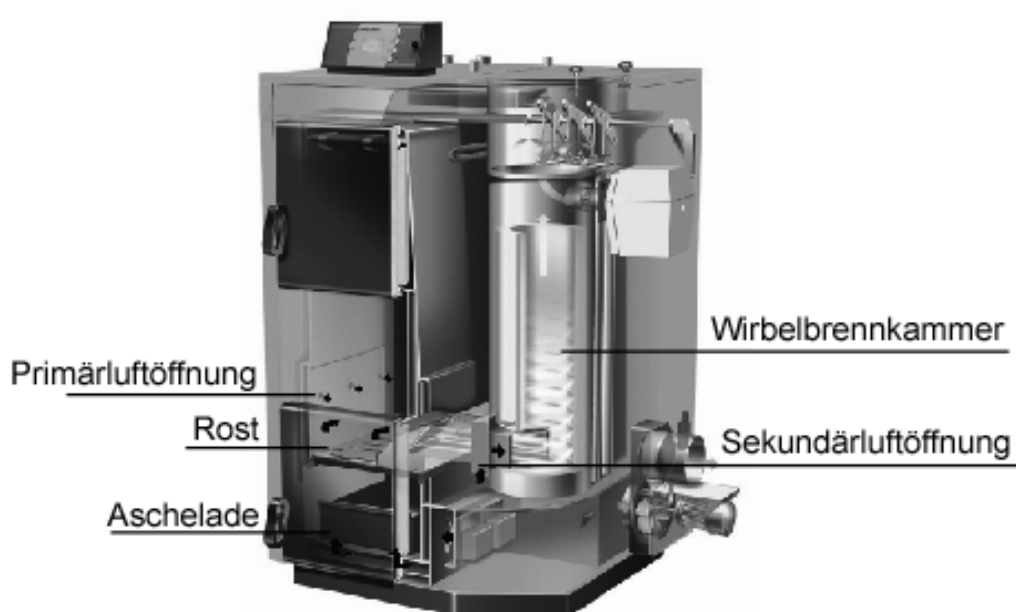


Abbildung 4.8: Aufbau eines Stückholzkessels mit seitlichem Abbrand (stehende Sekundärbrennkammer)

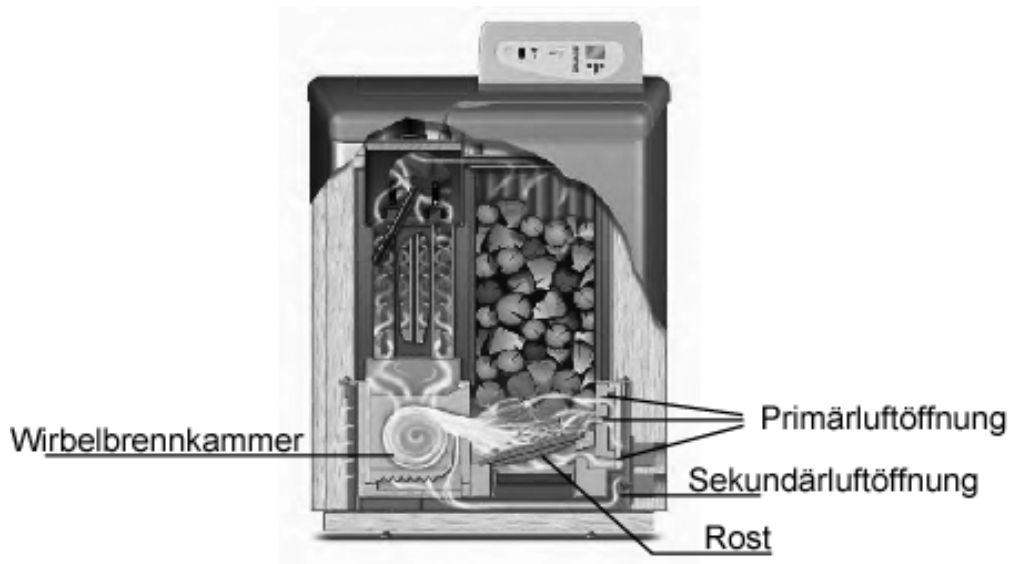


Abbildung 4.9: Aufbau eines Stückholzkessels mit seitlichem Abbrand (liegende Sekundärbrennkammer)

Im Gegensatz zum Feuerungsprinzip mit unterem Abbrand (Sturzbrand) unterstützt der Rost beim seitlichen Abbrand (Primärluft von unten) aktiv den Holzkohleausbrand. Für ein besonders heißes und reaktives Glutbett haben manche Hersteller den Stahlrost weiterentwickelt und mit keramischen Bauteilen versehen (Abbildung 4.10).

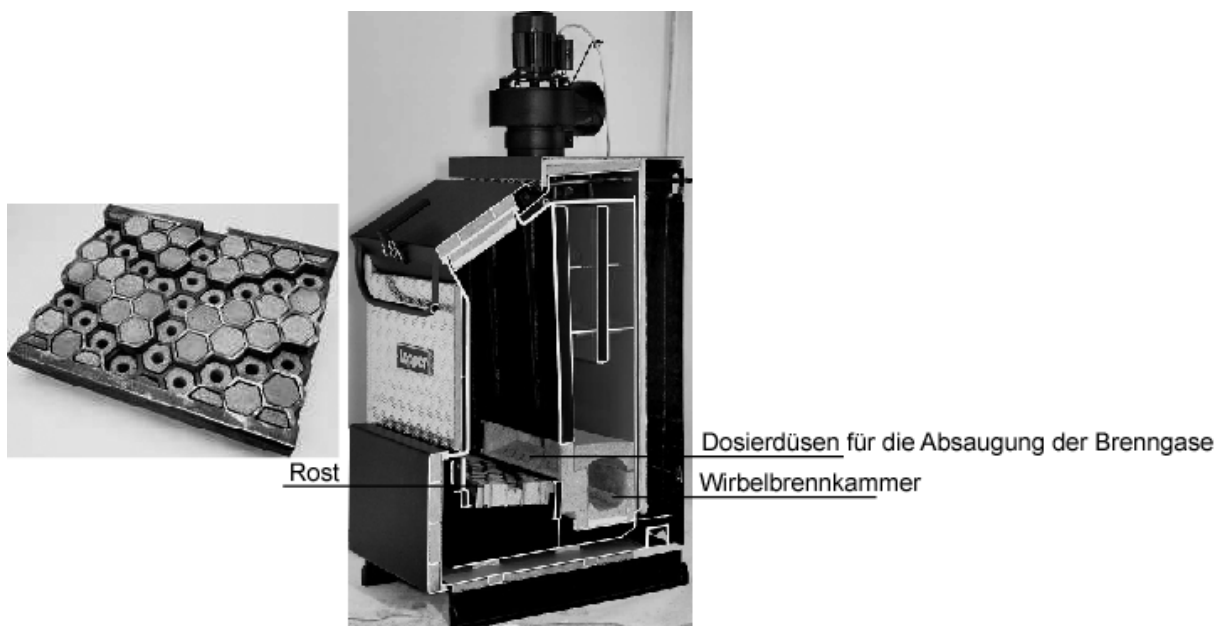


Abbildung 4.10: Aufbau eines Stückholzkessels mit seitlichem Abbrand (liegende Sekundärbrennkammer) und keramischem Wabenrost

4.3 Geometrische Abmessungen von Stückholzkesseln

Typische geometrische Abmessungen von Stückholzkesseln im Leistungsbereich zwischen 20 kW und 30 kW und von einzelnen Bauteilen sind in Tabelle 4-1 zusammengefasst.

Tabelle 4-1: Typische geometrische Abmessungen von Stückholzkesseln im Nennwärmeleistungsbereich von 20-30 kW

	Kesselabmessungen [cm]			Gewicht [kg]	spezifisches Füll- schachtvolumen [l/kW]	spezifisches Kes- selwasservolumen [l/kW]
	Höhe	Breite	Tiefe			
Mittelwert	143	71	111	573	5,6	4,8
Min-Wert	106	55	83	300	3,1	2,6
Max-Wert	163	104	142	770	8,8	9,8

Abhängig vom Feuerungsprinzip unterscheiden sich die Stückholzkessel in ihrer Geometrie, wobei Stückholzkessel nach dem Sturzbrandprinzip eher höher und Stückholzkessel mit seitlichem Abbrand eher breiter sind. Letztendlich müssen die geometrischen Abmessungen eines Stückholzkessels so gestaltet werden, dass Engstellen im Haus und schmale Türen problemlos passiert werden können. Das Füllschachtvolumen ist hauptverantwortlich für die Brenndauer des Stückholzkessels und damit mitentscheidend für einen großen Heizungskomfort. Die Grundfläche des Füllschachtes wird nach der maximal verfeuerbaren Holzlänge ausgelegt. Unterschieden wird im betrachteten Nennwärmeleistungsbereich zwischen 33 cm und 50 cm langen Holzscheiten. 86% der Stückholzkessel im Leistungsbereich 20-30 kW sind für die Verbrennung von 50 cm Holzscheiten dimensioniert (FNR-Marktübersicht, 2007). Typische spezifische Volumina für Wirbelnachbrennkammern liegen zwischen 370 cm³/kW und 470 cm³/kW.

5 Zusammenfassung AP1

Die Auswertung des emissionstechnischen Standes (vgl. Abschnitt 3.2) zeigt grundsätzlich den großen technologischen Fortschritt von Stückholzkesselfeuerungen in den letzten Jahren. Die zahlreichen Messergebnisse aus Typenprüfungen und auf Prüfständen (beim Betrieb der Heizkessel unter stationären Bedingungen) zeigen einen sehr hohen Anteil von Heizkesseln an der Gesamtzahl der vermessenen Feuerungen mit niedrigen Emissionen:

- > 90% der geprüften Stückholzkessel liegen im CO-Bereich <400 mg/m³
- 60% der geprüften Stückholzkessel emittieren weniger als 20 mg/m³ Staub.

Die große Mehrheit der geprüften Stückholzkessel liegt im Nennleistungsbereich zwischen 10 und 30 kW. Besonders der Vergleich von Messergebnissen der Typenprüfungen oder auf Prüfständen beim Betrieb der Heizkessel unter stationären Bedingungen mit Inbetriebnahmemeasurements der Kaminkehrer oder Prüfstandsmessungen unter praxisnahen Betriebsbedingungen (d.h. mit Wärmebedarfsprofilen und damit auch unter instationären Bedingungen)

verdeutlicht, dass die Versuchsdurchführung und die gegebenenfalls angewandte Messvorschrift (z.B. bei Typenprüfungen) großen Einfluss auf die gemessenen Emissionen von Stückholzkesseln haben. Demnach sind die Abweichungen der ermittelten Emissionen unter stationären Betriebsbedingungen und der in der Praxis gegebenen Emissionen mit einem hohen Anteil von instationären Betriebsbedingungen (z.B. Anheizen des Kessels, Gluthaltbetrieb, Lastwechsellvorgänge, Holzkohleabbrand) erheblich. Die CO-Emissionen eines modernen Stückholzkessels sind im Praxisbetrieb mit instationären Betriebsanteilen gegenüber seinen Prüfstandswerten mit ausschließlich stationären Betriebsanteilen 15-fach höher. Abhängig von der Systemintegration (Wärmespeicher, Kesselauslastung) des Kessels können diese Abweichungen bezüglich der Emissionen von Produkten unvollständiger Verbrennung (CO, VOC und Staub) noch größer ausfallen.

Dies zeigt, dass vor allem im Praxisbetrieb mit instationären Betriebsanteilen ein sehr großes Minderungspotential bezüglich der Emissionen von Produkten unvollständiger Verbrennung (CO, VOC und Staub) bei Stückholzkesseln vorhanden ist. Bei der Entwicklung von neuen Konzepten für emissionsarme Stückholzkessel genügt es deshalb nicht, den Verbrennungsprozess unter stationären Bedingungen isoliert zu betrachten und zu optimieren, es müssen auch die in der Praxis gegebenen Randbedingungen und damit die instationären Betriebszustände in eine Konzeptentwicklung mit einbezogen werden.

Während des Praxisbetriebs eines Stückholzkessels tragen folgende Verbrennungsphasen und Störungen im Verbrennungsablauf besonders zu den Gesamtemissionen von CO, VOC und Staub bei:

- Anheizphase und Ausbrandphase des Kessels
- Störungen während der Hauptverbrennungsphase durch:
 - ▶ Regelvorgänge zur Leistungsanpassung
 - ▶ Betrieb bei Teillast
 - ▶ Gluthaltbetrieb und die anschließende Start- und Stabilisierungsphase
 - ▶ Hohlbrandphasen
 - ▶ Brennstoffaufgabe.

Ein neu konzipierter Stückholzkessel muss die Grenzwerte der 1. BImSchV der Stufe 2 für das Jahr 2016 bei den Betriebsbedingungen für die Typenprüfung (nur stationäre Bedingungen bei konstanter Wärmeleistung, optimale Randbedingungen und fachgerechte Bedingung) deutlich unterschreiten. Im praktischen Betrieb bei den Betriebsbedingungen für die Kaminkehrermessungen (Randbedingungen der Praxis mit nicht genau definierten Brennstoffqualitäten, mehr oder weniger ungestörtem Dauerbetrieb, u.U. mit nicht optimaler Installation, hydraulischer Abstimmung des Systems und Einstellung der Kesselregelung) sind die Grenzwerte sicher zu unterschreiten. Diese liegen für CO bei 400 mg/m^3 und für Staub bei 20 mg/m^3 (jeweils bezogen auf 13 Vol.% O_2). Außerdem muss der neu konzipierte Heizkessel so aufgebaut sein, dass auch im praktischen Heizbetrieb mit instationären Betriebszuständen eine Grenzwertüberschreitung, wenn überhaupt, nur kurzzeitig und nur in geringem Umfang stattfindet. In der Regel sollen auch bei diesen ungünstigen Betriebsbedingungen die Grenzwerte merklich unterschritten werden. Diese hohen Ziele können nur erreicht werden, wenn das Gesamtsystem, bestehend aus Kessel, Regelung, Sensorik und Katalysator

optimiert wird. In Tabelle 5-1 sind die Benchmark-Werte für CO, VOC und Staub für die geplante Neuentwicklung eines Stückholzkessels aufgelistet.

Tabelle 5-1: Benchmark-Werte für CO, VOC und Staub der geplanten Neuentwicklung eines optimierten Stückholzkessels

Emissionskomponente (bei 13 Vol% O ₂)	Mittelwerte modernster Heizkessel auf Basis (Stand der Technik)			Benchmark-Werte für Neuentwicklungen des optimierten Stückholzkessels	
	Normprüfung * (stationärer Dauerbetrieb)	Überwachungs- messung 1. BlmSchV	praxisnaher Betrieb ***	stationärer Dauerbetrieb	praxisnaher Betrieb
CO in mg/m ³	178	1.675	5.055	< 25	< 125
VOC in mgC/m ³	8	**	424	< 2	< 10
Staub in mg/m ³	20	108	197	< 8	< 20

* vgl. Abbildung 3.4 und Abbildung 3.6, angegeben sind hier nur Prüfberichte der BLT Wieselburg

** für VOC existiert kein Grenzwert

*** Daten aus Tabelle 3-3, Stückholzkessel mit Teillastregelung und ohne Pufferspeicher, Werte beim stationären Dauerbetrieb: CO 170 mg/m³ und Staub 38 mg/m³ (jeweils bei 13 Vol% O₂)

Moderne Stückholzkessel sind entweder nach dem unteren oder seitlichen Abbrandprinzip aufgebaut. Bei Stückholzkesseln mit seitlichem Abbrand ist vor allem das Vorhandensein eines Rosts positiv zu bewerten. Dieser ermöglicht eine Primärluftzuführung von unten, womit der Holzkohleausbrand unterstützt wird. Außerdem ermöglicht ein Rost die komfortable Entaschung über eine Aschelade unterhalb des Rosts. Ebenfalls positiv zu bewerten, im Hinblick auf eine Neuentwicklung, sind die aufgrund des seitlichen Abbrands bestehenden Freiheiten bezüglich der Positionierung der Sekundärkammer und somit auch der weiteren geometrischen Gestaltung des Kessels.

Ob und in wie fern das jeweilige Feuerungsprinzip das Problem der Hohlbrandentstehung beeinflusst, kann nicht beurteilt werden, da hierzu wissenschaftliche Untersuchungen fehlen. Festgehalten werden kann aber, dass es für einen emissionsarmen Betrieb eines Stückholzkessels wichtig ist, dass sich ein homogenes Glutbett bildet und die Temperatur- und Primärluftverteilung in der Entgasungszone möglichst gleichmäßig ist. Nur so kann ein gleichmäßiges Nachrutschen des Holzes erreicht werden und die Hohlbrandgefahr (Leerraum zwischen Glutbett und Holzaufgabe), die mit einem Emissionsanstieg von Produkten unvollständiger Verbrennung verbunden ist, reduziert werden. Bei einem optimierten Stückholzkessel ist es daher erstrebenswert, die Hohlbrandgefahr zu reduzieren.

Hinsichtlich der Nachverbrennung, für eine möglichst vollständige Verbrennung und geringe Emissionen, sind zylindrische oder rechteckige Wirbelbrennkammern bei Stückholzkessel weit verbreitet. Diese sind meist aus feuerfesten Materialien aufgebaut, welche durch ihre wärmedämmenden Eigenschaften eine unnötige Wärmeabgabe aus der Verbrennungszone verhindern und so für ausreichend hohe Verbrennungstemperaturen sorgen. Durch einen hohen Verbrennungsluftüberschuss ($\lambda = 1,7-1,9$) wird oft versucht, unzureichende Mischbedingungen von Brenngasen mit Verbrennungsluft zu kompensieren. Bisher können vor allem die hohen Brennkammertemperaturen bei langen Verweilzeiten (> 2 s) als bestimmende Größen für den oxydativen Abbau der brennbaren Gasbestandteile angesehen werden. Ho-

he Brennkammertemperaturen werden aber während längerer Phasen von stationären Betriebszuständen bei hoher konstanter Feuerungswärmeleistung erreicht. Diese Zustände liegen aber im praktischen Heizbetrieb u.U. nicht so vor. Für den Praxisbetrieb mit unterschiedlichen Lastzuständen hat dies zur Folge, dass im Teillastbetrieb ein noch größerer Luftüberschuss ($\lambda > 2$) gefahren werden muss, was zu weiteren Wirkungsgradeinbußen führt. Wird eine bestimmte Temperaturgrenze unterschritten (z.B. 800 °C während der Anbrenn- und Ausbrandphase), erhöhen sich durch die starke Temperaturabhängigkeit der Ausbrandqualität die Emissionen von Produkten unvollständiger Verbrennung.

Diese Temperaturgrenze von 800°C wird anhand von Experimenten am ISIS bestätigt. Dies lässt den Schluss zu, dass hinsichtlich des Volumens der Sekundärbrennkammer ein Kompromiss gefunden werden muss bezgl. der schnellen Aufheizbarkeit innerhalb weniger Minuten (kleines Volumen, geringe Wärmekapazität) und einer möglichst langen Verweilzeit (eher großes Volumen, evtl. lange Gas-Strömungswege realisieren) der brennbaren Gase in dieser Reaktionszone. Diese Optimierung würde die Emissionen in der Anbrenn- und der Ausbrandphase verringern.

6 Konzeptentwicklung optimierter Stückholzkessel

Hauptziel ist es, einen verbrennungstechnisch und wirkungsgradmäßig optimierten Stückholzkessel zu konstruieren. Außerdem soll der Stückholzkessel eine kompakte Bauweise und ein geringes Gewicht aufweisen. Neben dem Hauptziel der Emissionsminderung muss ein optimierter Stückholzkessel weiteren zahlreichen Anforderungen genügen, wobei diese mehr oder weniger große gegenseitige Abhängigkeiten aufweisen. Diese wurden in Zusammenarbeit mit der Firma Ritter Energietechnik GmbH erarbeitet und in Tabelle 6-1 zusammengetragen.

Die Nennwärmeleistung des Stückholzkessels soll im Bereich von 20 kW liegen und somit den Heizwärme- und Warmwasserbedarf eines typischen Einfamilienhauses im Bestand decken. Zur Grundausstattung des Stückholzkessels muss ein ausreichend dimensionierter Pufferspeicher gehören (siehe Tabelle 6-1, Nr. F24), welcher die momentan nicht zu Heizzwecken oder zur Warmwassererzeugung benötigte Energie, welche durch den Abbrand der Brennstofffüllung freigesetzt wird, aufnehmen kann. Dies hat zum einen den Vorteil, dass der Betreiber weniger oft am Tag neuen Brennstoff nachlegen muss, zum anderen kann der Kessel länger unter Volllast oder bei einem definierten Teillastpunkt betrieben werden, was den Nutzungsgrad des Heizkessels deutlich erhöht und die Emissionen von Produkten unvollständiger Verbrennung merklich reduziert. Zur Anpassung an den Heizwärmebedarf bzw. an den Pufferspeicherladezustand muss der Stückholzkessel eine gewisse Teillastfähigkeit aufweisen und notfalls in einen Gluterhaltungsbetrieb schalten können (vgl. Nr. F02 und F05). Bezüglich der Kesselabmessungen darf der neu konzipierte Stückholzkessel grundsätzlich die Dimensionen einer gebräuchlichen Kellertüre nicht überschreiten. Hier ist ein modularer Aufbau des Stückholzkessels anzustreben, wobei eine bauliche Trennung zwischen Füllraum und Nachbrennkammer mit Wärmetauscher denkbar ist. Dies hat für den Heizungsmonteur Vorteile (geringes Gewicht der einzelnen Module, kleinere Abmessungen) beim Einbau des Stückholzkessels vor Ort und u.U. auch für den Betreiber, da alle wesentlichen Bauteile (Füllraum, Nachbrennkammer, Wärmetauscher) von vorne zugänglich und von vorne gereinigt werden können.

Tabelle 6-1: Anforderungsliste an optimierte Stückholzkessel mit Unterteilung nach Festforderung (F), gezielter Optimierung (Z) und Wunschforderung (W)

Nr	Anforderungen	Wert-Daten				Anforderungsart
		Mindest-Erfüllung	Soll-Erfüllung	Ideal-Erfüllung	Maßeinheit	
F01	Nennwärmeleistung	-	20	-	kW	F
F02	Teillastfähigkeit	-	fest, 60%	modulierend bis 50 %	% der NWL	F
F03	Abmessungen Kessel (Höhe/Breite/Tiefe)	Breite < 80 cm	-	modularer Aufbau	-	F/W
F04	Gewicht Kessel	770	570	modularer Aufbau	kg	Z/W
F05	Gluterhaltungsautomatik	-	ja	-	-	F
F06	Abgasstutzen	hinten/seitlich	-	flexibel	-	W
F07	Aschelade	-	-	ja	-	W
F08	Gebälßart	-	Saugzug	Druckgebälße	-	Z
F09	Kesselwasserinhalt	-	4,8	2,6	l/kW	Z
F10	Brennholzlänge	-	33	-	cm	F
F11	Füllschachtvolumen	-	4,0	5,6	l/kW	F/W
F12	Position Füllschachttöffnung	vorne	-	oben	-	W
F13	Position WT	-	stehend	-	-	Z
F14	Bauart WT	-	Rohre	Platten	-	Z
F15	Größe WT	-	-	möglichst klein	-	Z
F16	Katalysator	-	ja	nein	-	Z
F17	Position Katalysator	-	nach Sekundär- brennkammer	-	-	F
F18	Partikelfiltersystem	-	ja	nein	-	Z
F19	Position Partikelfiltersystem	-	-	vor WT	-	Z
F20	Sensoren	-	-	Verbrennungstemp. Abgastemp. CO/O ₂ -Konzentration	-	Z
F21	Zuführung Verbrennungsluft	-	Klappen	Gebälße	-	F/Z
F22	geringe Emissionen	-	1. BImSchV. 2016	1. BImSchV. 2016 Hohlbrandgefahr Praxisbetrieb	-	Z
F23	Wirkungsgrad	-	>90	>92	%	Z
F24	Pufferspeicher	55	-	75-100	l/kW	Z

Das Füllschachtvolumen des geplanten Stückholzkessels richtet sich zum einen nach der Brennholzlänge die verfeuert werden soll (vgl. Nr. F10), zum anderen nach der maximalen Brenndauer des Kessels bei Vollast. Als Richtwert wurde hier ein Füllschachtvolumen zwischen 4,0 bis 5,6 l/kW festgelegt (vgl. Nr. F11). Hieraus errechnet sich bei einem angenommenen Füllvolumen von 100 l eine theoretische Kesselbrenndauer von ca. 5 h bei Vollast (Tabelle 6-2).

Für einen feuerungstechnisch und wirkungsgradmäßig optimierten Stückholzkessel kann der Hauptprozess, die thermochemische Umwandlung von Stückholz und die Erzeugung von Nutzwärme in mehrere Teilfunktionen unterteilt werden, die bei einer Neukonzeption berücksichtigt werden müssen, siehe Abbildung 6.1.

Tabelle 6-2: Berechnete Brenndauer einer Kesselfüllung

Volumen	nutzbarer Energieinhalt einer Füllung	Nennwärmeleistung Volllast	Nennwärmeleistung Teillast	Brenndauer Volllast	Brenndauer Teillast
[l]	[kWh]	[kW]	[kW]	[h]	[h]
100	101	20	12	5	8

Berechnungsannahmen:

Umrechnungsfaktor Schichtmaß in Festmaß = 0,35

Rohdichte Holz = 0,78 kg/l

Heizwert = 4,3 kWh/kg

Kesselwirkungsgrad = 0,86

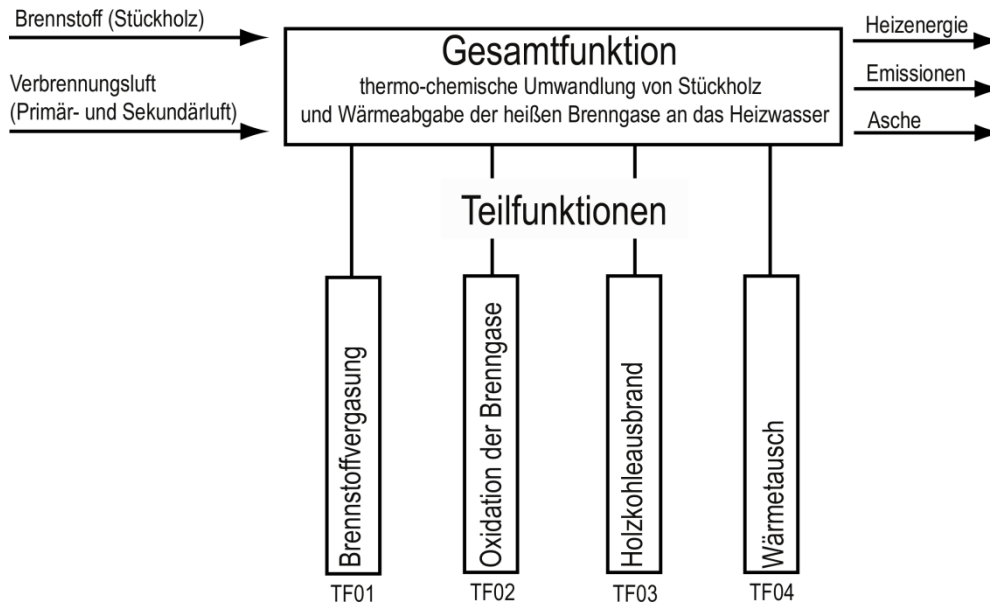


Abbildung 6.1: Gesamtfunktion und Teilfunktionen eines Stückholzkessels, sowie Eingangs- und Ausgangsgrößen

6.1 Teilfunktion TF01

Gemäß dem Stand der Technik (vgl. Abschnitt 4) soll der neu konzipierte Stückholzkessel auf dem Prinzip der gestuften Verbrennung beruhen, mit einer Aufteilung der Verbrennungsluft in Primär- und Sekundärluft. Für eine gleichmäßige Brennstoffvergasung im Füllraum (vgl. Abbildung 6.1, TF01) ist eine homogene Temperatur im gesamten Bereich der Entgasungszone notwendig. Hierzu soll die zugeführte Primärluft, die an der Entgasung teilnehmende Brennstoffschicht möglichst gleichmäßig durchströmen. Die Primärluftführung soll dabei so gestaltet werden, dass die Primärluft vorgewärmt wird und über gleichmäßig verteilte Primärluftöffnungen zugeführt wird. Auch eine unterstützende Primärluftzuführung über Bohrungen in den Rostelementen ist denkbar. Die Austrittsgeschwindigkeit der Primärluft liegt in der Praxis bei ca. 1 m/s. Um eine Abkühlung im Bereich der Füllraumwände zu verhindern, sollen die Füllraumwände im Entgasungsbereich wärmedämmend verkleidet werden bzw. es soll auf eine Wasserkühlung in diesem Bereich verzichtet werden. Gelingt eine homogene Temperaturverteilung und somit eine gleichmäßige Brennstoffvergasung, auch in der Randbereichen des Füllraumes, sollte die Hohlbrandanfälligkeit deutlich reduziert werden können. Als Beispiel für eine sehr gleichmäßige Temperaturverteilung ist in Abbildung 6.2 die simulierte Temperaturverteilung einer Rostfeuerung dargestellt.

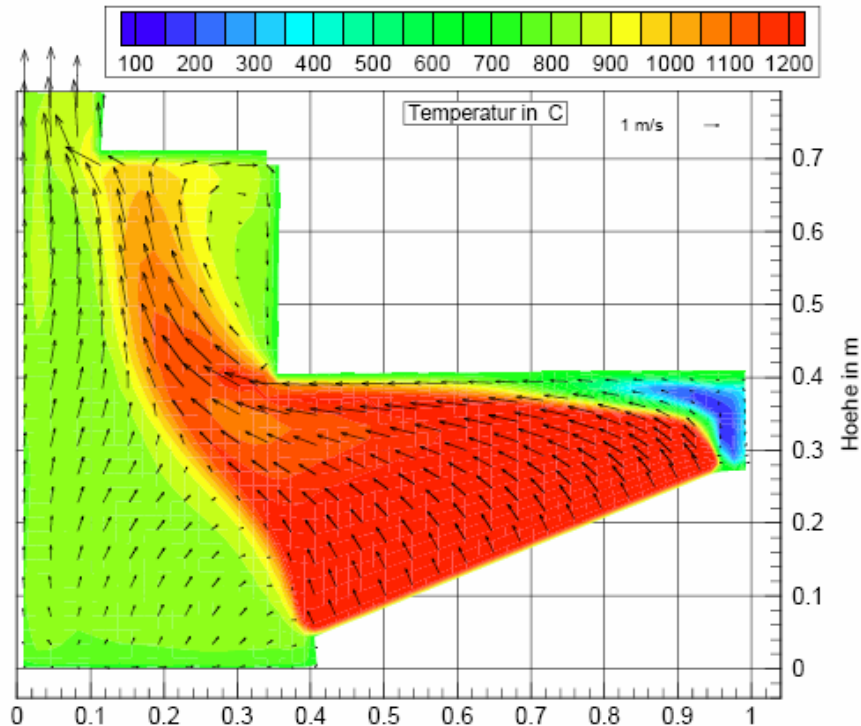


Abbildung 6.2: Simulierte Temperatur- und Geschwindigkeitsverteilung in der Primärkammer einer Rostfeuerung [Zuberbühler, 2002]

6.2 Teilfunktion TF02

Für einen möglichst vollständigen Ausbrand und geringe Emissionen (CO, VOC, kohlenstoffhaltige Partikel) müssen die Brenngase in der Sekundärverbrennungszone unter Zugabe von Sekundärluft oxidiert werden. Dabei müssen bestimmte Verbrennungsbedingungen (vgl. Abschnitt 2) eingehalten werden. Der Stand der Technik zeigt (vgl. Abschnitt 4 und 5), dass Stückholzkessel – aufgrund der vergleichsweise geringen Turbulenz und damit noch nicht vollständig optimierten Mischungsbedingungen – mit hohem Luftüberschuss, hohen Temperaturen und langen Verweilzeiten in der Sekundärverbrennungszone betrieben werden.

Um den für eine vollständige Oxidation notwendigen Luftüberschuss zu reduzieren und die Verbrennungsbedingungen auch während instationärer Verbrennungsbedingungen deutlich zu verbessern ist ein wesentliches Ziel eines verbrennungstechnisch optimierten Stückholzkessels, eine möglichst effiziente Vermischung der Brenngase mit der Verbrennungsluft zu erreichen. Dabei soll die Sekundärluft derart zugeführt werden, dass die Vermischung der Brenngase mit der Verbrennungsluft unmittelbar nach Sekundärluftzugabe weitestgehend abgeschlossen ist.

Hieraus ergeben sich folgende Vorteile:

- Verbesserung der Ausbrandqualität und Reduzierung der Emissionen von Produkten unvollständiger Verbrennung, vor allem auch im Hinblick auf den Praxisbetrieb
- Reduzierung der „Anspringtemperatur“ (z.B. von 800°C auf 650 °C) bei der die Oxidationskinetik ausreichend schnell abläuft → geringere CO- und VOC-Emissionen während der Anbrenn- und Ausbrandphase

- Verbrennung bei geringem Luftüberschuss, auch im Teillastbetrieb, für einen möglichst hohen feuerungstechnischen Wirkungsgrad
- Geringes Volumen der Sekundärverbrennungszone → kompakte Bauweise des Stückholzkessels.

Ein geringes Volumen und eine geringe Masse der Sekundärverbrennungszone hätten außerdem den Vorteil, dass eine geringere Wärmekapazität aufgeheizt werden muss und somit schnell die optimale Brennkammertemperatur erreicht wird. Gelingt es die Anspringtemperatur der Brennkammer zu reduzieren, hätte dies zudem materialtechnische Vorteile, da auf keramische Bauteile in der Brennkammer verzichtet werden könnte. Zu beachten ist allerdings, dass Temperaturen in der Sekundärbrennkammer bis ca. 950°C erreicht werden können, was materialseitig berücksichtigt werden muss.

Um eine möglichst effiziente Ein- bzw. Vermischung zu erreichen, soll die Sekundärluft mit hohen Austrittsgeschwindigkeiten z.B. über Düsen eingebracht werden. Dabei muss die Sekundärluft vorgewärmt werden. Für eine letztendlich vollständige Vermischung soll in der Sekundärverbrennungszone ein starker Drall erzeugt werden, was zu einer ausgeprägten Rückströmung und somit zu einer intensiven Vermischung von Sekundärluft und Brenngasen führt. Dies kann zum einen durch die Positionierung der Sekundärluftöffnungen zur Hauptströmungsrichtung der Brenngase erreicht werden (z.B. tangentielle Anordnung) oder aber durch technische Bauteile, welche von der Sekundärluft durchströmt werden (Abbildung 6.3).

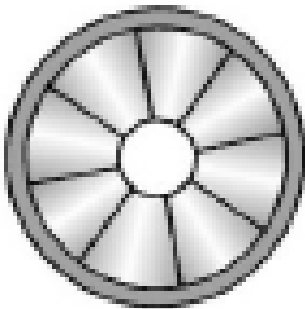


Abbildung 6.3: Axialdrallgeber

Zum anderen besteht die Möglichkeit, die Brenngase selbst zu „verdrallen“. Dies kann z.B. nach dem „Vortex-Breakdown“ Prinzip erfolgen (vgl. Abbildung 6.4).

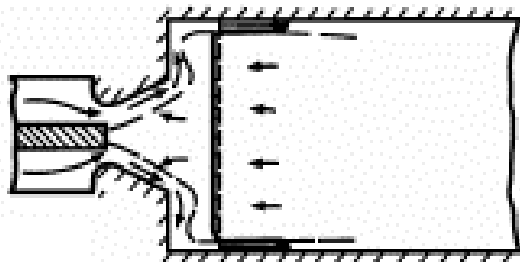


Abbildung 6.4: Drallinduziertes Strömungsfeld [F. Joos, 2006]

Im Praxisbetrieb eines Stückholzkessels treten jedoch immer wieder Betriebszustände auf, die selbst mit einer optimalen Verbrennungstechnik nicht zu beherrschen sind (vgl. Abschnitt 3). Daher soll dem neu konzipierten Stückholzkessel ein extern beheizbarer Katalysator im Anschluss an die Sekundärverbrennungszone folgen, welcher bei zu geringen Brennkammertemperaturen (z.B. in der Anbrenn- und Ausbrandphase) die Oxidation der Verbrennungsprodukte übernimmt.

6.3 Teilfunktion TF03

Die Primärluftzugabe über einen Rost bringt nicht nur Vorteile hinsichtlich einer gleichmäßigen Primärluftverteilung in der Entgasungszone mit sich, sie unterstützt außerdem aktiv den Holzkohleabbrand. Die zurückbleibende Asche gelangt über den Rost in die darunterliegende Aschelade und kann somit bequem vom Betreiber entnommen werden, was einen weiteren Vorteil einer Rostfeuerung darstellt. Daher soll der neu konzipierte Stückholzkessel auf dem Prinzip einer Rostfeuerung beruhen, wodurch sich als Feuerungsprinzip der seitliche Abbrand ergibt (vgl. Abschnitt 4.2).

6.4 Teilfunktion TF04

Der Kesselwasserinhalt ist abhängig von der Größe des Wärmetauschers und von den Wassergekühlten Bauteilen des Kessels. In der Praxis liegt der spezifische Kesselwasserinhalt zwischen 2,6 – 4,8 l/kW. Für den in der Praxis häufig vorkommenden Rohrwärmetauscher wurde eine spezifische Wärmetauscherfläche von 0,06 m²/kW berechnet (Tabelle 6-3). Durch verbesserte Verbrennungsbedingungen und damit durch einen verringerten Anfall an Ruß, Teeren und hochsiedenden organischen Verbindungen können, da die Verschmutzung der Wärmetauscherflächen im praktischen Betrieb geringer ausfällt, auch kleinere Wärmetauscherflächen und damit ein geringerer Kesselwasserinhalt erreicht werden.

Tabelle 6-3: Berechnete spezifische Wärmetauscherfläche

	Einheit	Eintritt Wärmetauscher	Austritt Wärmetauscher
Abgastemperatur	[°C]	950	250
Wassertemperatur	[°C]	55	75
Enthalpie Abgas	[kJ/kg]	1141	381
Abgasvolumenstrom	[Bm ³ /h]		100
abgasseitiger Wärmübergang	[W/m ² K]		45
Wärmeleitfähigkeit Stahl	[W/mK]		50
wasserseitiger Wärmübergang	[W/m ² K]		2000
spezifische Wärmetauscherfläche	[m ² /kW]		0,06

7 Zusammenfassung und Ausblick der AP 1 - 3

Der verbrennungstechnisch und energetisch optimierte Stückholzkessel soll im Nennwärmeleistungsbereich von 20 kW liegen, die Emissionsgrenzwerte der 1. BImSchV für Stufe 2 (gültig ab 2016) sollen im stationären Dauerbetrieb bei Nennwärmeleistung deutlich unterschritten werden. Auch im praktischen Heizbetrieb mit instationären Betriebszuständen (wie Anbrenn- und Ausbrandphasen, während Regelvorgängen) sollen die Grenzwerte merklich unterschritten werden. Außerdem wird eine kompakte und leichte Konstruktion des Kessels

angestrebt, wobei auch ein modularer Aufbau (Trennung des Kessels beim Transport z.B. in zwei Teile) denkbar ist. Gemäß dem Stand der Technik soll eine räumliche Trennung des Feuerraums in eine Primär- und Sekundärkammer realisiert werden. Dabei dient die Primärkammer als Brennstoffreservoir in welcher jeweils nur die unterste Brennstoffschicht vergast wird. Durch eine gleichmäßige Primärluftverteilung über den gesamten Querschnitt der Vergasungszone und über eine Primärluftzuführung durch einen Rost soll eine möglichst gleichmäßige Temperaturverteilung erreicht werden. Diese soll zudem durch eine Wärmedämmung (z.B. durch Schamotte material) im Bereich der Entgasungszone unterstützt werden. Aufgrund des Einbaus eines Rost und den damit verbundenen Vorteilen hinsichtlich Primärluftverteilung, Holzkohleausbrand und Entaschung sind die entgasten Brenngase seitlich abzuführen. Die Sekundärbrennkammer, als Ausbrandzone für die brennbaren Gasbestandteile, ist verantwortlich für geringe Emissionen von Produkten unvollständiger Verbrennung. Sie soll ein besonders geringes Volumen aufweisen und sehr schnell ihre Arbeitstemperatur erreichen. Dabei soll die Zugabe der vorgewärmten Sekundärluft mit hohen Geschwindigkeiten erfolgen, so dass die Mischungseffizienz der Brenngase mit der Sekundärluft deutlich erhöht wird. Außerdem soll in der Sekundärbrennkammer eine turbulente Drallströmung erzeugt werden. Diese kann zum einen über die Positionierung der Sekundärluftöffnungen oder durch strömungstechnische Einbauten erreicht werden. Zum anderen besteht die Möglichkeit, die Brenngase selbst beim Übergang von der Primär- in die Sekundärbrennkammer durch strömungstechnische Maßnahmen in Rotation zu versetzen. Zusammenfassend werden durch die Erhöhung der Mischeffizienz in der Sekundärbrennkammer folgende Vorteile gesehen:

- Verbesserung der Ausbrandqualität und Reduzierung der Emissionen von Produkten unvollständiger Verbrennung, vor allem auch im Hinblick auf den Praxisbetrieb
- Reduzierung der „Anspringtemperatur“ (z.B. von 800°C auf 650 °C) bei der die Oxidationskinetik ausreichend schnell abläuft → geringere CO-, VOC- und Staub-Emissionen während der Anbrenn- und Ausbrandphase
- Verbrennung bei geringem Luftüberschuss, auch im Teillastbetrieb, für einen möglichst hohen feuerungstechnischen Wirkungsgrad
- Geringes Volumen und geringe Wärmekapazität der Sekundärverbrennungszone → kompakte Bauweise des Stückholzkessels.

Für eine qualitative Beurteilung der Sekundärbrennkammer (ggf. auch der Primärkammer) müssen die Vorgänge im Feuerraum in der nächsten Entwicklungsphase mittels CFD (Computational Fluid Dynamics) simuliert werden. Nur so lassen sich Strömung, Turbulenz, Verbrennung, Temperaturverteilung, Verweilzeiten und Mischungseffizienz anschaulich visualisieren und eine optimale Konstruktion detektieren.

Zur Durchführung der Simulationen müssen die Volumenströme und die Zusammensetzung der Verbrennungsgase bekannt sein. Die Luftvolumina können aufgrund der Reaktionsgleichung der Holzverbrennung bestimmt werden, diese sind in Tabelle 7-1 beispielhaft berechnet.

Für die weitere Entwicklung des Stückholzkessels ist die in Abbildung 7.1 dargestellte iterative Vorgehensweise geplant.

Tabelle 7-1: Verbrennungskenngrößen zur Strömungssimulation

Parameter	Wert	Einheit
Wärmeleistung	20	kW
Wirkungsgrad	86	%
Feuerungsleistung	23,3	kW
Heizwert	4,3	kWh/kg
Lambda	1,75	-
Verbrennungsluftbedarf	36,8	m^3/h
Primärluftbedarf (44%)	16,2	m^3/h
Sekundärluftbedarf (56 %)	20,6	m^3/h
Abgasvolumenstrom	40,7	m^3/h

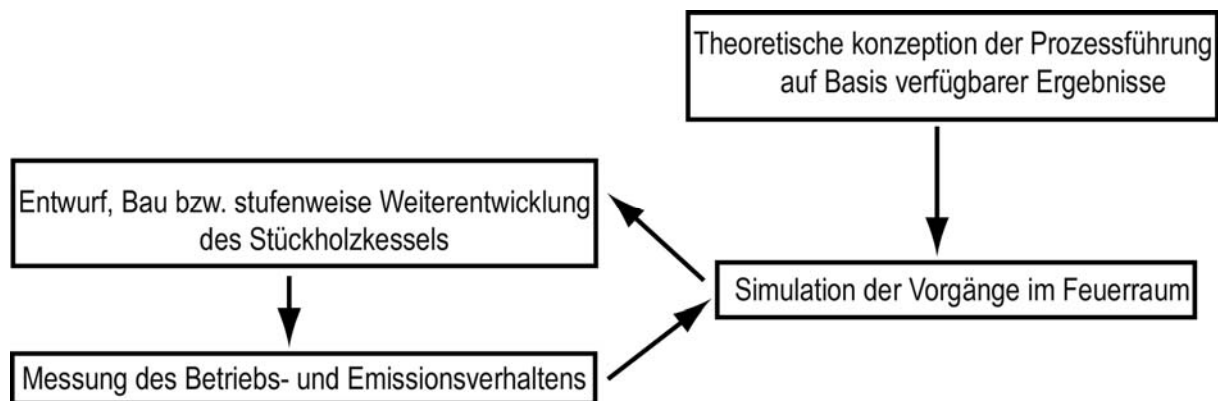


Abbildung 7.1: Vorgehensweise bei der Entwicklung eines emissionsarmen Stückholzkessels

Zusammengefasst soll der neu entwickelte Stückholzkessel in folgenden Punkten, gegenüber den besten marktverfügbaren Kesseln erheblich verbessert werden:

- abgestimmtes und insgesamt optimiertes marktfähiges Gesamtkonzept bestehend aus Kessel, Regelung, Sensorik und Katalysator
- Reduzierung der Hohlbrandgefahr durch eine homogene Temperatur- und Sauerstoffverteilung in der Entgasungszone (weniger Emissionsspitzen)
- Erhöhung der Mischungsgüte in der Nachbrennkammer durch optimierte Strömungsbedingungen (geringere Emissionen im Dauerbetrieb und bei Teillast)
- schnelle Aufheizzeiten der Nachbrennkammer durch Verwendung von Bauteilen mit geringer Masse (kürzere Emissionsspitzen beim Kesselstart)
- Minderung des Luftüberschusses durch die angestrebten Verbrennungsverbesserungen (höherer feuerungstechnischer Wirkungsgrad).

Hieraus ergeben sich für das geplante Vorhaben zur Entwicklung eines optimierten Stückholzkessels für das IFK folgende Arbeitspakete (AP):

Konzeptentwicklung eines optimierten Stückholzkessels

Aufbauend auf den Ergebnissen der Vorstudie wird das Konzept eines verbrennungstechnisch und wirkungsgradmäßig optimierten Stückholzkessels in enger Absprache mit den beteiligten Projektpartnern in eine Detailplanung umgesetzt. Für die Detailplanung sind u.a. folgende Punkte fest zu legen bzw. zu prüfen: Nennwärmeleistung und Modulationsbereich, Einbindung eines Pufferspeichers in die Kesselregelung, Dimensionierung und Bauart des Wärmetauschers, Dimensionierung und Position des Oxidationskatalysators sowie Positionen der Sensor- und Regelsysteme, Auslegung der Primärverbrennungszone, der Verbrennungsluftzuführung und der Nachverbrennungszone.

Für die Detailkonstruktionen im Bereich der Sekundärzone (vollständige Umsetzung oxidierbarer Brennstoffbestandteile) soll, soweit möglich und sinnvoll, die Verbrennungssimulation eingesetzt werden.

Umsetzung des Konzepts zur Verbrennungsoptimierung

Im Rahmen dieses AP wird ein Musterkessel mit allen notwendigen Komponenten und Bauteilen in Zusammenarbeit mit dem Industriepartner aufgebaut. Hierbei übernimmt der Industriepartner die Detailkonstruktion und den Aufbau des Musterkessels. Dieser Musterkessel wird anhand von Verbrennungsversuchen im Technikum des IFK modifiziert und soweit verbessert, dass die angestrebten sehr niedrigen Emissionen an CO, HC und Staub erreicht werden. Der Musterfeuerraum soll den im Projekt beteiligten Partnern für eigene Entwicklungen im Projekt und zur Umsetzung der Erkenntnisse in ein marktfähiges Produkt zur Verfügung gestellt werden.

Optimierung des Konzepts zur Verbrennungsoptimierung

In diesem Arbeitspaket werden Detailoptimierungen der Konstruktion (z.B. Verbrennungsluftführung) und der Regelung des Verbrennungsprozesses durchgeführt. Die Funktionsfähigkeit des Heizkessels, auch unter praxisnahen Betriebsbedingungen, wird nachgewiesen. Bei den Verbrennungsversuchen wird der Heizkessel sowohl unter stationären Bedingungen (entsprechend den Betriebsbedingungen bei der Typenprüfung) als auch unter praxisnahen Bedingungen betrieben. Bei den praxisnahen Bedingungen wird der wechselnde Wärmebedarf beim Heizbetrieb durch Heizlastkurven simuliert. Hiermit können das Regelverhalten und das Teillastverhalten des Heizkessels untersucht und verbessert werden.

In diesen Musterkessel wird auch der Oxidationskatalysator integriert. Die Wirksamkeit des Oxidationskatalysators wird anhand von Verbrennungsversuchen untersucht. Es erfolgt außerdem eine Bewertung der möglichen Umsetzung in ein marktfähiges Produkt, wobei vor allem die Langzeitstabilität des Katalysators betrachtet wird.

Endbericht für diese Projektphase I

Aufarbeitung und Zusammenstellung der wesentlichen Ergebnisse und Erkenntnisse dieser Projektphase. Anfertigung von Dokumentationen und Veröffentlichungen. Vorbereitung der Projektphase II für den Nachweis der Marktfähigkeit des optimierten Stückholzkessels.

8 Literatur AP 1 – 3

BAFA (2009):

Liste der förderfähigen Stückholzkessel. Bundesamts für Wirtschaft und Ausfuhrkontrolle, Eschborn.

G. Baumbach (1994):

Luftreinhaltung. 3. Auflage. Springer Verlag, Heidelberg

FNR - Fachagentur Nachwachsende Rohstoffe (2007):

Marktübersicht Scheitholzvergaserkessel und Scheitholz-Pellet-Kombinationskessel. Im Auftrag des Bundesministeriums für Ernährung, Landwirtschaft und Verbraucherschutz. Fachagentur Nachwachsende Rohstoffe, Gülzow.

H. Hartmann, V. Schmid, H. Link (2003):

Untersuchungen zum Feinstaubausstoß von Holzcentralheizungsanlagen kleiner Leistung. Partikelgrößenverteilung, Gesamtstaub und weitere Kenngrößen. Forschungsvorhaben im Auftrag des Umweltbundesamt im Unterauftrag durch das Institut für Verfahrenstechnik und Dampfkesselwesen der Universität Stuttgart. Technologie- und Förderzentrum, Straubing.

H. Hartmann, P. Roßmann, P. Turowski (2006):

Staubemissionen aus Holzfeuerungen – Einflussfaktoren und Bestimmungsmethoden. Forschungsvorhaben im Auftrag des Umweltbundesamt im Unterauftrag durch das Institut für Verfahrenstechnik und Dampfkesselwesen der Universität Stuttgart. Technologie- und Förderzentrum, Straubing.

F. Joos (2006):

Technische Verbrennung. Verbrennungstechnik, Verbrennungsmodellierung, Emissionen. Springer Verlag, Heidelberg.

M. Kaltschmitt, H. Hartmann (2001):

Energie aus Biomasse. Grundlagen, Techniken und Verfahren. Springer Verlag, Heidelberg.

T. Nussbaumer (2003):

Grundlagen der Aerosolbildung in Holzfeuerungen. Projekt im Auftrag des Schweizer Bundesamtes für Energie und des Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft. Verenum, Zürich.

M. Struschka, O. Emich, G. Baumbach (2004):

Untersuchung an einem Stückholzkessel mit und ohne Wärmespeicher zur Ermittlung optimaler Speichergrößen. Forschungsvorhaben der LUBW. Universität Stuttgart, Institut für Verfahrenstechnik und Dampfkesselwesen, Stuttgart.

U. Zuberbühler (2002):

Maßnahmen zur feuerungsseitigen Emissionsminderung bei der Holzverbrennung in gewerblichen Feuerungsanlagen. Universität Stuttgart, Institut für Verfahrenstechnik und Dampfkesselwesen, Stuttgart.

Arbeitspakete 4 – 8



Institut für Sensorik und Informationssysteme
Hochschule Karlsruhe – Technik und Wirtschaft
Moltkestr. 30, D-76133 Karlsruhe

Prof. Dr. Heinz Kohler
Dipl.-Ing. (FH) Dominik Glesing

März 2010



Inhaltsverzeichnis der Arbeitspakete AP4 bis AP8

9	Sensorkonzepte zur potenziellen Anwendung in Holzfeuerungsabgasen.....	42
9.1	Sensoren zur Bestimmung der Restsauerstoffkonzentration (RSC).....	43
9.2	Sensoren zur Bestimmung des CO/HC-Gehaltes im Abgas.....	45
10	Detaillierte Untersuchungen zur Eignung der Gassensoren	46
11	Recherche nach verfügbaren Abgaskatalysatoren	53
12	Verbrennungsprozess-Monitor.....	54
13	Zusammenfassung des Standes der AP4 - 8	56
14	Literatur AP 4 - 8	58

9 Sensorkonzepte zur potenziellen Anwendung in Holzfeuerungsabgasen

Wie in den Vorarbeiten an verfügbaren Holzverbrennungsanlagen bereits mehrfach und widerspruchsfrei gezeigt werden konnte, spielt die sorgfältige Regelung der Zuluftströme, getrennt nach Primär- und Sekundärluftstrom in jeder Phase der Verbrennung eine Schlüsselrolle, um effiziente und schadgasarme Verbrennung zu gewährleisten. Die Experimente haben die wichtige Erkenntnis geliefert, dass nur bei Kenntnis der Verbrennungstemperatur, der Restsauerstoffkonzentration im Abgas (RSC) und des CO/HC-Gehalts (unverbrannte Gaskomponenten, wie CO, polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK) etc. /Mar99/), die möglichst vollständige Nachoxidation von Brenngasen in der Sekundärbrennkammer gelingen kann. Hierzu wurde ein relativ allgemein gültiger und an verschiedene Anlagentypen adaptierbarer Regelungsalgorithmus entwickelt /Koh06/, der den Kern der Verbrennungsregelung des neuen Heizkesselkonzeptes darstellen wird, damit die in Kap. 6 formulierten Entwicklungsschritte voll zur Wirkung kommen können. Dieser ISIS-Regelungsalgorithmus basiert auf Eingangssignalen von der Anwendung angepassten, zuverlässigen Hochtemperatur-Gassensoren. Da die Umgebungsbedingungen einerseits außerordentlich harsch sind (hohe Temperaturen bis ca. 1000°C, variierende Zusammensetzung des Abgases im Verlauf eines Abbrandes mit teilweise aggressiven Gaskomponenten und hohe Konzentrationen an Feinstaub und Ruß), andererseits der Kostenrahmen für die Sensorik und Anlagenregelung zukünftiger, nach dem Konzept „Holzverbrennung 2015“ gebauter Heizkessel sehr eingeschränkt sein wird, ist eine sorgfältige Auswahl der in Frage kommenden Sensorkonzepte geboten. Vor diesem Hintergrund orientierte sich die Sensor-Recherche an drei Kriterien:

- 1) Einsetzbarkeit im Abgas von Stückholzverbrennungsprozessen sollte gegeben sein, d.h. Hochtemperaturstabilität bis zu Temperaturen von mind. 300°C und Signalstabilität in Umgebungen hoher Staub- und Rußpartikelkonzentrationen sollte erwartet werden können.
- 2) Das Messverfahren muss preiswert sein und darf nur wenig Service-Aufwand erfordern. Mit allen Partnern angestrebtes Projektziel: Sensorik für Restsauerstoffkonzentration (RSC) und CO/HC-Gehalt im Abgas incl. Signalvorverarbeitung zu einem Preis von unter 100€ (bei Stückzahlen >10000/Jahr), die Standzeit der Sensoren sollte über mehrere Heizperioden garantiert werden können.
- 3) Es finden nur solche Sensoren Berücksichtigung, deren Verfügbarkeit am Markt gegeben ist. Ausnahmen: Neuer Ein-Chip-Sauerstoffsensoren der Dittrich Elektronik GmbH und RSC-CO/HC-Kombisensoren des IRS (geförderter Projektpartner, siehe unten).

Entsprechend Kriterium 1) kommen photometrische und spektroskopische Messverfahren nicht in Frage, da deren Anfälligkeit (z.B. Verschmutzung von optischen Fenstern und Linsen) unter den gegebenen Umgebungsbedingungen zu hoch ist und die zu erwartenden Stückkosten kaum Kriterium 2) gerecht werden dürften. Auch die grundsätzlich in Betracht kommende Verwendung von Wärmetönungssensoren zur Messung von oxidierbaren Gaskomponenten (CO/HC) wurde letztlich ausgeschlossen, da die untere Sensitivitätsgrenze der auf dem Markt erhältlichen Sensorelemente (>1000ppm) für die zu messenden Schadgaskonzentrationen (50 ppm bis ca. 3000ppm) deutlich zu hoch liegt. Somit konnte die Recher-

che auf resistive und elektrochemische Gassensoren beschränkt werden, die teilweise bereits in Verbrennungsprozessen wie Gasthermen, Blockheizkraftwerken oder zur Regelung von Verbrennungsmotoren Anwendung finden.

9.1 Sensoren zur Bestimmung der Restsauerstoffkonzentration (RSC)

Für die kontinuierliche Bestimmung der RSC in Stückholz-Verbrennungsabgasen wird nach dem Stand der Technik meist die klassische Nernst-Konzentrationszelle eingesetzt – mit eher minderem Erfolg /Pad02/. Diese Sonde weist eine steile Signal-Kennlinie um $\lambda=1$ auf (Abbildung 9.1), jedoch ist die Sensitivität im Feuerungsprozess relevanten Bereich ($1,4 \leq \lambda \leq 2,4$) /Nus89/, also oberhalb $\lambda=1,1$, d.h. bei $6\% \leq \text{RSC} \leq 12,6\%$, gering. Folglich wurde bereits in den Vorarbeiten eine auf dem Markt verfügbare, dynamische RSC-Sonde (Dittrich Elektronik GmbH) mit Erfolg eingesetzt /Koh09/, die jedoch dem Kriterium 2) wegen der relativ hohen Stückkosten (ca. 250€) nicht gerecht wird. Dieser Sauerstoffsensor ist eine Kombination einer Nernst-Konzentrationszelle mit einer elektrochemischen Pumpzelle auf Festelektrolyt (ZrO_2) – Basis (Abbildung 9.2).

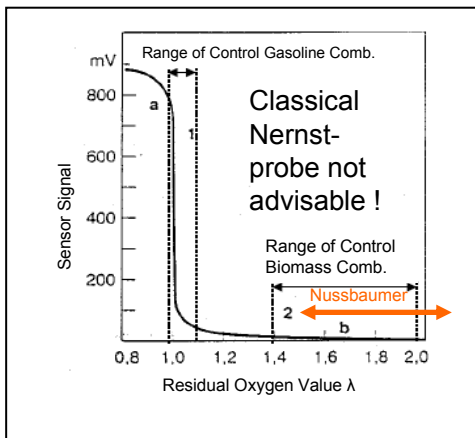


Abbildung 9.1:

Signalverlauf einer klassischen Nernst-Konzentrationszelle (Sprungsonde) /Pad02/ mit eingezeichnetem Bereich der RSC, wie er von Nussbaumer /Nus89/ für die Stückholzverbrennung vorgeschlagen wurde

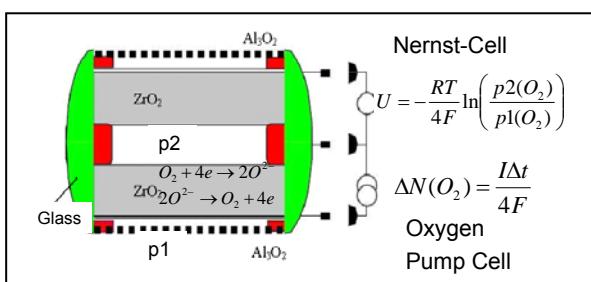


Abbildung 9.2:

Dynamische Sauerstoff-Sonde

Durch zyklisches elektrochemisches Pumpen des Sauerstoffes ($I=\text{const.}$) zwischen zwei festgelegten Spannungen U_{\min} und U_{\max} , die über die Nernst-Zelle abgegriffen werden, ergibt sich eine Periodendauer $2\Delta t$, die proportional des zu messenden Sauerstoffpartialdruckes p_1 ist.

Aus der Recherche resultierten letztlich folgende Alternativen zur kontinuierlichen Bestimmung der RSC:

- Dynamischer Sauerstoffsensor in einer neuen, preiswerteren Technologie (Chip-Version), jedoch nach gleichem Funktionsprinzip wie die bewährte RSC-Sonde der Dittrich Elektronik GmbH, siehe Abbildung 9.3. Diese Sonde befindet sich im Endstadium

der Entwicklung und wurde von der Dittrich Elektronik GmbH in mehreren Exemplaren incl. Vorsignalverarbeitung zu Testzwecken kostenlos zur Verfügung gestellt.

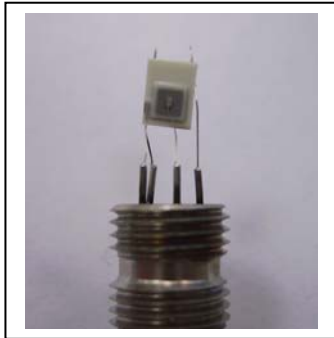


Abbildung 9.3:

Dynamischer Sauerstoffsensord MF 420 als Chip-Version (Dittrich Elektronik GmbH, Baden-Baden)

- Breitband-Lambdasonde (Bosch LSU 4.9, Abbildung 9.4), die bereits zur Lambda-Regelung von Verbrennungsmotoren auch im Bereich $\lambda > 1,4$ (Dieselmotoren) erfolgreich im Einsatz ist. Es handelt sich ebenfalls um die Kombination einer Nernstschen Konzentrationszelle mit einer elektrochemischen Pumpzelle, jedoch wird ein Sauerstoff-Diffusionsstrom gepumpt. Grundsätzlich sind Diffusionsstrecken anfällig gegen Verstopfung durch Staubpartikel, jedoch rechtfertigt der vielfache erfolgreiche Einsatz dieses Sensortyps in Verbrennungsmotoren die Aufnahme in die Testkampagne.

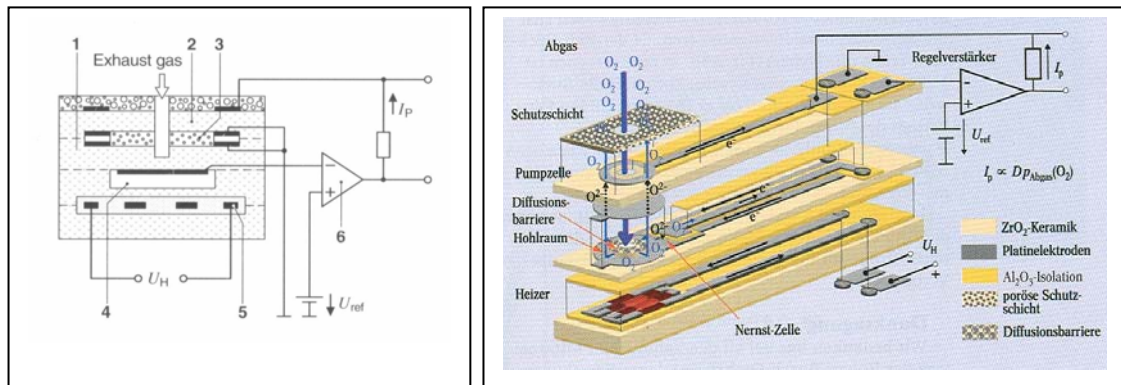


Abbildung 9.4: Bosch LSU 4.1 Hochtemperatur-Sauerstoffsensord /Bau06/

Durch die Bezugsspannung U_{ref} (linkes Bild) kann der Arbeitspunkt (Lambda-Wert) des Sensors festgelegt werden. Der Pumpstrom I_P ist proportional zur Sauerstoff-Partialdruckdifferenz im Hohlraum (3) und im Abgas. Der Sauerstoffpartialdruck im Hohlraum wiederum wird über die Nernstzelle relativ zum Sauerstoffpartialdruck in Umgebungsluft (4) gemessen. Nachteil: die Sonde muss mit Umgebungsluft über einen kleinen Kanal (4) in Kontakt stehen. Aufbau des Sensors als Keramik-Schichtsystem (rechts).

Die Bosch GmbH bietet diesen Sensortyp mittlerweile auch für den Einsatz in Gas-thermen an. Über das Verhalten in Abgasen von Stückholzverbrennungsprozessen bestehen bisher keine Erfahrungen. Die LSU 4.9 wurde im Rahmen der Projektstudie zu Testzwecken kostenlos bereitgestellt.

- Die Kombisonde KS1-D (Lamtec GmbH) vereint eine klassische Nernst-Zelle zur RSC-Messung mit einer Mischpotenzial-Zelle zur Messung des CO/HC-Gehaltes. Diese Sonde ist erfolgreich zur Lambda-Regelung in Blockheizkraftwerken im Einsatz und soll in dieser

Vorstudie zu Vergleichen mit den beiden oben genannten Sensortypen herangezogen werden.

- Ein-Chip-Kombisonde des IRS, amperometrische Messung der RSC und Bestimmung des CO/HC-Gehaltes mit einem Mischpotenzial-Sensorprinzip (Neuentwicklung, siehe AP9). Dieser Sensor konnte seitens des Projektpartners IRS im Berichtszeitraum nicht mehr zu Tests zur Verfügung gestellt werden.

9.2 Sensoren zur Bestimmung des CO/HC-Gehaltes im Abgas

Einführend muss angemerkt werden, dass das Abgas von Stückholzfeuerungsprozessen, abhängig von der Verbrennungsqualität neben O₂, CO, CO₂ und Wasserdampf noch bis zu 42 verschiedene Gaskomponenten enthalten kann /Mar99/. Es ist daher aussichtslos, eine komplette, kontinuierliche Prozess-Analyse mit vertretbarem Aufwand realisieren zu wollen. Benötigt wird CO/HC-Sensorik, die die drei Kriterien (siehe oben Kap. 9) erfüllt und ein Signal liefert, das den (unverbrannten) CO/HC-Gehalt im Abgas zuverlässig repräsentiert. Die Recherchen ergaben hierzu keine wirklich neuen Erkenntnisse. Zu Testzwecken verfügbar sind deshalb Sensoren, die zwar schon aus den Vorarbeiten bekannt, jedoch noch nicht genügend gut charakterisiert waren:

- Der CarboSen 1000 Mischpotenzialsensor (ESCUBE GmbH), der schon in den Vorarbeiten Verwendung fand. Dieser Sensor ist nun besser temperaturgeregt und mit stabileren Elektrodenkontakten versehen. Beides sollte sich positiv auf die Stabilität auswirken.
- Klassische TGS 823 – Gassensoren, die insbesondere zur Bestimmung organischer Gaskomponenten eingesetzt werden. Die Eignung dieses Sensortyps (Figaro, Inc. Japan) wird kritisch gesehen, da hohe Querempfindlichkeiten zu Wasserdampf und zur Sauerstoffkonzentration bekannt sind.
- Die Kombisonde KS1-D (Lamtec GmbH), die über eine dritte Elektrode ein Mischpotenzial liefert, das zur Bestimmung des CO/HC-Gehaltes in Blockheizkraftwerken genutzt wird (sog. Emissionskantenregelung).
- Ein-Chip-Kombisonde des IRS (AP9 der Vorstudie), die die amperometrische Bestimmung der RSC und die Bestimmung des CO/HC-Gehaltes analog des CarboSen 1000 vorsieht.

Aus der Literatur ist bekannt, dass sowohl am Kurt-Schwabe-Institut in Meinsberg (Prof. Dr. Guth, Dr. Zosel) /Zos04/ als auch am Institut für Funktionskeramik der Universität Bayreuth (Prof. Dr. Moos) /Sah08/ Forschungsprojekte in der jüngeren Vergangenheit durchgeführt wurden, die die Herstellung und Untersuchung neuer Elektrodenmaterialien zur Bestimmung von NO_x und CO/HC nach dem Mischpotential-Messprinzip zum Ziel hatten/haben. Zu beiden Instituten bestehen sehr gute Kontakte.

Sensorchips, die in der laufenden Testkampagne mit einbezogen werden könnten, standen zur Zeit der Berichterstellung (noch) nicht zur Verfügung. Weiterhin sind in der Fachliteratur Untersuchungen zur Sensitivität und Langzeitstabilität von Mischpotenzial-Gassensoren zu finden, deren Elektroden aus Metalloxiden bestehen, die mit Au- oder Pt-Kontakten gemessen werden /Bro02/.

10 Detaillierte Untersuchungen zur Eignung der Gassensoren

Zur experimentellen Untersuchung der Sensoreigenschaften der oben beschriebenen Sensoren wurden Modell-Gasgemische in einer Sensor-Testzelle beaufschlagt und simultan die Sensorsignale mit einer automatisierten Gassensor-Testanlage (Abbildung 10.1) registriert. Hierzu musste eine beheizbare Sensor-Testzelle (Abbildung 10.1, kleines Bild) umgebaut werden, um simultan die verschiedenen oben angesprochenen Sensortypen den Tests unterwerfen zu können.

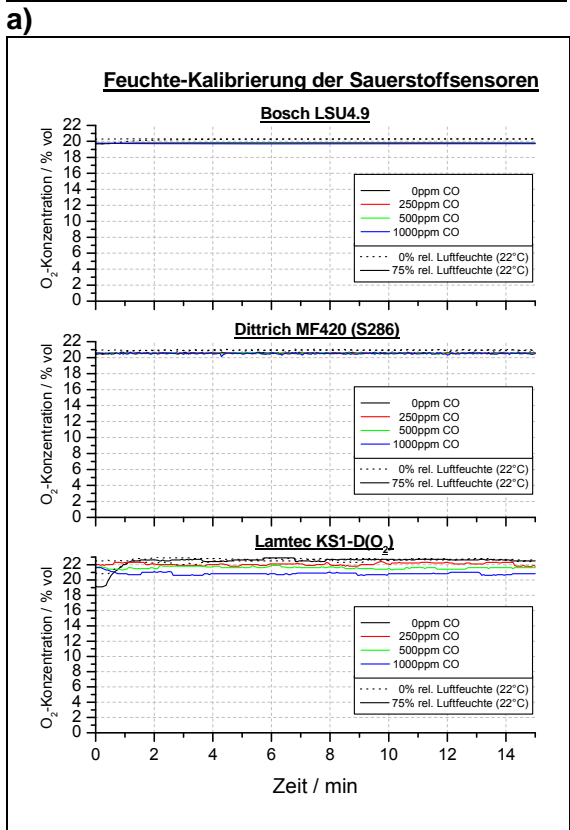
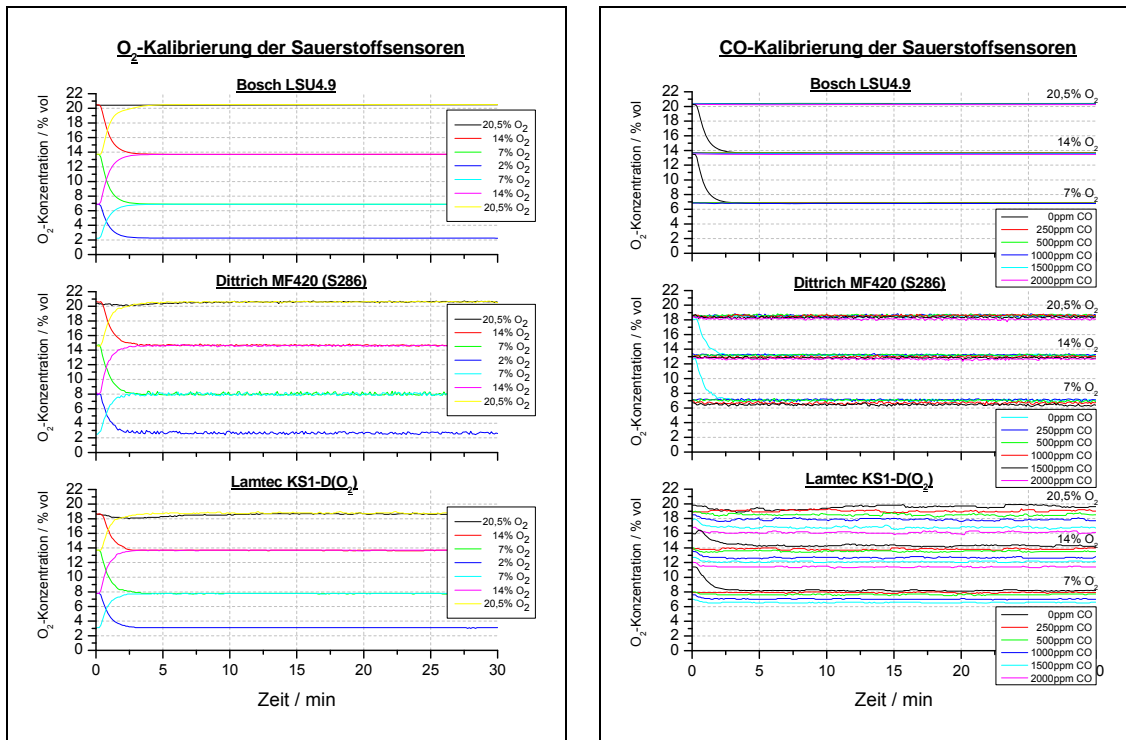


Abbildung 10.1:
Gassensor-Testanlage mit heizbarer Sensor-Testzelle (kleines Bild)

Die Sauerstoffsensoren und die CO/HC-Sensoren wurden in getrennten Messkampagnen hinsichtlich folgender Eigenschaften untersucht:

- Sensitivität und Signalreproduzierbarkeit der Sauerstoffsensoren bei Beaufschlagung von unterschiedlichen Sauerstoffkonzentrationen in Luft/N₂-Gemischen (Abbildung 10.2a).
- Einfluss der CO-Konzentration (Abbildung 10.2b) und der relativen Luftfeuchte (rF) (Abbildung 10.2c) auf das Sensorsignal der Sauerstoffsensoren.
- Abhängigkeit der CO/HC-Sensorsignale von der CO-Konzentration und der Sauerstoffkonzentration (Abbildung 10.3a) bzw. von der CO-Konzentration und der rF (Abbildung 10.3b).
- Sensitivität der CO/HC-Sensoren gegenüber Wasserstoff und Toluol (Abbildung 10.4).
- Untersuchungen zur Regenerierbarkeit der Sensitivität der CarboSen 1000 Mischpotenzialsensoren (Abbildung 10.5 und **Fehler! Verweisquelle konnte nicht gefunden werden.**).

Die Sauerstoffsensoren zeigen alle exzellente Signalstabilität und Reproduzierbarkeit (Abbildung 10.2a). Jedoch fällt auf, dass die Lamtec KS1-D – Sonde bei hohen Sauerstoffkonzentrationen zu niedrige und bei tiefen zu hohe Konzentrationswerte liefert. Dies kann möglicherweise durch Korrektur der Signal-Verstärkerelektronik verbessert werden. Die Signale der Bosch- und der Dittrich-Sonde sind nahezu unempfindlich gegen CO und rF (Abbildung 10.2 b/c). Der Sauerstoffsensor von Lamtec zeigt hingegen deutliche Abhängigkeiten.



b)

Abbildung 10.2:

- a) Sensitivität der Sauerstoffsensoren Signalabhängigkeit von verschiedenen Sauerstoffkonzentrationen, Stabilität und Reproduzierbarkeit.
- b) Abhängigkeit der Signale von der CO-Konzentration und vom RSG.
- c) Abhängigkeit der Signale von der relativen Feuchte (rF) und von der CO-Konzentration.

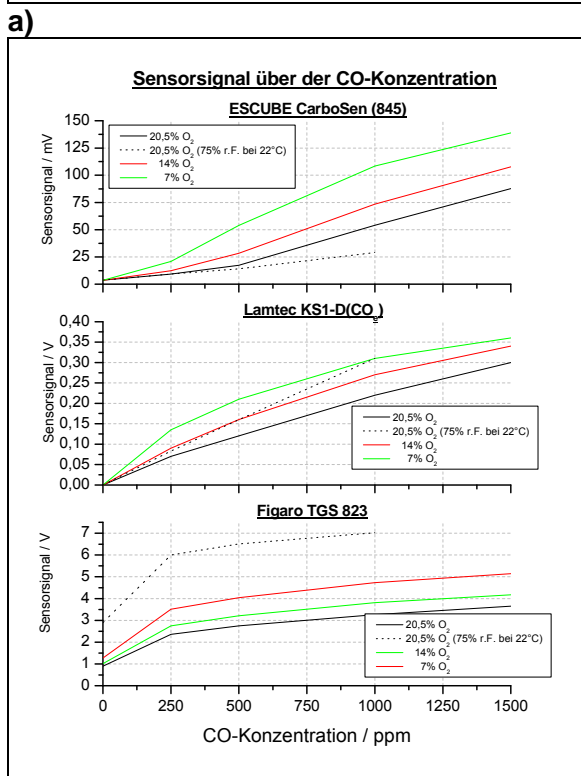
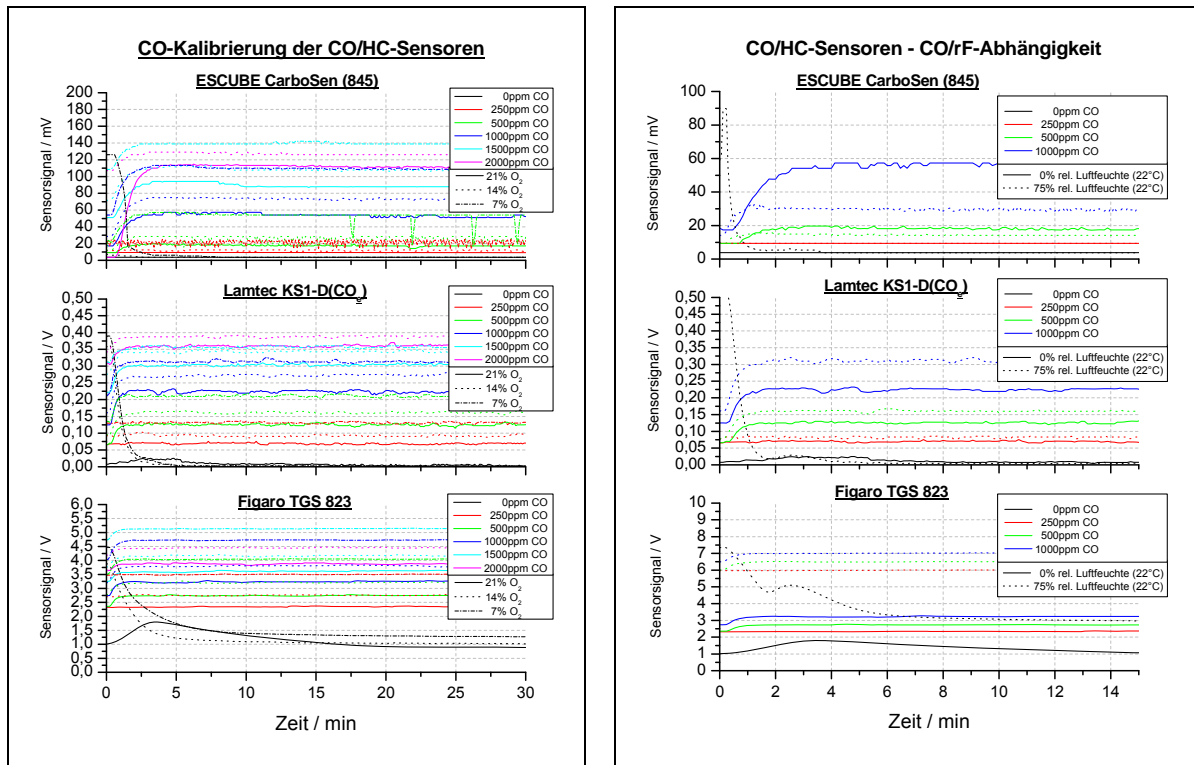


Abbildung 10.3:

- a) Sensorsignale in Abhängigkeit von der CO-Konzentration bei verschiedenen Sauerstoffkonzentrationen (0%rF).
- b) Sensorsignale in Abhängigkeit von der CO-Konzentration bei trockenem Gasgemisch und bei 75%rF.
- c) Auftragung der stabilisierten Sensorsignale aus den Abbildung 10.3a/b über der CO-Konzentration bei verschiedenen Sauerstoffkonzentrationen und bei 20,5%O₂/75%rF.

Aus diesen Testergebnissen ist zu schließen, dass sowohl die Bosch-Sonde als auch die neue Chip-Version MF420 von Dittrich Elektronik sehr gute Eignung für kontinuierliche Messungen bei Sauerstoffkonzentrationen >2% auch bei gleichzeitiger Anwesenheit von CO und Wasserdampf aufweisen. Hinsichtlich der Abhängigkeit des Signals der CO/HC-Sensoren von der CO-Konzentration bei unterschiedlichen Sauerstoffkonzentration ergab sich das erwartete Verhalten (Abbildung 10.3a): Mit fallender Sauerstoffkonzentration steigt die EMK bzw. der Leitwert (TGS 823). Dies ist im Hinblick auf den späteren Einsatz im Verbren-

nungsprozess nicht weiter kritisch, da die RSC simultan gemessen wird (siehe oben), dieser Einfluss also numerisch kompensiert werden kann. Die Abhängigkeit der Sensorsignale von der rF ist nicht einheitlich. Wie erwartet, sind die Leitwertkurven des TGS 823 bei 75%rF bei allen CO-Konzentrationen erhöht. Die EMK der beiden Mischpotenzialsensoren hingegen ist bei 0ppm CO unabhängig vom Wasserpartialdruck, jedoch zeigen sich bei steigender CO-Konzentration unterschiedliche Trends. Offensichtlich ist die Sensitivität des Lamtec KS1-D – Sensors auf CO bei 75%rF erhöht, während die Signale des ESCUBE CarboSen 1000 deutlich zurückgehen. Dieser Unterschied im Verhalten der beiden Mischpotenzial-Sensoren ist ungewöhnlich, da ähnliche Elektrodenmaterialien jeweils auf Zirkoniumoxid-Festelektrolyt zum Einsatz kommen. Andererseits zeigen die Signale beider Sensoren bei CO-Konzentrationen ≤ 500 ppm eher geringe Abhängigkeiten vom Wasserdampfgehalt (Abbildung 10.3c). Dies ist aber der Konzentrationsbereich, der in der Feuerungsprozessanwendung interessant ist, wobei davon ausgegangen wird, dass die Verbrennung von hoher Qualität ist. In diesem niedrigen CO-Konzentrationsbereich ist das Signal des TGS-Sensors ebenfalls stark vom Wasserdampfgehalt abhängig (Abbildung 10.3c), was die Nachteile dieses Sensortyps gegenüber den beiden anderen offenbart.

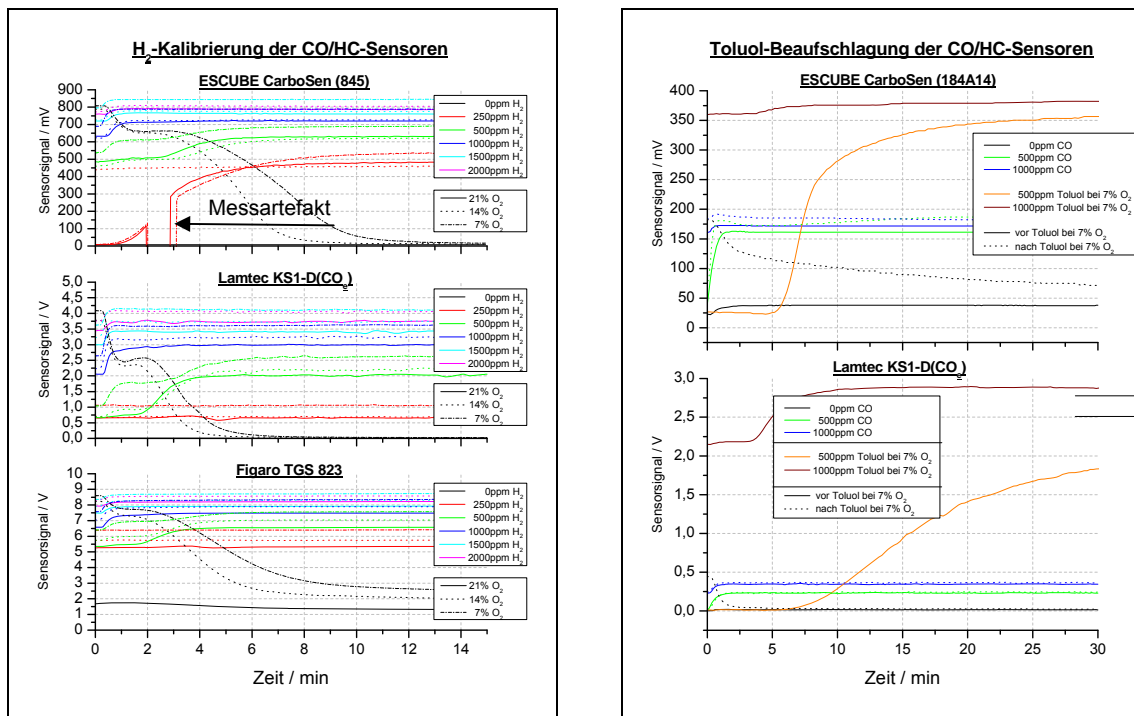


Abbildung 10.4: Sensitivität der CO/HC-Sensoren zu

links: Wasserstoff bei verschiedenen Sauerstoffkonzentrationen

rechts: CO vor und nach Beaufschlagung mit Toluol

Um die unterschiedlichen Sensitivitäten gegenüber verschiedenen Gaskomponenten aufzuzeigen, wurden beispielhaft Messungen unter Beaufschlagung verschiedener Wasserstoffkonzentrationen durchgeführt. Das Ergebnis zeigt Abbildung 10.4. Wie erwartet, zeigen die Experimente eine erheblich höhere Sensitivität der Mischpotenzialsensoren verglichen mit den Werten, die bei Beaufschlagung mit CO (Abbildung 10.3a) gemessen wurden. Es ist bekannt, dass die Sensitivität zu Wasserstoff bei diesem Sensortyp vergleichsweise am höchsten ist. Die Sensitivitäten zu allen anderen Gaskomponenten liegen tiefer, können je-

doch auch vergleichsweise hoch, insbesondere höher als die gegenüber CO sein, wie das Beispiel der Toluol-Messungen (Abbildung 10.4b) zeigt. Toluol wurde als Vertreter der zyklischen Kohlenwasserstoffe im Holzfeuerungs-Abgas ausgewählt /Mar99/. Die Daten in Abbildung 10.4b repräsentieren auch die Sensorsignale bei Beaufschlagung mit CO vor und nach der Beaufschlagung mit 500ppm bzw. 1000ppm Toluol. Beide Mischpotenzialsensoren zeigen keine wesentlichen Sensitivitätsänderungen.

Die Ergebnisse bestätigen die Erfahrung, dass das Signal dieses Sensortyps von mehreren Gaskomponenten gleichzeitig bestimmt wird (Mischpotenzialverhalten). Dies bedeutet, dass im Hinblick auf den Einsatz im Feuerungsprozess nur ein CO-äquivalentes Signal (bei Kalibrierung in CO/Luft-Gemischen) erwartet werden kann, dessen Sensitivität sich mit der Zusammensetzung des Abgases ändert.

Die in Vorprojekten immer wieder beobachteten, schlecht reproduzierbaren Sensitivitätsänderungen des CarboSen 1000 – Mischpotentialsensors nach dem Einsatz im Abgas von Holzfeuerungen waren Anlass für weitergehende Untersuchungen zur Signalbeeinflussung durch bestimmte, bisher eher unbekannte Gaskomponenten. Toluol, Essigsäure, Isopropanol und Benzaldehyd wurden als Modellgase herangezogen. Hierbei war die Frage zu klären, ob ggfls. bei der vorliegenden Betriebstemperatur (ca. 640°C) irreversible Oberflächenprozesse an der Mischpotenzialelektrode ablaufen, die die Sensitivität beeinträchtigen (z.B. irreversible Besetzung von Reaktionsstellen durch Adsorption). In diesem Fall wurde erwartet, dass eine kurzzeitige Erhöhung der Sensortemperatur zu einer Desorption oder/und Umsetzung dieser Moleküle mit dem Umgebungssauerstoff führen könnte, d.h. die Sensitivitätseigenschaften des Sensors sollten sich wieder herstellen lassen (Regenerationszyklus).

Mehrere Kalibrationsexperimente (synth. Luft, 250ppm CO, 500ppm CO, 1000ppm CO, synth. Luft) bei zwischenzeitlicher Begasung mit oben genannten Modellgasen (500ppm und 1000ppm, je eine Stunde lang) und nachfolgende Anwendung eines Regenerationszyklus bei definierter Sensortemperatur ergaben schließlich folgendes Ergebnis:

- Regenerationstemperatur: ca. 780°C (gemessen mit Infrarot-Kamera)
- Regenerationszeit: 5 min an Umgebungsluft.

In Abbildung 10.5a) werden die Sensorsignale nach verschiedenen Sensorbehandlungen vorgestellt. Nach Beaufschlagung mit Toluol wird im nachfolgenden Kalibrierexperiment in den meisten Fällen eine Signalerhöhung insbesondere im niedrigen Konzentrationsbereich beobachtet. Diese Änderung kann durch den Regenerationszyklus zurückgeführt werden. Zudem wird bei mehrfacher Toluolbeaufschlagung mit zwischenzeitlichen Regenerationsexperimenten gezeigt, dass durch die Regeneration die Verläufe der Sensorsignale über der CO-Konzentration in einem recht engen „Sensitivitätsband“ stabilisiert werden können.

Das Verhalten verschiedener CarboSen 1000 ist allerdings nicht einheitlich. Wie Abbildung 10.5b) zeigt, wurde bei einem Exemplar ein erheblicher Sensitivitätsabfall nach Begasung mit Toluol gemessen. Interessant in diesem Zusammenhang ist, dass nach der Regeneration eine höhere Sensitivität gemessen wurde als vor der Toluol-Beaufschlagung. In diesem Fall war das Sensorelement nicht vor dem Ersteinsatz einem Regenerationszyklus unterworfen worden. Dieses Ergebnis legt den Schluss nahe, dass (i) diese Art von Mischpotenzialsensoren nur bei definierter Vorbehandlung einigermaßen reproduzierbares Sensor-

verhalten zeigt und (ii) vor dem Ersteininsatz ein Regenerationszyklus zur Definition der Ausgangssensitivität notwendig ist.

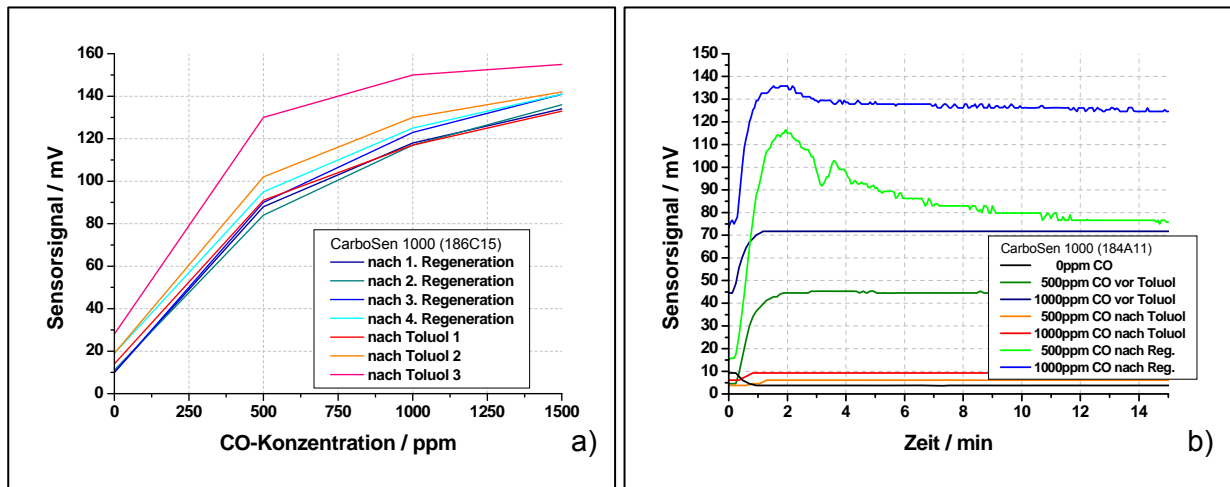


Abbildung 10.5:

- Sensorsignale aus den Standard-Kalibrierexperimenten mit CO nach Gasbeaufschlagung mit Toluoldampf bzw. nach der jeweiligen Sensorregeneration. Die Regeneration wurde jeweils vor der ersten und nach jeder weiteren Gasbeaufschlagung vorgenommen.
- Sensitivitätsverhalten eines CarboSen 1000 Gassensors vor Begasung mit Toluol, nach Begasung und nach der Regeneration.

Die Tauglichkeit des Sensor-Regenerationsverfahrens nach Beaufschlagung mit weiteren Kohlenwasserstoff-Komponenten wird in Abbildung 10.6 vorgestellt. Hierbei vertritt Isopropanol die Gruppe der Alkohole, Essigsäure die der Carbonsäuren und Benzaldehyd die der Aldehyde in chem. Verbindung mit einem zyklischen Molekülrest. Alle drei Molekülgruppen kommen in Abgasen von Holzfeuerungsanlagen vor [Mar99]. Für alle Modellgase konnte experimentell gezeigt werden, dass einem Sensitivitätsverlust nach Beaufschlagung durch das oben vorgestellte Regenerationsverfahren entgegengewirkt werden konnte.

Im Fall der Essigsäure (Abbildung 10.6a) gelang es, die Sensitivität des Sensors nach der Beaufschlagung wieder zu erhöhen. Die Ausgangssensitivität konnte dabei jedoch nicht vollständig erreicht werden. In diesem Fall bleibt zu untersuchen, ob diese durch eine nochmalige Anpassung des Regenerationszyklus in Form einer Änderung der Regenerationsdauer und/oder weitere Erhöhung der Regenerationstemperatur erreichbar ist.

Bei der Beaufschlagung des Sensors mit Isopropanol (Abbildung 10.6b) konnte die Ausgangssensitivität durch Regeneration nach Beaufschlagung mit Isopropanol vollständig wiederhergestellt werden.

Der große Nutzen dieses Verfahrens wird am deutlichsten bei der Beaufschlagung mit Benzaldehyd (Abbildung 10.6c) sichtbar. Selbst nach einem signifikanten Sensitivitätsverlust von etwa 20% nach der Beaufschlagung von Benzaldehyd konnte die Ausgangssensitivität durch Regeneration nahezu vollständig erreicht werden.

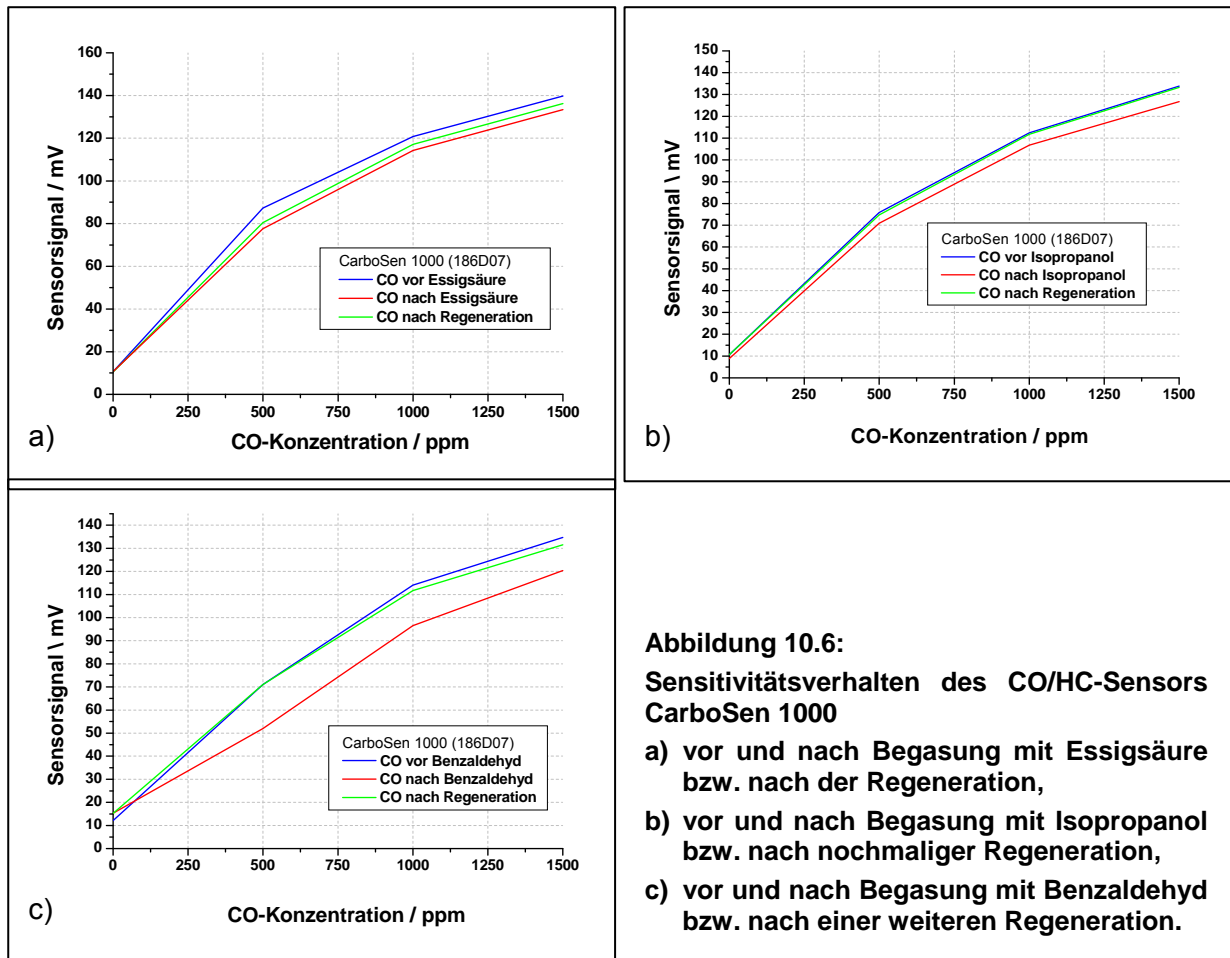


Abbildung 10.6:

Sensitivitätsverhalten des CO/HC-Sensors CarboSen 1000

- a) vor und nach Begasung mit Essigsäure bzw. nach der Regeneration,**
- b) vor und nach Begasung mit Isopropanol bzw. nach nochmaliger Regeneration,**
- c) vor und nach Begasung mit Benzaldehyd bzw. nach einer weiteren Regeneration.**

Fazit zur Studie der Gassensorik: Die Experimente zeigten, dass zwei sehr aussichtsreiche Sensoren zur kontinuierlichen Messung des Restsauerstoffgehaltes (dynamischer Sauerstoffsensoren (Dittrich Elektronik GmbH und Breitband-Lambda-Sonde (Bosch GmbH)) verfügbar sind. Die aus Vorprojekten bekannten und auch in dieser Vorstudie zumindest hinsichtlich der beobachteten Exemplarstreuung bestätigten Instabilitäten des Mischpotenzialsensors zur Bestimmung des CO/HC-Gehaltes können verringert, wenn nicht sogar beseitigt werden, wenn in noch festzulegenden Zeitabständen eine Regenerationsphase durch kurzzeitigen Betrieb bei ca. 800°C an Umgebungsluft durchgeführt wird. Die Integration solcher Regenerationsphasen in den Feldbetrieb einer Feuerungsanlage (z.B. zwischen zwei Anheizphasen) sollte kein größeres Problem darstellen. Die bisherigen Experimente mit der Beaufschlagung der Sensoren mit Modellgasen deuten auf eine universelle Anwendbarkeit des Regenerationszyklus hin. Allerdings ist (i) die Wirksamkeit des Verfahrens nach Beaufschlagung mit Verbrennungsabgasen noch zu bestätigen und (ii) können noch keine hinreichenden Daten zur Langzeitstabilität präsentiert werden.

11 Recherche nach verfügbaren Abgaskatalysatoren

Der Einsatz eines beheizbaren Abgaskatalysators stellt ein wichtiges Element zur Absenkung der Schadgasemissionen dar, die bei hochwertigen Feuerungsanlagen hauptsächlich in der Anbrand- und Ausbrandphase auftreten. In diesen beiden Phasen des Batch-Feuerungsprozesses ist die Verbrennungstemperatur generell zu niedrig ($<800^{\circ}\text{C}$), um mit hinreichender Kinetik auch bei optimaler Einstellung des Brenngas/Luftgemisches in der Sekundärbrennkammer eine zufriedenstellende Nachoxidation zu erreichen. In einem Vorprojekt wurde gezeigt /DBU 07, But09/, dass die Emissionen auf unter 1% abgesenkt werden können (bezogen auf die Werte mit Herstellerregelung bei Aufsummierung der relativen Schadgasemissionen über den gesamten Abbrand), wenn die neuentwickelte ISIS-Regelung (siehe Kap. 9) noch durch einen in die Nachbrennkammer integrierten Oxidationskatalysator ergänzt wird. Aufgrund dieses Sachverhaltes steht für die Projektpartner außer Frage, dass moderne Holzverbrennungsanlagen mit Oxidationskatalysatoren ausgerüstet werden müssen, um die hohen Schadgasemissionen in den beiden oben genannten Phasen zu vermeiden. Allerdings ist hierfür – das haben die Experimente in verschiedenen Anlagen auch ergeben – genügend Volumen für den Katalysator vorzusehen, um genügend niedrige Strömungsgeschwindigkeiten und damit genügend lange Aufenthaltszeiten für eine möglichst vollständige Nachverbrennung zu gewährleisten (siehe Kap. 6.2).

Im angesprochenen Vorprojekt /DBU07/ wurde ein Katalysator in die Geometrie der Nachverbrennungszone eingepasst, dessen katalytisches Material (washcoat) auf einem Metallträger aufgesintert ist. Vorteil dieses Materials: Der als Bandware (ECOCAT Inc., Vihtavuori, Finnland) erhältliche Katalysator hat sich in der Automobil-Abgastechnik bewährt, ist zuschneid- und formbar und kann auf diese Weise in nahezu beliebige (Lamellen-)Form gebracht werden (Abbildung 11.1).



Abbildung 11.1:

Abgas-Oxidationskatalysator integriert in einen Stuckholz-Kachelofeneinsatz /DBU07/ mit elektrischer Katalysatorheizung zur Vorheizung in der Anbrandphase ($T=250^{\circ}\text{C}$). Geometrische Katalysatorfläche: ca. $4,8\text{m}^2$

Über die Querschnittsfläche, den Lamellenabstand und die Länge kann der Kompromiss von Abgaszugverlust und Umsatzeffizienz optimiert werden. Aktuell sind Experimente im Gange /Koh10/, die experimentelle Erkenntnisse liefern sollen, inwieweit die Absenkung der Zuflussströme bzw. die Verringerung der Abgasverwirbelung beim Einsatz eines Oxidationskatalysators sich auch günstig auf die Absenkung der Feinstaubemissionen und insbesondere auf die Reduktion der Organikbelastung der Feinstäube auswirken. Es ist weiterhin zu untersuchen, ob durch günstige Formgebung des Katalysators die Sedimentation zumindest der größeren Feinstaubpartikel gelingen kann.

In jüngerer Zeit wurden auch Katalysatoren auf der Basis von Metallschäumen (CrNi, CrNiAl) vorgeschlagen, die sehr hohe Umsatzraten aufweisen /IUTA10/. Erste Druckverlustmessungen an 10mm dicken Proben, die vom Forschungsinstitut Edelmetalle & Metallchemie (fem) zur Verfügung gestellt wurden, haben die grundsätzliche Eignung bestätigt. Allerdings wird vom Hersteller eine Temperaturobergrenze von ca. 700°C angegeben, die im Vergleich zum oben beschriebenen Lamellensystem (T_{\max} ca. 1000°C) niedrig ist. Aufgrund fehlender Erfahrungen mit diesen Metallschaumkatalysatoren in feinstaubbelasteten Abgasen ist unklar, ob die dreidimensionale offenporige Struktur nachteilig ist (Poren können sich mit abgelagertem Staub zusetzen) oder durch geschickte Anordnung bzw. Formgebung als Vorteil (Staub sedimentiert) genutzt werden kann, um die Staubemissionen zu verringern.

Die Problematik der zu geringen Temperaturbelastbarkeit von metallschaumbasierten Katalysatoren könnte durch Katalysatoren auf Keramikschaumbasis gelöst werden. Am Fraunhoferinstitut IKTS in Stuttgart wurden zu diesem Thema sehr ermutigende Entwicklungen durchgeführt /IKTS07/. Insbesondere werden geringe Strömungswiderstände bei hohen Umsatzraten erreicht. Natürlich bleibt auch hier die Gefahr der Porenverstopfung durch die hohe Feinstaubfracht der Verbrennungsabgase zu klären. Allerdings scheint diese Problematik beherrschbar zu sein. Keramikschaum-Feinstaubfilter sind bereits in modernen Kaminöfen im Einsatz /Hark09/ (Abbildung 11.2).

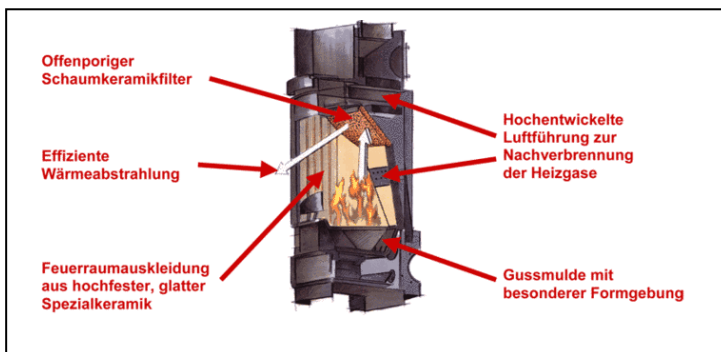


Abbildung 11.2:
Anordnung eines Schaumkeramikfilters zwischen Primär- und Sekundärbrennkammer zur Reduktion der Feinstaubemissionen /Hark09/.

12 Verbrennungsprozess-Monitor

Die Entwicklung eines Verbrennungsprozess-Monitors ist die logische Konsequenz, um die Stückholzverbrennung substantiell zu verbessern. Der Begriff „Monitor“ ist etwas missverständlich gewählt, da es sich im Kern um die Prozesskontrolleinheit der Verbrennungsanlage handelt, d.h. das Gerät übernimmt sowohl die kontinuierliche Regelung der Zuluftströme in allen Phasen der Verbrennung, die Alarmierung von Störungen der Gesamtanlage incl. Saugzugventilator, Wärmeabfuhr usw. als auch die Darstellung des Verbrennungsprozesses für den Betreiber bzw. ggfls. die Protokollierung der Verbrennungsdaten (Qualitätskontrolle). Der Einfachheit halber wird der Begriff „Monitor“ trotzdem beibehalten.

In mehreren Gesprächen unter den Partnern IFK, ISIS, MM und REUT wurden die Merkmale, die der zu entwickelnde Monitor aufweisen soll, diskutiert und zusammengestellt (Abbildung 12.1). An dieser Stelle sei angemerkt, dass nach dem Kenntnisstand der Partner kein vergleichbares Gerät zur Kontrolle der Stückholzverbrennung weltweit auf dem Markt ist, d.h. die Kooperationspartner „betreten mit dieser Entwicklung Neuland“.

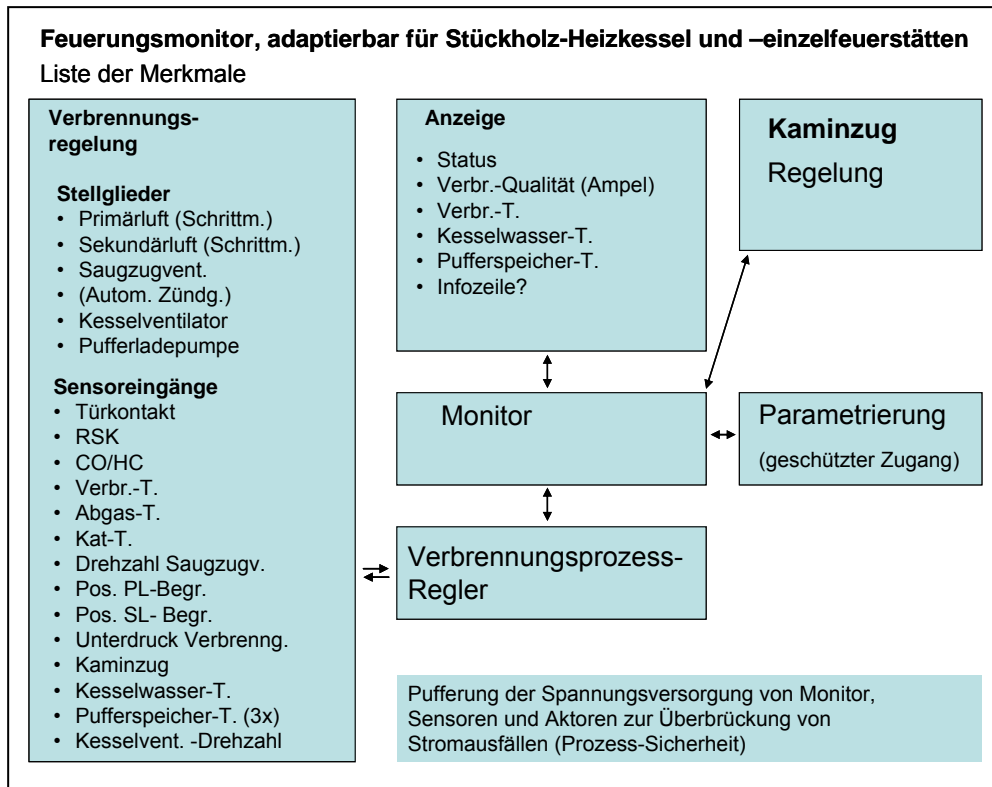


Abbildung 12.1: Merkmale des neu zu entwickelnden Feuerungs-Monitors

Natürlich sind Prozessregler an Stückholz-Heizkesseln Stand der Technik, jedoch gehen einige Merkmale (z.B. Verarbeitung von drei Sensorsignalen zur Beschreibung des Verbrennungsprozesses, aktuelle Darstellung der Verbrennungsqualität, Pufferspeicherüberwachung hinsichtlich des Ladezustandes, Hinweis an den Betreiber, wann eine Nachfüllung weiteren Brennstoffes sinnvoll bzw. nicht zu empfehlen ist, usw.) weit über diesen Standard hinaus. Unter den Partnern besteht Übereinstimmung, dass der Monitor modular bzw. flexibel ausgelegt werden soll, so dass er sowohl für Stückholz-Heizkessel als auch für andere Stückholz-Feuerungsanlagen (Kachelofeneinsätze, Kaminöfen, etc.) adaptierbar ist. Dies ist aufgrund der Erfahrungen mit dem neuentwickelten ISIS-Regelungsalgorithmus (siehe oben) aus den Vorarbeiten realistisch und eröffnet ein entsprechend breiteres Anwendungsfeld mit positiven Auswirkungen auf die Stückzahlen und damit letztlich auf den Preis.

Die Merkmale des Feuerungsmonitors sind nach dem aktuellen Stand der Überlegungen in Abbildung 12.2 zusammengefasst.

Zur technischen Umsetzung des Monitors hinsichtlich der hierarchischen Grobstruktur der Tasks gibt es bereits Vorüberlegungen (Abbildung 12.2. Eine Einteilung nach prozessrelevanten (dürfen nicht gestört werden), sicherheitsrelevanten (absolute Priorität) und kommunikationsrelevanten Aufgaben wurde vorgenommen.

Den ersten Entwurf einer Zustandsverknüpfung eines solchen Monitors stellt Abbildung 12.3 dar.

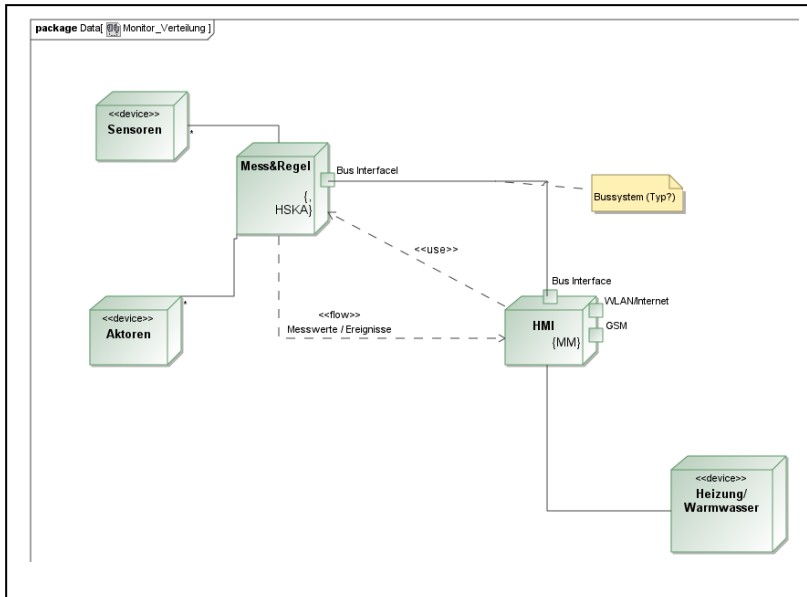


Abbildung 12.2: Grob-Kommunikationsstruktur des Monitors. Es wurde eine Aufteilung der Aufgaben in zwei Prozessoren, die über ein Bussystem miteinander kommunizieren, festgelegt, um die sicherheitsrelevanten Tasks von den peripheren klar trennen zu können.

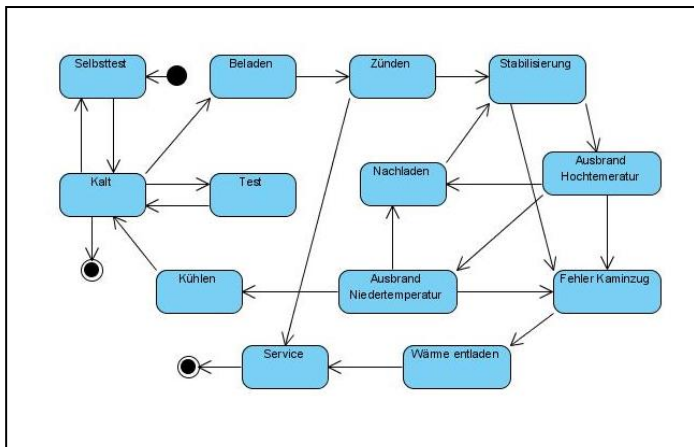


Abbildung 12.3: Zustands- und Ablaufstruktur (State Machine Diagram) der Feuerungsprozessregelung des Monitors (Entwurf, der noch verfeinert werden muss)

13 Zusammenfassung des Standes der AP4 - 8

Recherchen und Sensor-Testexperimente haben ergeben, dass mit dem neuentwickelten Ein-Chip-Sauerstoffsensoren (MF420) und der Breitband-Lambdasonde LSU 4.9 zwei alternative Hochtemperatur-Sensoren verfügbar sind, die in allen Labortests sehr stabiles Verhalten und ausgezeichnete Sensitivität bzw. Reproduzierbarkeit auch bei Anwesenheit von CO und Wasserdampf gezeigt haben. Die in der Projektstufe I vorgesehenen Tests im Abgas von Stückholz-Feuerungsprozessen werden zeigen, welche Alternative letztlich die aussichtsreichere ist. Auch hinsichtlich des Preises kann erwartet werden, dass diese beiden Sensoren Kriterium 2 (siehe oben) erfüllen.



Die aus den Vorarbeiten schon bekannten Abhängigkeiten des Sensorsignals der CO/HC-Mischpotenzialsensoren vom Sauerstoffpartialdruck wurden bestätigt. Da die Restsauerstoffkonzentration im Prozess simultan gemessen wird, ist dieser Einfluss problemlos zu kompensieren.

Die Abhängigkeit der Sensorsignale von der Wasserdampfkonzentration ist deutlich, jedoch im unteren CO-Konzentrationsbereich (0-500ppm) akzeptabel niedrig, so dass keine simultane Messung der Wasserdampfkonzentration nötig erscheint.

Der TGS-CO/HC-Sensor fällt hinsichtlich seiner Eignung gegenüber den Mischpotenzialsensoren deutlich ab.

Die Untersuchungen der Sensitivitätsstabilität der CO/HC-Sensoren mit 500ppm bzw. 1000ppm Toluol (Repräsentant der Zyklischen Kohlenwasserstoffe im Abgas), Isopropanol, Essigsäure und Benzaldehyd haben die erwarteten irreversiblen Veränderungen der Sensitivität nicht immer bestätigt (Exemplarstreuung). Die Sensitivitätsveränderungen scheinen von der beaufschlagten Gaskomponente abhängig zu sein. Von großer Bedeutung für den zukünftigen Einsatz dieses Sensortyps zur Regelung von Holzfeuerungsprozessen ist allerdings, dass ein Regenerationsverfahren gefunden wurde, das es erlaubt, durch wiederkehrende Anwendung, die Sensitivitätseigenschaften wiederherzustellen. Tests dieses Verfahrens nach dem Einsatz des Sensors im Holzverbrennungsabgas stehen jedoch noch aus und Langzeitdaten, die eine Aussage über die Stabilität erlauben würden, liegen ebenfalls noch nicht vor.

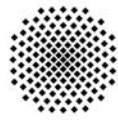
Als Alternative zum bereits in Tests bewährten Oxidationskatalysator auf Metallträgern konnte über eine Recherche eine Neuentwicklung eines Keramikschaum-Katalysators ermittelt werden. Es wird zu klären sein, welche der beiden Möglichkeiten im Hinblick auf Schadgas-Oxidationsrate und Feinstaubrückhaltung (Filterung) die bessere Wirkung entfaltet.

Die Merkmale eines Feuerungsprozess-Monitors wurden unter den Partnern definiert und erste grobe Schritte (Strukturen in Hard- und Software) zur Umsetzung wurden vorbereitend für die weiteren Projektschritte festgelegt.

14 Literatur AP 4 - 8

- /Bau06/ T. Baunach, K. Schänzlin, L. Diehl; Sauberes Abgas durch Keramiksensoren, *Physik Journal* 5(5) (2006) 33.
- /But09/ P. Butschbach, F. Hammer, H. Kohler, A. Potreck, Th. Trautmann; Extensive reduction of toxic gas emissions of firewood-fueled low power fireplaces by improved in situ gas sensorics and catalytic treatment of the exhaust gas, *Sensors and Actuators B* 137(1) (2009) 32-41.
- /Bro02/ E.L. Brosha, R. Mukundan, D.R. Brown, F.H. Garzon; Mixed potential sensors using lanthanum manganate and terbium yttrium zirconium oxide electrodes, *Sensors and Actuators B* 87 (2002) 47-57.
- /DBU07/ H. Kohler, F. Hammer; Optimierung der Verbrennungsvorgänge in Stückholzfeuerungsanlagen durch sensorische und katalytische Methoden, Förderprojekt der DBU Jul. 05- Aug. 07, Abschlussbericht
- /Koh06/ H. Kohler, A. Potreck, T. Trautmann; Verfahren und Vorrichtung zur Verbrennung von Brennstoffen, *Offenlegungsschrift* 10 2006 046 599.7
- /Koh10/ H. Kohler, P. Butschbach, M. Aleksandrova; „Untersuchung der Auswirkungen der Verbrennungsoptimierung in Stückholz- und Pelletfeuerungsanlagen kleiner Leistung auf die Minderung der Feinstaubemissionen – Teil 1: Optimierung durch Zuluftregelung mittels in-situ Abgassensoren“, Förderprojekt des Umweltministeriums BW „Betriebliche Umwelttechnik“ BUT 037, Nov. 08-Jun. 09, Abschlussbericht Teil 2: Optimierung durch Zuluftregelung mittels in-situ Abgassensoren und katalytische Nachverbrennung, Jul. 09-Feb.10
- /IUTA10/ Innovativer Dampfreformer mit Metallschaumkatalysatoren, www.iuta.de/index.php (4. Jan. 2010)
- /IKTS07/ D. Böttge, J. Adler; Funktionalisierung von Schaumkeramiken mit Adsorbentien und Katalysatoren, Jahresbericht des Fraunhofer IKTS (2007), www.ikts.fraunhofer.de/fhg/Images/Fraunhofer_IKTS_07_Funktionalisierung_von_Schaumkeramik_tcm139-124415.pdf
- /Hark09/ www.hark.de/technik/die-ecoplus-technik.html, 4. Jan 2010
- /Mar99/ R. Marutzky, K. Seeger; Energie aus Holz und Anderer Biomasse, DRW-Verlag (1999) 48.
- /Nus89/ Th. Nussbaumer; Schadstoffbildung bei der Verbrennung von Holz, Forschungsbericht Nr. 6, Laboratorium für Energiesysteme, ETH Zürich (1989)
- /Pad02/ R. Padinger, *Berichte aus Energie- und Umweltforschung* 5/2002
- /Sah08/ K. Sahner, D. Schönauer, P. Kuchinke, R. Moos; Zeolite cover layer for selectivity enhancement of p-type semiconducting hydrocarbon sensors, *Sensors and Actuators B* 133 (2008) 502-508
- /Zos04/ J. Zosel, K. Ahlborn, R. Müller, D. Westphal, V. Vashook, U. Guth; Selectivity of HC-sensitive electrode materials for mixed potential gas sensors, *solid State Ionics* 169(1-4) (2004) 115-119.

Arbeitspaket 9



Universität Stuttgart



Universität Stuttgart
Institut für Raumfahrtssysteme
Pfaffenwaldring 31, 70550 Stuttgart (Vaihingen), Germany
Tel.: +49-(0)-711-685-62030, Fax: +49-(0)-711-685-69635
Email: roeser@irs.uni-stuttgart.de

Dr.-Ing. Frank Hammer
Dipl.-Ing. (FH) Ulli Kunstfeld

März 2010

Inhaltsverzeichnis des Arbeitspaketes AP9

15	Zielsetzung und Anlass zur Entwicklung eines Kombinationssensors	61
15.1	Vorarbeiten am IRS.....	61
16	Darstellung der Arbeitsschritte und der angewandten Methoden	62
17	Ergebnisse und Diskussion für AP 9	63
17.1	Prinzipien zur O ₂ - und CO _e -Messung.....	63
17.2	Vorbereitung/Modifikation der Peripherie und Basiselektronik zur Vermessung KombiSen Sensoren (AP9.1)	65
17.3	Vermessung der Sensoren im Labor (AP9.2)	66
17.3.1	CO _e /O ₂ Charakteristik der KombiSen Sensoren (1.Charge).....	67
17.3.2	CO _e /O ₂ Charakteristik der KombiSen Sensoren (2.Charge).....	68
17.3.3	Auslegung der 3.Charge KombiSen Sensoren.....	69
17.3.4	CO _e /O ₂ Charakteristik der KombiSen Sensoren (3. Charge; V3)	70
17.4	Vorbereitung von prototypischen KombiSen Sensoren (AP9.3)	74
17.5	Unterstützung der Messungen (AP9.4).....	74
17.6	Lastenhefterstellung (AP9.5).....	74
18	Literatur AP 9	75

15 Zielsetzung und Anlass zur Entwicklung eines Kombinationssensors

Motivation ist die Entwicklung eines Stückholzheizkessels mit dem Ziel, die neuesten Erkenntnisse der drei Hochschulpartner ISIS, IFK (ehemals IVD) und IRS zur Realisierung eines Holzverbrennungsstandards 2015 synergetisch einzubringen. Die Grundlagen für eine solche Entwicklung auf den Gebieten Verbrennungstechnik-, Optimierung der Brennräume, Sensorik und Regelung der Zuluftströme, Oxidationskatalyse, Prozessautomatisierung und Monitoring sollen in dieser Vorstudie gemäß dem Arbeitsprogramm des bewilligten Antrags in der Fassung vom 24.07.2009 erarbeitet werden.

Konkrete Zielsetzung für das IRS im Projekt ist dabei die Inbetriebnahme eines aussichtsreichen 1-Chip Kombinationssensors mit dem Ziel der O_2 und CO_e -Messung auf einem Sensor für biomassebefeuerte Anlagen. CO_e sind unvollständige Verbrennungsprodukte (z.B. CO, H_2 , HC), wie sie bei einer unvollständigen, schlechten Verbrennung (z.B. durch Verbrennungsluftmangel) entstehen und mittels eines geeigneten CO_e -Sensors identifiziert werden können. Erst damit wird eine schadstoffkontrollierte Verbrennungsregelung und somit die Einhaltung der verschärften Schadstoffgrenzwerte z.B. für CO und (Fein-)Staub der am 03.12.2009 novellierten 1.BImSchV ermöglicht.

15.1 Vorarbeiten am IRS

Am IRS werden seit 1993 eigene keramische Gassensoren entwickelt [1-14]. So ist z.B. das Weltraumexperiment „FIPEX on ISS“ seit Februar 2008 im Einsatz und misst erfolgreich erstmals den molekularen (O_2) und den atomaren Sauerstoff (AO) kontinuierlich und in-situ in der harschen Weltraumumgebung außerhalb der Internationalen Raumstation ISS [4, 8, 13]. Speziell die Detektion von AO ermöglichte es, auch andere oxidierbare Gase wie sie vor allem in der Verbrennungstechnik auftreten, zu detektieren (z.B. CO, HC). Die für den Weltraumeinsatz miniaturisierten Sensoren zeichnen sich durch ihre Robustheit und schnelle Ansprechzeit aus. Sie eignen sich daher hervorragend für den Einsatz zur kontinuierlichen in-situ Überwachung dynamischer Prozesse, wie sie beispielsweise in der Medizintechnik [5, 10], in der Vakuumtechnik [14] und in der Verbrennungstechnik zu finden sind [3, 6, 7, 9, 11, 12].

In mehreren Projekten wurde daher in der jüngeren Vergangenheit in enger Kooperation mit den Firmen LAMTEC GmbH & CO. KG, Walldorf [15] und ESCUBE GmbH & CO. KG, Stuttgart [16] keramische Gassensoren CarboSen zur Verbrennungsoptimierung entwickelt.

Der CO/HC Sensor CarboSen befindet sich bereits seit 2002 in der Serie und wird erfolgreich in mittleren Stückzahlen produziert und vertrieben. Im Rahmen vorangegangener Projekte (BMVEL/FNR: *Dezentrale energetische Nutzung von Getreide und Stroh, Entwicklung neuer genehmigungsfähiger Verbrennungsanlagen 2005-2007*; DBU: *Optimierung der Verbrennungsvorgänge in Stückholzfeuerungsanlagen durch sensorische und katalytische Methoden, 2005-2007*) mit den beiden Projektpartnern IVD (jetzt IFK) der Uni Stuttgart und ISIS der Hochschule Karlsruhe wurde der CarboSen speziell für die Getreide- und für die Holzverbrennung adaptiert. Die grundsätzliche Eignung auch für den Einsatz in Holzverbrennungsabgasen ist am ISIS gezeigt worden. Die entsprechenden Abschlussberichte sind öffentlich erhältlich bzw. liegen bereits bei der DBU vor.

Der O₂-Sauerstoffsensordes Instituts für Luft und Raumfahrttechnik (ILR) der Technischen Universität Dresden wurde speziell für die Medizintechnik entwickelt und befindet sich im fortgeschrittenen Vorserienstatus [5, 10]. Basierend auf beiden Sensorentypen wurde in einem bis zum 30. April 09 laufenden Projekt (BMW/ProInno II: *Entwicklung eines Kombi-Sensors CO/HC und O₂ im Hochtemperaturbereich*, Förderkennzeichen: KF 0236302WM6 / KF0358001WM6) ein erster vorläufiger Laborprototyp eines Kombinationssensors zur simultanen Messung von O₂ und CO/HC auf einem Sensorchip realisiert. Der entsprechende Abschlussbericht ist öffentlich erhältlich. Die Funktion des neuartigen Kombinationssensors und seine Eignung soll im Rahmen der hier beantragten Vorstudie gezeigt und weiterer Entwicklungs- bzw. Optimierungsbedarf identifiziert werden. Im weiteren Verlauf (Projektstufen 1 und 2) muss das KombiSen Sensorelement entsprechend dem Lastenheft aus dieser Vorstudie optimiert und charakterisiert werden. Am Ende sind die wesentlichen Merkmale des Sensors wie Reproduzierbarkeit, Vergiftung, Alterung, Drift, Lebensdauer, Kalibrierbarkeit, Wartbarkeit und Regenerierbarkeit (im Falle einer Alterung bzw. Drift) und vor allem der Preis für das Sensorsystem, bestehend aus Sensorelement, Gehäuse und Sensorelektronik für die Einsetzbarkeit und die Vermarktbarkeit entscheidend.

16 Darstellung der Arbeitsschritte und der angewandten Methoden

Das Projekt / die Vorstudie setzt sich aus 9 Arbeitspaketen zusammen. Für das AP9 ist das IRS verantwortlich. Wie zuvor beschrieben steht aus einem vorangegangenen Projekt am IRS seit Mai 2009 ein prototypischer Kombisensor CO_e/O₂ zur Verfügung, der das Potential hat die Messaufgabe zur simultanen Messung von CO_e und O₂ zu erfüllen. Im Rahmen der Vorstudie sollen neueste prototypische Sensorelemente mit einer modifizierten Elektronik in Betrieb genommen, im Labor des IRS detailliert charakterisiert, deren Eignung nachgewiesen und der weitere Entwicklungsbedarf aufgezeigt werden. Im Einzelnen bedeutet dies:

- AP9.1: Vorbereitung/Modifikation der Peripherie und Basiselektronik zur Vermessung KombiSen Sensoren
- AP9.2: Vermessung der Sensoren im IRS-Labor, dabei insbesondere die Erstellung der CO_e und O₂-Charakteristiken, die Betrachtung der eventuell vorhandenen gegenseitigen Beeinflussung der Sensorsignale auf dem gemeinschaftlichen Trägersubstrat, die Feststellung eventueller Querempfindlichkeiten hinsichtlich der Sensorsignale für CO_e, O₂ und Umgebungstemperatur
- AP9.3: Vorbereitung jeweils eines prototypischen KombiSen Sensors für Messungen im Labor beim ISIS und im Feld an einer realen Holzfeuerungsanlage beim IVD, sowie
- AP9.4: Unterstützung der Messungen mit dem Ziel die Funktion und Eignung des KombiSen-Sensors festzustellen, den weiteren Entwicklungsbedarf aus der Praxis heraus zu definieren, und bereits erste Lebensdauererfahrungen (Drift, Alterung, Signalstabilität) zu sammeln
- AP9.5: Erstellung eines Lastenhefts für die Weiterentwicklung / Ertüchtigung / Verbesserung der KombiSen Sensoren unter dem besonderen Gesichtspunkt des Einsatzes in stückig mit Biomasse befeuerte Anlagen in den nachfolgenden Projektstufen 1-2
- AP9.6: Mitarbeit bei der gemeinschaftlichen Abschlussberichterstellung.

17 Ergebnisse und Diskussion für AP 9

17.1 Prinzipien zur O₂- und CO_e-Messung

Das Prinzip zur O₂- bzw. CO_e-Messung auf dem hier behandelten vorläufigen Laborprototypen KombiSen ist die Nernst'sche bzw. Non-Nernst'sche Festkörperelektrolytsensorik.

Zur O₂-Messung wird das amperometrische Messprinzip (Grenzstromsonde) eingesetzt. Besonderheit des hier verwendeten Sensoraufbaus ist, dass die sauerstoffionenleitende Funktionskeramik zugleich die Diffusionsbarriere über der Pumpelektrode (Kathode) darstellt. Herausforderung ist die Einstellung einer möglichst gleichmäßigen, geschlossenporösen Deckschicht, die für eine ausreichende Diffusionsbegrenzung (Bulkdiffusion) und damit – gemäß den Fick'schen Diffusionsgesetzen – für eine lineare Ursprungskennlinie (durch den Nullpunkt gehend) sorgt. Eine einfache Einpunktkalibrierung an Luft (21% O₂) ist damit vorteilhaft möglich [5,10]. Die Linearität und Steilheit der Kennlinie kann dabei durch die Sensorbetriebstemperatur beeinflusst werden. Die optimale Betriebstemperatur für die O₂-Elektroden liegt erfahrungsgemäß bei 750-900°C. Zur Beheizung des Elements wird auf der Trägersubstratrückseite eine Heizerwendel aufgedruckt (s. Abbildung 17.1).

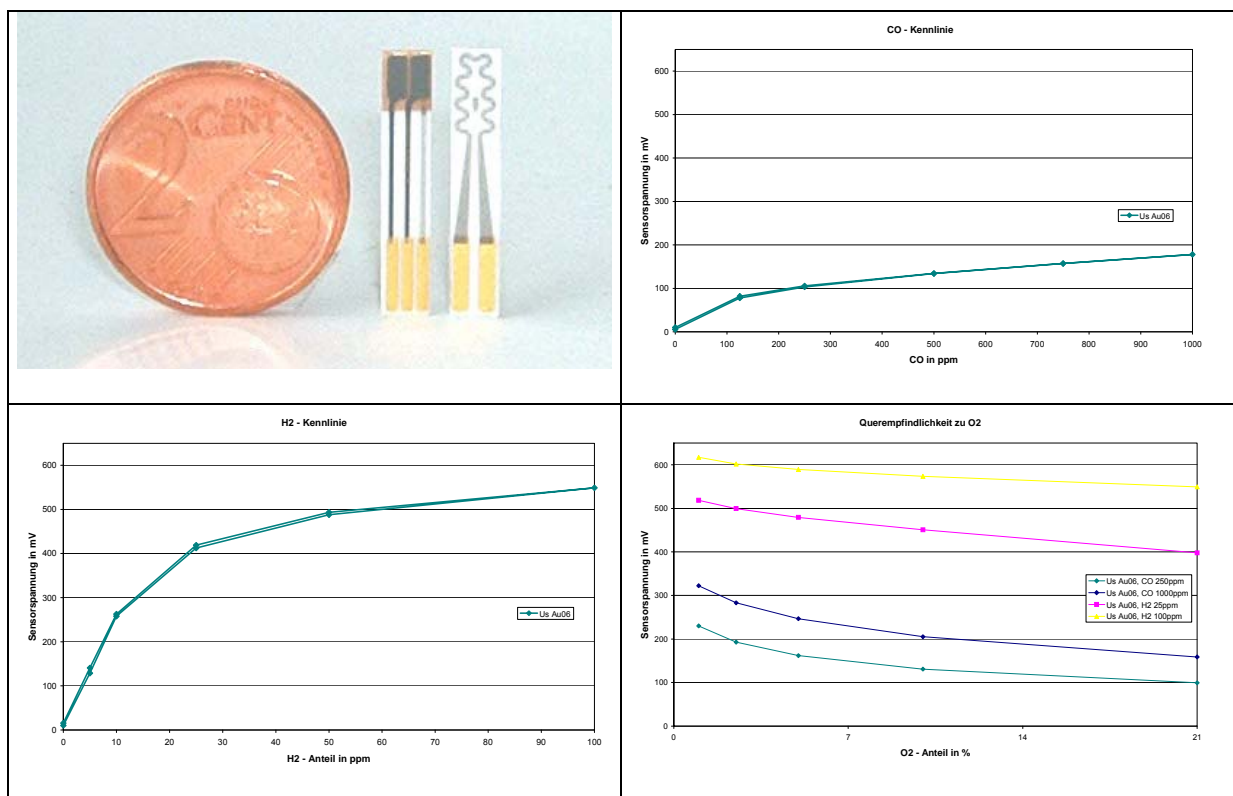


Abbildung 17.1: CarboSen Sensor (links oben); CO und H₂-Charakteristik an Luft sowie die Querempfindlichkeit auf O₂ bei einer Sensortemperatur T_S=630°C (t_τ=2,5)

Zur CO_e-Messung wird das potentiometrische Messprinzip nach Non-Nernst bzw. die sogenannte Mischpotentialsensoren eingesetzt. Besonderheit des hier verwendeten Sensoraufbaus ist, dass sich sowohl die Referenz- als auch die Messelektrode(n) im Messgas befinden. Zwischen der innenliegenden Referenzelektrode und der außenliegenden Messelektrode befindet sich die sauerstoffionenleitende Funktionskeramik. Wie beim O₂-Sensor ist auch diese Schicht möglichst gleichmäßig porös auszuführen, so dass das Messgas auch die innenliegende Referenzelektrode erreicht.

Damit erhält man typischerweise eine logarithmische Ursprungskennlinie (durch den Nullpunkt gehend) wie sie für CO und H₂ in Abbildung 17.1 zu sehen ist. Auch hier ist - bei geeigneter Temperatureinstellung des Sensors - eine Einpunktkalibrierung auf ein Leitgas (z.B. CO oder H₂) möglich. Die optimale Sensorbetriebstemperatur für CO_e liegt dabei erfahrungsgemäß bei 580-630°C. Ob eine Einpunktkalibrierung auch im realen Feuerungsabgas, in dem sich viele brennbare Gase befinden, mit ausreichender Genauigkeit möglich ist, wird im Rahmen des Projektes am ISIS erarbeitet. Weiterer Vorteil ist die nur geringe Sauerstoffabhängigkeit (Querempfindlichkeit) des Sensors, da sich sowohl die Referenz- und auch die Messelektrode(n) im Messgas befinden und den gleichen Sauerstoffpartialdruck sehen. Dies ist in Abbildung 17.1 (rechts unten) zusehen. Dort wurde jeweils beispielhaft bei konstant gehaltenen 250ppm_{CO} und 1000ppm_{CO} sowie bei 25ppm_{H2} und 100ppm_{H2} der Sauerstoffanteil von 21 auf 0Vol%O₂ reduziert. Ob die Querempfindlichkeit über den gesamten O₂-Variationsbereich während der Verbrennungsregelung klein genug ist, wird im Rahmen des Projekts am ISIS erarbeitet. Bei zu großer Verfälschung des CO_e-Wertes durch variierenden Sauerstoff, muss das Sensorsignal entsprechend korrigiert werden. Der O₂-Wert zur Korrektur kann dabei einfach durch die O₂-Messung vom KombiSen Sensorelement herangezogen werden.

Die Schichten sowohl für die O₂ als auch für die CO_e-Messung werden im Siebdruckverfahren auf ein planares Trägersubstrat aufgedruckt. Die Geometrie orientiert sich dabei am bekannten CarboSen mit den aktuellen Maßen 20 x 3,5 x 0,5 mm³. Als Sensormaterialien

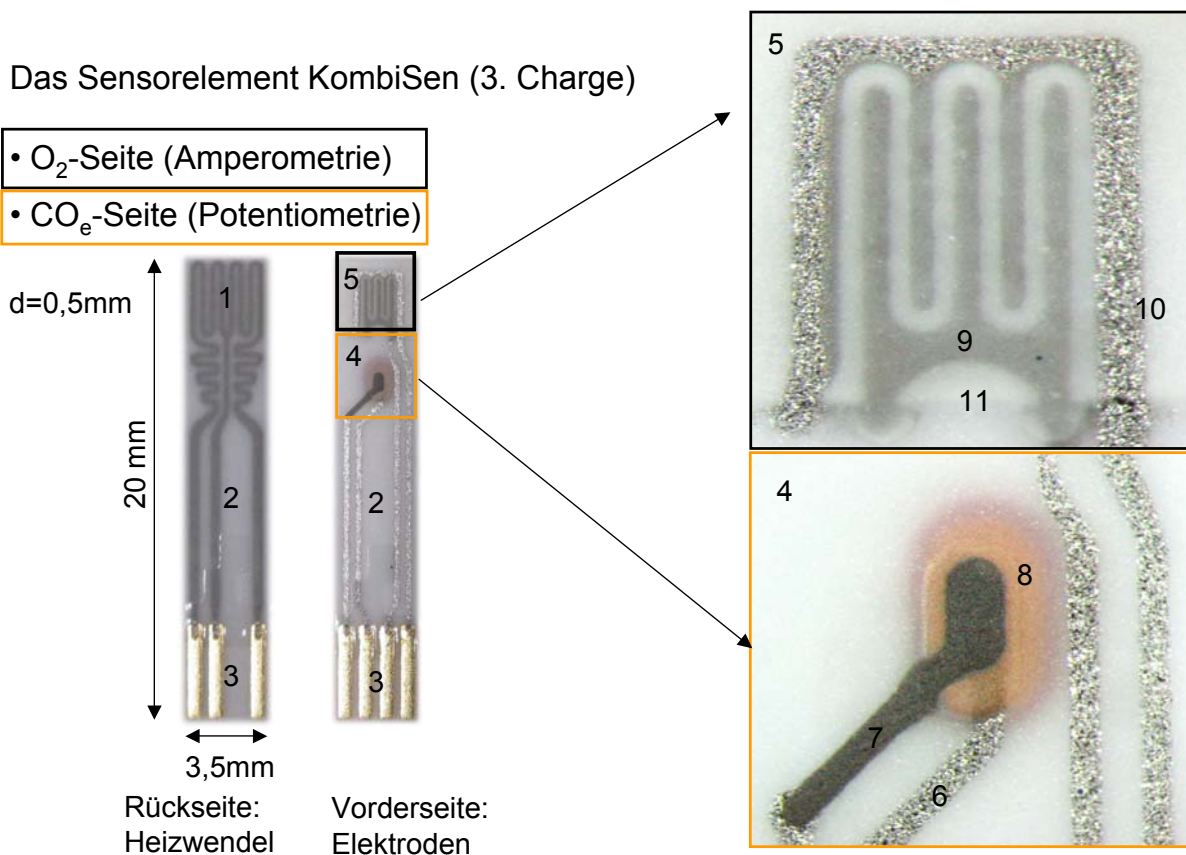


Abbildung 17.2: KombiSen-Sensorelement (3. Charge) vom Stand der Technik (Ende April 2009)

kommen Edelmetalle (z.B. Pt, Au), Keramiken (z.B. YSZ, Al_2O_3), Spezialgläser sowie Mischungen davon zum Einsatz. Die Sensoren werden im Reinraum gefertigt und die funktionellen Schichten Schicht für Schicht gedruckt und eingebrannt bzw. ausgesintert. Die Reihenfolge der Schichten, die eingesetzten Materialien und die gefahrenen Temperaturzyklen (Aufheiz- und Abkühlrampen, Haltezeiten), die z.B. auch die Porosität der Schicht bestimmen, sind für die Eigenschaft der Sensoren verantwortlich und zu optimieren. Weitere Details der Fertigung können z.B. [6, 10] entnommen werden.

Das hier zu vermessende KombiSen Sensorelement vom Stand der Technik (Stand Ende April 2009) als Ergebnis aus dem vorangegangenen BMWi/ProlInno II-Projektes (Förderkennzeichen: KF 0236302WM6 / KF0358001WM6) ist in Abbildung 17.2 gezeigt. Zu erkennen sind die Heizerwendel (1), die Zuleitungen (2), die Kontaktpads (3), die CO_e -Messstruktur (4) mit innenliegender Referenzelektrode (6), außenliegender Messelektrode (7) inklusive Passivierung (8) sowie die O_2 -Messstruktur (5) mit innenliegender Pumpelektrode/Kathode (9), außenliegender Anode (10) sowie Diffusionsbarriere/Deckschicht (11) über der Kathode.

Ziel im Projekt (Vorstudie) ist es, die generelle Funktionalität der Sensoren im Labor, vor allem jedoch deren Eignung im realen Einsatz, also im Abgas der Feuerungsanlage nachzuweisen und weiteren Entwicklungs- bzw. Optimierungsbedarf zu definieren.

17.2 Vorbereitung/Modifikation der Peripherie und Basiselektronik zur Vermessung KombiSen Sensoren (AP9.1)

Im Gegensatz zum bekannten CarboSen Sensorelement mit 4 - 5 Kontakten zur Elektronik (Bemerkung: 5 Kontakte bei Verwendung der zweiten redundanten Messelektrode) benötigt man für das KombiSen Sensorelement 6 Kontaktpads für den Anschluss der Signalleitungen. Damit kann die bewährte CarboSen Peripherie (Gehäuse und Elektronik) nicht mehr einge-



Abbildung 17.3: 4 Stück KombiSen Sensorelemente (3. Charge) angelötet an 6-polige DIN-Stecker (rechts; RSS-Sensorelektronik (Version 1.6 ILR/RSN) mit CO_2 - und O_2 -Sensoranschlußbuchsen, Analog I/O-Schnittstelle, RSS232-Schnittstelle, Heizer- und Resetschalter sowie 24VDC-Anschluss (links)

setzt werden. Für die Funktionstestung der KombiSen Sensoren im Labor werden die Elemente daher zunächst an 6-polige DIN-Stecker angelötet (s. Abbildung 17.3). Dafür wurden zuvor an die Kontaktpads der Sensorelemente 6 Au-Drähte mittels eines geeigneten Spaltschweißverfahren angeschweißt. Zur Zugentlastung wurde die Schweißstelle abschließend mit einem Spezialglas (blau) versiegelt.

Zum Betrieb eines KombiSen kann zunächst auf die RSS-Elektronik (Respiratory Sensor System) zurückgegriffen werden [10]. Sie wurde für die (weltraum)medizinische Anwendung der Festkörperelektrolytsensoren entwickelt. Sie betreibt dabei normalerweise je einen O₂-Sensor nach dem amperometrischen Prinzip und einen CO₂-Sensor nach dem potentiometrischen Prinzip. Mittels eines speziell angefertigten Y-Kabels wird ein KombiSen Sensor an die beiden Sensorbuchsen „CO₂“ bzw. „O₂“ an der Frontplatte der Elektronik angeschlossen. Dabei betreibt die Elektronik die amperometrische O₂-Messeite des KombiSen über die „O₂“-Buchse und die potentiometrische CO_e-Messeite des KombiSen über die „CO₂“-Buchse. Für die Heizung des KombiSen Sensorelements wird die elektronikintegrierte Temperatureinstellung und -regelung für das O₂-Sensorelement herangezogen. Zur ordentlichen Funktion (keine Fehlermeldung: CO₂-Sensor-heizung defekt) muss an die elektronikintegrierte Temperatureinstellung und -regelung für das CO₂-Sensorelement ein Sensor-Dummy (Heizwiderstand) angeschlossen werden.

Die RSS Elektronik ist für die feuerungstechnische Anwendung überdimensioniert. Viele Hard- und Softwarefunktionalitäten, die für die Medizintechnik erforderlich sind, werden hier nicht benötigt. Viele Regelparameter (z.B. zur Volumenstromkompensation) sind für den feuerungstechnischen Einsatz nicht optimal ausgelegt. Für die Funktionstestung ist die Elektronik jedoch gut geeignet.

Die relevanten Sensorsignale werden über die RS232-Schnittstelle an den Messrechner übertragen. Zur Visualisierung, Weiterbearbeitung, Speicherung der Daten sowie zur Kalibrierung der angeschlossenen Sensoren wird das NI-Programm LabView eingesetzt. Die Quelldatei ist derzeit nicht verfügbar, ein lauffähiges Executable ist jedoch vorhanden. Es ist so flexibel, dass die Modifikationen/Einstellungen für den Betrieb des KombiSen für die Funktionstestung realisiert werden können. Optimale Ergebnisse bedürfen einer eigenen KombiSen Elektronik.

Eine eigene KombiSen Elektronik ist nicht Bestandteil dieser Vorstudie. Die Firma LAMTEC stellt eine Elektronikentwicklung in Aussicht, wenn die Funktionalität der simultanen CO_e- und O₂-Messung und die Eignung der KombiSen Sensoren im Feuerungsabgas belastbar nachgewiesen werden konnte.

Alternativ zur RSS-Elektronik könnte auch die XC164 CarboSen Elektronik eingesetzt werden. Der zweite Kanal zur Messung der redundanten zweiten CO_e-Messelektrode (Sensorspannung) kann dabei zur Messung des amperometrischen O₂-Sensorsignals herangezogen werden. Dafür müsste eine Vorschaltplatine entwickelt werden, um das amperometrische Sensorsignal des O₂-Sensors in ein potentiometrisches Signal umzuwandeln.

17.3 Vermessung der Sensoren im Labor (AP9.2)

Bei diesem ersten Nachweis der Funktionalität des KombiSen sollen insbesondere die CO_e- und O₂-Charakteristiken erstellt, eine eventuell vorhandene gegenseitigen Beeinflussung der

Sensorsignale (auf dem gemeinschaftlichen Trägersubstrat!) betrachtet sowie eine eventuell vorhandene Querempfindlichkeiten hinsichtlich der Sensorsignale für CO_e , O_2 und eventuell Umgebungstemperatur T_{amb} festgestellt werden.

17.3.1 CO_e/O_2 Charakteristik der KombiSen Sensoren (1.Charge)

Die Sensoren durchlaufen zur Funktionstestung ein standardisiertes Messprogramm. In Abbildung 17.4 ist beispielhaft das Histogramm der KombiSen Sensoren der 1.Charge dargestellt. In der ersten Hälfte des Messprogramms werden die CO - und die H_2 -Kennlinien an Luft bestimmt. Hierzu wird die O_2 -Konzentration (blau) auf 21 Vol.% O_2 (Rest N_2) konstant eingestellt.

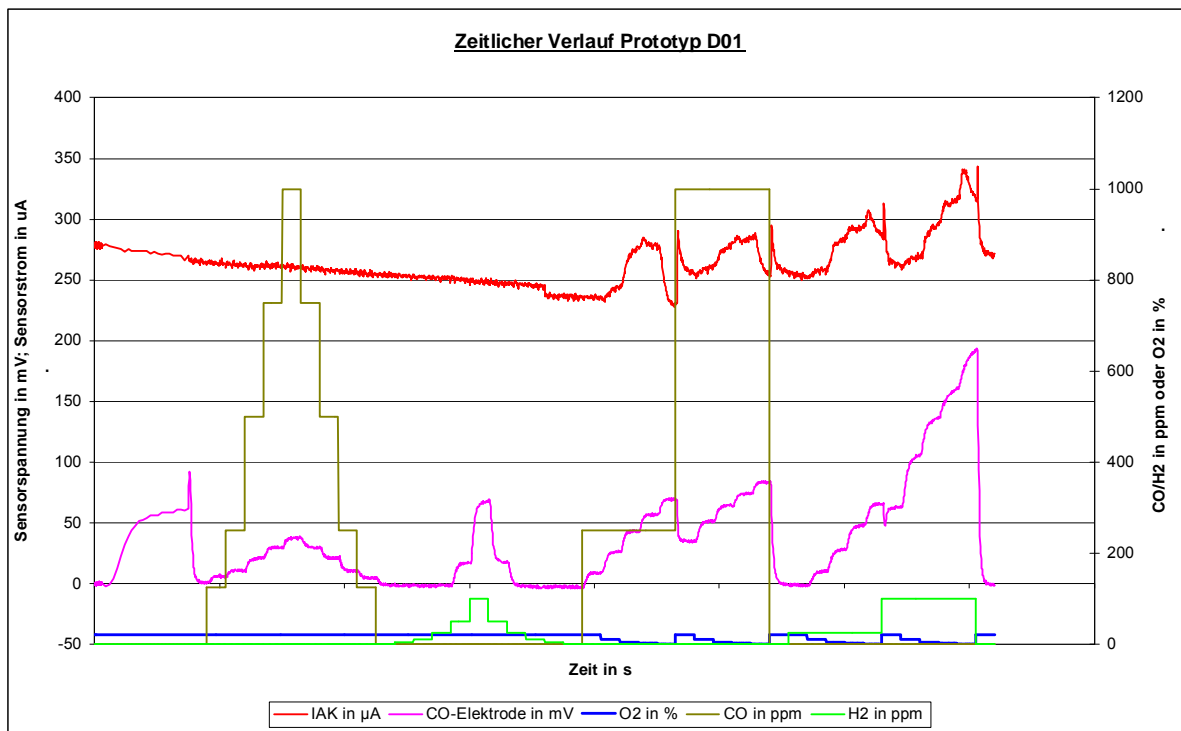


Abbildung 17.4 Histogramm der KombiSen Sensorelemente der 1.Charge

Dann beginnt eine CO -Stufung (braun) von 0, 125, 250, 500, 750, 1000 ppm_{CO} und zurück, gefolgt von einer H_2 -Stufung (grün) von 0, 5, 10, 25, 50, 100 ppm_{H_2} und zurück. In der zweiten Hälfte des Messprogramms wird die Querempfindlichkeit auf variierendes O_2 bestimmt. Dazu werden zunächst zwei CO -Stufen bei 125 und 1000 ppm_{CO} konstant gehalten und dabei jeweils O_2 stufenförmig reduziert von 21, 10, 5 auf 1 Vol.% O_2 . Danach werden zwei H_2 -Stufen konstant gehalten bei 25 und 100 ppm_{H_2} und auch dabei jeweils die O_2 -Konzentration stufenförmig reduziert von 21, 10, 5 auf 1 Vol.% O_2 .

Man erkennt bereits am Histogramm, wie die Sensorsignale der CO_e -Elektrode (violett) auf CO und vor allem auf H_2 reagieren. Bei 1000 ppm_{CO} resultiert daraus ein potentiometrisches Sensorsignal von ca. $U_{\text{Sen}}=40\text{ppm}$. Bei 100 ppm_{H_2} beträgt $U_{\text{Sen}}=70\text{mV}$. Die Signale des CarboSen liegen im Vergleich dazu etwa um den Faktor 3-8 höher! D.h. die 1.Charge KombiSen ist zu unsensitiv gegenüber CO und H_2 , die Funktionalität ist jedoch vorhanden. Zudem erkennt man wie die Sensorsignale der O_2 -Elektrode (rot) auf O_2 reagieren. Bei 21 Vol.% O_2

resultiert daraus ein amperometrisches Sensorsignal von anfänglich ca. $I_S=280\mu A$. Das Signal geht jedoch trotz konstantem O_2 -Anteil auf unter $250\mu A$ zurück. D.h. die erste Charge zeigt ein instabiles O_2 -Sensorsignal bzw. eine nicht zu vernachlässigende Drift. Eine eindeutige Funktion der O_2 -Sensorseite ist ebenfalls nicht zu erkennen. Dies lässt auf eine mangelhafte, undichte Diffusionsbarriere schließen. Eine detailliertere Betrachtung der 1.Charge ist daher nicht erforderlich. Eine modifizierte 2.Charge mit dichter Deckschicht wurde daher aufgesetzt.

17.3.2 CO_e/O_2 Charakteristik der KombiSen Sensoren (2.Charge)

In Abbildung 17.5 ist das Histogramm der Vermessung der 2.Charge KombiSen zu sehen. Da die Funktionalität der O_2 -Seite hier im Vordergrund stand, wurde die Messprozedur modifiziert; zwischen $t=0-3500s$ wurde zunächst der Sauerstoffanteil (ohne CO oder H_2 -Belastung) schrittweise von 21 auf 0Vol.% O_2 reduziert. Man erkennt, wie der Sensorstrom I_S (dunkelblau) dem kommandierten O_2 -Anteil (hellblau) folgt. Der Sensorstrom sinkt dabei von $I_S=19\mu A$ bei 21Vol.% O_2 auf ca. $0,5\mu A$ bei 0Vol.% O_2 . Das absolute Sensorsignal bei 21Vol.% O_2 hat sich dabei im Vergleich zur 1. Charge um den Faktor 10 verringert. Beides ein deutliches Zeichen, dass die Diffusionsbarriere der 2.Charge genügend geschlossenporös und daher geeignet ist.

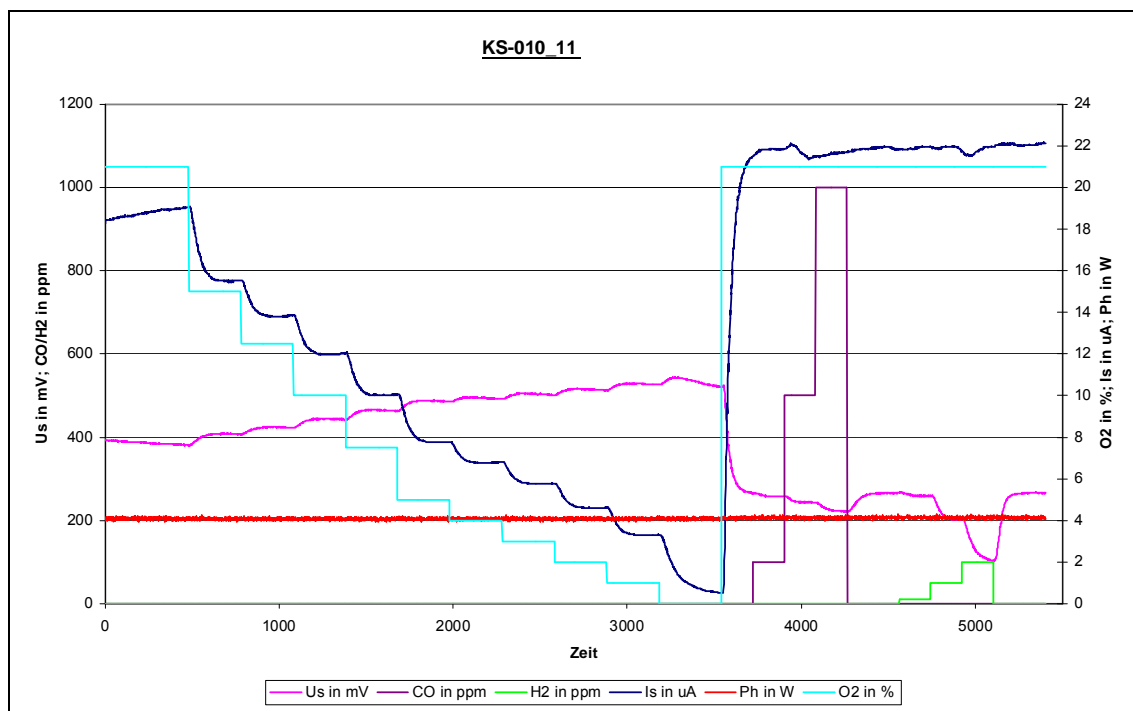


Abbildung 17.5 Histogramm der KombiSen Sensorelemente der 2.Charge

Gleichzeitig erkennt man jedoch, dass das CO_e -Sensorsignal (violett) – auch ohne CO oder H_2 -Belastung – anfänglich bei $U_{Sen}=400mV$ liegt. D.h. es liegt keine Ursprungskennlinie (Nullpunkt durch den Ursprung) wie beim CarboSen vor. Dieser Offset stört jedoch nicht, da er mathematisch korrigiert werden könnte. Desweiteren ist jedoch zu erkennen, dass dieser Offset sich mit dem kommandierten O_2 -Anteil (hellblau) verändert und auf $U_{Sen}=550mV$ bei 0Vol.% O_2 ansteigt. Dies spricht für eine Querempfindlichkeit des CO_e -Signals auf variierendes O_2 . Weitere Messungen haben gezeigt, dass der Offset vom kommandierten Pumpstrom

für die Sauerstoffmessung abhängt. D.h. die amperometrische O_2 -Messung koppelt in die potentiometrische CO_e -Messung ein. Dies ist möglich, da im Aufbau der 2. Charge beide Messungen auf einer einzigen (sauerstoffionen)leitenden Funktionskeramik aufgebracht sind.

Zur Untersuchung der CO_e -Funktion der 2. Charge wird ab $t=3500s$ der O_2 -Anteil auf 21Vol.% konstant gehalten und nacheinander stufenförmig CO (violett) auf bis zu 1000ppm_{CO} und danach H_2 (grün) auf bis zu 100ppm_{H₂} erhöht. Dabei sinkt $U_{Sen}(t=3600s)$ von 300mV bei 0ppm_{CO/H₂} auf 220mV bei 1000ppm_{CO} bzw. auf 100mV bei 100ppm_{H₂}. D. h. die CO_e -Funktionalität ist vorhanden, der Signalhub von 80mV bei CO bzw. von 200mV bei H_2 ist weiterhin um den Faktor 2-3 kleiner als beim CarboSen.

Das CO_e -Signal könnte jedoch durch eine Reduzierung der Sensortemperatur vergrößert werden. Denn, wie beim CarboSen steigt die Sensitivität mit sinkender Sensortemperatur. Allerdings benötigt der O_2 -Sensor für eine ausreichende Sauerstoffionenleitung und somit für eine lineare O_2 -Kennlinie eher eine höhere Temperatur. Ein Kompromiss muss gefunden oder die CO_e -Elektrode in einem kälteren Sensorbereich platziert werden. Dies wurde in der 3. Charge untersucht.

Betrachtet man die O_2 -Seite ab $t=3500s$, so erkennt man, dass das O_2 -Signal konstant bei etwa $I_S=22\mu A$ liegt. D.h. eine Querempfindlichkeit der O_2 -Messung durch die CO bzw. H_2 Variation ist positiverweise nicht zu beobachten. Es liegt jedoch trotz kommandierten 21Vol.% O_2 bei $t=3500s$ um ca. $3\mu A$ höher als zum Zeitpunkt $t=0s$ bei ebenfalls 21Vol.% O_2 . Wie weitere Messungen gezeigt haben, handelt es sich hierbei nicht um eine Drift, sondern um ein Einlaufverhalten der O_2 -Messeite.

17.3.3 Auslegung der 3.Charge KombiSen Sensoren

Zur Entkopplung der potentiometrischen CO_e -Messung von der amperometrischen O_2 -Messung wird die 3. Charge entsprechend mit zwei voneinander getrennten Festkörperelektrolyten ausgeführt. Eine Funktionskeramik für den O_2 -Teil und galvanisch entkoppelt eine zweite funktionskeramische Schicht für den CO_e -Teil der Messung.

Zur Steigerung des CO_e -Sensorsignalhubs wird der CO_e -Teil weiter nach „hinten“ in Richtung der kalten Sensorsignalspads (Nr. 3 in Abbildung 17.2) gerückt. Zur Maximierung der O_2 -Funktionalität wird mittels Thermalanalyse der heißeste Punkt des Sensors gesucht und dort die O_2 -Elektrode aufgedruckt. Zur Bestimmung des Betriebsoptimums für die CO_e -Messung wurde der Abstand der CO_e -Elektroden zum heißesten Punkt des Sensors in dem sich die O_2 -Elektrode befindet variiert.

Drei Abstandsvariationen wurden gefertigt und untersucht. Die Variation des Abstands zwischen der O_2 - und der CO_e -Messung ist in Abbildung 17.6 gezeigt. Das Ergebnis der Thermalanalyse ist in Abbildung 17.7 beispielhaft für die Variante V1 mit dem Abstand $d=2,2mm$ gezeigt. Man erkennt eine O_2 -Spitzentemperatur von $700^\circ C$ und eine CO_e -Temperatur von ca. $580^\circ C$.

Nach Vermessung der 3. Variationen hat sich V3 mit dem Abstand $d=3,7mm$ zwischen O_2 - und CO_e -Elektrode als am geeignetsten herausgestellt. Nachfolgend werden die Ergebnisse der Charakterisierung der 3.Charge vorgestellt.

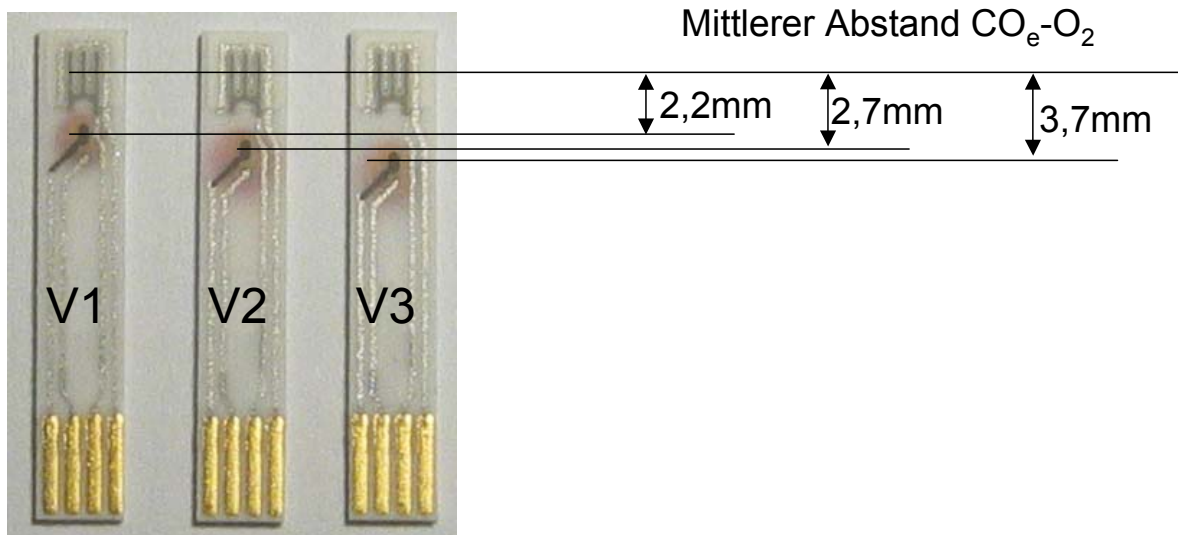


Abbildung 17.6 Abstandsvariation der CO_e -Elektrode zur O_2 -Elektrode

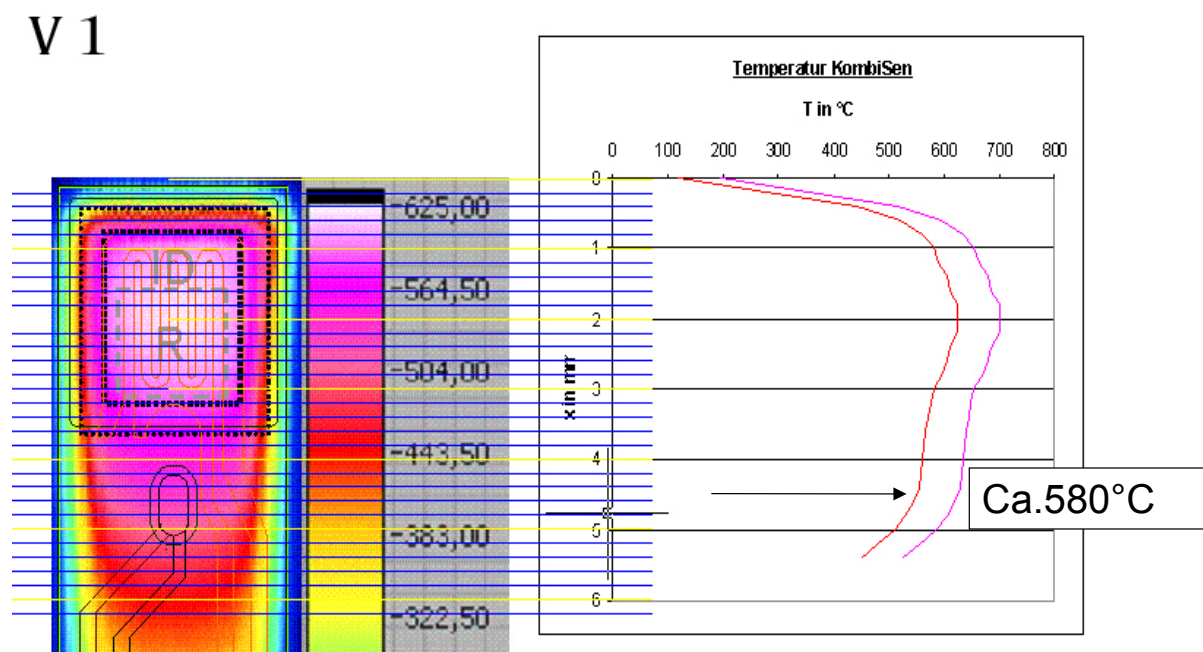


Abbildung 17.7 Thermalsimulation des heißen KombiSen Sensorkopfes der 3. Charge mit eingezeichneter O_2 -Elektrode und CO_e -Elektrode; Abstandsvariante V1 mit $d=2,2\text{mm}$.

17.3.4 CO_e/O_2 Charakteristik der KombiSen Sensoren (3. Charge; V3)

In Abbildung 17.8 ist das Histogramm der 3.Charge 3.Variation KombiSen Sensoren zu sehen. Bei $t=0\text{s}$ erkennt man einen hohen O_2 -Sensorstrom von $\text{ca. } I_S=36\mu\text{A}$ bei $21\text{Vol.}\%\text{O}_2$. Er geht mit sinkenden Sauerstoffanteil auf $0\mu\text{A}$ bei $0\text{Vol.}\%\text{O}_2$ zum Zeitpunkt $t=3000\text{s}$ zurück.

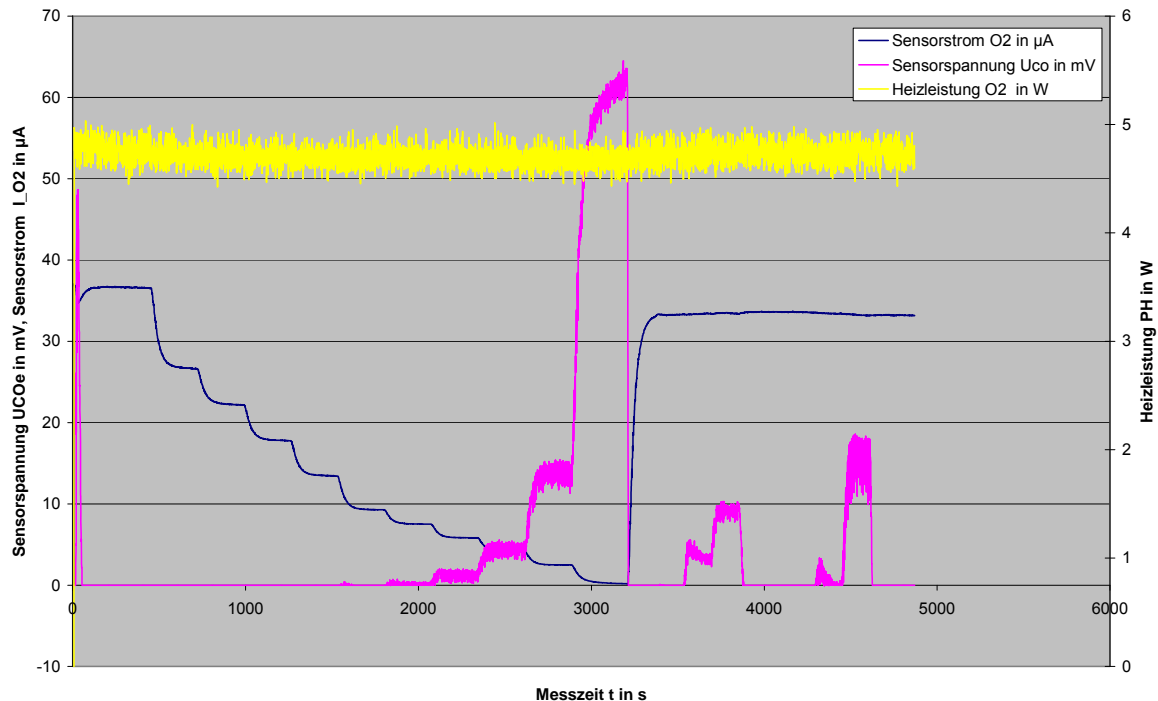


Abbildung 17.8 Histogramm der KombiSen Sensorelemente der 3.Charge; Variation V3 mit $d=6,9\text{mm}$

Das CO_e -Sensorsignal liegt dabei konstant bei $U_{\text{Sen}}=0\text{mV}$, d.h. beide KombiSen Kennlinien sind vorteilhafte Ursprungskennlinien, und die O_2 -Funktionalität ist nachgewiesen. Die Entkopplung der potentiometrischen CO_e - zur amperometrischen O_2 -Messung ist gelungen. Bei $t=3500\text{s}$ stellt sich das O_2 -Sensorsignal bei kommandierten $21\text{Vol.}\%\text{O}_2$ auf $I_S=35\mu\text{A}$ ein, d.h. eine reproduzierbares Verhalten ist festzustellen. Ab $t=3500\text{s}$ verändert sich das O_2 -Signal trotz CO und H_2 -Variation nicht, d.h. eine Querempfindlichkeit ist ebenfalls nicht vorhanden.

Das maximale potentiometrische CO_e -Sensorsignal bei kommandierten $1000\text{ppm}_{\text{CO}}$ liegt bei lediglich 10mV und bei $100\text{ppm}_{\text{H}_2}$ bei lediglich ca. 20mV . D.h. die Funktionalität ist generell da, jedoch ist die Sensitivität um den Faktor 16-25 zu gering! Derzeit wird vermutet, dass die Porosität der CO_e -Funktionskeramik (die identisch zur O_2 -Funktionskeramik ausgeführt ist) zu geschlossenporös (dicht) ist, was sich auf die Dreiphasengrenze und die dort stattfindenden Reaktionen stark auswirkt. Dieses optimale Ziel für die O_2 -Seite scheint suboptimal für die CO_e -Seite zu sein. Daher muss bei der Auflegung der 4. Charge (in der beantragten 1. Projektstufe) die CO_e -Funktionskeramik separat gedruckt und eingebrannt, und möglichst offenporöser ausgelegt Alternativ dazu könnten die Mess- und Referenzelektrode anstatt transversal lateral aufgedruckt werden.

Desweiteren muss für eine lineare O_2 -Kennlinie der KombiSen Sensor mit einem Temperaturfaktor $t_f \geq 3,0$, d.h. mit einer Spitzensensortemperatur $T_S > 730^\circ\text{C}$ betrieben werden. Zum Vergleich: Der KombiSen wird idealerweise mit $t_f=2,35$ ($T_S=530^\circ\text{C}$) betrieben. D.h. trotz $d=6,9\text{mm}$ Abstand bei der Variation 3 ist die CO_e -Temperatur für eine sensitive CO_e -Messung noch zu groß und die Sensitivität daher zu klein. Für die 4. Charge resultiert hieraus ein noch größerer Abstand zwischen O_2 und CO_e -Elektroden.

Im Folgenden sind weitere exemplarische Ergebnisse der Vermessung der 3.Charge KombiSen Sensoren beschrieben. Auch diese Ergebnisse geben Hinweise für die Auslegung der 4.Charge in der geplanten Projektstufe 1. Abbildung 17.9 zeigt die O_2 -Kennlinien bei unterschiedlichen Sensortemperaturen T_S . Der Temperaturfaktor $t_f=2,7$ entspricht einer Sensortemperatur von ca. $T_S=680^\circ\text{C}$ und $t_f=3,1$ entspricht etwa $T_S=800^\circ\text{C}$. Dort wird nochmals deutlich, dass für eine lineare O_2 -Kennlinie ein idealer Temperaturfaktor von $t_f \geq 3,0$ eingestellt werden muss. Die maximale Steigung des getesteten KombiSen bei $t_f=3,1$ resultiert in einer komfortablen Messauflösung von $0,75\mu\text{A}/\text{Vol}\%O_2$.

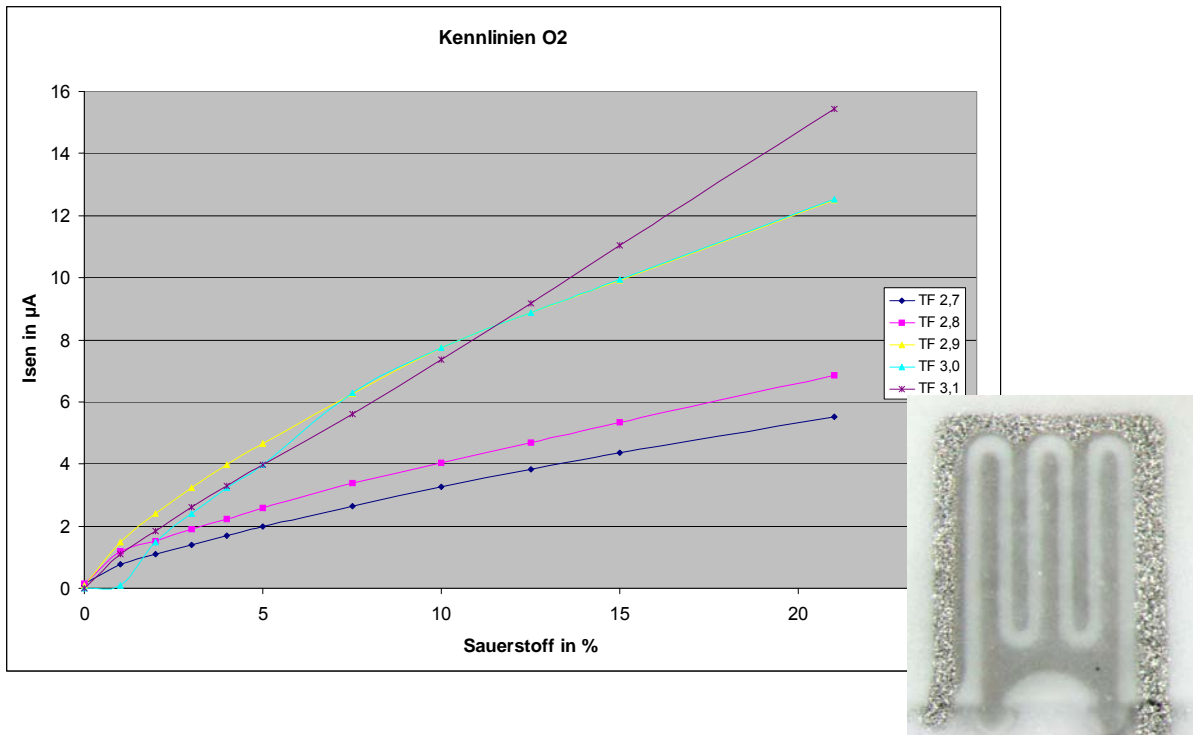


Abbildung 17.9 O_2 -Kennlinien der KombiSen Sensoren der 3. Charge bei unterschiedlichen Sensortemperaturen $T_S=f(t_f)$

Abbildung 17.10 zeigt, dass das Sensorsignalmaximum U_{Sen} und damit die höchste Sensitivität auf H_2 bzw. auf CO bei $t_f=2,8$ bzw. $2,6$ liegt. Das Optimum für O_2 lag bei $t_f=3,0-3,1$! Es muss hier ein Kompromiss gewählt oder eine neue 4.Charge mit geänderter Geometrie, insbesondere mit noch größerem Abstand zwischen CO_e - und O_2 -Elektrode aufgelegt werden (nächste Projektstufe). In der gleichen Abbildung wird gezeigt, dass der KombiSen bei einer zu erwartenden Temperatur mit $t_f=3,1$ etwa $P_H=6\text{W}$ Heizleistung aufnimmt (bei Raumtemperatur, ohne Strömung). Im Vergleich dazu liegt die Heizleistungsaufnahme des CarboSen mit $t_f=2,35$ bei unter 3W . Die RSS Elektronik ist in der Lage die höhere Heizleistung zu liefern.

Mit den Heizungsbauern ist abzuklären, ob der höhere Heizleistungsbedarf akzeptiert werden kann. Ansonsten müsste die Geometrie (Größe) des Sensorelements weiter reduziert werden. Eine Reduktion um den Faktor 5 wäre hier denkbar. Dies würde zu einem z.B. quadratischen Sensorelement mit der Kantenlänge $3 \times 3\text{mm}^2$ führen. Ob über diese kleine Fläche ein genügend großer Temperaturgradient für sowohl für eine O_2 -Messung bei $T_S=800^\circ\text{C}$ als auch für eine CO_e -Messung $T_S=580^\circ\text{C}$ muss untersucht werden. Eventuell müsste die Funktionalität auf zwei getrennten Substraten gewährleistet werden. Ebenso hätte dies Auswir-

kungen auf die Aufbau- und Verbindungstechnologie (AVT), da die Kontaktpads in den heißen Bereich rücken würden.

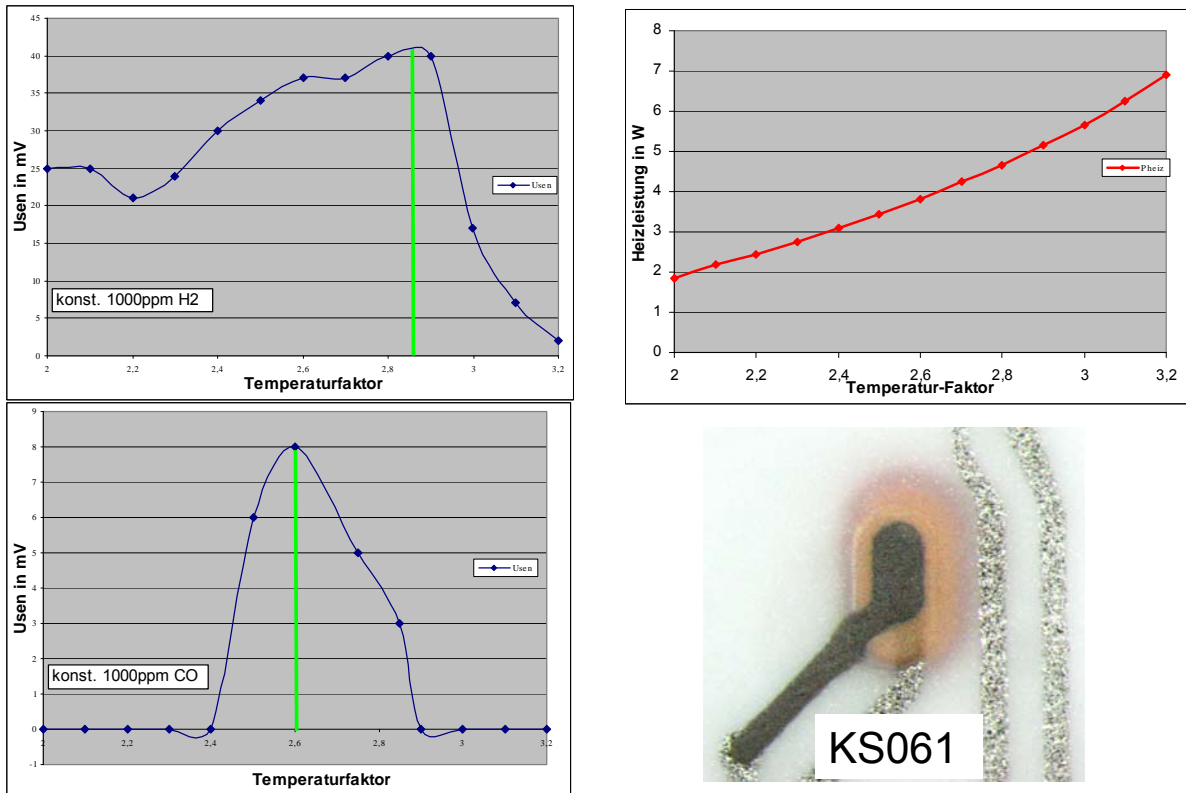


Abbildung 17.10 CO und H_2 -Sensorsignalmaximum und Heizleistungsaufnahme P_h der KombiSen Sensoren der 3. Charge bei unterschiedlichen Sensortemperaturen $T_s=f(t_f)$

Als hochtemperaturbeständige Verbindungstechnologie käme z.B. das Au-wire-bonding in Frage. Vorteilhaft bei der miniaturisierten Geometrie wäre jedoch die Möglichkeit zur Integration der „MiniSen“ Sensorplättchen, z.B. in standardisierte, verfügbare und kostengünstige Gehäusetechnologien. Für Niedertemperaturen eignet sich z.B. ein TO-Gehäuse (siehe Abbildung 17.11), für Temperaturen bis $400^\circ C$ eine spezielle Glas-Metallverbindung, darüber eine Keramik-Metall-Verbindung.



Abbildung 17.11
TO-Gehäuse für Niedertemperaturanwendung

Günstigstenfalls können beide miniaturisierten Plättchen für CO_e und für O_2 in ein gemeinsames Gehäuse integriert werden, um Hardware, Platz, Heizleistung und somit Kosten zu sparen. In der nächsten Projektphase wird die 1-Chip-Lösung (KombiSen 4. Charge) sowie die 2-Chip-Lösung (MiniSen CO_e und MiniSen O_2) technisch und kaufmännisch Gegenübergestellt und nach Rücksprache mit den Projektpartnern ein Konzept weiterverfolgt und realisiert.

17.4 Vorbereitung von prototypischen KombiSen Sensoren (AP9.3)

Derzeit werden bis zu 200 KombiSen Sensoren der 3.Charge im Labor punktuell auf O₂ und CO_e-Funktionalität überprüft. Die am besten geeigneten Sensoren werden ausgewählt und für die weitere Integration vorbereitet. Ein Einsatz der DIN-Buchsen-Lösung (s. Abbildung 17.3) ist für den Einsatz in der Feuerungsanlage nicht geeignet, da die Lötstelle für eine maximale Temperatur von 150°C geeignet ist. Im Feuerungsabgas werden 300°C, kurzfristig bis zu 500°C erwartet.

Die Verwendung der bewährten CarboSen Peripherie (5-Signaldrähte) ist ebenfalls nicht möglich, da die Kontaktzahl der KombiSen Sensoren 6 Signaldrähte erfordert.

Zur Integration wird die Tauchrohrlösung aus einem anderen Projekt „Kesselwandmessung mit CarboSen“ realisiert werden. Die dafür erforderliche Hardware wurde beschafft. Die prototypischen KombiSen Sensoren sind jedoch nach funktionalen Tests im Labor derzeit noch nicht geeignet für die Auslieferung an die Projektpartner ISIS und IFK. Die Ursache wird im Laufe der nächsten Projektphase gesucht. Neue Sensorelemente für die Integration sind vorbereitet. Parallel dazu wird die 2-Chip-Lösung vorbereitet.

17.5 Unterstützung der Messungen (AP9.4)

In diesem AP sollen die Projektpartner bei den Feldmessungen unterstützt werden, mit dem Ziel die Funktion und Eignung des KombiSen Sensors im realen Abgas festzustellen, den weiteren Entwicklungsbedarf aus der Praxis heraus zu definieren, und bereits erste Lebensdauererfahrungen (Drift, Alterung, Signalstabilität) zu sammeln. Dies kann erst nach Auslieferung der funktionalen Prototypen in der nächsten Projektphase voraussichtlich ab August 2010 durchgeführt werden.

17.6 Lastenhefterstellung (AP9.5)

Die Erstellung eines Lastenhefts für die Weiterentwicklung / Ertüchtigung / Verbesserung der KombiSen Sensoren unter dem besonderen Gesichtspunkt des Einsatzes in stückig mit Biomasse befeuerte Anlagen wird gleich zu Beginn der nächsten Projektphase realisiert werden. Insgesamt werden sowohl das 1-Chip Konzept und das 2-Chip Konzept (s. Kapitel 17.3) betrachtet und gegenübergestellt werden.

18 Literatur AP 9

- [1] **S. Fasoulas**, *Experimentelle und theoretische Charakterisierung einer hochenthalpen Stickstoffströmung zur Wiedereintrittssimulation*, Dissertation, IRS, Univ. Stuttgart, Feb. 1995
- [2] **C.A. Schrempp**, *Qualifikation von Festkörperelektrolytsonden zur Bestimmung des Sauerstoffpartialdrucks im Weltraum*, Dissertation, IRS, Univ. Stuttgart, Feb. 2000
- [3] **F.U. Hammer et al.**, *Miniaturized CO/H₂-Sensor for Monitoring and Controlling Small Burners and Heaters*, 2nd European Conference on Small Burner and Heating Technology, ECSBT 2, Stuttgart, March 16.-17., 2000
- [4] **S. Fasoulas et al.**, *Flight test of solid oxide micro-sensors on a russian reentry probe*, AIAA Space Conf. and Exposition, Albuquerque NM, Aug. 28-30, 2001
- [5] **M. Sauer**, *Entwicklung von Festkörperelektrolytsensoren zur Charakterisierung von Gaspartialdrücken und Massenströmen*, Fortschr.-Ber., VDI Reihe 8 Nr. 876. Düsseldorf, 2001
- [6] **F.U. Hammer**, *Entwicklung eines miniaturisierten Festkörperelektrolytsensors aus der Raumfahrt zur Optimierung von Verbrennungsprozessen*, Fortschr.-Ber., VDI Reihe 8 Nr. 935, Düsseldorf, 2002
- [7] **F.U. Hammer et al.**, *Development of a miniaturized solid electrolyte sensor as spin-off from space application for optimizing combustion processes*, Poster P3.07, SENSOR 2003 Kongress, Nürnberg, 13.-15. Mai 2003
- [8] **R. Förstner**, *Entwicklung keramischer Festelektrolytsensoren zur Messung des Restsauerstoffgehalts im Weltraum*, Dissertation, IRS, Univ. Stuttgart, Feb. 2003
- [9] **B. Klein et al.**, *Entwicklung eines sensorgesteuerten modulierenden Ölbrenners*, Forschungsbericht, HLK-Brief 123 des Lehrstuhls für Heiz- und Raumlufttechnik der Universität Stuttgart, der Forschungsgesellschaft HLK Stuttgart mbH, der HLK Stuttgart GmbH und des Vereins der Förderer der Forschung im Bereich HLK Stuttgart e.V. (Herausgeber), Stuttgart, Februar 2005.
- [10] **R. Baumann et al.**, *Development and application of a miniaturised sensor system for respiratory investigations (MAP-RSS)*, Poster, 1st International Workshop on Smart Gas Sensors - Technology and Application, Fraunhofer Institut für Physikalische Messtechnik, Freiburg, 17. März 2005
- [11] **M. Völkel et al.**, *CO_e-Regelung mit Miniatur-Sensor eröffnet neue Perspektiven in der Verbrennungstechnik*, Fachbeitrag, Gaswärme International (54) Nr. 3/2005, S. 174-177, Vulkan-Verlag, Essen, März 2005
- [12] **M. Völkel**, *Regelung des Verbrennungsluftmassenstroms bei Kleinf Feuerungsanlagen*, Dissertation, IGE, Univ. Stuttgart, Sept. 2007
- [13] **T. Schmiel**, *Entwicklung, Weltraumqualifikation und erste Ergebnisse eines Sensorinstruments zur Messung von atomarem Sauerstoff im niedrigen Erdorbit*, Dissertation, ILR, TU Dresden, Feb. 2009
- [14] **F.U. Hammer et al.**, *From Space to Earth – a Novel Solid Electrolyte Oxygen Sensor System for In-Situ Measurement and Process Control*, Advances in Applied Plasma Science, Vol.7, 2009, IAPS, Japan
- [15] <http://www.lamtec.de>
- [16] <http://www.escube.de>
- [17] **B. Keß, et al.**, *Emissionskantenregelung zur Effizienzsteigerung und Schadstoffreduktion bei Pelletsfeuerungen mittels keramischer Gassensoren*, Vortrag auf dem 9. Industrieforum Pellets, Stuttgart, 07. Okt. 2009