

# Modelling and Simulation of SO<sub>x</sub> and NO<sub>x</sub> Formation under Oxy-Coal Combustion Conditions

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

vorgelegt von  
**Michael Müller**  
geboren in Ochsenfurt

---

Hauptberichter:	Prof. Dr. techn. Günter Scheffknecht
Mitberichter:	Prof. Dr. Filip Johnsson
Tag der mündlichen Prüfung:	23.09.2015

---

Institut für Feuerungs- und Kraftwerkstechnik  
der Universität Stuttgart  
2015



Berichte aus der Energietechnik

**Michael Müller**

**Modelling and Simulation of SO<sub>x</sub> and NO<sub>x</sub> Formation  
under Oxy-Coal Combustion Conditions**

D 93 (Diss. Universität Stuttgart)

Shaker Verlag  
Aachen 2015

**Bibliographic information published by the Deutsche Nationalbibliothek**

The Deutsche Nationalbibliothek lists this publication in the Deutsche Nationalbibliografie; detailed bibliographic data are available in the Internet at <http://dnb.d-nb.de>.

Zugl.: Stuttgart, Univ., Diss., 2015

Copyright Shaker Verlag 2015

All rights reserved. No part of this publication may be reproduced, stored in a retrieval system, or transmitted, in any form or by any means, electronic, mechanical, photocopying, recording or otherwise, without the prior permission of the publishers.

Printed in Germany.

ISBN 978-3-8440-4059-3

ISSN 0945-0726

Shaker Verlag GmbH • P.O. BOX 101818 • D-52018 Aachen

Phone: 0049/2407/9596-0 • Telefax: 0049/2407/9596-9

Internet: [www.shaker.de](http://www.shaker.de) • e-mail: [info@shaker.de](mailto:info@shaker.de)

---

# Danksagung

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Tätigkeit als akademischer Mitarbeiter am Institut für Feuerungs- und Kraftwerkstechnik (IFK, vormals: Institut für Verfahrenstechnik und Dampfkesselwesen, IVD) der Universität Stuttgart.

Mein erster Dank gilt daher Herrn Prof. Dr. techn. Günter Scheffknecht, dem Leiter des IFK, der mir die Möglichkeit zur Erstellung dieser Arbeit geboten hat. Ich danke ihm für die fachlichen Anregungen und die Begutachtung meiner Arbeit sowie Herrn Prof. Dr. Filip Johnsson für die Übernahme des Koreferats.

Dank gebührt weiter allen Mitarbeitern am Institut für ihre Hilfsbereitschaft und die ausgesprochen kollegiale Arbeitsatmosphäre während meiner Zeit am IFK. Hierbei ist Herr Prof. Dr.-Ing. Uwe Schnell, Leiter der Abteilung Feuerungs- und Dampferzeugersimulation, besonders hervorzuheben. Ohne seine fortwährende, sehr vertrauensvolle Unterstützung und unermüdliche Diskussionsbereitschaft wäre meine Arbeit in dieser Form sicherlich niemals entstanden. Meinen Abteilungskollegen bin ich ebenso zu großem Dank verpflichtet für all die fachlichen (und auch nicht-fachlichen) Diskussionen, die wir gemeinsam geführt haben. Dank für die gegenseitige Unterstützung und Verbundenheit gilt daher den Herren Olaf Lemp, Dominik Kurz, Syawaluddin Akbar, Mohammed Anany, Jens Hetzer, Simon Leiser, Marcel Beirow, Heiko Dieter, Harold Garcia, Navid Ghavami, Claus Nagel sowie meinen ehemaligen Bürogenossen Alan Matschke und Max Weidmann – es war mir eine Freude. Hier sollte auch das ÖZ-Café Erwähnung finden, das uns stets mit hervorragender Kaffeequalität versorgt und damit den mittäglichen Mensa-Gang unermesslich aufgewertet hat.

Für die gute Zusammenarbeit und den intensiven fachlichen Austausch in den Projektphasen sowie die Bereitstellung der experimentellen Ergebnisse an der KSVa schulde ich Simon Grathwohl und Jörg Maier besonderen Dank. Bhupesh Dhungel danke ich für die Bereitstellung der Messungen an der BTS. Weiterhin möchte ich es nicht versäumen, mich bei Uschi Docter, Renate Klein, Antje Radszuweit, und Marja Steinlechner zu bedanken, die ihre jungen Kollegen immer hilfsbereit bei sämtlichen Fragen und verwaltungstechnischen Formalitäten unterstützen.

Nicht zuletzt gilt mein großer Dank meinen Eltern für ihr stetes Zutrauen und ihre volle Unterstützung in allen Lebenslagen. Der Wert ihres Rückhalts kann nicht hoch genug

---

eingeschätzt werden. Ein besonders herzlicher Dank für die liebevolle Unterstützung sowie die beinahe unendliche Geduld während der Fertigstellung dieser Arbeit gebührt meiner Frau Stefanie und unseren beiden Söhnen Jakob und Levi. Ihnen bin ich zutiefst dankbar für ihr Verständnis und die anhaltende Rücksichtnahme in den finalen Zügen sowie für jedes aufmunternde Lächeln und ihr ansteckendes Lachen.

Stuttgart, im Herbst 2015

Michael Müller

---

# Contents

<b>Nomenclature</b>	<b>VII</b>
<b>Abstract</b>	<b>XIII</b>
<b>Kurzfassung</b>	<b>XV</b>
<b>1 Introduction</b>	<b>1</b>
1.1 Motivation: pollutants and CCS	1
1.2 Objective and outline	4
<b>2 State of the art — literature review</b>	<b>7</b>
2.1 The oxy-fuel process for CCS	7
2.2 Implications of oxy-fuel combustion conditions	9
2.2.1 General considerations and effect on heat transfer	9
2.2.2 Effect on fuel conversion and chemical reactions	10
2.2.3 Effect on pollutant formation	12
2.3 CFD modelling of oxy-fuel combustion	14
2.3.1 Analytic CFD studies	14
2.3.2 Model extensions and development	17
<b>3 Fundamentals of CFD combustion modelling</b>	<b>23</b>
3.1 Basic equations	23
3.1.1 Conservation equations	24
3.1.2 Equations of state	26
3.2 Discretization and solution procedure	27
3.3 Implications of multi-phase flow and turbulence	29
3.4 Modelling oxy-coal combustion using <i>AIOLOS</i>	32
3.4.1 Coal conversion and chemical reactions	33
3.4.2 Radiative heat transfer	39
<b>4 Turbulence modelling</b>	<b>43</b>
4.1 General aspects on turbulence	43
4.2 Theory on RANS turbulence models	46
4.2.1 The Standard $k-\epsilon$ model	48
4.2.2 The RNG $k-\epsilon$ model	50
4.2.3 The $k-\omega$ SST model	51
4.2.4 Wall functions for eddy viscosity models	53
4.3 Model evaluation against turbulent flames	56

4.3.1	Piloted methane/air jet flame (Flame D)	56
4.3.2	Entrained flow combustion reactor (BTS)	63
4.3.3	Pulverized fuel combustion rig (KSVA)	66
4.4	Summary	73
<b>5</b>	<b>SO<sub>x</sub> modelling</b>	<b>75</b>
5.1	Fate of sulphur at coal combustion conditions	75
5.2	Modelling sulphur conversion pathways	78
<b>6</b>	<b>NO<sub>x</sub> modelling</b>	<b>85</b>
6.1	Fate of nitrogen at coal combustion conditions	85
6.2	Modelling nitrogen conversion pathways	88
<b>7</b>	<b>Evaluation of SO<sub>x</sub> and NO<sub>x</sub> model</b>	<b>93</b>
7.1	Validation at laboratory scale	93
7.1.1	Fate of sulphur	94
7.1.2	Fate of nitrogen	98
7.2	Validation at semi-industrial scale	101
7.2.1	Comparison of air-fired and oxy-fuel combustion	103
7.2.2	Impact of turbulence modelling setup	110
<b>8</b>	<b>Conclusions and recommendations</b>	<b>113</b>
<b>A</b>	<b>Kinetics of global reaction model</b>	<b>117</b>
<b>B</b>	<b>Shrinking Core Model correlations</b>	<b>121</b>
<b>C</b>	<b>Experimental setup of BTS cases</b>	<b>123</b>
<b>D</b>	<b>Experimental setup of KSVA cases</b>	<b>124</b>
	<b>References</b>	<b>127</b>