

# Technische Maßnahmen zur Minderung von Verbrennungsaerosolen

H.-R. Paur, W. Baumann, B. Becker, H. Mätzing, H. Seifert, ITC

## Einleitung

Aerosole, wie zum Beispiel der Rauch aus Verbrennungsanlagen für Abfall und Biomasse (Holz, Stroh etc.), sind disperse Systeme von Feinstpartikeln und Gasen [1]. Charakteristisch für Aerosole ist die Wechselwirkung der Feinstpartikeln untereinander sowie mit der sie umgebenden Gasphase, die zur Änderung der Anzahlkonzentration, der Partikelgrößenverteilung sowie der chemischen Zusammensetzung führt.

Zur Rückhaltung der Feinstpartikeln und Schadgase werden komplexe und teure verfahrenstechnische Anlagen eingesetzt. In den letzten Jahren sind für Anlagen, die nach der 17.BImSchV (Abfallverbrennungsanlagen-Verordnung) genehmigt werden, eine Reihe von „perfekten“ Problemlösungen entwickelt worden, deren Vermarktung und Export aber schwierig ist. Darüber hinaus fehlen einfache Abgasreinigungsanlagen für die im Inland zunehmend eingesetzten Feuerungsanlagen für Biomasse und organische Abfälle insbesondere kleinerer Leistung.

Die wesentlichen Prozesse der Aerosolbildung bei der Verbren-

nung und der Abgasreinigung sind bisher nur in Teilbereichen identifiziert und verstanden. Daher werden oftmals zu aufwendige Verfahren für einzelne Schadstoffe (Feinstpartikeln, gas- und partikelförmige Dioxine, saure Schadgase) eingesetzt, um die gesetzlichen Emissionsgrenzwerte sicher zu unterschreiten. Ziel des Forschungs- und Entwicklungsprogramms „Technische Aerosole“ ist daher die Aufklärung der Aerosolprozesse in technischen Anlagen durch experimentelle und modelltheoretische Arbeiten. So werden die Voraussetzungen für die Vermeidung der Aerosolbildung bei Verbrennungsprozessen sowie für die Integration von Reinigungsstufen geschaffen.

Am Beispiel einer modernen Abfallverbrennungsanlage wird die Bedeutung der Aerosolprozesse deutlich: Nach der Feuerung und dem Kessel sind eine Vielzahl von Komponenten wie z.B. Partikelfilter, Sprühabsorber, Wäscher, Katalysatoren und Adsorber installiert in denen Aerosolprozesse stattfinden, die zur Bildung, Umwandlung und Abscheidung von Schadstoffen führen (Abb. 1).

Außer wirtschaftlichen und wissenschaftlichen Gründen für eine intensive Erforschung der Verbrennungsaerosole ergeben auch umweltpolitische Vorgaben der EU-Kommission einen Handlungsbedarf. Wegen epidemiologischer Hinweise auf die Toxizität von Feinstpartikeln [2] wurden im Jahr 1999 die EU-Immissionsgrenzwerte für Feinstaub (<10 µm) abgesenkt [3]. Zudem besteht auch, in Hinblick auf den politisch gewünschten Einsatz von nachwachsenden Rohstoffen zur Energiegewinnung, ein Bedarf für effektive Vermeidungs- und Minderungsverfahren von Feinstpartikelemissionen, ohne die Wirtschaftlichkeit der Verbrennungsprozesse zu beeinträchtigen.

Die Minderung der Aerosolemission bei Abfallverbrennungsanlagen kann durch primäre und sekundäre Maßnahmen erfolgen. Die Optimierung der Verbrennungstechnik (Primärmaßnahmen) mindert die Massenkonzentration der vom Verbrennungsprozess selbst emittierten Partikeln, indem die Masse der gasförmigen Aerosolvorläufer reduziert wird. Die Abgasreinigung (Sekundärmaßnahme) reduziert sowohl die Massenkonzentration als auch die Anzahlkonzentration der Partikeln. Durch die Kombination beider Maßnahmen soll ein wirtschaftliches Optimum erreicht werden, mit dem die einschlägigen Grenzwerte der 17. BImSchV sicher erfüllt werden können.

Im folgenden wird die Bildung des Verbrennungsaerosols und seine Charakterisierung dargestellt. Sodann wird die Modellierung

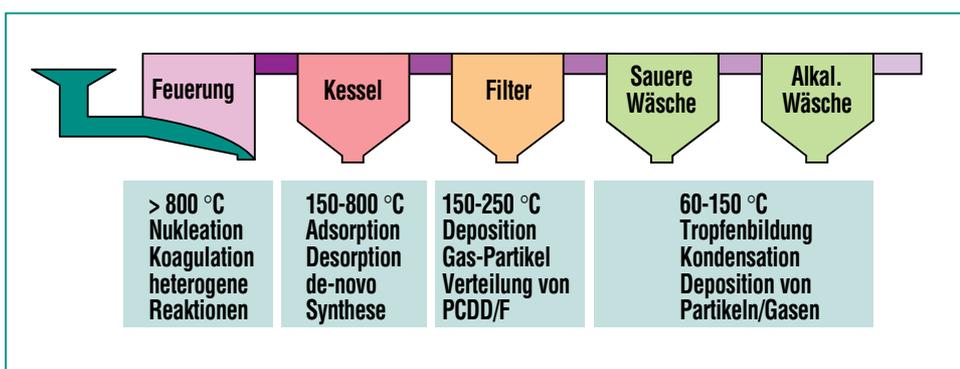


Abb. 1: Aerosolprozesse in einer Verbrennungsanlage.

des Aerosolverhaltens in technischen Anlagen diskutiert. Im dritten Teil werden neuere Untersuchungen zu Bildung und Umwandlung von Dioxinen behandelt. Abschließend werden Beiträge zur Bildung und Umwandlung von Aerosolen in Wäschern sowie kompakte Aerosolabscheider beschrieben.

### Bildungsmechanismen und Charakterisierung des Verbrennungsaerosols

Das Verbrennungsaerosol besteht, je nach Brennstoff und Feuerungstechnik, aus unterschiedlichen Komponenten, die in einer weiten Bandbreite variieren.

Bei der Verbrennung von Biomasse und Abfällen entstehen Ruß, Teer und Aschen; daneben verbleibt Unverbranntes:

- Ruß besteht aus graphitähnlichem Kohlenstoff, der durch chemische Reaktionen aus gasförmigen Vorläufern (z.B. Acetylen) entsteht (Abb. 2).
- Teer entsteht durch Kondensation der Pyrolyseprodukte, also nicht vollständig abreagierter Kohlenwasserstoffe.
- Flugaschen entstehen bei der Verbrennung von Brennstoffen, wie z.B. Kohle, Holz, Schweröl, Abfall etc., die mineralische Bestandteile enthalten (Abb. 3).
- Bei unvollständiger Verbrennung können auch teilweise abreagierte Kohlenstoffpartikeln im Verbrennungsaerosol auftreten.

Der Mechanismus der Rußbildung in Flammen wird noch immer intensiv untersucht und ist bisher nur zum Teil aufgeklärt. Die Primärreaktionen von  $\text{CH}_x$ -Radikalen mit Acetylen führen zum Benzol als Zwischenprodukt. Im sogenannten HACA-Mechanismus (Hydrogen Abstraction – Acetylene Addition) kann dann Benzol mit Acetylen reagieren und bildet polyzyklische Aromaten (PAH). Diese bilden durch Oligomerisation sog. „Aromere“, die entweder durch weitere Addition von Acetylen wachsen bzw. Vor-

stufe der Fullerene sind. In Abhängigkeit von den Dampfdrücken der Additionsprodukte entstehen sodann Primärpartikeln. Die Primärpartikeln wachsen schnell durch Koagulation und bilden Rußaerosole. Die Rußaerosole sind selbst reaktiv und können weiterhin mit gasförmigen Stoffen (Sauerstoff, Acetylen) reagieren bzw. flüchtige Stoffe adsorbieren.

Die Flugaschebildung bei der Verbrennung von Abfällen ist bisher noch nicht untersucht. Kaup-

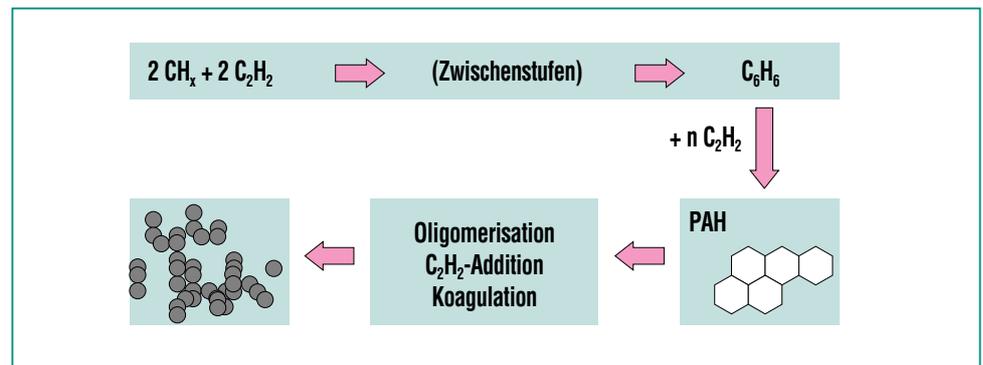


Abb. 2 : Mechanismus der Rußbildung bei der Verbrennung (vereinfacht nach Frenklach, 1992 [4], Homann, 1998 [5]).

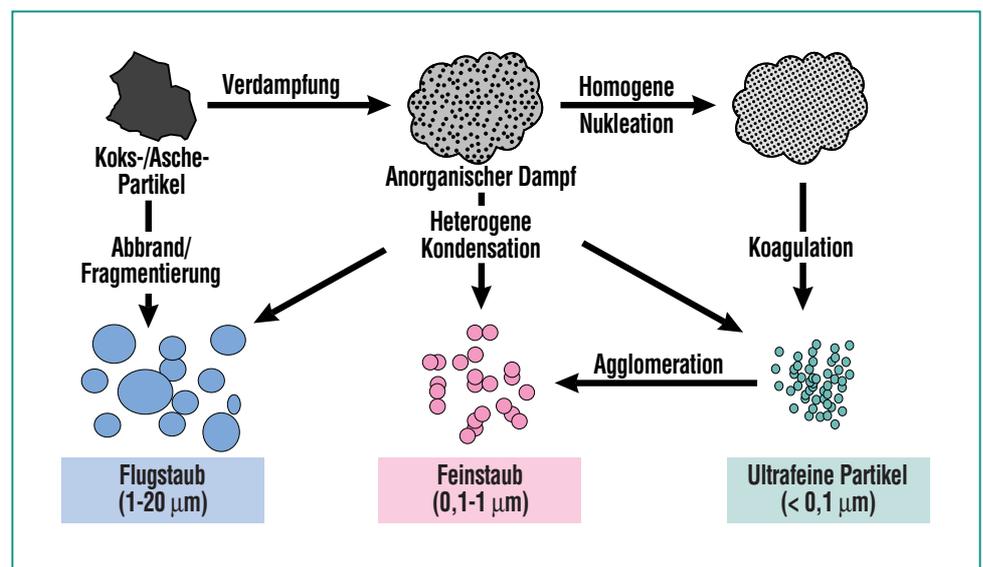


Abb. 3: Aerosolbildung bei der Verbrennung von Koks/Asche-Partikeln.

pinen und Pakkanen [6] unterscheiden bei der Verbrennung von Koks-/Kohle-Partikeln drei Mechanismen (Abb. 3).

- Direkter Abbrand der Koks-/Asche-Partikel führt zu schmelzflüssigen anorganischen Partikeln, die fragmentieren und Flugstaub ( $d = 1\text{-}20\ \mu\text{m}$ ) bilden.
- Flüchtige anorganische Bestandteile verdampfen bei höheren Temperaturen ( $1400\text{-}1600\ \text{°C}$ ). Aus der Gasphase nukleieren bei Abkühlung Primärpartikeln, die schnell zu ultrafeinen Partikeln (UFP;  $d < 0,1\ \mu\text{m}$ ) koagulieren.
- Durch Agglomeration der UFP entstehen größere Partikel, die i.a. als Feinstaub ( $d = 0,1\text{-}1\ \mu\text{m}$ ) bezeichnet werden.

Zusätzlich kondensiert der verbliebene anorganische Dampf

beim Abkühlen auf den vorher gebildeten Partikeln unterschiedlicher Größe und lässt diese weiter anwachsen. Die letztendlich gemessene Größenverteilung des Feinstaubes entsteht aus der Konkurrenz der Nukleation, Kondensation und Koagulation/Agglomeration. Die Gas-Partikelreaktionen im Feuerraum von Verbrennungsanlagen sind noch weitgehend unerforscht. Jedoch gibt es neuere experimentelle Hinweise auf die Reaktion C-haltiger Partikeln mit  $\text{NO}_x$ , die zum  $\text{NO}_x$ -Abbau führen. Die heterogenen Reaktionen organischer Chlorverbindungen, die Dioxine produzieren werden derzeit experimentell und theoretisch untersucht [16].

Bei Versuchen an der TAMARA-Anlage konnte die Größenverteilung des bei der Rostverbrennung von Abfällen entstehenden Aerosols erstmals durch REM und DMA im Bereich  $10\text{-}1000\ \text{nm}$  cha-

rakterisiert werden [7, 8] (Abb. 4). In der Anzahlverteilung liegen 2 Maxima (Modi) vor, einer bei  $40\ \text{nm}$  und einer bei  $150\ \text{nm}$ . Gemäß einer parallel durchgeführten Impaktormessung besteht 60% der Masse dieses Aerosols aus Partikeln, die kleiner als  $1\ \mu\text{m}$  sind. Ein ähnlicher Befund wurde auch bei der Beprobung des Aerosols einer Holzfeuerung [9] erhalten. Dort wurden 65-80 Massen-% des Gesamtstaubes in der Feinfraktion unter  $1\ \mu\text{m}$  gefunden. Während die TAMARA-Partikeln nur etwa 0,1% Kohlenstoff enthalten, beträgt der Anteil von Kohlenstoff im Holzverbrennungsaerosol, je nach Güte der Feuerung, etwa 40% der gesamten Partikelmasse.

### Modellierung des Aerosolverhaltens

Die vollständige Beschreibung des Aerosolverhaltens umfasst die in der Abb. 5 gezeigten Aero-

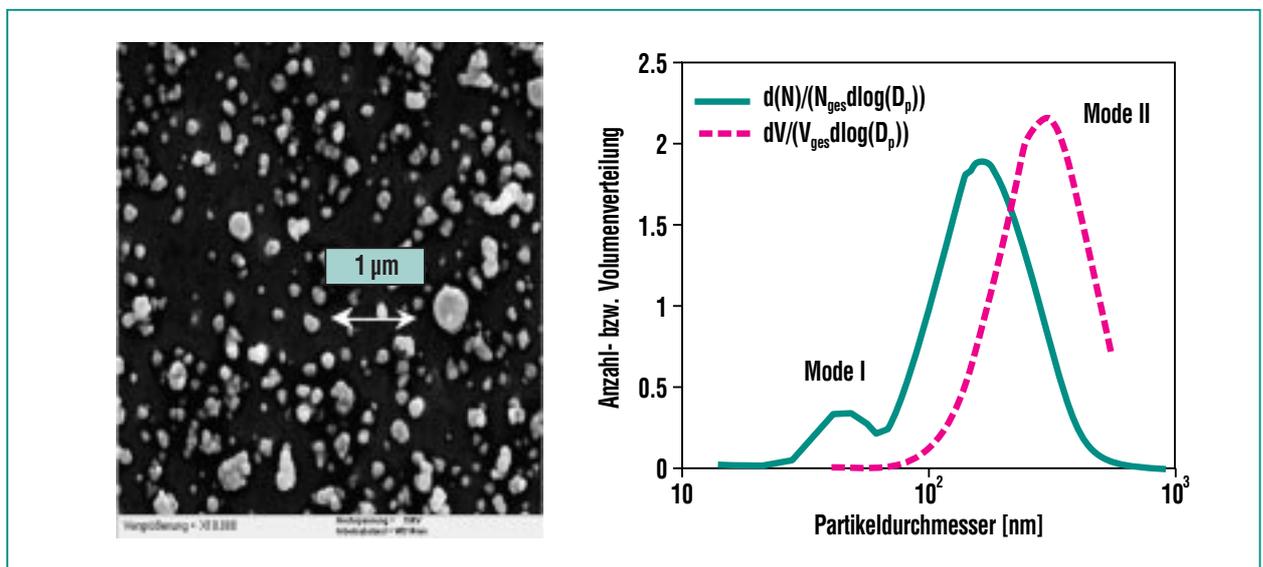
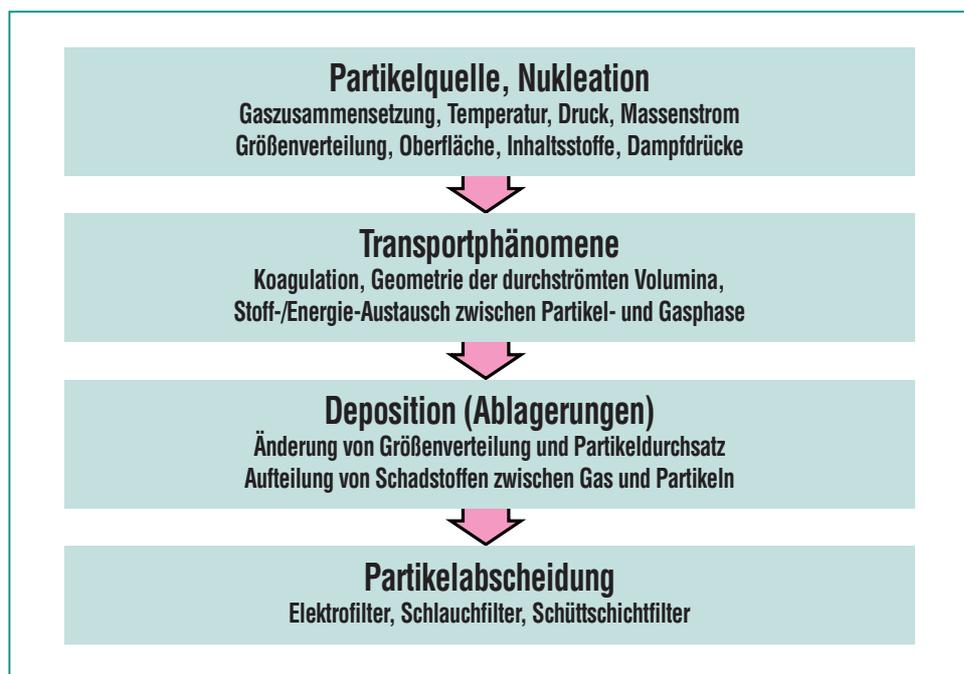


Abb. 4: Rasterelektronenmikroskopische (REM)-Aufnahme des TAMARA-Aerosols und mittels differentiellem Mobilitätsanalysator (DMA) gemessene Partikelgrößenverteilung des TAMARA-Aerosols vor Schlauchfilter [7, 8].

solprozesse, beginnend mit der Partikelbildung und über einige Transportprozesse und Ablagerungsmechanismen bis hin zur Filtration. Dabei wird nicht ausgeschlossen, daß einige dieser Aerosolprozesse an mehreren Stellen von z.B. Abfallverbrennungsanlagen stattfinden können (Abb. 1). Dort ist nicht nur der Brennraum als Partikelquelle zu betrachten, sondern auch die in Quenchen und Wäschern eingedüsten Wassertropfen sowie in ungünstigen Fällen die Anlagenteile der Rauchgasreinigungsstrecke, die durch ihre niedrige Temperatur und ihren hohen Wassergehalt den Gas-Partikel-Übergang von nicht vollständig ausgewaschenen Säure- und Salzbildnern ermöglichen. In ähnlicher Weise ist auch mit den übrigen in Abb. 5 genannten Aerosolprozessen an mehreren Stellen technischer Anlagen, unter ggf. sehr unterschiedlichen thermodynamischen Bedingungen, zu rechnen.

Ein Rechenmodell [10] zur quantitativen Beschreibung des Aerosolverhaltens in technischen Anlagen erfordert also die Berücksichtigung und Verknüpfung von Aerosoldynamik, Thermodynamik, Reaktionskinetik und Strömungsmechanik. Voraussetzung für die Machbarkeit eines solchen Vorhabens ist die Wahl eines geeigneten mathematischen Verfahrens zur Lösung der Koagulationsgleichungen bzw. der General Dynamics Equation (GDE). Das Lösungsverfahren soll die für die übrigen Transport- und Reaktionsgleichungen benötigten Aerosoleigenschaften mit bestmöglicher Genauigkeit und möglichst



**Abb. 5: Aerosolprozesse und zu modellierende Anlagenparameter.**

geringem Zeitaufwand berechnen, und es soll mit den anderen Modellteilen verknüpfbar sein. Diese Forderungen lassen sich mit der sog. Momentenmethode erfüllen. Dabei wird der Typ der Größenverteilung oder auch die Überlagerung mehrerer Verteilungen vorgegeben, und es werden – im Gegensatz zu diskreten Modellen – nur integrale Aerosoleigenschaften berechnet, z.B. mittlerer Durchmesser, mittlere Oberfläche, mittleres Volumen (= Momente). Einzelne Größenklassen werden nicht explizit aufgelöst. Daher rührt die geringe Rechenzeit und eine implizit höhere Genauigkeit bzgl. der Massenerhaltung im Vergleich zu diskreten Verfahren. Nachteile der Momentenmethode sind die Beschränkung auf wenige Typen von Größenverteilungen (z.B. log-normal) und auf Fälle, in denen der Kelvin-Effekt vernachlässig-

bar ist, der die Abhängigkeit des Dampfdrucks von der Partikelgröße beschreibt. Die Einschränkung auf log-Normalverteilungen ist unkritisch, da technische Aerosole i.a. gut mit log-Normalverteilungen charakterisiert werden können. Die Vernachlässigung des Kelvin-Effekts ist solange tragbar, wie neben dem Partikeldurchmesser andere Größen (Temperatur, Zusammensetzung etc.) den Dampfdruck der Partikel wesentlich bestimmen. Die Nachteile der Momentenmethode werden durch die Anwendbarkeit auf komplizierte Strömungsverhältnisse, z.B. in gekrümmten Rohrleitungen, Wäschern und Filtern, bei weitem aufgehoben. Darüber hinaus können Abweichungen der Partikel von der Kugelform durch Formfaktoren berücksichtigt werden.

In technischen Abfallverbrennungsanlagen treten häufig Parti-

kel unterschiedlicher stofflicher Zusammensetzung und Größenklassen gleichzeitig auf z.B. Flugasche und Ruß, filtergängiger Staub und Wassertropfen. Um diese Fälle wenigstens qualitativ berücksichtigen zu können, wurde das Aerosolmodell auf binäre, bimodale Größenverteilungen ausgelegt.

Mit Hilfe des Modells [10] kann das Größenwachstum von Natriumsulfatpartikeln in Wäschern berechnet werden. Die Abb. 6 zeigt einen Vergleich zwischen der Modellrechnung und dem Experiment. Bei der Erhöhung der relativen Feuchte über Natriumsulfatpartikeln steigt der Partikeldurchmesser um etwa den Faktor 3. Die Partikelvergrößerung ist demzufolge vor allem auf die Kondensation von Wasserdampf

auf die trockenen Salzpartikeln zurückzuführen. Zur Zeit wird der Aerosolcode für die Berechnung der Gas-Partikelverteilung von schwerflüchtigen Aromaten (Dioxinen) weiterentwickelt.

### Bildung und Gas/Partikel-Verteilung von Dioxinen

Polychlorierte Dibenzo-p-dioxine und -furane (PCDD/F) bilden sich bei der Rauchgasabkühlung nach der Verbrennung von Haus- und Sondermüll, aber auch in Holzfeuerungen und bei der Metallverarbeitung. Im Gegensatz zur Bildung von PAH und Ruß entstehen die PCDD/F nicht als direkte Verbrennungsprodukte im Brennraum, sondern hauptsächlich in der Abkühlungszone bei Temperaturen unter 600 °C. Als Bil-

dungsreaktionen werden in der Literatur eine Vielzahl von Reaktionen diskutiert, die in homogener Gasphase, in der kondensierten Phase oder auch heterogen ablaufen, d.h. unter Beteiligung gasförmiger und kondensierter (bzw. fester) Stoffe. Die Reaktionsmechanismen lassen sich in der Reihenfolge steigender Komplexität ordnen:

- homogene Gasphasenreaktionen geeigneter Vorläufersubstanzen
- heterogene Kohlenstoffoxidation mit PCDD/F als Nebenprodukt (de novo-Synthese)
- Gas-Feststoffreaktionen gasförmiger Vorläufersubstanzen
- Gas-Feststoffreaktionen kondensierter Vorläufersubstanzen
- Gas-Feststoffreaktionen gasförmiger und kondensierter Vorläufersubstanzen.

Alle diese Mechanismen sind experimentell untersucht worden, jedoch war es bisher nicht möglich, einem dieser Mechanismen eine eindeutige Präferenz zuzuordnen. Die Arbeit von Shaub und Tsang [11] hat bewirkt, daß homogene Gasphasenmechanismen von den meisten Autoren als unbedeutende PCDD/F-Quellen angesehen werden. Von den heterogenen Mechanismen erscheint die de novo Synthese schon deshalb als wichtigster PCDD/F-Bildungsmechanismus, weil die Konzentration an unverbranntem bzw. elementarem Kohlenstoff mit über 1 g pro kg

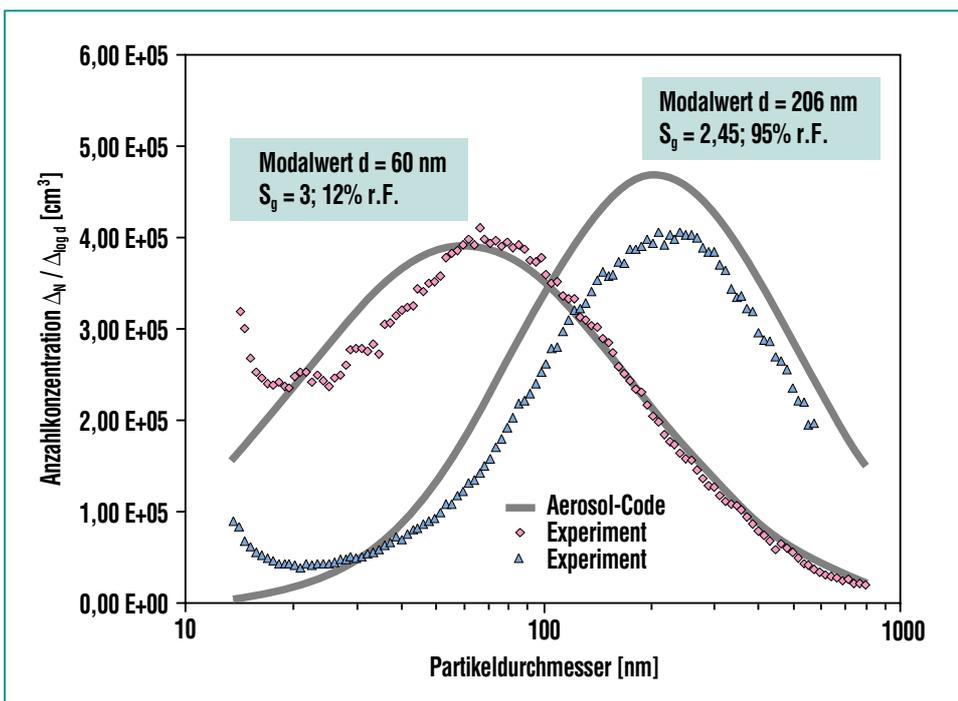


Abb. 6: Wachstum von Natriumsulfataerosol in Abhängigkeit von der relativen Feuchte. Vergleich von experimentellen Daten (Messung mit Mobilitätsanalysator) und Ergebnissen der Modellrechnung.

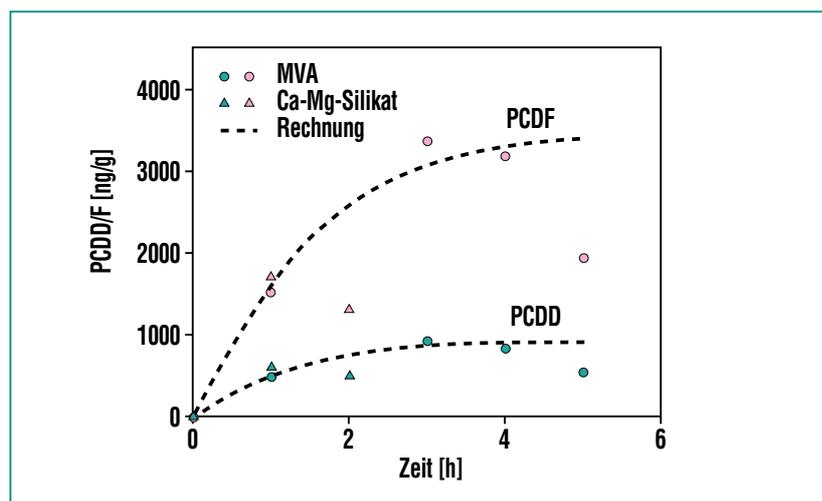
Staub sehr viel größer ist als die Konzentration sonstiger organischer Stoffe (unter 10 mg pro kg Staub). Daher wurde die de novo Synthese intensiv experimentell untersucht und eine Optimierung des Ausbrands als Primärmaßnahme zur PCDD/F-Minderung angestrebt [12],[13]. In Laborexperimenten wurde gefunden, dass die Voraussetzungen für die de novo Synthese von PCDD/F denkbar einfach sind: Die Anwesenheit von Kohlenstoff und Chlor (bzw. Chlorid) in den Stäuben und von gasförmigem Sauerstoff im Rauchgas reicht aus, um die de novo Synthese einzuleiten, die eine ausgeprägte Temperaturabhängigkeit besitzt und im Temperaturbereich 300-400 °C besonders schnell abläuft. Darüber hinaus können weitere Rauchgaskomponenten die PCDD/F-Bildung beeinflussen. Z.B. katalysieren bestimmte Metallionen, insbesondere  $\text{Cu}^{2+}$ , die PCDD/F-Bildungsreaktionen. Die Parameterabhängigkeit der de novo Synthese ist experimentell bereits so ausführlich untersucht worden, dass sie sich mit Hilfe eines Computermodells nachrechnen lässt [14]. Abb. 7 zeigt den Vergleich zwischen der experimentell bestimmten und mittels Computermodell berechneten Bildung von polychlorierten Dioxinen und Furanen.

Die übrigen heterogenen Bildungsmechanismen sind experimentell nur sehr schwer zugänglich. Es ist aber bekannt, daß die Reaktion von Chloraromaten z.B. Trichlorphenol in Gegenwart von

Müllverbrennungsflugaschen zur Dioxinbildung führt. Diese Reaktion ist um mehrere Größenordnungen schneller, als die Dioxinbildung aus elementarem Kohlenstoff. Weitere experimentelle und theoretische Arbeiten sind nötig, um die Bildungsmechanismen von PCDD/F aufzuklären und nach ihrer Wichtigkeit einzuordnen.

Durch die Optimierung des Ausbrandes und durch Reduzierung der Verweilzeit im kritischen Temperaturbereich ist es bereits gelungen, die Dioxinbildung in Müllverbrennungsanlagen zu reduzieren [16]. Der vom Gesetzgeber geforderte Emissionsgrenzwert von  $0.1 \text{ ng TEQ}/\text{m}_\text{N}^3$  \*) wird jedoch durch diese Primärmaßnahmen allein noch nicht erreicht, so dass üblicherweise weitere Sekundärmaßnahmen erforderlich sind. Wie erst in jüngster Zeit festgestellt wurde, besteht das für die

Emissionsbegrenzung entscheidende Problem nicht nur in einer zu hohen, unerwünschten Dioxin- und Furanbildung. Entscheidend ist vielmehr die ungünstige Verteilung der Dioxine und Furane zwischen der Partikelphase und der Gasphase. Wegen ihrer relativ hohen Flüchtigkeit bleibt ein großer Teil der PCDD/F nicht an den Staubpartikeln adsorbiert, sondern verdampft in die Gasphase. Dieser Anteil ist von vielen Parametern abhängig, z.B. vom Dampfdruck der PCDD/F, von den stofflichen Eigenschaften der Partikel und von der Temperatur. In modernen Müllverbrennungsanlagen erreicht der filtergängige PCDD/F-Anteil häufig 50%. Von den (nassen) Rauchgasreinigungskomponenten nach Filter wird dieser Anteil nicht gemindert. Er kann sich dort sogar anreichern und dadurch eine latente PCDD/F-Quelle darstellen, die überhaupt nicht mehr mit dem



**Abb. 7: Vergleich von Experiment [15] und Modellrechnung [14]: PCDD/F-Bildung auf extrahierter Flugasche und Modellflugasche (300°C, trocken).**

\*) Als TEQ werden die nach NATO-CMMS berechneten Toxizitätsäquivalente bezeichnet. Hierbei werden die Konzentrationen der toxischen Dioxine und Furane (gemessen in  $\text{ng}/\text{m}_\text{N}^3$ ) durch Multiplikation mit Toxizitätsäquivalentfaktoren auf die Konzentration von 2,3,7,8- $\text{Cl}_4$ -Dibenzodioxin umgerechnet, die in ihrer Toxizität der gesamten Dioxinfracht entsprechen würde.

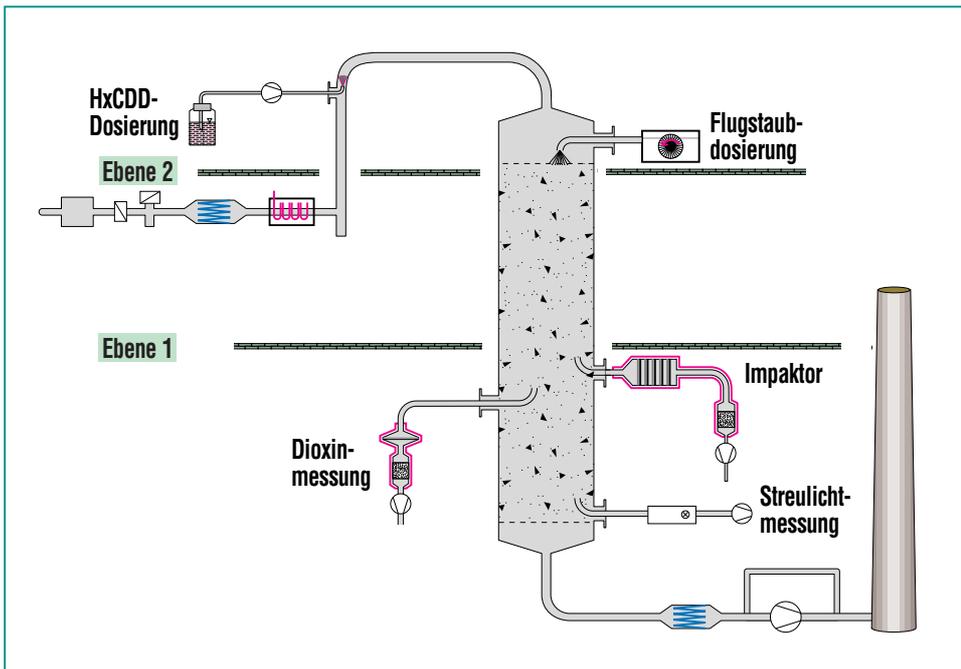


Abb. 8: Fließbild der Versuchsanlage AEOLA.

Verbrennungsprozess korreliert (sog. Memory-Effekt [18]).

Um diese Situation besser verstehen und handhaben zu können, wird die Gas-/Partikel-Verteilung der PCDD/F untersucht. Wegen des großen Parameterfeldes wird dazu eine Vorgehensweise gewählt, in der sowohl Grundlagenexperimente unter wohl definierten Bedingungen, als auch Untersuchungen an einer großtechnischen Müllverbrennungsanlage durchgeführt, miteinander verglichen und modelltheoretisch interpretiert werden. Die Grundlagenexperimente werden am Versuchsstand AEOLA durchgeführt. Mit dieser Technikumsanlage (Abb. 8) ist es möglich, verschiedene Volumenströme an Luft bzw. Rauchgas aus einer Leichtölfeuerung einzustellen. Die Versuche können in einem Temperaturbereich zwi-

schen 25 °C und 200 °C durchgeführt werden. In den Versuchen wird eine definierte Menge an Staub und eine Hexanlösung eines nicht-toxischen Hexachlordibenzodioxins (HxCDD) in einen Trägergasstrom aus Luft bzw. Rauchgas eindosiert. Die Staubdosierung wird mittels einer

Streulichtmessung überwacht. Die eindosierte Dioxinmenge kann aus der kontinuierlichen Messung der Hexankonzentration durch Flammenionisationsdetektor berechnet werden. Die sich nach einer bekannten Aufenthaltszeit einstellende Gas-/Partikel-Verteilung des HxCDD wird in Abhängigkeit von der Temperatur gemessen.

Das partikelgebundene Dioxin wird durch Glasfaserfilter oder Impaktoren abgeschieden. Der flüchtige Anteil wird an XAD-Harz adsorbiert. Das Dioxin wird durch Extraktion aus dem Staub bzw. dem XAD-Harz isoliert und der Extrakt wird durch Säulenchromatographie gereinigt. Das Dioxin wird dann im Gaschromatographen mit Elektroneneinfangdetektor quantifiziert.

Abb. 9 zeigt die Temperaturabhängigkeit der Gasphasenkonzentration des verwendeten Referenzdioxins HxCDD in Gegenwart von resuspendiertem TAMARA-Flugstaub. Während bei 135 °C das Referenzdioxin fast ausschließlich in der Gas-

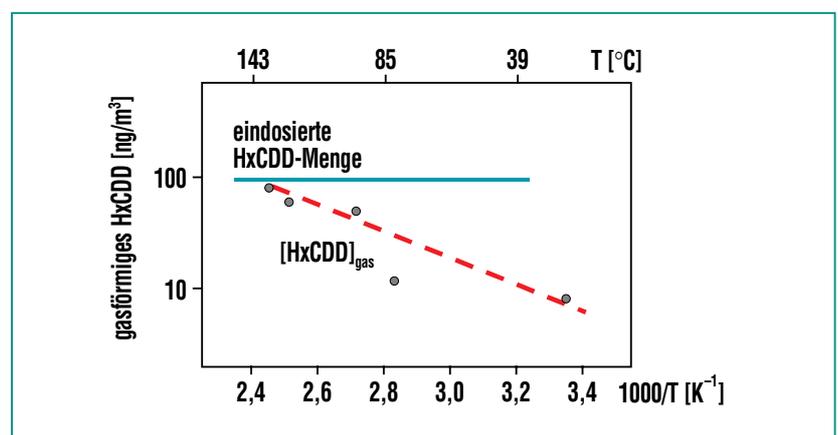


Abb. 9: Abhängigkeit des gasförmigen Anteils von Hexachlorodibenzodioxin von der Temperatur in Gegenwart von resuspendiertem TAMARA-Flugstaub.

phase vorliegt, nimmt der partikelförmige Anteil bei 25 °C bis auf über 90 % zu. In weiteren Experimenten wird der Einfluss der chemischen Zusammensetzung des Flugstaubes näher untersucht, um anhand der gewonnenen Daten optimale Bedingungen für die Einbindung der PCDD/F in die Partikelphase zu erreichen.

### Aerosolbildung und Aerosolminderung in Wäschern

Trotz der Anwendung von Partikelfiltern kann im Bereich der Gaswäscher eine Aerosolemission auftreten, die zur Überschreitung der Emissionsgrenzwerte führt. Diese ist auf unzureichende Abscheidung der Partikelfilter im Feinstpartikelbereich [18] oder auf die sekundäre Bildung von Aerosolen in Wäschern [19] zurückzuführen. Um einfache Abscheider für diese Aerosole zu entwickeln, werden Laboruntersuchungen zum Partikelwachstum von Müllverbrennungsflugaschen in Wäschern sowie zur Rückhaltung der angewachsenen Partikeln mit einem Aerosolabscheidesystem im Technikumsmaßstab durchgeführt.

In einem Strömungsreaktor wurden Flugaschepartikeln aus der TAMARA-Anlage mittels eines Bürstendosierers in trockene Luft dispergiert. Bei Erhöhung der relativen Feuchte im Reaktor bis zu einem Wert von ca. 65 % r.F. wird keine Änderung der Größenverteilung der Flugaschepartikeln beobachtet. Erhöht man die relative Feuchte weiter, wachsen die Partikeln an und die Verteilungsbreite wird kleiner. Das beobach-

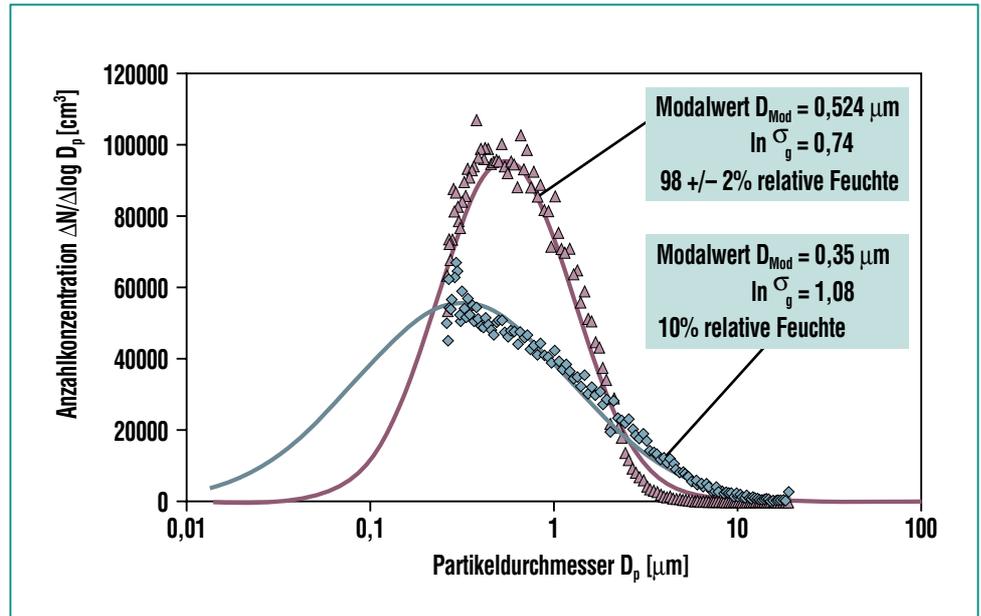


Abb. 10: Partikelgrößenverteilung redispergierter TAMARA-Flugasche bei niedriger und bei hoher relativer Luftfeuchtigkeit (Messung mit Streulichtanalysator).

tete Partikelwachstum der Flugaschepartikeln ist kleiner als das Wachstum der Natriumsulfatpartikeln in Abb. 6. Bei einer relativen Feuchte von  $98 \pm 2\%$  beträgt das maximale Partikelwachstum etwa einen Faktor 1,7. Der Effekt der Partikelvergrößerung kann trotzdem zur Abscheidung von Flugaschepartikeln mit einem Aerosolabscheidesystem genutzt werden. Der prinzipielle Aufbau dieses Abscheidesystems ist in Abb. 11 dargestellt.

Nach dem Vorabscheider wird durch die Eindüsung feiner Flüssigkeitstropfen mittels einer Zweistoffdüse ein Partikelwachstum eingeleitet. Das angewachsene Partikelkollektiv durchströmt den Abscheider (Agglomerator-Packung) vertikal von unten nach oben. Die Packung wird zur Abreinigung mit Wasser geflutet. Dazu dient eine Einstoffdüse, die

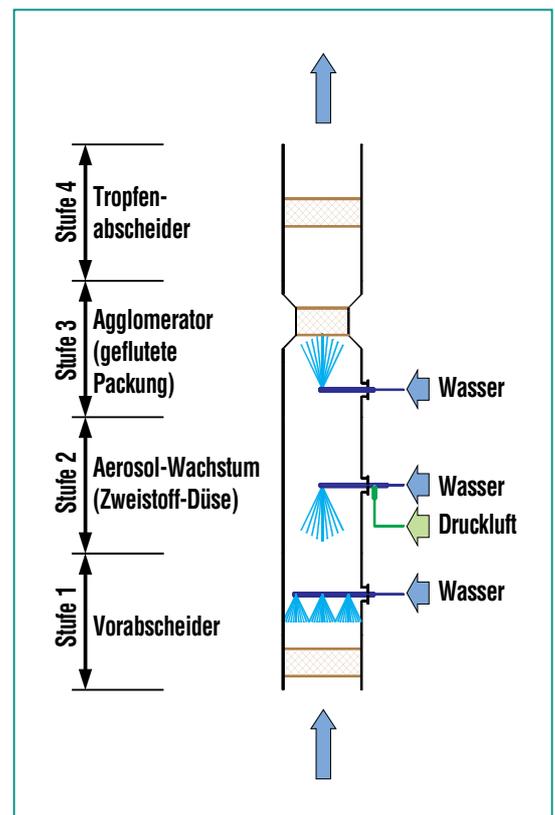


Abb. 11: Aerosolabscheidesystem.

direkt unterhalb der Packung angeordnet ist. Nach der Agglomerator-Packung ist ein Tropfenabscheider eingebaut, der die von der Strömung mitgerissenen Tropfen zurückhält. Erste Untersuchungen mit redispergiertem TAMARA-Flugstaub zeigen, je nach Betriebsbedingungen, Abscheidegrade im Bereich von 90 bis 98%. Im Betrieb mit Flutung wurde über die gesamte Versuchsdauer ein konstanter Druckverlust der Agglomerator-Packung von ca. 20 mbar gemessen. Zur Beurteilung des Langzeitverhaltens sind weitere Untersuchungen mit einer mobilen Aerosolabscheideanlage im Rahmen eines vom Land Baden-Württemberg geförderten Verbundvorhabens geplant.

### Zusammenfassung

Die Emission von Aerosolen bei Verbrennung von Abfällen und Biomasse soll durch die Optimierung der Verbrennungstechnik

sowie durch kostengünstige Abgasreinigungsverfahren vermindert werden. Hierzu müssen die Bildungsmechanismen der Verbrennungsaerosole, deren heterogene Reaktionen und Umwandlung in der Verbrennungsanlage und der Abgasreinigungsanlage experimentell untersucht werden und Modellrechnungen zur quantitativen Beschreibung entwickelt werden.

Um integrierte Verfahren zur Minderung von PCDD/F auszulegen werden die Parameter aufgeklärt, die zur Bildung und Umwandlung von Dioxinen in technischen Verbrennungsanlagen führen. Eine Modellrechnung zum Partikelwachstum in Wäschern wurde entwickelt und durch Vergleich mit experimentellen Daten validiert. Zur Abscheidung von Feinstpartikeln werden Aerosolabscheider untersucht, die in Wäscher integriert sind, um bessere Auslegungsgrundlagen für diese Verfahren zu erhalten.

### Danksagung

Die Autoren danken Frau Eichelberger, Herrn Woletz, Herrn Mackert und Herrn Mundt für ihre engagierte technische Mitarbeit. Wir bedanken uns auch für die gute Zusammenarbeit mit den Kollegen von den Universitäten Stuttgart und Karlsruhe im Rahmen der Verbundforschung Baden-Württemberg „Zukunftsoffensive Junge Generation“ sowie für die Förderung der Landesregierung im Rahmen von BW-PLUS.

## Literatur

- [1] Stichwort „Aerosole“ im VDI-Lexikon Umwelttechnik, Herausgeber. F. J. Dreyhaupt; VDI-Verlag GmbH, Düsseldorf (1994) S.83 – 85.
- [2] G.D. Thurston, *Journal of Exposure Analysis and Environmental Epidemiology*, Vol.6, No.1, S.3 – 21 (1996)
- [3] „Richtlinie 1999/30/EG des Rates vom 22.April 1999 über Grenzwerte für Schwefeldioxid, Stickstoffdioxid und Stickstoffoxide, Partikel und Blei in der Luft“ in Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften vom 29.6.1999, DE, L 163/41; Anhang III „Grenzwerte für Partikel“ (1999).
- [4] M. Frenklach, H. Wang „Detailed Mechanism and Modeling of Soot Particle Formation“ in *Soot Formation in Combustion*, H. Bockhorn (Ed.). Springer-Verlag (1994). S. 165-192.
- [5] K.-H. Homann, *Angew.Chem* 111, 2572-2590 (1998)
- [6] E.I. Kauppinen, T.A. Pakkanen, *Environ Sci. Tech.* (1990)
- [7] G. Kasper, M. Katzer, „Problems and Approaches to measuring Nanometer size Aerosols at High Concentrations“; ESF-Workshop „High Temperature Sampling and in-situ Measurement of Nanoparticles“; Forschungszentrum Karlsruhe, May 21 and 22, 1999.
- [8] H.-R. Paur, G. Baumbach, W. Baumann, A.Dreizler, K.R.G.Hein, H.Heller, G.Kasper, M. Katzer, Th.Klingel, U.Maas, H.Mätzing, K.Schaber, H.Seifert, A.P. Weber, B.Wende, „Verfahren zur kostengünstigen Vermeidung und Verminderung von Aerosolen in Prozessen zur energetischen Nutzung von Biomasse und Abfällen“; 1. Zwischenbericht zum Verbundvorhaben (Karlsruhe, Stuttgart Oktober 1999).
- [9] G. Baumbach, H. Heller, U. Maas, T. Klingel, A. Dreizler, „Physikalische und chemische Grundlagen der Holzverbrennung und der Raucherstehung“ in „2. Stuttgarter Holzfeuerungskolloquium am 21. September 1999 – Mit moderner Feuerungstechnik zur rauchfreien Holzverbrennung“ Universität Stuttgart, Institut für Verfahrenstechnik und Dampfkesselwesen – Abteilung Reinhaltung der Luft Bericht 43 – 1999.
- [10] H. Mätzing, *Wissenschaftliche Berichte, FZKA 6004* (1997).
- [11] W.M. Shaub, W. Tsang, *Environ. Sci. Technol.* 17, (1983) 721 - 730.
- [12] H. Vogg, L. Stieglitz, *Chemosphere* 15, (1986) 1373 - 1378.
- [13] H. Vogg, H. Hunsinger „Symposium 25 Jahre LIT, 5 Jahre TAMARA“. *Wissenschaftliche Berichte, Kernforschungszentrum Karlsruhe, KfK 5000* (1992).
- [14] H. Mätzing, *Mechanismen der PCDDIF-Bildung. Wissenschaftliche Berichte, FZKA 6424* (2000).
- [15] Jiménez Leal, „Umsetzung von Kohlenwasserstoffen an Flugaschen unter besonderer Berücksichtigung der Bildung organischer Chlorverbindungen“; *Dissertation Universität Heidelberg; Forschungszentrum Karlsruhe, FZKA 6159* (1998).
- [16] L. Stieglitz, *Environ. Eng. Science* 15 (1998), 5 - 18.
- [17] H. Hunsinger, S. Kreis, H. Seifert, *Chemosphere* 37 (1998), 2293 - 2297.
- [18] F. Löffler, „Staubabscheider“ (1988) Georg Thieme Verlag (Stuttgart New York) ISBN 3-13-712201-5
- [19] F. Ehrler, K. Schaber, „Spontane Kondensation und Aerosolbildung“ (1997); *VDI-Wärmeatlas* (8. Auflage) Je 1 – Je 35.