KfK 4792 Februar 1991

Entstehung und Verbrauch von Stickoxiden während der Verbrennung

P. Dransfeld Laboratorium für Isotopentechnik Projekt Schadstoffbeherrschung in der Umwelt

Kernforschungszentrum Karlsruhe

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Laboratorium für Isotopentechnik

Projekt Schadstoffbeherrschung in der Umwelt

KfK 4792

ENTSTEHUNG UND VERBRAUCH VON STICKOXIDEN WÄHREND DER VERBRENNUNG

Peter Dransfeld

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE GMBH, KARLSRUHE

Als Manuskript gedruckt Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH Postfach 3640, 7500 Karlsruhe 1

ISSN 0303-4003

Entstehung und Verbrauch von Stickoxiden während der Verbrennung

Zusammenfassung

Die vorliegende Übersicht führt ein in die Elementarreaktionen, die die Entstehung und den Verbrauch von Stickoxiden während der Verbrennung regulieren. Der Einfluß einer turbulenten Durchmischung auf die NO_X -Emission wird diskutiert. Die sich daraus ableitenden Auswirkungen einer Änderung des Größenmaßstabs – insbesondere bei einem Scale-down auf Laborofengröße – auf das NO_X -Niveau wird aufgezeigt.

Formation and Consumption of Nitric Oxides During Combustion

Abstract

The present review introduces to the elementary reactions which govern the build-up and the consumption of nitrogen oxides during combustion. The influence of turbulent mixing on the NO_X -emission level will be discussed. As a result, the consequences of a change of scale due to different mixing behaviour will be pointed out.

T 1-	- 7	<u>ــ ـه</u>					4
$\pm nna$	а⊥	τs	ve	\mathbf{rz}	eı	cnn	15
							_

1. Einleitung	Seite 3
2. Entstehung und Verbrauch von Stickoxiden während der Ver brennung	- 3
2.1 Kinetik	3
 2.1.1 Brennstoff NO 2.1.2 Thermisches NO 2.1.3 Promptes NO 2.1.4 Einfluß von Wasser, Chlor, Metallen und heterogenen P zessen 	5 7 8 ro- 9
2.2 Turbulente Diffusionsflammen	10
2.3 Modellrechnungen	11
3. Gasströmung und Durchmischung in Müllverbrennungsöfen	13
3.1 Kenngrößen und prinzipieller Strömungsverlauf	13
3.2 Durchmischung im Ofen	15
3.2.1 Wandturbulenz 3.2.2 Freie Turbulenz 3.2.3 Auftriebserzeugte Strömungen	18 22 24
4. Maßstabsverkleinerte Labormodelle	26

Literatur

1. Einleitung

Die neuere Entwicklung im Bereich der Hausmüllverbrennungsanlagen geht aus Gründen der Wirtschaftlichkeit und der Emissionsminderung hin zu höheren Feuerraumtemperaturen und zu längeren Verweilzeiten [1]. Angestrebt werden Verweilzeiten von 2s, besser 3s bei Temperaturen um 1000[°] C. Diese drastischen Bedingungen sind nötig zur Einhaltung des geforderten CO-Grenzwertes von 50 mg/m³.

Es soll an dieser Stelle nicht diskutiert werden, inwieweit dieser Grenzwert vernünftig ist, obwohl nach Ansicht des Autors an der Zweckmäßigkeit der Vorschrift durchaus Zweifel angebracht sind. Vielmehr sollen in der vorliegenden Arbeit die Auswirkungen der angestrebten Bedingungen auf die NO_X -Bildung und die Durchmischung diskutiert werden.

Höhere Temperaturen machen neben einer erhöhten Luftvorwärmung geringere Luftzahlen erforderlich. Dies führt ebenso wie die Erhöhung der Aufenthaltszeit auf kleinere Strömungsgeschwindigkeiten.

Die Frage nach der Effizienz der turbulenten Durchmischung erlangt daher eine zentrale Bedeutung. Dies gilt in einem noch stärkeren Maß für maßstabsverkleinerte Technikums- oder gar Labormodelle.

2. <u>Entstehung und Verbrauch von Stickoxiden während der</u> <u>Verbrennung</u>

2.1 Kinetik

Bei der Entstehung von Stickoxiden werden traditionell drei Bildungsweisen unterschieden. Thermisches NO entsteht durch langsame Oxidation von N_2 im Zeldovich-System [16]. Brennstoff NO entsteht durch Oxidation des im Brennstoff enthaltenen Stickstoffs [17]. Dabei handelt es sich im wesentlichen um die Oxidation von cyanidischen Spezies und Ammoniakabkömmlingen. Sie sind die Pyrolyseprodukte von stickstoffhaltigen Brennstoffmolekülen.

Promptes NO [18] entsteht in der frühen Phase der Verbrennung vorzugsweise auf der fetten Seite. Dabei reagiert N_2 mit Kohlenwasserstoffradikalen unter Bildung von Cyaniden, die weiter zu NO oxidiert werden.



Abb. 1a: Prinzipielles Radikalreaktionsschema der NO-Konvertierung im H-N-C-O System [19]

Anm.: Nicht aufgenommen wurden H-Atom-Reaktionen, die vielfach für eine Umwandlung innerhalb der Radikalklassen sorgen. Beispiele: NH₂+H ---> NH+H₂, NCO+H ---> NH+CO.

Abb. 1b: Hauptreaktionsmechanismus der NO-Bildung und des NO-Verbrauchs in der Nachverbrennungszone



Die Zahl der unmittelbar in die NO-Entstehung oder den NO-Verbrauch involvierten Elementarreaktionen ist überschaubar. Abb. 1 gibt eine Übersicht [19]. Bemerkenswert ist, daß die Radikale, die NO in N₂ umwandeln können, dieselben sind, bei deren Oxidation NO entsteht.

Von den in Abb. 1a aufgelisteten Radikalen sind meistens einige - abhängig von den jeweiligen Reaktionsbedingungen - vernachlässigbar, so daß sich das Reaktionsschema im Einzelfall weiter So existiert beispielsweise ein vereinfachen läßt. [H]abhängiges pseudo Gleichgewicht zwischen den NH_i [26] oder CH; Radikalen, das bei höheren H-Atomkonzentrationen die wasserstoffärmeren Radikale bevorzugt. In H-reichen Acetylenflammen wird daher NO überwiegend über N-Atome abgebaut [21b], in anderen Kohlenwasserstoffflammen jedoch hauptsächlich über NH oder NH₂.

Für NO_x -Minderungsmaßnahmen im Ofen ist von den NH_i -Radikalen das NH_2 zu bevorzugen. In ihrer Reaktivität gegenüber NO unterscheiden sich die NH_i -Radikale nicht wesentlich. Dagegen nimmt die Reaktivität gegenüber Kohlenwasserstoffen, molekularem Sauerstoff oder CO und CO₂ ganz erheblich zu in der Reihe NH_2 , NH, N. Die Radikale NH und N können daher nur dort höhere quasistationäre Konzentrationen erreichen, wo der Hauptreaktionsumsatz stattfindet.

2.1.1 Brennstoff NO

In fetten Flammen liegt der Brennstoffstickstoff hinter der Flammenfront zunächst als HCN vor [17]. Das HCN wird in den irreversiblen Schritten

	HCN + OH	>	HNCO + H
	H + HNCO	>	$NH_i + CO$
	HCN + O	>	NH ⁺ CO
sowie	HCN + OH	~==>	$H_2O + CN$
	CN + OH	>	NCO + H
	$CN + O_2$	>	NCO + O
	H + NCO	>	NH _i + CO

die unterschiedliche Temperaturabhängigkeiten aufweisen, in NH_i konvertiert [17, 21b]. In vorgemischten stöchiometrischen oder mageren Flammen wird dagegen nahezu der gesamte Brennstoffstickstoff in NO_x umgewandelt. Dabei ist es relativ unerheblich in welcher Form der Brennstoffstickstoff vorgelegen hat, was auf einen einheitlichen Mechanismus schließen läßt, wonach auch in stöchiometrischen oder mageren Flammen brennstoffgebundener Stickstoff in der Flammenfront zunächst in HCN umgewandelt wird, das HCN zu NH_i und schließlich das NH_i zu NO reagiert. Das erklärt, warum die Konvertierung zu NO nahezu unabhängig davon ist, ob die Flammen mit organischen Aminen oder Ammoniak gedopt werden (siehe die zusammenfassende Darstellung [29]).

Das Ausmaß der NO-Bildung wird damit im wesentlichen durch die Konkurrenzreaktionen

	NCO + OX	>	NO
	NCO + H	>	NHi
sowie			
	$NH_{i} + OX$	>	NO
	$NH_{i}^{-} + NO$	>	N ₂ 0i

bestimmt.

Von den aufgeführten Reaktionen bewirken die meisten lediglich eine Umverteilung innerhalb des Brennstoffstickstoffpools. Allein die Reaktionen vom Typ

$$NH_i + NO ---> N_2O_i$$

vermögen eine N-N-Bindung zu knüpfen. Sie stellen damit eine echte NO-Senke dar. Das NHi ist vermutlich nur in Abwesenheit von Kohlenwasserstoffradikalen existenzfähig. Es ist im allgemeinen also dort zugegen, wo auch Sauerstoff ist und kann dann auch prinzipiell oxidiert werden. Diese Oxidation zu NO ist in gewissen Teilen notwendige Voraussetzung zur dauerhaften Umwandlung in N_2O_i -Verbindungen, weil sie den zweiten Reaktanden in der obigen Reaktion stellt.

Der Erfolg der NO_X -Minderung hängt damit ausschließlich davon ab, wie gut es gelingt, die Balance zu halten bei dem Akt, NH_i nur in dem Maß zu NO zu oxidieren, wie NO mit verbliebenem NH_i auch abreagiert.

Diese Gratwanderung gelingt am ehesten auf niedrigem Temperaturniveau. Da Kohlenwasserstoffradikale wirksam den vorzeitigen Aufbau nennenswerter NH_i - oder NO-Konzentrationen verhindern, empfiehlt es sich, vor Erreichen des geeigneten Temperaturbereichs im fetten Bereich zu bleiben. Erwähnenswert ist, daß die im fetten Bereich zu N₂ reduzierte Stickstoffmenge mit zu-

nehmendem Äquivalenzverhältnis ein thermodynamisch bestimmtes Maximum durchläuft [42, 43] und daß diese Gleichgewichtseinstellung bei Temperaturen um 1900 K noch etwa $\tau_{\frac{1}{2}} \simeq 20$ ms erfordert [43].

Auf diesen Prinzipien fußen alle Primärmaßnahmen zur Minderung von NO_X , insbesondere auch die Konzepte Wirbelschicht – und gestufte Verbrennung, wobei bei der Wirbelschichtfeuerung auch heterogene NO-Minderungsprozesse eine Rolle spielen.

Messungen von NO, NH₃, HCN, CH₁ und weiteren Produkten über dem Gutbett von rostverfeuerter Kohle mit einem Flüchtigenanteil von 40% [27] bestätigen die Gültigkeit dieser Zusammenhänge auch für Bedingungen, die in die Nähe von Müllverbrennungsbedingungen kommen. Diese Untersuchung zeigt, daß bei einer Absenkung der Temperatur über dem Gutbett die NH₃-Konzentration (oder die HNCO-Konzentration, was bei der verwendeten Analytik nicht zu unterscheiden war) zunimmt und die NO-Konzentration abnimmt. Diese niedrigeren Temperaturen dürften Müllverbrennungsbedingungen noch näher kommen. Das so erreichte NO-Niveau lag, abhängig von der Luftzahl im Gutbett, zwischen 140 und 430 ppm (bezogen auf 12% CO₂).

2.1.2 Thermisches NO

Die bisher genannten Reaktionen laufen mit Geschwindigkeitskonstanten nahe der gaskinetischen Stoßzahl ab. Die Stickstoffoxidation im Zeldovich-System ist dagegen wesentlich langsamer. Setzt man in der Reaktionsfolge

(1)
$$N + O_2 ---> NO + O$$

(2) $O + N_2 ---> NO + N$

die N-Atomkonzentration als quasistationär an, hat man

$$\frac{dNO}{dt} = 2 k_2 [N_2] [O]$$

Mit $k_2 = \frac{7 \cdot 10^{13}}{cm / mol s} exp - \frac{75, 5/kcal/mol}{RT}$

und der O-Atomkonzentration im Gleichgewicht

$$[0]_{eq} = \frac{[0]^{0,5}}{[mol/cm]} 4,1 exp - \frac{58,3/kcal/mol}{RT}$$

beträgt der zeitliche Verlauf der NO-Konzentration

 $\frac{dNO}{dt} = 5,74 \ 10^{14} \ \exp \left[-\frac{133,8/kcal/mol}{RT}\right] [N_2] [O_2]^{0,5}$

Nachstehend sind für $\Delta t = 1s$, $[N_2] = 0,7$ bar und $[O_2] = 0,06$ bar die zu erwartenden NO-Konzentrationen für einige Temperaturen angegeben.

T/K	1000	1500	1800	2000	2200	2400
ΔNO mol/cm ³	2,3 10 ⁻²³	7,1 10 ⁻¹⁴	9,6 10 ⁻¹¹	3,5 10 ⁻⁹	6,4 10 ⁻⁸	7,2 10 ⁻⁷
оид таа	1,9 10 ⁻¹³	8,9 10 ⁻⁴	1,4	58	1200	14 400

Da die O-Atomkonzentration im allgemeinen deutlich über der Gleichgewichtskonzentration in Flammen liegt, führen diese Zahlen auf zu niedrige NO-Konzentrationen. Immerhin läßt sich jedoch feststellen, daß unterhalb von 1800 K das Zeldovich System keinen wesentlichen Beitrag zur NO_x-Emission leistet.

Im allgemeinen wird argumentiert, daß die Temperatur in Müllverbrennungsöfen wegen des hohen Wasseranteils und des üblicherweise hohen Luftüberschusses nicht allzu hoch ist. Dies trifft jedoch nur zu für die Verhältnisse nach vollkommener Durchmischung aller Teilgasströme. In der Hauptverbrennungszone muß die mittlere Temperatur um den Verdünnungsfaktor höher liegen und kann lokal unter stöchiometrischen Bedingungen Spitzen um 2000 K erreichen, worauf bereits an anderer Stelle [30] hingewiesen wurde. Thermisches NO kann daher auch in Müllverbrennungsanlagen durchaus eine gewisse Bedeutung erlangen. Schlechte Durchmischung und damit lokal lange Verweilzeit bei hoher Temperatur verstärkt diese Bedeutung. Die von Reimers - wie eingangs erwähnt - aufgezeigten Entwicklungstendenzen im führen daher, was das thermische NO angeht, Ofenbau in der Tendenz auf höhere Emisssionswerte, was bereits von Reimers eingeräumt wurde.

2.1.3 Promptes NO

In fetten Flammen entsteht auch ohne daß diese Brennstoffstickstoff enthalten in der Anfangsphase rascher NO als durch die langsamen Reaktionen des Zeldovich Systems erklärt werden kann, wenn man Gleichgewichtskonzentrationen für [O] annimmt. Eine Überbesetzung der Gleichgewichts-Radikalkonzentrationen in Flammen ist bekannt, jedoch reichen diese Konzentrationen nicht aus, um die hohen NO-Konzentrationen zu Reaktionsbeginn zu erklären [44, 45]. Fenimore postulierte daher schon frühzeitig [46, 47] die Einbindung von Luftstickstoff über Reaktionen von Kohlenwasserstoffradikalen wie

```
\begin{array}{cccc} CH + N_2 & ---> & HCN + N \\ C_2 + N_2 & ---> & 2 & CN \end{array}
```

Das HCN- oder CN-Radikal kann dann in der bekannten Weise zu NO oxidiert werden. Brennstoff NO und Prompt NO unterscheiden sich damit nur in der Herkunft ihres gemeinsamen Vorläufers HCN. Die Reihe der Kohlenwasserstoffradikale, die für die N₂-Fixierung verantwortlich sind, wurde gelegentlich ergänzt um Spezies wie CH₂, C₂H, C, C₃ und ließe sich erweitern um Teilchen in angeregten elektronischen Zuständen wie z.B. CH₂ (a ¹A₁).Eine endgültige Klärung steht noch aus.

Messungen der Prompt-NO-Ausbeute über einen weiten Bereich in $1 < p/bar \le 18$ und 0,6 < ϕ < 1,4 für Ethylen-Luft Flammen [48] zeigen, daß das Prompte NO bei 2000 K, $\phi \ge 0.8$ und 1 bar etwa 20 ppm NO liefert. Im Vergleich zum Brennstoff NO trägt das Prompt-NO also nur im untergeordneten Maß zur Gesamtemission bei.

De Soete [67] gibt für die NO- und N₂-Bildung in fetten und mageren Gemischen eine Gesamtgeschwindigkeitskonstante an. Glass und Wendt [68] leiteten aus Messungen an Kohlestaubflammen Gesamtgeschwindigkeitskonstanten für den Umsatz von HCN, NH₃ und NO ab.

2.1.4 <u>Einfluß von Wasser, Chlor, Metallen und heterogenen</u> <u>Prozessen</u>

Der Einfluß von HCl, Cl₂ und Metallsalzen, die im Ofen gasförmig vorliegen und deren Konzentrationen 1000 ppm übersteigen können, wird andernorts [28] zusammen mit den heterogenen Reaktionen zwischen NO und Flugstaub beschrieben werden.

Hier soll nur kurz der Einfluß von Wasser, das wegen des hohen Feuchtegehalts von Müll für die Müllverbrennung eine gewisse Bedeutung erlangen könnte, erwähnt werden. Die Verbrennung von Kohle-Wasser Slurries hat neben einer Reihe von weiteren Vor-

teilen [40] auch eine Reduzierung der NO_X-Emissionen zur Folge. Die Gründe dafür sind vielfältig. Neben einem schlichten Verdünnungseffekt hat die Temperaturabsenkung Einfluß auf das Thermische NO. Es kommt aber auch zu chemischen Wechselwirkungen zwischen dem Wasser und der Kohle sowie der Prompten NO-Bildung [41] und dem Brennstoff NO, da erhöhte Wasserkonzentrationen beispielsweise das Gleichgewicht [17]

 $HCN + OH \equiv CN + H_2O$

oder das Gleichgewicht [66]

 $H_2 + OH = H_2O + H$

auf die linke Seite verschieben.

Wie bereits erwähnt, werden die Gasströme aus Trocknungszone und Hauptverbrennungszone erst relativ spät vermischt, so daß der Einfluß von Wasser sich auf die Chemie der Nachverbrennungszone beschränkt. Auch vom thermischen $DeNO_X$ ist bekannt, daß seine Effektivität von der H₂O-Konzentration abhängt [63].

2.2 Turbulente Diffusionsflammen

Ob an einem bestimmten Punkt im Ofenraum NO gebildet oder verbraucht wird, hängt allein von den lokalen Konzentrationen und der Temperatur ab.

Die praktisch bedeutenden Verbrennungsprozesse sind ganz überwiegend turbulente Diffusionsflammen. Sie zeichnen sich dadurch aus, daß stark zerteilt, brennstoffreiche Gebiete neben oxidansreichen Gebieten existieren. Der Stoffumsatz selbst läuft in einer vergleichsweise dünnen Grenzschicht ab.

Im Hinblick auf die NO_x -Emissionen ist diese Situation wesentlich günstiger als in Vormischflammen, denn durch die Vermischung NO-reicher Zonen mit NH_i -reichen Bereichen kann ein nennenswerter Teil des Brennstoffstickstoffs irreversibel in N_2O_i umgewandelt werden. Ein weiterer Teil wird in HCN konvertiert, das dann die allgemeine Reaktionsfolge erneut durchlaufen kann [31, 32]. Bemerkenswert ist, daß das NO-Maximum stets etwas im fetten Bereich liegt [34]. Das Ausmaß der Brennstoffstickstoffkonvertierung zu N_2 hängt stark von der Durchmischung ab. In laminaren Diffusionsflammen ist im allgemeinen die Überführung in N_2 recht gut. Sie wird bei Umschlag in eine

turbulente Strömung mit zunehmender Re-Zahl rasch schlechter [33] und nähert sich dem NO-Niveau in vergleichbaren Vormischflammen. Die langsame NO-Bildung im Zeldovich-System verhält sich umgekehrt, wenn auch nur schwach ausgeprägt [34, 35, 36]. Mit zunehmendem Turbulenzgrad wird die Zone, in der thermisches NO entsteht, breiter. Gleichzeitig nimmt die Bildungsgeschwindigkeit jedoch ab, was die Verbreiterung der Reaktionszone etwas überkompensiert, so daß insgesamt die NO-Produktion mit zunehmendem Turbulenzgrad abnimmt.

einfachen Modellvorstellungen [36, 9] zur thermischen Die NO-Bildung führen jedoch offenbar nur in H₂-Luft Flammen auf zuverlässige Vorhersagen. In turbulenten Kohlenwasserstoffflammen wird das Zeldovich-System von der HCN-Chemie überlagert [37, 38], so daß einfache Turbulenzmodelle versagen. Es ist daher durchaus möglich, daß die gute Übereinstimmung zwischen Experimenten an Propanflammen und Modellvorstellungen [36] ist. Die von Peters [36a] zufällig vorgetragenen Argumente gegen eine Beteiligung von Strahlungseffekten [39] sind daher nicht ganz stichhaltig.

2.3 Modellrechnungen

Die in Abb. 1 dargestellten Reaktionen sind ebenso wie die weit größere Zahl der Reaktionen, die zu diesen Radikalen führen, gut untersucht. Das Reaktionsnetzwerk kann daher grundsätzlich gerechnet werden. Für einfache Flammen ist die Übereinstimmung zwischen Rechnung und Messung gut [21]. Bei komplexeren Flammen wird die Genauigkeit der Rechnung limitiert durch die vergleichsweise groben strömungsmechanischen Modelle [20].

Die Dicke der Reaktionsschicht beträgt [7]

$$\delta_{\tau} = \frac{R < h> (T - T\infty)}{ \cdot \rho \cdot S_{u}/(T_{i}-T_{o})}$$

Mit

Diese Abschätzung mag einen Eindruck davon vermitteln, auf welchem Längenmaß sich das Reaktionsgeschehen im Flammen abspielt. Es ist derzeit nicht möglich, das turbulente Strömungsfeld beispielsweise eines Ofens mit dieser räumlichen Auflösung zu berechnen. Bei turbulenten Flammen ist man daher auf statistische Mittelwertbildung angewiesen.

Sofern ein einheitlicher Brennstoff eingesetzt wird, führt Ergebnisse. Mittelung auf durchaus brauchbare Bei der Müllverbrennung jedoch, die nebeneinander gänzlich unterschiedliche Materialien verbrennt, verbietet sich dagegen eine Mittelung, denn die Anfangsbedingungen sind unbekannt und auch experimentell nicht faßbar. Die Müllverbrennung ist daher detaillierten Modellrechnungen grundsätzlich nicht zugänglich. Sinnvoll einsetzbar sind Modellrechnungen zur Müllverbrennung jedoch dann, wenn man sich auf den Teil des Ofens beschränkt, den Anfangsbedingungen erhältlich sind, d.h. meßtechnisch für zugänglich sind. Dies gilt für den Ofenbereich hinreichend weit oberhalb des Gutbetts. Hier sind die Reaktionsumsätze langsamer die Konzentrationen sind über den Bereich von und einigen Zentimetern konstant.

Der Hauptreaktionsumsatz ist zu diesem Zeitpunkt bereits abgeschlossen. Die Konzentrationen von NO, CO sowie der Radikale können jedoch noch weit von ihren Endwerten entfernt sein und lassen sich auch noch in diesem Stadium durch Veränderungen der Feuerungsführung beeinflussen.

ist in Abb. 2 veranschaulicht. Dort ist der Müllverbren-Dies nungsprozeß stark schematisch wiedergegeben. Wie später gezeigt sind die Teilgasströme aus unterschiedlichen Rostbereiwird. chen nur unvollständig miteinander vermischt. Die bei der Verschwelung entstehenden potentiellen NO-Reduktionsmittel HCN NH2 im Verein mit Kohlenwasserstoffen vermischen sich und einerseits mit dem feuchten und relativ kalten Luftstrom aus der Trocknungszone. Sie bleiben dann lange Zeit nicht zündfähig werden vermutlich erst bei der Umlenkung in den und ersten Strahlungszug vollständig vermischt und abgebaut. Bei den im Strahlungszug herrschenden Bedingungen wirken sie überwiegend reduzierend auf NO.



Abb. 2: Stark schematische Übersicht des Müllverbrennungsprozesses

Schraffierte Fläche: Partiell durchmischter Bereich

Wenn die Schwelgase andererseits in die Hauptverbrennungszone eingemischt werden, dürften sie insgesamt eher zu einer Anhebung des NO-Niveaus in diesem Bereich beitragen.

Modellrechnungen und experimentelle Studien an Labormodellen, die von den sauber definierbaren Bedingungen im teildurchmischten Bereich ausgehen, können daher durchaus wertvolle Erkenntnisse zur Schadstoffminimierung mittels Primärmaßnahmen beisteuern.

Das hier angedeutete Konzept zur NO-Minderung sollte sich am raschesten mit den Vølund-öfen realisieren lassen, die bereits über eine räumliche Trennung der Luftströme aus Trocknungs-/ Schwelzone und der Hauptverbrennungszone verfügen.

3. Gasströmung und Durchmischung in Müllverbrennungsöfen

3.1 Kenngrößen und prinzipieller Strömungsverlauf

Typische Kenngrößen für Großanlagen und TAMARA sind in Tab. 1 zusammengestellt. Die Maßstabsverkleinerung auf TAMARA-Dimensionen erfolgte unter Beibehaltung der Feuerraumbelastung. Sie orientierte sich also an identischen Verweilzeiten im Feuerraum. Das bedingt, daß die Rostbelastung nicht konstant gehalten werden konnte. Bei einer unverzerrten Maßstabsverkleinerung sollte sich die Rostbelastung mit

$$Q_{\rm R}$$
 (1) = $Q_{\rm R}$ (2) $\sqrt[3]{\dot{m}(1)/\dot{m}(2)}$

ändern.

Dies ist für den TAMARA-Ofen nicht der Fall. Um die Rostbelastung in der TAMARA der von Großanlagen anzunähern, sind die Abmessungen des Rostes kleiner und die Höhe über dem Rost vergleichsweise größer als die Maße, die aus ähnlichkeitsgetreuer Maßstabsverkleinerung resultieren würden.

Strömungsverhältnisse:

Der prinzipielle Verlauf der Strömung in einer Gegenstromfeuerung ist in Abb. 3 dargestellt. Es muß beachtet werden, daß die Strömung turbulent ist. Der gezeigte Stromlinienverlauf bezeichnet die mittlere Durchflußrichtung. Individuelle Bahntrajektorien können sich stark davon unterscheiden. Bedingt durch den Auftrieb und durch die Umlenkung der Strömung in Richtung der Rostlängsachse kommt es zur Ausbildung einer Sekundärströmung im Ofenraum. Eine ebensolche Sekundärströmung bildet sich im Strahlungszug aus.

Der TAMARA-Ofen verfügt über luftgekühlte Feuerraumseitenwände, was die Sekundärströmung verstärkt. Derartige Tertiärluftsysteme finden sich auch an einigen Großanlagen. Wegen der Tendenz solcher Systeme zur Kaltsträhnenbildung wird jedoch empfohlen [1] diese Bauweise zu verlassen. Derartige Tertiärluftsysteme werden daher hier nicht weiter berücksichtigt.

Rechnet man die Reynoldszahlen an den mit A, B und C gekennzeichneten Kontrollflächen (siehe Abb. 3) aus, ergeben sich für den TAMARA-Ofen folgende Werte:

 $R_{\rho}(A) \simeq 1000$ $R_{\rho}(B) \simeq 5300$ $R_{\rho}(C) = 10000$

Die Strömung ist also bei A noch laminar und schlägt mit Zugabe der Hauptverbrennungsluft in eine turbulente Strömung um.

Hält man bei einer Maßstabänderung die Feuerraumbelastung konstant, ist die Reynoldszahl proportional

$$R_{\rho} \propto \dot{m}^{2/3}$$

Bei Großanlagen mit einem Mülldurchsatz, der um einen Faktor 100 größer ist als der der TAMARA, sind also die Re-Zahlen um einen Faktor 22 größer.

Die Strömungsgeschwindigkeit ist unter den gleichen Voraussetzungen proportional

 $v \propto m^{1/3}$

Sie ist also in Großanlagen um den Faktor 4,6 größer.

3.2 Durchmischung im Ofen

Mit Ausnahme der langsamen CO-Oxidation und der Bildung von thermischen NO sind die Reaktionsumsätze im allgemeinen begrenzt durch den Massentransport. Der Massentransport wird neben Sekundärströmungen vor allem durch die turbulente Strömung geleistet.

Zur Beurteilung, wie rasch die Stoffströme im Ofen turbulent durchmischt werden, haben sich Abschätzungen anhand des Prandtl'schen Mischungsweges [2, 5, 6, 49] und des Taylor Mikromaß bewährt [50, 51, 52, 53, 20]. Allerdings befindet man sich mit Re < 10000 im schwach turbulenten Bereich, für den theoretische Vorhersagen ungenauer werden.

Neben einer globalen turbulenten Rohrströmung (Wandturbulenz) kann an Ebenen, die mit unterschiedlicher Geschwindigkeit aufeinander gleiten, eine turbulente Scherströmung einsetzen. Dies sollte sich beispielsweise bei der Vermischung der Luftströme kurz hinter der Querschnittsfläche A (siehe Abb. 3) beobachten lassen.

Schließlich kann man die aus dem Gutbett heraustretenden Luftströme idealisiert als rotationssymmetrische Freistrahlen auffassen. Freistrahlen können ihren Impuls nicht nur aus der zugeführten Verbrennungsluft beziehen. Die mit der Wärmefreisetzung aus der Verbrennung verbundene Dichteänderung kann zu ausgeprägten auftriebsbeeinflußten Freistrahlen und verwandten Strömungsformen führen. Maßgebliche Kenngrößen für auftriebsbeeinflußte Strömungen sind u.a. die Grashof-Zahl und die Froude-Zahl (siehe Tab. 1).







Abb. 3: Primär- und Sekundärströmung im TAMARA-Ofen (schematisiert)

Tabelle 1: Kenngrößen von Müllverbrennungsöfen

	Symbol/Definition	Dimension	Großanlage	TAMARA
Heizwert von Müll	н _о	MJ/kg	8,0	8,0
Mülldurchsatz	m	kg/s	5,6	0,056
Luftdurchsatz	v	m ³ /s	30	0,3
Feuerraumvolumen	v _o	۳ ³	200	1,9
Rostfläche	A _R	m ²	80	2,3
Querschnittsfläche 1. Strahlungszug	A _{Stz}	m ²	33	0,64
spezifischer Luftbedarf	$0_{spez} = V/m$	m ³ /kg	5	5
Feuerraumbelastung	$Q_B = m H_u / V_o$	W/m ³	1,1.105	1,0.105
Rostbelastung	$Q_R = m H_u / A_R$	W/m ²	5,6°10 ⁵	2,0.10 ⁵
Temperatur am Ofenausgang	т _о	K	1300	1300
Strahlungsleistung (Raumwinkel: 2 🏾)	$E = \sigma \cdot \epsilon \cdot T^4$	W/cm ²	16 (1300 K)	16 (1300 K)
Stefan Konstante	$\sigma = 5,71 \cdot 10^{-12}$	$W/cm^2 K^4$		
Strömungsgeschwindigkeit 1.Strahlungszug	$v = (V/A_{Stz})T_0/T^{298}$	m/s	4,0	2,0
Verweilzeit (idealer Rührkessel)	$\tau = (V_{o}/V)T^{298}/T_{o}$	S	1,5	1,5
Viskosität (Luft, 298 K)	η	Pa 's	1,84.10 ⁻⁵	1,84.10 ⁻⁵
(Luft, 1300 K)	η	Pa's	4,9.10 ⁻⁵	4,9.10 ⁻⁵
Dichte (Luft, 298 K)	ρ	kg/m ³	1,18	1,18
Symbol/Definition	Dimension		Symbol/Definition	Dimension
Reynolds Zahl $R_e = L \cdot v \cdot \rho/\eta$ Prandtl Zahl $P_r = c_p \cdot \eta/\lambda$ Nußelt Zahl $N_u = \alpha \cdot L/\lambda$ Grashof Zahl $G_r = g \cdot \beta \Delta T L^3 \rho^2/\eta^2$ Froude Zahl $F_r = v/(L \cdot g)^{0.5}$	- - - -	Karlovitz Zahl Damköhler Zahl Kolmogoroff Länge Taylor Mikromaß Corrsin Zeitmaß	$\kappa_{a} = (\delta_{r}/l_{k})^{2}$ $D_{a} = \tau_{chem}/\tau_{Diff}$ $l_{k} = (\nu^{3}/\epsilon)^{0} \cdot z^{25}$ $\lambda = (15\nu u'^{2}/\epsilon)^{0} \cdot 5$ $\tau = \lambda^{2}/6\nu$	- .m .s

.

3.2.1 Wandturbulenz

Betrachtet man die Strömung im Ofen idealisiert als voll ausgebildete turbulente Rohrströmung, läßt sich leicht ein erster Anhaltspunkt für das Ausmaß der Durchmischung gewinnen.

Bei voll ausgebildeter turbulenter Rohrströmung beträgt das Verhältnis von Mischungsweg l zur charakteristischen Länge 2R in Achsennähe [3, 5, 49]

 $1/2R \simeq 0,08$

Das mittlere Schwankungsquadrat der turbulenten Geschwindigkeit u' beträgt für die Rohrströmung in Achsennähe [3]

u'= 0,03 · U (U: mittl. Strömungsgeschwindigkeit)

Damit errechnet sich der Eddy-Diffusionskoeffizient D_t [3] zu

 $D_t = 1 u' = 2, 4 \cdot 10^{-3} \cdot U \cdot 2R$ D_t (TAMARA) $\simeq 3 \cdot 10^{-3} m^2/s$

Über das mittlere turbulente Verschiebungsquadrat ergibt sich die Zeit, in der der Bereich eines Rohrradius vermischt ist, zu $\tau = R^2/2D_t$

In dieser Zeit hat die Strömung einen Weg X von

$$X = U \cdot \tau \simeq 44 R$$

zurückgelegt.

Vielfach findet man auch für die Durchmischung eines Rohrradius die Zeit

$$\tau' = R/u' = R/0,03 \cdot U$$

angegeben [4].

In diesem Fall hat die Strömung während der Mischzeit einen Weg X von

$$X = U \cdot \tau = 13 R$$

zurückgelegt.

Die Unterschiede erklären sich aus der Lagrangeschen Darstellung des mittleren Verschiebungsquadrates [3, 8]

$$\frac{1}{2} \frac{d\bar{x}^2}{dt} = (u')^2 \int_{0}^{L} R_t dt$$

 R_t ist hierin der zeitliche Korrelationskoeffizient. Hier sind zwei Grenzfälle zu unterscheiden: Für Zeiten, die klein gegen die charakteristische Zeit sind, wo also $R_t \simeq 1$ ist, hat man

$$(u')^2 t = 1/2 \quad \frac{d\bar{x}^2}{dt}$$

oder integriert:

 $\int x^2 = u't$

Im zweiten Grenzfall, wenn R_t für Zeiten größer als eine charakteristische Zeit t_0 gegen null strebt, hat man

$$1/2 \quad \frac{d\bar{x}^2}{dt} = (u')^2 \int_0^\infty R_t dt = (u')^2 t_0 = D_t$$

et:
$$\bar{x}^2 = 2D_t t$$

oder integriert:

Ein Vergleich der beiden Gleichungen

$$D_t = (u')^2 t_0$$
 und $D_t = u'l$

für den turbulenten Diffusionskoeffizienten liefert $l = u' t_0'$, was eine sinnvolle Definition des Mischungsweges ist.

Wenn also die Durchmischung innerhalb von 13 Rohrradien abgeschlossen ist, wird dabei gleichzeitig implizit angenommen, daß der durchmischte Zustand noch weitgehend mit dem Ausgangszustand korreliert, was keinen rechten Sinn macht.

Bei der Abschätzung der Durchmischung anhand des Taylor-Mikromaß geht man von der Corrsin'schen Mischzeit [55] aus:

$$\tau = \lambda^2/6 v$$

hierin bedeutet υ die kinematische Viskosität und λ das Taylor-Mikromaß.

Aus Turbulenzmessungen hinter Gittern findet man [55]

$$\lambda^2 = \text{const.} \cdot \mathbf{L} \cdot \boldsymbol{v}/\mathbf{u}'$$

mit

L := integrales Längenmaß u':= turbulente Schwankungsgeschwindigkeit Die Konstante hat einen Wert const<u>~</u>20 [55] oder auch const<u>~</u>12 [56], das integrale Längenmaß ist von der Größe eines Rohrradius R. Damit berechnet sich die Mischzeit zu

$$\tau_{\rm C}$$
 = 110 R/U oder $\tau_{\rm C}$ = 67 R/U.

Es lassen sich aber auch andere Zahlenwerte in der Literatur finden. Beispielsweise rechnet Brodkey [50] mit

$$\lambda^2 = 3,41 \cdot v \cdot R/u^{\prime}$$
$$\tau_c = 19 R/U$$

entspricht.

was einer Mischzeit

Bradshaw [53] gibt als Maß für die typische Wellenlänge der energiedissipierenden Wirbel an:

$$L_{\epsilon} = 60 \cdot R \cdot Re^{-3/4} = 0,1 R$$
 (für $R_{e} = 5000$)

Dem entspricht das Taylor-Mikromaß

$$\lambda^2 = L_c \cdot 15 \cdot v/u^{\prime}$$

woraus sich die Mischzeit zu

$$\tau_{c} = 8,3 \text{ R/U}$$

berechnet.

Experimentelle Untersuchungen zur Bestimmung von λ in voll ausgebildeter turbulenter Rohrströmung [57] haben für Re= 9.10⁴

$$\lambda/R = 0.02$$

ergeben.

Mit der Proportionalität

 $\lambda/R \propto Re^{-0.5}$ $\tau_c = 6 R/U$

erhält man daraus

Offenbar vermag der modernere statistische Ansatz ebenfalls keine präziseren Vorstellungen von der Mischzeit zu vermitteln. Mischstrecken von weniger als 10 Rohrradien sind jedoch sicherlich unvernünftig.

Die bisherigen Betrachtungen sind davon ausgegangen, daß die turbulente Rohrströmung bereits voll entwickelt ist. Theoretische Vorhersagen [3] liefern für den Fall, daß das eintretende Fluid bereits turbulent gestört ist, als turbulente Einlauflänge l_t

$$l_{+}/2R = 0,693 \text{ Re}^{0,22}$$

Bei Re = 5000 ergeben sich Einlauflängen von etwa 6 Rohrdurchmessern. Experimentell bestimmte Einlauflängen liefern wesentlich höhere Werte. Für praktische Abschätzungen werden weitgehend unabhängig von der Re-Zahl etwa 40 Rohrdurchmesser empfohlen [3, 5].

Insgesamt läßt sich also feststellen, daß eine turbulente Rohrströmung im Ofen noch nicht voll entwickelt ist und daß auch bei voll entwickelter Turbulenz diese allein nur wenig zu einer vollständigen Durchmischung im Ofenraum beitragen kann. Geht man von einer Aufenthaltszeit im Ofen von etwa t = 1,4 s aus, berechnet sich der mittlere Eddy-Diffusionsweg zu

$$\sqrt{x^{2'}} \simeq 6 \text{ cm}$$

wenn man einen Eddy-Diffusionskoeffizienten von $D_t=1,2\cdot10^{-3}m^2/s$ (entsprechend 110 Rohrstrecken) zugrunde legt.

Geht man von $D_t=1,3 \ 10^{-2} \ m^2/s$ (entsprechend einer Mischstrecke von 10 Rohrradien) aus, beträgt der durchmischte Bereich

$$\sqrt{x^{2'}} \simeq 20 \text{ cm}$$

Dieser Bereich muß im Verhältnis zum charakteristischen Durchmesser des TAMARA-Ofens von etwa 0,8 m gesehen werden.

Eine Übertragung der hier für den TAMARA-Ofen abgeschätzten Durchmischung auf die Bedingungen von Großanlagen ist problemlos. Bei Großanlagen sind die Re-Zahlen größer, was die Kleinzelligkeit in den Turbulenzballen fördert. Gleichzeitig werden aber auch die zu durchmischenden Bereiche größer. Beide Effekte kompensieren sich, wie eine Betrachtung anhand des Edddy-Diffusionskoeffizienten zeigt:

Das Verhältnis von mittlerem turbulentem Verschiebungsquadrat zu Ofenradius R beträgt

$$\frac{\sqrt{X^2}}{R} = \frac{\sqrt{2 D t}}{R} \neq f(\dot{m})$$

denn t ist unabhängig von der Anlagengröße, sofern die Feuerraumbelastung die gleiche ist. R ist proportional m $^{1/3}$ und für D_t gilt:

$$D_t \propto U R \propto \dot{m}^{2/3}$$

Die äquivalente Darstellung anhand des Corrsin-Zeitmaß führt selbstverständlich zum selben Ergebnis:

$$\tau_{\rm C} = \frac{\lambda^2}{6\nu} \propto \frac{R}{U} \propto \frac{\dot{\rm m}^{1/3}}{\dot{\rm m}^{1/3}} \neq f(\dot{\rm m})$$

Auch die Abhängigkeit der Durchmischung von der Aufenthaltszeit läßt sich angeben:

Entscheidend für die Beurteilung der Durchmischung ist das Verhältnis von Corrsin'scher Mischzeit τ_c zu Aufenthaltszeit τ .

$$\tau_{\rm C}/\tau \propto \frac{{\rm R}^3}{\phi} / \frac{{\rm R}^2 \cdot {\rm L}}{\phi} \propto \frac{{\rm R}}{{\rm L}}$$

In langgestreckten Bauformen mit kleinem R/L Verhältnis ist daher leichter eine gute Durchmischung zu erreichen.

3.2.2 Freie Turbulenz

Für den in ruhendes Medium austretenden axialsymmetrischen Freistrahl gibt Spalding [5] einen Mischungsweg von

$$1/\delta = 0,075$$

an. δ bedeutet dabei die Strahlbreite, bei der die Strahlgeschwindigkeit auf 1% des Achsenwertes abgefallen ist, was etwa 2,5 Halbwertsbreiten w entspricht. Für größere Abstände X von der Düsenspitze X>10w_o nimmt die Halbwertsbreite des Strahls etwa mit

ab [2], und die Geschwindigkeit U in der Strahlachse nimmt Werte von

$$U = 6,57 \cdot U_0 \cdot w_0 / x$$

an [2].

Die turbulente Schwankungsgeschwindigkeit u' beträgt auf der Achse

Der Eddy-Diffusionskoeffizient ist damit

$$D_t = u' l = 0,137 \cdot 0,0938 \cdot w U$$

 $D_t = 1,43 \cdot 10^{-2} U_0 w_0$

Diese Werte sollen nur als Anhaltspunkte dienen, denn in Strahlflammen werden deutlich andere Werte für u' als in nichtreaktiven Strahlen gefunden [11-15]. Jedoch soll, da sich auch die mittleren Geschwindigkeiten U ändern, das Verhältnis u'/U annähernd konstant bleiben [54]. Weiterhin unterscheiden sich in ruhendes Medium ausströmende Freistrahlen von eingefaßten Freistrahlen. Bei letzteren ist die Luftmitführung geringer. Sie weisen daher einen geringeren Öffnungswinkel auf.

Durch Augenschein kann man sich davon überzeugen, daß sich das Gutbett als Anordnung von zahlreichen derartigen "Freistrahldüsen" denken läßt. Bei dem in der TAMARA verbrannten recht homogenen Müllsurrogat treten im Abstand von im Mittel etwa 10 cm größere Krater im Gutbett auf. Da der Öffnungswinkel Freistrahls etwa 1:12 ist, vereinigen sich die aus dem eines Gutbett strömenden "Strahlen" nach etwa 60 cm. In dieser Höhe muß die Strahlgeschwindigkeit etwa gleich der mittleren Geschwindigkeit im Ofen sein. Der Eddy-Diffusionskoeffizient Stelle Werte um $1 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2/\text{s}$ an nimmt an dieser und ist vergleichbar mit dem bereits angegebenen Eddy Diffusionskoeffizienten der turbulenten Rohrströmung.

Die Mischwirkung von turbulenten Freistrahlen bleibt damit auf Distanzen beschränkt, die klein gegen die Abmessungen der Ofenkammer sind.

Ebene turbulente Scherströmung

Wie bereits oben erwähnt, können sich im Ofen auch ebene turbulente Scherströmungen ausbilden. Die ebene turbulente Scherströmung ist im Prinzip nur das zweidimensionale Analogen des turbulenten Freistrahls. Der Mischungsweg und der Turbulenzgrad nehmen ähnliche Werte wie im rotationssymmetrischen Fall an [5, 6]. Auch ihre Mischwirkung bleibt damit lokal begrenzt.

3.2.3 Auftriebserzeugte Strömungen

Wenn bestimmte Kunststoffe, die geringe Depolymerisations- oder Verdampfungswärmen aufweisen, auf dem Rost in Bereiche mit hinreichender Strahlungsleistung wandern, können sie sehr rasch verdampfen und verbrennen. Als Folge dieser Verdampfungen bilden sich diskontinuierliche auftriebsbeeinflußte Ringwirbel ("Thermal") aus.

Falls die lokale Brennstofffreisetzung über einen längeren Zeitraum halbwegs konstant und groß ist, können die weiter oben beschriebenen Freistrahlen besser als auftriebsbeeinflußte Freistrahlen behandelt werden.

Der auftriebserzeugte Freistrahl hat die allgemeine Form [10]

$$w = \frac{6}{5} \alpha X$$

$$v = \frac{5}{6\alpha} \left(\frac{9}{10} \alpha F\right)^{1/3} X^{1/3}$$

$$g' = \frac{5}{6\alpha} F \left(\frac{9}{10} \alpha F\right)^{1/3} X^{5/3}$$

Darin bedeutet	w =	Strahlradius
	X =	Abstand von der Punktquelle
	υ =	Strömungsgeschwindigkeit
	g' =	$g \frac{\rho}{\rho_0}$ Auftriebsbeschleunigung
	α <u>~</u>	0,07 Luftmitführungskonstante
	π F =	= 2 $\pi \int_{0}^{\infty} v \cdot g \cdot \pi d\tau$ sekündlich erzeugte Gewichtsabnahme

Der Öffnungswinkel γ des auftriebserzeugten Freistrahls

$$\gamma = 2 \tan^{-1}(w/X) = 2 \tan^{-1}(\frac{6}{5}\alpha)$$

ist damit etwas kleiner als der des nicht-auftriebserzeugten Freistrahls

$$\gamma = 2 \tan^{-1}(2\alpha).$$

Für einen mittleren Dichteunterschied von

$$\frac{\pi}{\pi_{0}} = 0,5$$

berechnet sich die Geschwindigkeit in 0,4 m über dem Gutbett (dies war etwa die Höhe, bei der sich die Freistrahlen vereinigten) zu

$$v = 1,2 \text{ m/s}$$

In dieser Höhe ist also die Geschwindigkeit eines auftriebserzeugten Freistrahls von ähnlicher Größe wie die des nichtauftriebserzeugten.

auftriebsbeeinflußte Freistrahl [10] verhält sich Der bei nicht-auftriebserzeugte kurzen Distanzen wie der reine Später, wenn der durch Auftrieb erzeugte Freistrahl. Impuls dominiert, nähert er sich in seiner Gestalt dem reinen auftriebserzeugten Freistrahl an. Er kann daher durch die bereits besprochenen Freistrahltypen approximiert werden und braucht nicht weiter diskutiert zu werden.

Die bei diskontinuierlicher Energiefreisetzung entstehenden auftriebserzeugten Ringwirbel [10] nehmen mit der Höhe linear an Durchmesser zu. Die äußere Einhüllende dieses Ringwirbelwachstums ergibt wiederum den von den Freistrahlen her bekannten Kegel. Wegen der besseren Luftmitführung des Ringwirbels hat der Kegel jedoch einen größeren Öffnungswinkel

$$\gamma = 2 \tan^{-1}0, 25.$$

Bessere Luftmitführung und größerer Öffnungswinkel wirken hin Richtung einer verbesserten Durchmischung. in Insgesamt muß aber festgestellt werden, daß auch auftriebsbeeinflußte oder auftriebserzeugte Freistrahlen und Ringwirbel nur eine qar lokale Optimierung der Durchmischung bewirken. Immerhin zeigen die Abschätzungen, daß Auftriebseffekte ähnliche Beiträge wie die erzwungene Strömung leisten, so daß man sich durchaus fragen könnte, ob bei Maßstabsänderungen neben der Reynoldszahl nicht auch der Grashof- und der Froude-Zahl Bedeutung beizumessen wäre. Die Froude-Zahl liegt für die TAMARA etwa bei Fr=0,3. Als Grenzwert oberhalb dessen Auftriebseffekte vernachlässigbar werden gilt Fr>100.

Ringwirbel könnten, wenn großflächig erzeugt, durchaus wirkungsvoll Strähnen wiedereinmischen (gepulste Sekundärluftzugabe, gepulste Stützbrenner).

In diesem Zusammenhang sei an die gepulsten Brenner [22] erinnert, die, allerdings unter nicht vergleichbaren Bedingungen, erstauliches leisten. Sie können auch mit festen Brennstoffen betrieben werden [22b].

4. Maßstabsverkleinerte Labormodelle

Untersuchungen mit Labormodellen weisen eine ganze Reihe von Vorteilen wie geringere Betriebskosten, erhöhte Flexibilität und Zeitersparnis auf. Diese Vorteile werden allerdings damit erkauft, daß in einem Modell nur gewisse Teilaspekte ähnlichkeitsgetreu verkleinert werden können, wobei gleichzeitig die Ähnlichkeit in anderen Gesichtspunkten nahezu verloren geht. Ist das Zusammenspiel bestimmter Teilaspekte, die nicht gleichzeitig ähnlichkeitsgetreu abgebildet werden können, von Interesse, muß man entweder aus einer Serie von Versuchen extrapolieren oder man muß künstlich Ähnlichkeit erzwingen.

Für die eingangs aufgeworfene Frage, wie die Gasströme aus unterschiedlichen Bereichen des Rosts vermischt werden und damit Einfluß auf die NO-Emissionen nehmen, sind die Reaktionszeit, lokale Temperatur und Konzentrationen und der zeitliche Ausgleich lokaler Konzentrationsgradienten die relevanten Größen.

Müll wäre in der für Kohlen üblichen Terminologie als ballaststoffreicher Brennstoff mit hohem Flüchtigenanteil 211 bezeichnen. Er verbrennt zu einem Gutteil über dem Gutbett. Die im Gutbett ablaufenden Ent- und Vergasungsprozesse sind daher für die NOy-Emission nur in soweit von Bedeutung, als durch sie Gaszusammensetzung des Frischgases die festgelegt wird. Zweckmäßigerweise verzichtet man daher auf den Einsatz von festem Brennstoff und betreibt das Modell mit einer den Entgasungsprodukten ähnlichen Gasmischung.

Die Ähnlichkeitsbedingungen für reagierende Systeme sind von Damköhler [57], Penner [58] und Beer und Chigier [23] untersucht worden. Ähnlichkeitsbedingungen speziell für die NO_X -Bildung in Verbrennungsprozessen wurden unter anderem von Tuttle et al. [50], Mellor [60] (Sprayverbrennung), Quan [61], Lavoie

und Schlader [35] (thermisches NO) aufgestellt. Quan et al.[62] diskutieren Skalierungsrelationen für gas-, öl- und kohlebefeuerte Verbrennungsanlagen.

thermische NO-Bildung ist langsam im Vergleich Die zur des Strömungsfeldes, sie wird daher charakteristischen Zeit durch die turbulente Durchmischung beeinflußt. Das Brennstoff und das Prompte NO reagieren dagegen auf einer Zeitskala, NO die klein gegen die der Strömung ist. Dies gilt zumindest für die Müllverbrennung, mit (Karlovitz-Zahl) Ka <1. Vernachlässigt man bei der Müllverbrennung das thermische NO, sollte daher, sofern die Randbedingungen unabhängig von der Ofenabmessung L das Strömungsfeld sowie die Position gewählt werden, der Flammenfront ähnlich sein und die Konzentrationen unabhängig werden von L [62]. Wenn man den geringfügigen Einfluß des thermischen NO mitberücksichtigen will, muß für gleiche Mischzeiten gesorgt werden. Beispielsweise konnten Chen et al. [64] zeigen, daß unter diesen Umständen für den wesentlich komplexeren Prozeß einer gestuften Verbrennung ein Scale up von einer 25 kW- auf eine 3 MW-Anlage problemlos möglich ist.

Maßgeblich für die Gleichwertigkeit von Strömungsfeldern ist die Re-Zahl. Schreibt man die Re-Zahl für Rechteckquerschnitte unter Verwendung des Äquivalenzdurchmessers

(1)
$$L_{h} = \frac{4A}{U} = \frac{2 \cdot X \cdot Y}{X + Y}$$

an:

(2) Re =
$$\frac{2 \cdot X \cdot Y \cdot U}{(X + Y)} \rho/\eta$$

und substituiert die Strömungsgeschwindigkeit U durch den Volumenfluß

 $(3) U = \phi/X \cdot Y$

erhält man Re als Funktion von ϕ

Mit der Substition

 $(5) \qquad \qquad U = Z/\tau_0$

läßt sich die Re-Zahl auch in Abhängigkeit von der Aufenthalts- zeit $\tau_{\rm O}$ darstellen.

(6)
$$\operatorname{Re} = \frac{2 \cdot X \cdot Y \cdot Z}{(X + Y) \tau_{O}} \rho/\eta$$

(4) verlangt, daß sich (X + Y) proportional zu ϕ ändert, die Konstanz von τ_{0} erfordert, daß X · Y · Z/(X+X) konstant bleibt.

Beide Bedingungen lassen sich nur dann gleichzeitig einhalten, wenn die Abbildung verzerrt wird. Führt man noch die Mischzeit ein,

 $\tau_{\rm C} = \alpha \quad {\rm X/U} = \alpha \frac{{\rm X}}{{\rm Z}} \tau_{\rm O}$

(α Proportionalitätskonst. ~ 8)

erhält man schließlich

(8)
$$\frac{X^2 \cdot Y}{X + Y} = \frac{\text{Re} \cdot \tau_C \cdot \rho}{2 \alpha \text{ g}} = 0,13 \text{ m}^2$$

wenn man für die Konstanten auf der rechten Seite die TAMARA-Werte zugrunde legt.

Aus Gleichung (8) geht hervor, daß über eine Verzerrung der Querschnittsfläche nur in einem engen Bereich τ_0 , τ_c und Re gleichzeitig konstant gehalten werden können. Denn im Grenzfall Y << X reduziert sich (8) auf

$$X \cdot Y = 0, 13$$

Die TAMARA-Querschnittsfläche X · Y = 0,64 m² läßt sich also im Extremfall auf 0,13 m² reduzieren. Immerhin sind nennenswerte Querschnittsverkleinerungen beispielsweise auf 0,27 · 0,67 oder 0,2 · 0,81 bei konstantem τ_0 , τ_c und Re ohne allzu starke Geometrieverzerrungen möglich. Eine weitergehende Maßstabsverkleinerung muß Abstriche an der Modellähnlichkeit hinnehmen.

Hält man sich bei dem Modellofen an eine thermische Leistungsgrenze von <20 kW, was etwa der im Mittel abgegebenen Leistung einer Heizungsanlage von einem kleinen Einfamilienhaus entspricht, wären etwa folgende Eckdaten zu wählen:

$$X = 0,3 \text{ m}$$
 $Y = 0,1 \text{ m}$ $Z = 1,2 \text{ m}$ $\phi = 1,0 \cdot 10^{-2} \text{ m}^3 \text{ N/s} = 36 \text{ m}^3 \text{ N/h}$

Die Aufenthaltszeit dieses Modellofens läge bei 0,7 s (im Vergleich zu 1,4 s bei TAMARA). Die turbulente Mischzeit betrüge 2,7 s (TAMARA: 4,4s). Obwohl der Durchsatz also um einen Faktor 26 verkleinert wurde, lassen sich die wesentlichen

Eckdaten innerhalb eines Faktors zwei konstant halten. Hierbei muß allerdings ein Kunstgriff gemacht werden, denn die Rohrströmung ist unter diesen Umständen Re(Modell) = 640 nicht mehr turbulent. Glücklicherweise setzt bei einem quer angeströmten Zylinder die turbulente Strömungsform bereits bei Re(Querzylinder) ~ 60 ein. Durch den horizontalen Einbau von etwa 3 - 5Zylindern in einer Ebene mit 5-3 cm Durchmesser läßt sich so eine turbulente Strömung erzwingen. Die Re-Zahl beträgt unter diesen Bedingungen Re(Querzylinder) ~ 430-260, sie ist also weit oberhalb der Schwelle. Die Strömung in einem Müllverbrennungsofen kann in Hinsicht auf die Durchmischung in erster Näherung als ebenes Problem betrachtet werden, weshalb vertikal angeordnete Gitterstäbe entbehrlich erscheinen.

Dieses Labormodell muß bezüglich seiner Durchmischungseigenselbstverständlich auf seine schaften Äquivalenz mit dem TAMARA-Ofen überprüft werden, was am einfachsten durch Messung des Verteilungsspektrums einer Punktquelle gelingt. Ist die Gleichwertigkeit der Mischungseigenschaften einmal gezeigt, sollten Untersuchungen am Labormodell zum Einfluß unterschied-Brennstoff/Luft-Verteilungen oder unterschiedlicher licher Gaszusammensetzungen (HCl, Metallsalze) unmittelbar auf TAMARA Sollte sich herausstellen, übertragbar sein. daß die oben beschriebenen Verpuffungen im TAMARA-Ofen einen wesentlichen Beitrag zur Durchmischung leisten, ließe sich dieser Effekt durch entsprechend gepulste Brennstoffzugabe leicht am Modell simulieren.

Ein entsprechender Modellofen ist im Bau. Mit seiner Hilfe erhoffen wir eine rasche Klärung der Frage nach der Optimierung von Luftzuführung und Geometrie des Feuerraums, damit die natürlicherweise aus dem Gutbett freigesetzten NH_3 und HCN-Mengen zur rechten Zeit mit dem NO vermischt werden und zu umweltneutralem N_2 und H_2O abreagieren.

<u>Literatur</u>

- [1] H. Reimer; Abfallwirtschaftsjournal 1 (1989) Nr. 6, 14
- [2] L. Prandtl; Führer durch die Strömungslehre, 8. Aufl., Vieweg (1984)
- [3] J.O. Hinze; Turbulence, McGraw-Hill (1959)
- [4] Tennekes und Cumley; A First Course in Turbulence, The MIT Press (1972)
- [5] B.E. Launder und D.B. Spalding; Mathematical Models of Turbulence, Academic Press (1972)
- [6] D.B. Spalding; Combustion and Mass Transfer, Pergamon Press (1979)
- [7] Gaydon und Wolfhard; Flames, Chapman and Hall (1979)
- [8] B. Lewis und G.v. Elbe; Combustion, Flames and Explosions of Gases, 3. Aufl., Academic Press (1987)
- [9] F.A. Williams; Combustion Theory, 2. Aufl., Benjamin/Cummings (1985)
- [10] J.S. Turner; Buoyancy Effects in Fluids, Cambridge University Press (1973)
- [11] R. Guenther; Chem. Ing. Tech. 41, 315 (1969)
- [12] A. Vranos, J.E. Faucher, W.E. Curtis; 12th Symp. Combust., 1051 (1968)
- [13] H.A. Becker und A.P.G.Brown; 12th Symp. Combust., 1059 (1968)
- [14] H. Eickhoff; Chem. Ing. Tech. 40, 995 (1968)
- [15] R. Guenther und H. Simon; 12th Symp. Combust., 1069 (1968)
- [16] Y.A. Zeldovich; Acta Pyhsicochem. USSR 21 557 (1946)
- [17] B.S. Haynes; Combust. Flame 28, 113 (1977)

- [18] C.P. Fenimore; Combust. Flame 26, 249 (1976)
- [20] P.A. Libby, F.A. Williams (eds); Turbulent Reactive Flows, Springer (1980)
- [21a] Beispielsweise: J.Warnatz et al.; 21st Symp. Combust., P. 1533 (1986)
- [21b] J.A. Miller et al; 21st Symp. Combust. 965 (1986)
- [22a] B.T. Zinn in: Advanced Combustion Methods F.J. Weinberg (ed.), chap.2, p.113, Academic Press (1986) A.A. Patnam, F.E. Belles, J.A.C.Kentfield; Progr. Energy Combust. Sci. 12 (1986) 43
- [22b] J.A. Carvalho, M.R. Wang, N. Miller, B.R. Daniel, B.T. Zinn; 20th Symp.Combust. (1984) p. 2011
- [23] J.M. Beér, N.A. Chigier; Combustion Aerodynamics, Chap.7, Appl. Sci. Publishers (1972)
- [24] J. Zierep; Similarity Laws and Modelling, Marcel Dekker (1971)
- [25] W.M. Rohsenow et al; Handbook of Heat and Mass Transfer, Academic Press (1985) 2. Aufl.
- [26] W.E. Kashan, M.P. Nadler; J. Chem. Phys. 56, 2220 (1973)
- [27] G.P. Starley et al.; Combust. Sci Tech. 43, 21 (1985)
 G.P. Starley et al.; Combust. Flame 59 (1985) 197
 G.P. Starley et al.; 19th Symp. Combust. (1982) p. 1311
- [28] P. Dransfeld; KfK-Bericht (in Vorbereitung)
- [29] L.D. Pfefferle, S.W. Churchill; Combust. Sci. Tech. 49 (1986) 235
- [30] P. Dransfeld; KfK-Bericht (in Vorbereitung)
- [31] D.Crowhurst, R.R.Simmons; Fire and Materials 7, 62 (1983)

- [32] A.F. Sarofim, R.C. Flagan; Progr. Energy Combust. Sci. 2, 1 (1976)
- [33] C.P. Fenimore; 16th Symp. Combust. (1976) 1065
- [34a] J.H. Kent, R.W. Bilger; 14th Symp. Combust. (1972) 615
- [34b] R.W. Bilger, R.E. Beck; 15th Symp. Combust. (1974) 541
- [35] G.A. Lavoie, A.F. Schlader; Combust. Sci. Technol. 8 (1974) 215
- [36a] N. Peters, S. Donnerhack; 18th Symp. Combust. (1981) 33
- [36b] N. Peters; Combust. Sci. Technol. 19, 39 (1978)
- [37] T. Takagi, M. Ogasawara, M. Daizo, T. Tatsumi; 16th Symp. Combust. (1976) 181
- [38] M.C. Drake, R.W. Pitz, S.M. Correa, M. Lapp; 20th Symp. Combust. (1984) 1983
- [39] I. Buriko, V.R. Kutsnetsov; Physics of Combustion and Explosions 3, 32 (1978)
- [40] E.T. McHale; 21st Symp. Combust. (1986) 159
- [41] T. Miyauchi, Y. Mori, T. Yamaguchi; 18th Symp. Combust. (1980) 43
- [42] A.F. Sarofim et al. zitiert nach [43]
- [43] Y.H. Song, D.W. Blair, V.J. Siminsky, W. Bartok; 18th Symp. Combust. (1980) 53
- [44] J. Blauwens, B. Smets, J. Peeters; 16th Symp. Combust. (1976) 1055
- [45] T. Miyauchi, Y. Mori, A. Imamura; 16th Symp. Combust. (1976) 1073
- [46] C.P. Fenimore; 13th Symp. Combust. (1971) 373
- [47] C.P. Fenimore; Combust. Flame 19, 289 (1972)

- [48] P.V. Heberöomg: 16th Symp. Combust. (1976) 159
- [49] Tietjens; Strömungslehre Bd. 2, Springer (1970)
- [50] R.S. Brodkey (ed.); Turbulence in Mixing Operations; Academic Press (1975)
- [51] J. Villermaux; Encyclopedia of Fluid Mechanics Vol. II, N.P. Chereminsinoff (ed.), chap. 27, p. 707, Gulf Publishing Company (1986)
- [52] J. Baldyga, J.R. Bourne; Encyclopedia of Fluid Mechamics Vol. I, N.P. Cheremisinoff (ed), chap. 6, p. 147, Gulf Publishing Company (1986)
- [53] P. Bradshaw (ed); Turbulence, Springer (1976)
- [54] R.W. Bilger in [20], chap. 3, p. 65
- [55] S. Corrsin; Am. Ind. Chem. Eng. J. 3 (1957) 329S. Corrsin; Am. Ind. Chem. Eng. J.10 (1964) 870
- [56] R. Gronlard, A.M. Mellor, R.W. Bilger; Combust. Sci. Tech. 14 (1976) 195
- [57] G. Damköhler; Der Chemie Ingenieur 3 (1937) 359 Reprint: Int. Chem. Eng. 28 (1988) 132
- [58] S.S. Penner; Combustion Researches and Reviews, Butterworth (1955)
- [59] J.H. Tuttle, M.B. Colket, R.W. Bilger, A.M. Mellor; 16th Symp. Combust. (1976) p. 209
- [60] A.M. Mellor; J. Energy 1 (1977) 244, 257
- [61] V. Quan; Act. Astron. 1 (1974) 505
- [62] V. Quan, J.R. Kliegel, N.b. de Volo, D.P. Teixeira; Combust. Sci. Tech. 9 (1974) 209
- [63] J.A. Caton, D.L.Siebers; Combust.Sci.Techn. 65 (1989) 277
- [64] S.L. Chen, J.M. McCarthy, W.D. Clark, M.P. Heap, W.R. Seeker, D.W. Pershing; 21st Symp. Combust. (1986) p. 1159

- [65] S.L. Chen, M.P. Heap, P.W. Pershing, G.B. Martin; 19th Symp. Combust. (1982) p. 1271
- [66] H.F. Nelson; AIAA J. 14 (1976) 1177
- [67] G.G. De Soete; 15th Symp. Combust. (1974) p. 1093
- [68] J.W.Glass, J.O.L.Wendt; 19th Symp. Combust. (1982) p.1243