



Forschungszentrum Karlsruhe
in der Helmholtz-Gemeinschaft

Wissenschaftliche Berichte
FZKA 7473

Beschreibung von Verweilzeitmessungen mit Hilfe von Diffusion-Advektion

K. Nagel, B. Oser, M. Eberhard

**Institut für Angewandte Informatik
Institut für Technische Chemie**

September 2009

Forschungszentrum Karlsruhe

in der Helmholtz-Gemeinschaft

Wissenschaftliche Berichte

FZKA 7473

**Beschreibung von
Verweilzeitmessungen mit Hilfe von
Diffusion-Advektion**

Klaus Nagel, Bernhard Oser, Mark Eberhard

Institut für Angewandte Informatik

Institut für Technische Chemie

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

2009

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH
Postfach 3640, 76021 Karlsruhe

Mitglied der Hermann von Helmholtz-Gemeinschaft
Deutscher Forschungszentren (HGF)

ISSN 0947-8620

urn:nbn:de:0005-074733

Zusammenfassung

Die Bestimmung von Verweilzeitverteilungen ergibt Einblicke in die Strömungsverhältnisse während der Messung. Die hier zur Verfügung stehenden Ergebnisse wurden ausschließlich mit Hilfe der Emissionsspektroskopie in der Nachbrennkammer der Versuchsanlage THERESA gewonnen.

Zur Interpretation der experimentellen Werte wurde ein im IAI erzeugten Methode zur Quellenlokalisierung benutzt. Diese Methode basiert auf Diffusions-Advektionsvorgängen im Rauchgas einer Verbrennungsanlage.

Abstract

Interpretation of residence-time measurements in the pilot plant THERESA

The experimental determination of dwell time distributions allows conclusions on the streaming relations while taking measurements within a reactor. The available results were obtained using emission spectroscopy technique.

The description of the experimental distributions is based on diffusion-advection occurrences. The theoretical beginning is giving in searching a new method to localize spatial distributed sources of chemical concentrations.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	3
2	Experimente	4
3	Modellbeschreibung	6
A	Anhang	10

1 Einleitung

Eine der wichtigen Größen für die Auslegung kontinuierlich arbeitender Reaktoren ist die Verweilzeit, d. h. die Zeit, während der sich das Stoffgemisch in dem betreffenden Reaktor befindet. Zusammen mit der Reaktionsgeschwindigkeit bestimmt sie den Grad des Umsatzes bzw. bei vorgegebenem Umsatz das Apparatevolumen. Verweilzeitverteilungsfunktionen geben außerdem Hinweise auf strömungstechnische Nichtidealitäten wie Strähnenbildung, partielle Rückvermischung oder Kurzschlussströmung. Die gebräuchlichen Methoden zur Bestimmung der Verweilzeitverteilung basieren auf Tracerverfahren. Ein Teil der gängigen Tracer (z.B. Farbstoffe) eignen sich nicht für Hochtemperaturprozesse. Deshalb wurden bislang Verweilzeitbestimmungen in Hochtemperaturprozessen mit Hilfe von Radiotracern durchgeführt [1], was mit einem erheblichen sicherheitstechnischen und genehmigungsrechtlichen Aufwand verbunden ist. Bei einem im FZK entwickelten Verfahren [2, 3] werden als Tracer Alkalisalze eingesetzt, die den Prozess nicht beeinflussen, deren Metallatome sich spektroskopisch leicht quantifizieren lassen und die im Brennstoff nicht oder nur in geringen Konzentrationen vorhanden sind; z. B. Alkalisalze wie KCl, LiCl, RbCl, oder CsCl. Die Alkalichloride werden in wässriger Lösung als feiner Nebel dosiert. Sie dissoziieren thermisch bei einer Temperatur über 900 °C. Analytisch erfasst wird nur der Anteil der thermisch freigesetzten Alkaliatome.

Vorausgehende Beschreibungen dieser Verteilungen beruhten auf drei unterschiedlichen Modellansätzen, Dispersions- bzw. Zellenmodell sowie der diskreten Faltung [4].

2 Experimente

Die Versuche wurden an der 3 MWth-Drehrohrverbrennungsanlage THERESA des Forschungszentrums Karlsruhe durchgeführt (siehe Abb. 1). Als Brennstoff dienen für den Drehrohrbrenner (Stirnseite Drehrohr) Erdgas und Heizöl. Die Brenner in der Nachbrennkammer wurden nur mit Heizöl betrieben. Es wurden folgende Parameter variiert:

- Brennstoffdurchsatz im Drehrohr (Heizöl)
- Brennstoffzusammensetzung im Drehrohr (Verhältnis Heizöl/Erdgas)
- Luftverteilung (Brennerluft, Hauptluft, Sekundärluft)

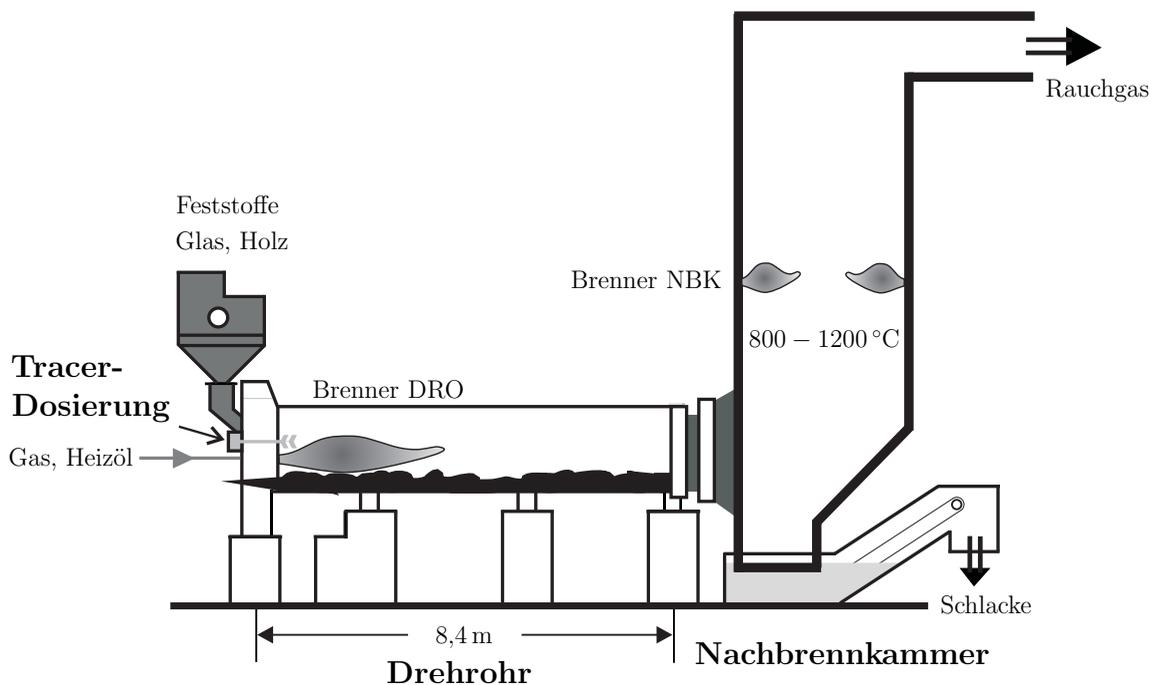


Abbildung 1: Drehrohr und Nachbrennkammer der Versuchsanlage THERESA mit Dosier- und Messstellen

Die Tracerdosierung erfolgt über eine gekühlte Dosierlanze an der Stirnseite des Drehrohrs als Dirac-Impuls mit einer Impulsbreite von ca. 500 – 1500 ms in die Gasphase. Als Tracer dient eine wässrige LiCl-Lösung (10 %ig). Der Verlauf der Li-Konzentration wird in-situ mittels Emissionsspektroskopie in der Flamme der Brenner der Nachbrennkammer bestimmt. Dosierung und Spektroskopie werden zeitgleich gestartet. Die Atomemissionen werden mittels Lichtleiter (Quarzfaser $7 \times 200 \mu\text{m}$) erfasst und über eine Gitterspektrographen auf einen CCD-Detektor überführt. Das opt. Gitter bildet eine Bandbreite von 240 nm bei einer spektralen Auflösung von $< 2 \text{ nm}$ auf dem Sensorchip des CCD-Detektors ab.

Abbildung 2 zeigt als Ausschnitt der Gesamtspektren eine Kurvenschar von Li-Emissionsbanden ($\lambda_{\text{max}} = 671 \text{ nm}$). Deutlich zu sehen sind die Schwankungen des

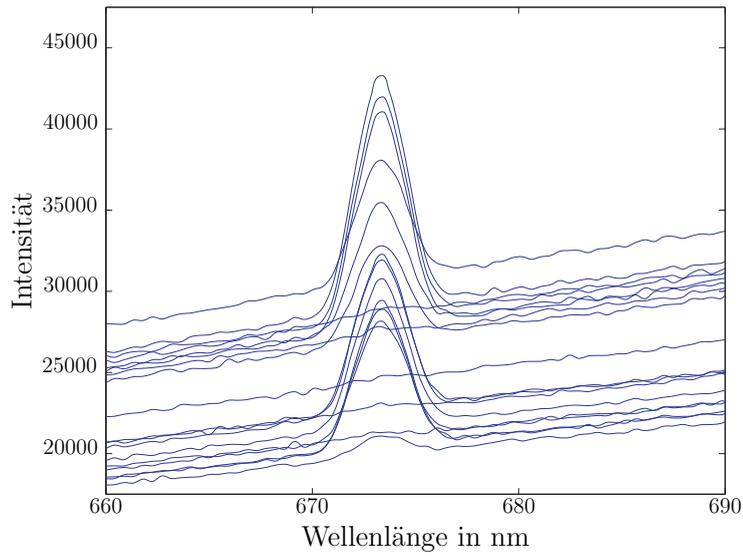


Abbildung 2: Li - Emissionsspektren

Untergrundes durch Temperatur- bzw. Intensitätsschwankungen. Der mit der Wellenlänge stetig ansteigende Untergrund ist auf die Planckstrahlung zurückzuführen. Als konzentrationsproportionaler Wert wird mittels Simpsonregel die Fläche unter dem Li-Peak bestimmt (zwischen 669 und 679 nm), wobei der Untergrund nicht berücksichtigt wird.

3 Modellbeschreibung

Die Untersuchung von Methoden zur Quellenlokalisierung auf der Basis räumlich verteilter, punktwiser Konzentrationsmessungen führte zu Modellen, die sowohl Diffusionsvorgänge als auch Advektion umfassten. In der Versuchsanlage THERESA werden diese Diffusionsvorgänge, die sogenannte Brownsche Molekularbewegung, durch die thermische Abfallbehandlung von Sondermüll verursacht. Die Advektion beruht auf der Ausbreitung des Rauchgases im Brennraum. Ausgehend von der dreidimensionalen Diffusionsgleichung mit Advektion

$$\frac{\partial C}{\partial t} = - \left(v_x \frac{\partial C}{\partial x} + v_y \frac{\partial C}{\partial y} + v_z \frac{\partial C}{\partial z} \right) + K_x \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + K_y \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} + K_z \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \quad (1)$$

läßt sich durch eine entsprechende Koordinatentransformation auf den eindimensionalen, isotropen Fall

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -v_x \frac{\partial C}{\partial x} + K \left(\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \right) \quad (2)$$

überführen. Daraus ergibt sich die Lösung [5]

$$y(t) = \frac{M}{2 \cdot \sqrt{\pi \cdot K \cdot (t - t_0)}} \cdot e^{b(t)} \quad \text{mit} \quad b(t) = -\frac{(\Delta x - v \cdot (t - t_0))^2}{4 \cdot K \cdot (t - t_0)}. \quad (3)$$

Sind die Annahmen des dargestellten Modells bestimmend für die experimentell ermittelten Messwerte, so müssen sich die Resultate mit diesem Lösungsansatz beschreiben lassen. Die anzupassenden Parameter sind:

- M : freigesetzte Stoffmenge bei instantanem Quellverlauf
- K : isotroper Diffusionskoeffizient
- v : Advektionsgeschwindigkeit
- x : Abstand Quelle - Sensor
- t_0 : Wirkungsbeginn der Emissionsquelle

Die zunächst vorgenommenen Approximationen mit Schleifenprogrammen dienten dazu die Größenordnung der Parameter zu bestimmen. Diese Parametergrößen wurden als Anfangswerte eines Optimierers verwendet. Dieser Optimierer sucht ein Minimum der Summe des quadratischen Abstandes von gemessenen Werten und berechneten Werten.

Die Experimente wurden am 19., 20. April 2005 an der Versuchsanlage THERESA durchgeführt.

Die folgenden Diagramme enthalten sowohl die experimentellen Messungen (o) als auch die mit Hilfe des Optimierers gewonnenen Parameter. In diesen Fällen sind alle fünf Parameter ermittelt worden mit folgenden Anfangswerten:

$$M_A = 1 \quad K_A = 2 \quad v_A = 0.55 \quad \Delta x_A = 1 \quad t_{0A} = 2 \quad (4)$$

Tabelle 1 beinhaltet alle Parameter, die in den Diagrammen 1 ... 12 (s. Anhang) die approximierten Kurven festlegen.

Experiment	M	K	v	Δx	t_0
190405-7-2	0.4616	0.8923	0.4331	2.6182	2.9631
190405-7-3	1.2247	5.4401	1.1623	7.835	3.1517
190405-14-2	0.5385	1.1317	0.517	2.7742	2.7251
190405-14-3	0.3336	0.4472	0.3106	2.1527	2.3188
200405-23-1	0.7306	0.7154	0.7921	2.3883	2.628
200405-23-3	0.5949	0.6411	0.6573	2.3191	2.3497
200405-25-1	0.495	0.8106	0.5056	2.0559	2.4831
200405-25-3	0.4013	0.8458	0.3621	1.7099	2.4734
200405-27-1	0.4405	0.4496	0.4414	2.1025	2.328
200405-27-3	0.5417	0.8149	0.5289	1.9621	2.4051
200405-28-1	0.5788	0.4783	0.5661	2.9262	1.4
200405-28-3	0.783	1.0923	0.8195	3.6696	1.4478

Tabelle 1: Experimente mit fünf angepassten Parametern

Elf der zwölf Experimente zeigen in den Parametern folgende Schwankungsbreiten:

isotroper Diffusionskoeffizient	$K \approx 0.4 \dots 1.1 \text{ m}^2/\text{s}$
Advektionsgeschwindigkeit	$v \approx 0.35 \dots 0.82 \text{ m/s}$
Abstände von Quelle zu Sensor	$d \approx 1.7 \dots 3.7 \text{ m}$

Eine Ausnahme bildet das Experiment 190405-7-3 mit Werten deutlich außerhalb den Schwankungsbreiten der angepassten Parameter aller anderen Experimente.

Aufgrund der bekannten Länge des Drehrohres und einer Abschätzung der Rauchgasgeschwindigkeit aus den experimentellen Randbedingungen, lassen sich die anzupassenden Parameter auf drei reduzieren. Tabelle 2 zeigt das Ergebnis der Approximationen.

Hierbei gehen die drei Parameter mit folgenden Anfangswerten in die Rechnungen ein:

$$M_A = 1 \quad K_A = 2 \quad t_{0A} = 2 \quad (5)$$

Experiment	M	K	v	Δx	t_0
190405-7-2	1.0697	2.9111	1.06	11.5	-0.6109
190405-7-3	1.062	2.6232	1.06	11.5	-0.0127
190405-14-2	1.5191	6.8889	1.45	11.5	1.1975
190405-14-3	1.5851	9.3487	1.45	11.5	1.8031
200405-23-1	1.9116	2.7371	2.22	11.5	0.6738
200405-23-3	1.9226	4.5275	2.22	11.5	0.9774
200405-25-1	2.2471	14.8909	2.22	11.5	2.0432
200405-25-3	2.5562	33.9395	2.22	11.5	2.4164
200405-27-1	2.4742	14.5043	2.48	11.5	2.4272
200405-27-3	2.5442	15.3756	2.48	11.5	1.954
200405-28-1	2.6236	11.2829	2.48	11.5	1.9595
200405-28-3	2.3697	9.7052	2.48	11.5	1.3351

Tabelle 2: Experimente mit 2 vorgegebenen $(v, \Delta x)$ und drei angepassten (M, K, t_0) Parametern

Die Diagramme unterscheiden sich nicht wesentlich von den ersten. Das Experiment 190405-7-3 stellt keine Ausnahme mehr dar und passt zu den anderen Experimenten mit einer Advektionsgeschwindigkeit v um 1 m/s. Eine große Schwankungsbreite zeigt dagegen der Diffusionskoeffizient K für die Experimente mit vorgegebenen Geschwindigkeiten größer 2 m/s.

Literatur

- [1] A. Merz and H. Vogg. Fortschritte verfahrenstechnischer forschung durch die radionuklidtechnik. *Chem.-Ing.-Tech*, 50(2):108–113., 1978.
- [2] A. Merz, B. Oser, H. Seifert, R. Siegel, V. Ebert, H.E. Schlosser, and J. Wolfrum. Verwendung von tracer sowie verfahren mit verwendung der tracer, 11 2003.
- [3] V. Ebert, E. Schlosser, B. Oser, T. Kolb, and J. Wolfrum. Neues diodenlaser-gestütztes verfahren zur in-situ-bestimmung der verweilzeitverteilung von pro- duktgasen in hochtemperaturprozessen. In VDI Verein Deutscher Ingenieure, editor, *VDI Berichte Nr. 1888*, pages 291–301. VDI Verlag, 2005.
- [4] K. Nagel, B. Oser, and M. Eberhard. Auswertung von verweilzeitmessungen in der versuchsanlage theresa. Technical Report FZKA 7398, Forschungszentrum Karlsruhe, 2008.
- [5] J. Matthes. *Eine neue Methode zur Quellenlokalisierung auf der Basis räumlich verteilter, punktwaiser Konzentrationsmessungen*. Universitätsverlag Karlsruhe, Karlsruhe, 2004.

A Anhang

In den Abbildungen 3 - 14 wurden alle 5 Parameter mittels Optimierer angepasst (s. Tabelle 1):

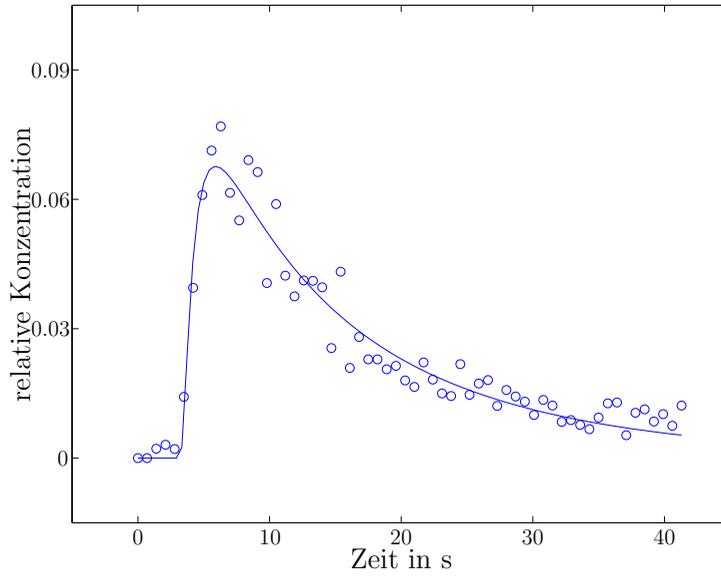


Abbildung 3: Experiment 190405-7-2 und Anpassung

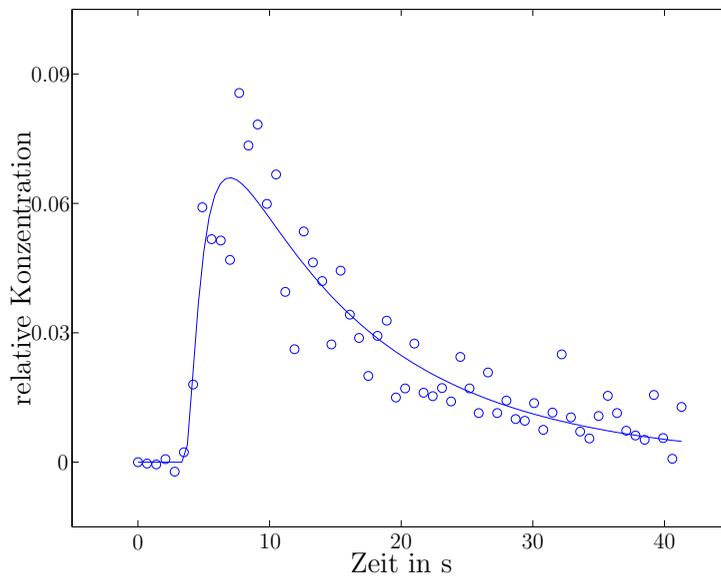


Abbildung 4: Experiment 190405-7-3 und Anpassung

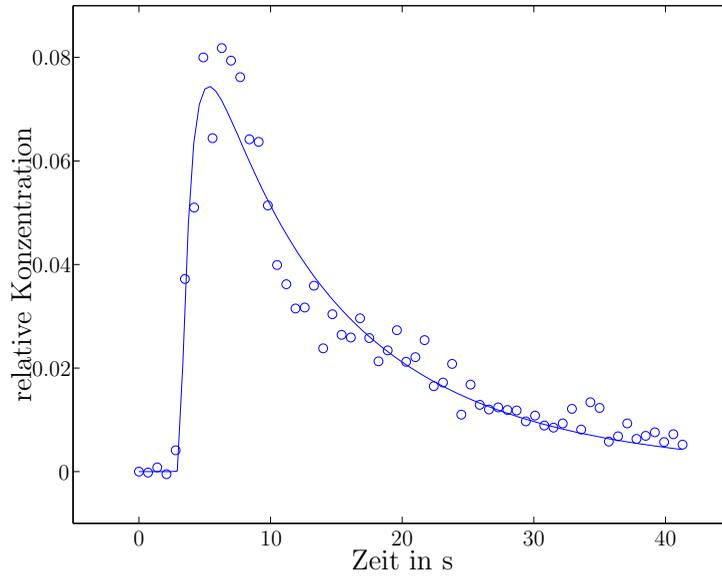


Abbildung 5: Experiment 190405-14-2

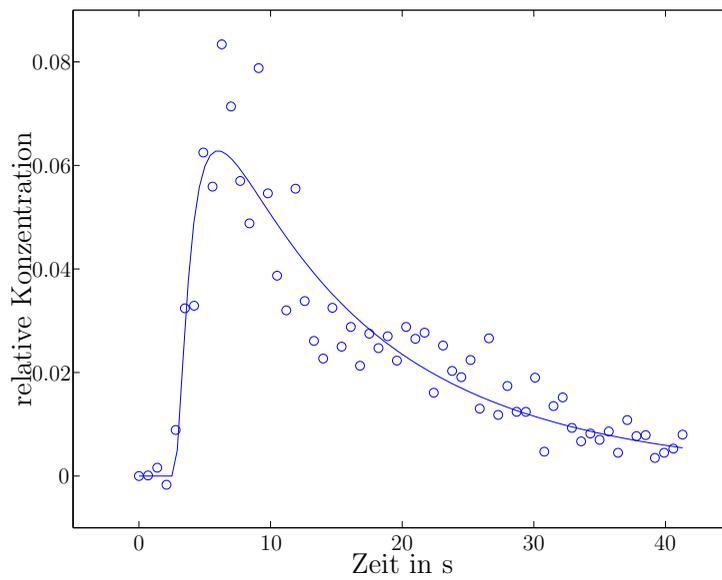


Abbildung 6: Experiment 190405-14-3

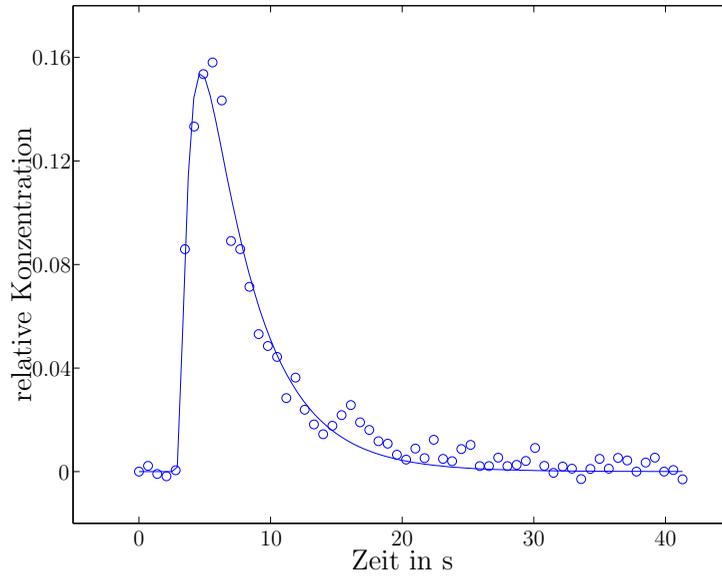


Abbildung 7: Experiment 200405-23-1

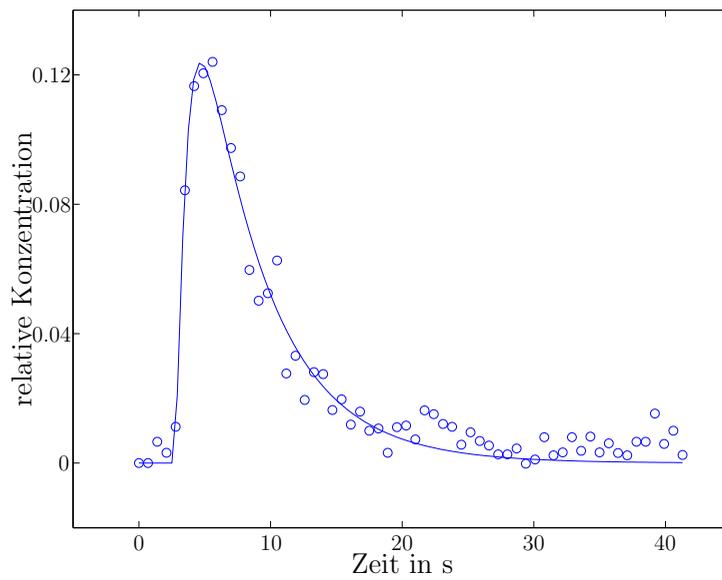


Abbildung 8: Experiment 200405-23-3

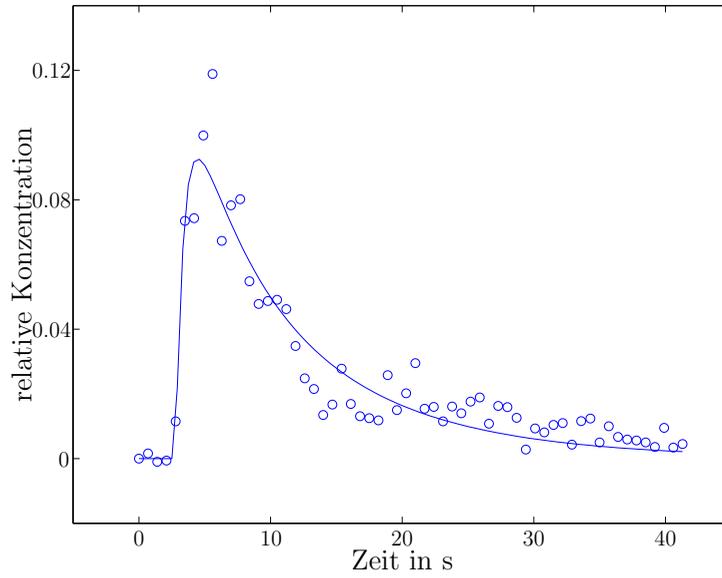


Abbildung 9: Experiment 200405-25-1

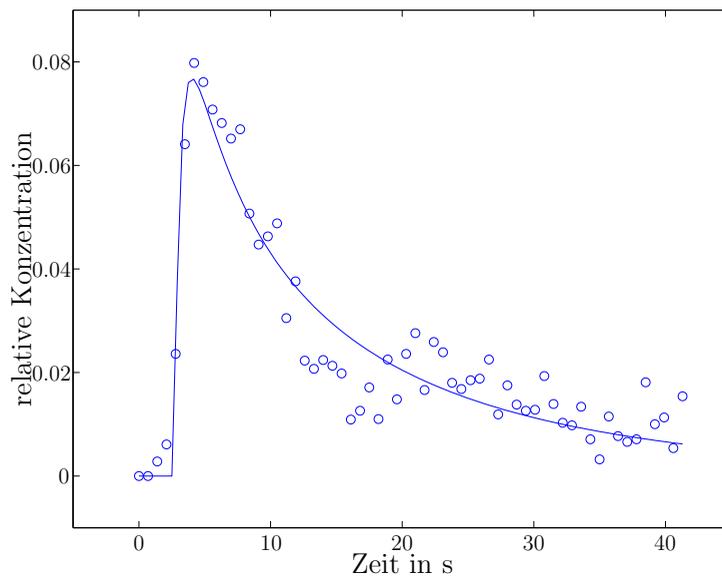


Abbildung 10: Experiment 200405-25-3

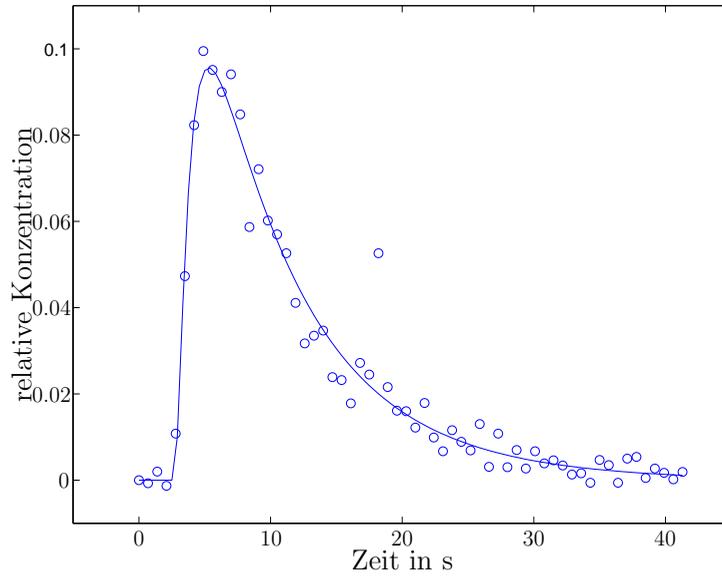


Abbildung 11: Experiment 200405-27-1

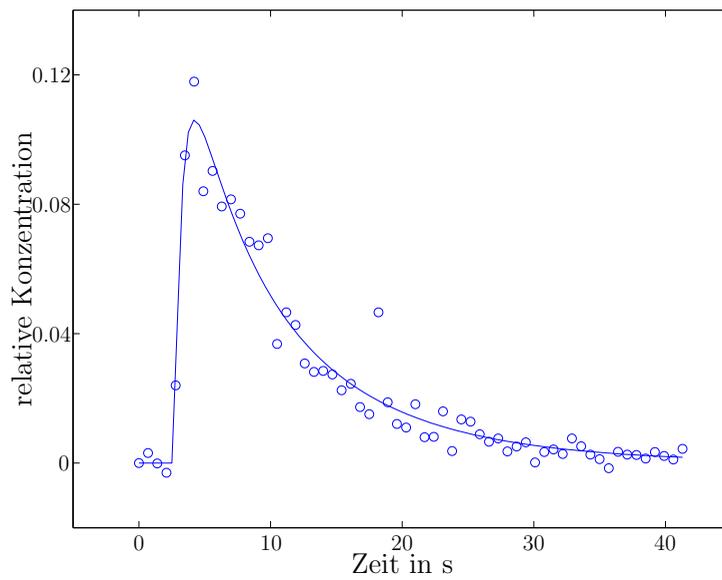


Abbildung 12: Experiment 200405-27-3

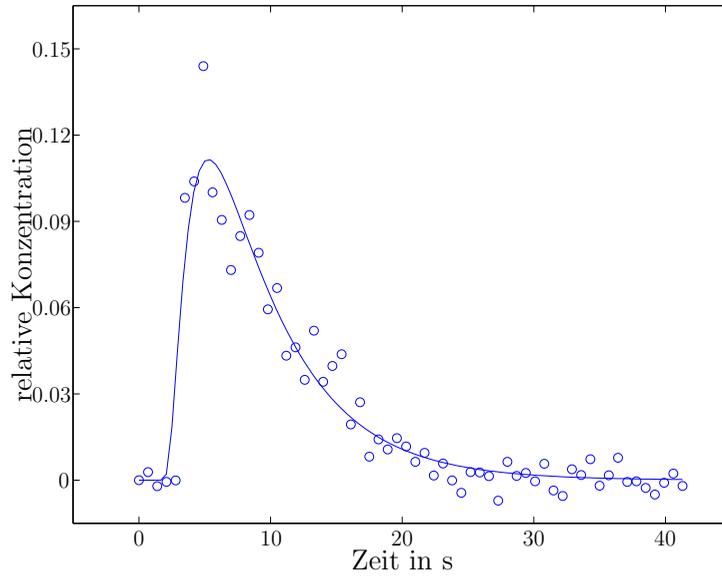


Abbildung 13: Experiment 200405-28-1

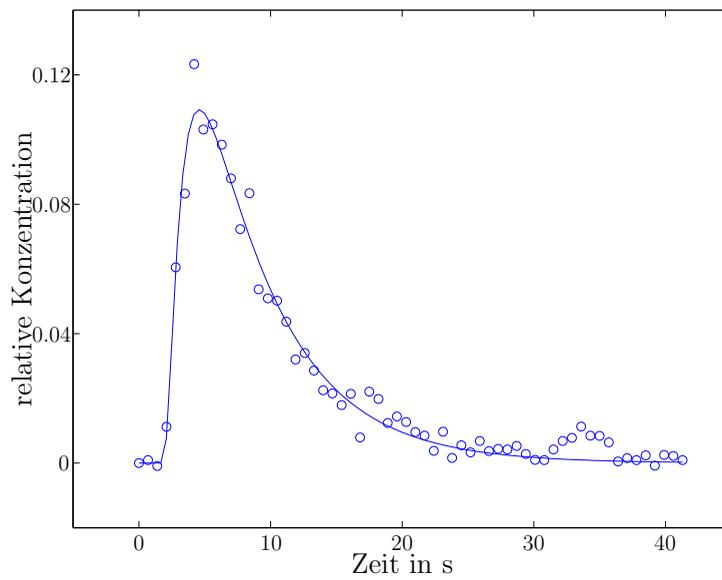


Abbildung 14: Experiment 200405-28-3

In den Abbildungen 15 - 26 wurden 3 Parameter mit Hilfe des Optimierers berechnet und die zwei anderen aufgrund experimenteller Randbedingungen vorgegeben (s. Tabelle 2):

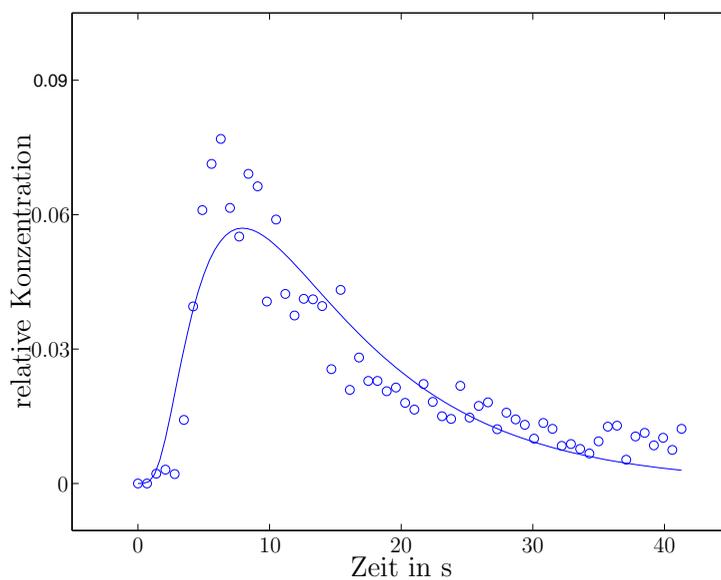


Abbildung 15: Approximation des Experiments 190405-7-2

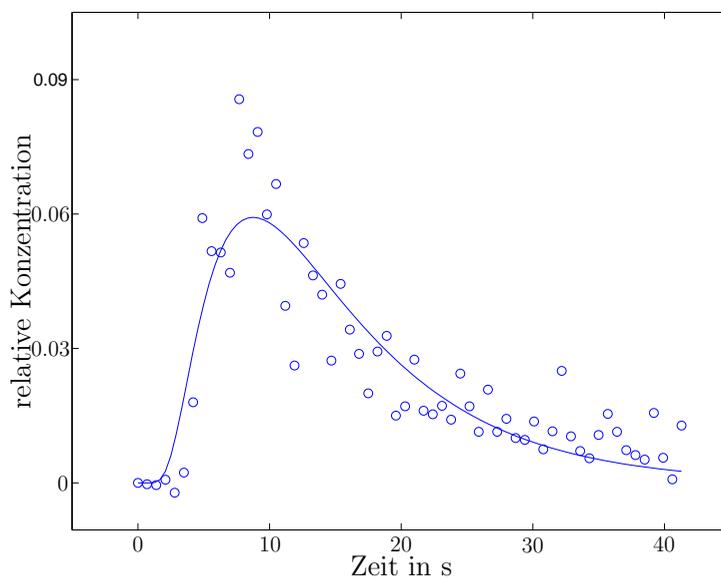


Abbildung 16: Approximation des Experiments 190405-7-3

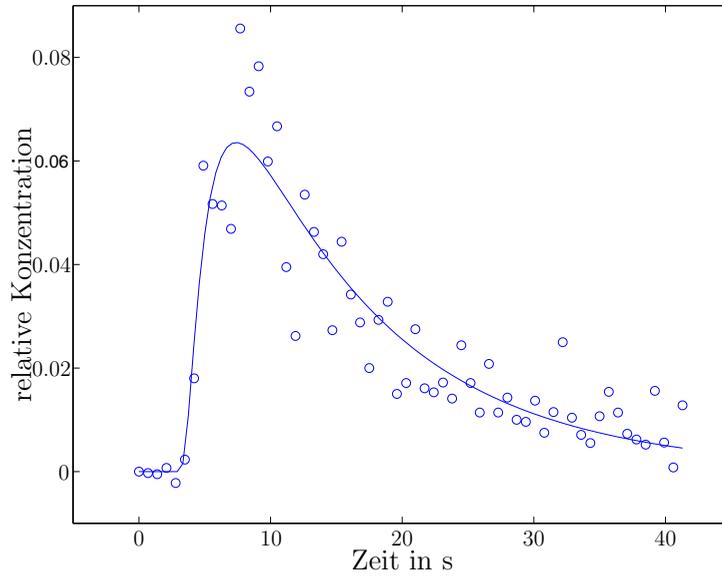


Abbildung 17: Approximation des Experiments 190405-14-2

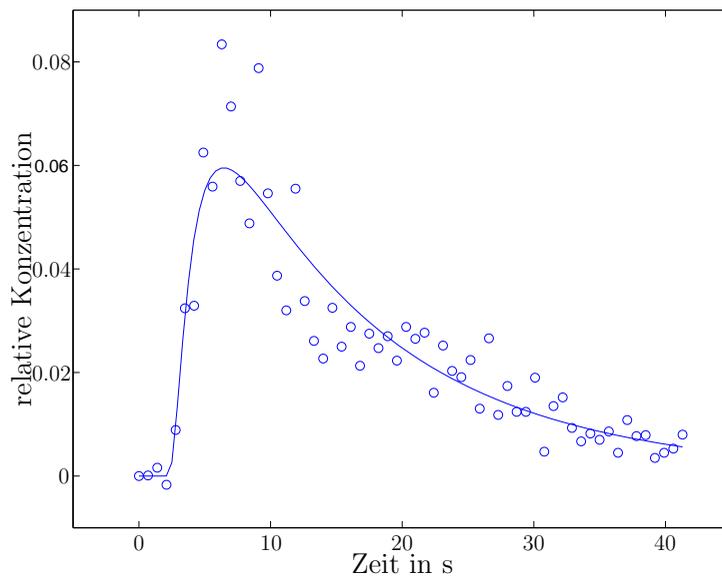


Abbildung 18: Approximation des Experiments 190405-14-3

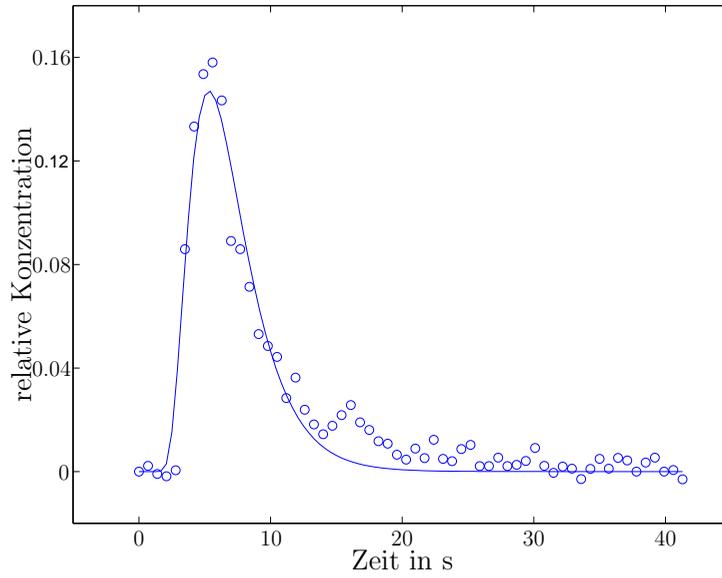


Abbildung 19: Approximation des Experiments 200405-23-1

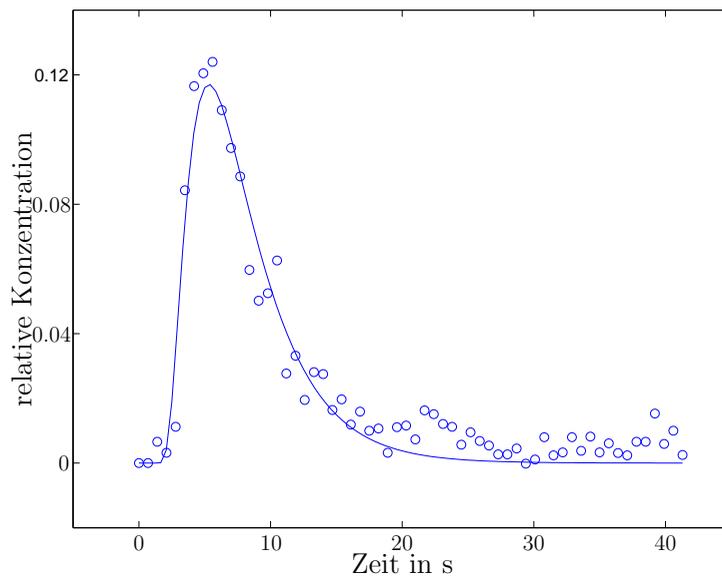


Abbildung 20: Approximation des Experiments 200405-23-3

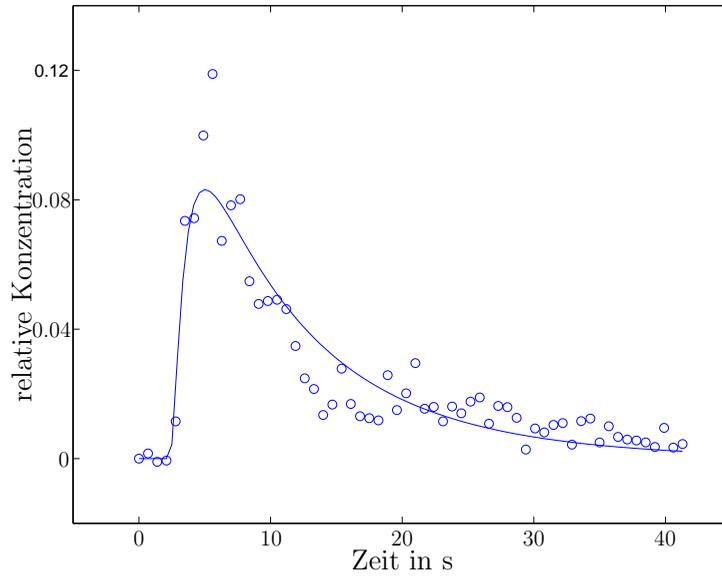


Abbildung 21: Approximation des Experiments 200405-25-1

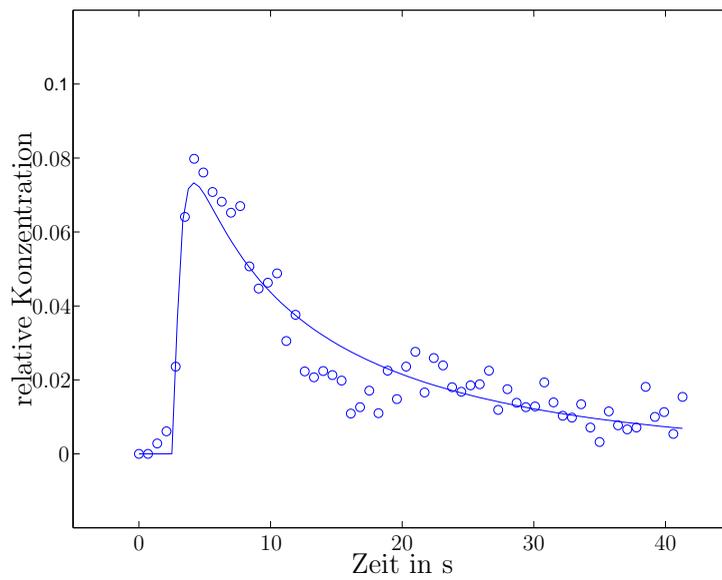


Abbildung 22: Approximation des Experiments 200405-25-3

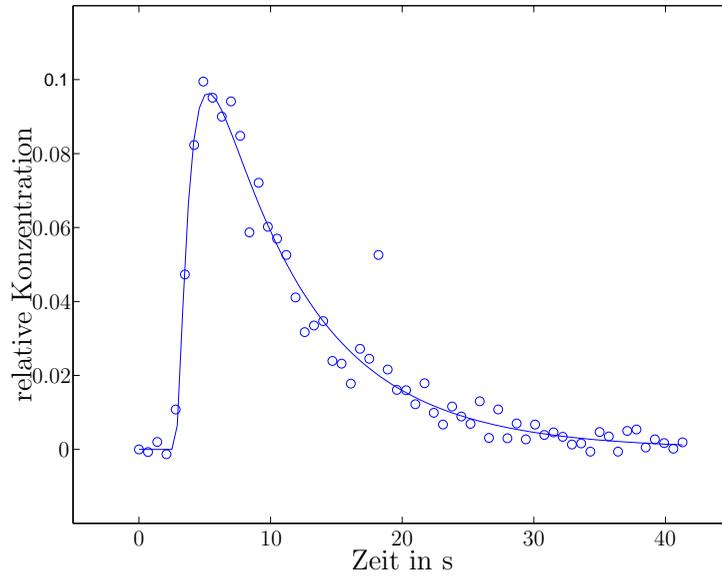


Abbildung 23: Approximation des Experiments 200405-27-1

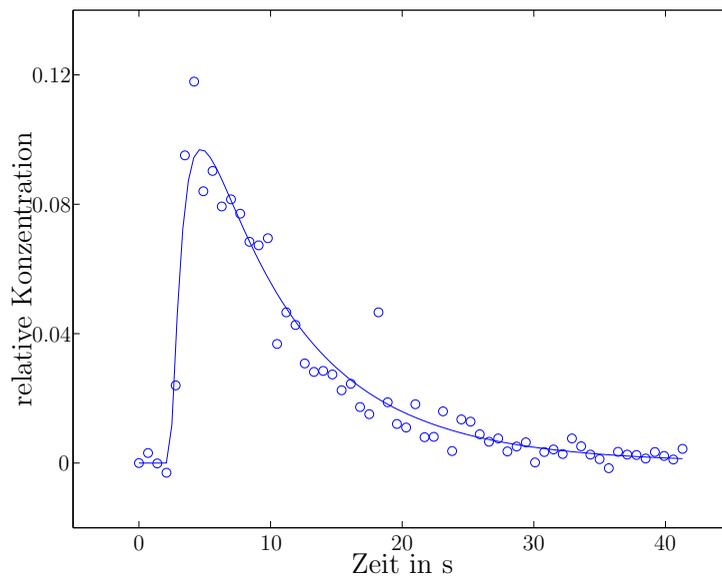


Abbildung 24: Approximation des Experiments 200405-27-3

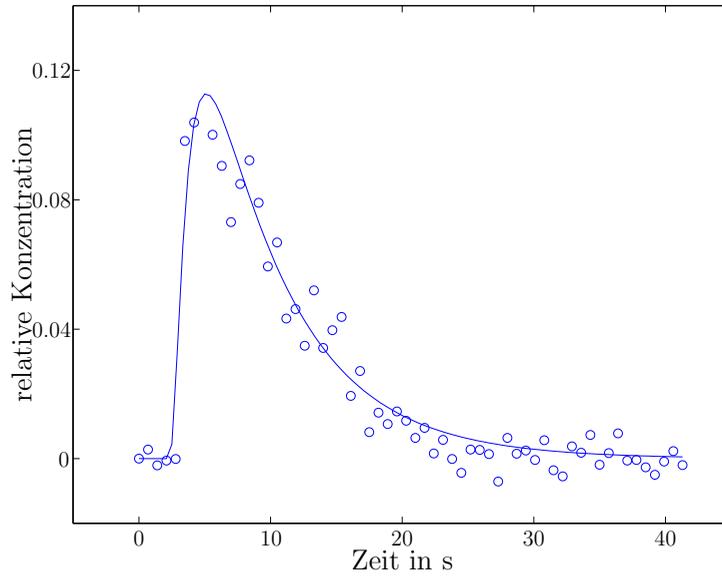


Abbildung 25: Approximation des Experiments 200405-28-1

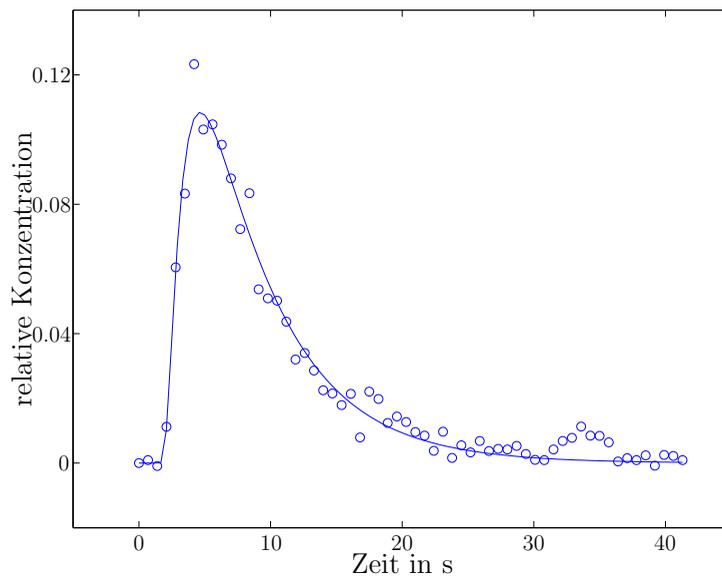


Abbildung 26: Approximation des Experiments 200405-28-3