

FZKA-BWPLUS

**Gegenstromreaktor zur Entfernung oxidierbarer Aerosole aus
Abluftströmen**

von

F. Opferkuch, G. Gaiser, G. Eigenberger
Institut für Chemische Verfahrenstechnik
Universität Stuttgart

Förderkennzeichen: PEF 397007

Die Arbeiten des Projektes Europäisches Forschungszentrum für Maßnahmen zur Luftreinhaltung wurden mit Mitteln des Landes Baden-Württemberg gefördert

Februar 2001

Inhaltsverzeichnis

ZUSAMMENFASSUNG	IV
SUMMARY	V
FORMELZEICHEN	VI
1 EINLEITUNG	1
2 AEROSOLARTEN UND IHRE ENSTEHUNG	4
2.1 Eigenschaften von Aerosolen	4
2.2 Physiologische Wirkungen partikelförmiger Luftverunreinigungen	6
2.3 Generierung von Modellaerosolen	7
2.3.1 Rauch	8
2.3.2 Feinstäube	8
2.3.3 Dieselruß	9
2.4 Bestimmung der Partikelbeladungen	10
3 ZÜND- UND UMSATZVERHALTEN VON ORGANISCHEN AEROSOLEN	12
3.1 Thermische Analysemethoden	12
3.2 Temperatur-programmierte-Oxidation (TPO)	13
3.3 Heißfiltration	16
3.3.1 Ziel	16
3.3.2 Vorversuche am Metallfilter	16
3.3.3 Versuchsapparatur	17
3.3.4 Ergebnisse an der Versuchsapparatur	19
3.3.5 Kontinuierliche Regeneration	22
4 KONZEPTE DES GEGENSTROMREAKTORS	24
4.1 Aufbau des Reaktors	24
4.2 Der Gegenstromreaktor mit integriertem Heißgasfilter	28
4.2.1 Ein- und Auslaufbereiche	28

4.2.2	Ergebnis	31
4.2.3	Die Wärmeübertragerzone	32
4.2.4	Der Partikelfilter	34
4.2.5	Wärmeübergang	37
4.2.6	Der Katalysator im Gegenstromreaktor	38
5	MODELLBILDUNG	40
5.1	Bilanzierung	40
5.2	Quasihomogenes Modell	42
5.2.1	Quasihomogenes Modell des adiabaten Festbettreaktors	42
5.2.2	Quasihomogenes Modell des Gegenstromreaktors	43
5.2.3	Die Stützheizung	43
5.2.4	Die Mittenfunktion	44
5.3	Parameter und Stoffwerte	44
5.3.1	Geometrieparameter	44
5.3.2	Stoffdaten	45
6	DAS THERMISCHE VERHALTEN DES GEGENSTROMREAKTORS	47
6.1	Energiebilanz	47
6.1.1	Leistungsbedarf der Stützheizung	47
6.1.2	Wärmedämmung	48
6.1.3	Konvektion	48
6.1.4	Wärmespeicherung	49
6.1.5	Äußeren Verluste	50
6.2	Temperaturprofile bei verschiedenen Betriebsbedingungen	51
6.3	Optimierung der Wärmeintegration	52
7	REGELUNGSKONZEPTE	54
7.1	Stabilitäts-/ Arbeitsbereich des Reaktors	54
7.2	Betriebsverhalten bei Überkonzentration	56
7.3	Regelungskonzepte bei Überkonzentration - Mittenfunktion	57
7.4	Experimentelle Ergebnisse zu den Regelungskonzepten	58

7.5	Simulationen zu verschiedenen Regelungskonzepten	59
7.6	Vergleich und Beurteilung der Regelungskonzepte	62
7.7	Anfahren des Reaktors	65
8	AUFBAU DER VERSUCHSANLAGE	68
8.1	Anlagenkomponenten	68
8.2	Ausstattung der Gegenstromreaktoren	68
8.3	Durchsatz- und Temperaturmessung	70
9	ORGANISCHE AEROSOLE IM GEGENSTROMREAKTOR	72
9.1	Einleitung	72
9.2	Anlagerungen und deren Abreinigung	72
9.3	Experimente am Gegenstromreaktor mit Heißgasfilter	73
9.4	Experimente mit Dieselabgasen	74
	LITERATUR	84

Zusammenfassung

Inhalt dieser Arbeit sind Ergebnisse zu Untersuchungen zur kontinuierlichen Entfernung oxidierbarer Aerosole aus Abluftströmen durch thermische Abluftreinigung. Das für die Untersuchungen eingesetzte Apparateprinzip des Gegenstromreaktors zeichnet sich durch eine hohe Wärmeintegration aus, die im Vergleich zu konventionellen thermischen Verfahren eine besonders wirtschaftliche Betriebsweise ermöglicht. So ist ein sogenannter autothermer Betrieb, d.h. ein Betrieb des Reaktors ohne Fremdbeheizung, bereits bei Schadstoffkonzentrationen möglich, die einer adiabaten Temperaturerhöhung von 30 K entsprechen. Die Schwerpunkte einer Anwendung liegen dabei besonders bei kleineren oder mittleren Abluftmengen mit geringen Schadstoffbeladungen.

Nachdem die prinzipielle Eignung des Verfahrens zur Abluftreinigung von organischen Aerosolen wie Feinstäube, Rauch und Bioaerosolen im ersten Projektabschnitt gezeigt werden konnte, war es Inhalt dieses zweiten Projektabschnittes, das Apparateprinzip weiterzuentwickeln und das Betriebsverhalten bei realen Bedingungen, wie veränderlicher Schadstoffbeladung und schwankender Abluftmenge zu ermitteln. Wesentliche Betriebsparameter, wie Druckverlust, Wärmeintegration, das Umsatzverhalten von Partikeln, sowie das Verschmutzungsverhalten des Reaktors wurden durch eine optimierte Gestaltung des Apparates verbessert. Dazu werden Ergebnisse zu Untersuchungen vorgestellt. Basierend auf den Ergebnissen dieser Untersuchungen wurde eine speziell für partikelförmige Emissionen optimierte Bauform des Gegenstromreaktors entwickelt. Zusätzlich wurde bei dieser Bauform das bekannte Konzept um einen Filter in der Reaktionszone erweitert, der Partikel im Kopf des Reaktors zurückhält, die dann bei den dort vorherrschenden hohen Temperaturen kontinuierlich umgesetzt werden. Dazu werden erste Betriebserfahrungen mit Feinststäuben und Dieselabgas vorgestellt.

Als Ergebnis der Untersuchungen liegt damit ein Apparatekonzept zur kontinuierlichen Abluftreinigung von partikel- und gasförmigen Schadstoffen vor, das sich dadurch auszeichnet, daß Abluft mit gas- und partikelförmigen Schadstoffbeladungen in einem kompakten Apparat bei bereits geringen Schadstoffkonzentrationen autotherm, d.h. ohne äußere Wärmezufuhr behandelt werden kann. Die Abluftreinigung im Gegenstromreaktor ist durch die kompakte Apparategröße besonders bei kleineren und mittleren Abluftmengen wirtschaftlich, wie sie häufig bei dezentralen Anwendungen und in der mittelständischen Industrie anzutreffen sind. Das im Rahmen dieses Projektes entwickelte Konzept wird zur Zeit in Zusammenarbeit mit einem Projektpartner aus dem Automobilbereich für die Anwendung zur Reinigung von Dieselabgasen weiterentwickelt.

Counterflow Reactor for Removal of Oxidizable Aerosols from Waste Air Streams

Summary

The volume of this work are results of investigations on the continuous removal of oxidizable aerosols in waste air streams by thermal incineration. The counterflow reactor principle which was used in the investigations features a high heat integration, which in comparison with conventional thermal processes allow for an highly efficient operation. This so-called autothermal operation, which means an operation without any additional heating, can be used down to low concentrations of pollutants, which is corresponding to an adiabatic temperature rise of 30 K. The main focus of this application lies at small or medium waste air streams with small concentration of pollutants.

After the applicability for waste air incineration of organic aerosoles such as fine dusts, smoke and bioaerosoles has been proved in the first period of the project, it was the topic of the second period, to develop the apparatus further and to determine the operating behaviour at more realistic conditions such as varying concentrations of pollutants and varying mass fluxes of waste air. Main operating parameters such as pressure drop, heat integration and the conversion of the particle have been improved by an optimized apparatus design. Corresponding results of experiments are presented for an optimized type of a counterflow reactor. In addition the concept was extended by a filter in the reaction zone, which keeps particles back and thus increases particle residence time in the hot reaction zone until total combustion is achieved. First operating experiences with fine dust and off-gas from diesel engines are reported.

As a result of this investigation a new design concept for a continuously operating waste air incineration apparatus for particles and gaseous pollutants is presented which features the possibility of autothermal incineration of multiple charged waste air in one compact apparatus at small concentrations of pollutants. The counterflow reactor for waste air incineration is especially economic at small and medium fluxes of waste air because of the compact design. The new concept will be developed further in a partnership with a car manufacturing company for cleaning off-gas from Diesel engines.

Formelzeichen

Lateinische Buchstaben

a_v	m^2/m^3	spezifische Oberfläche
A	m^2	Querschnittsfläche
b	g/m^2	Belegungsdichte
B	m	Breite
c_p	$kJ/kg\ K$	Wärmekapazität
d	m	Durchmesser
D	m^2/s	Diffusionskoeffizient
G_z	$kg/(m^2\ s)$	Querschnittsbelastung
h	m	Spaltweite
H	m	Höhe
k	$W/m^2\ K$	Wärmedurchgangskoeffizient
L	m	Länge
m	kg/s	Massenstrom
M	$kg/kmol$	Molmasse
n	-	Anzahl der Trennwände
r	$kmol/s$	Reaktionsgeschwindigkeit
t	s	Zeit
T	K	Temperatur
V	m^3/h	Volumenstrom
w	m/s	Geschwindigkeit
w	kg/kg	Massenanteil
X	%	Relativer Umsatz
y	mol/mol	

Griechische Buchstaben

α	$W/m\ K$	Wärmeübergangskoeffizient
β	m/s	Stoffübergangskoeffizient
Δh_r	$kJ/kmol$	Reaktionsenthalpie
Δp	Pa	Druckverlust
ΔT	K	Temperaturerdiffferenz
ε	-	Hohlraumanteil
λ	$W/(mK), -$	Wärmeleitfähigkeit, Luftzahl

ν	m^2/s	kinematische Viskosität
ρ	kg/m^3	Dichte
θ	$^{\circ}C$	Temperatur
ζ	-	Druckverlustbeiwert

Indices

<i>ad</i>	adiabat
<i>aktiv</i>	Katalytisch aktive Zone
<i>amb</i>	Umgebung
<i>aus</i>	Austritt, Reingas
<i>ax</i>	axial
<i>eff</i>	effektiv
<i>ein</i>	Eintritt, Rohgas
<i>Diff</i>	Diffusion
<i>F</i>	Filter
<i>G</i>	gas
<i>h</i>	hydraulisch
<i>inert</i>	Wärmeübertragungszone
<i>Konv</i>	Konvektion
<i>L</i>	Leitung
<i>P</i>	Partikel
<i>R</i>	Reaktor
<i>S</i>	solid
<i>s</i>	Spalt
<i>v</i>	volumenbezogen
<i>V</i>	Verlust
<i>W</i>	Wand

Kennzahlen

<i>Nu</i>	-	Nußelt-Zahl ($\alpha d_h/\lambda$)
<i>Re</i>	-	Reynolds-Zahl ($w d_h/\nu$)
<i>Sh</i>	-	Sherwood-Zahl ($\beta d_h/D$)

1 Einleitung

Aerosole stellen auf Grund der geringen Partikelgrößen eine besondere Herausforderung bei der Abluftreinigung dar, da Partikel dieser Größenordnung ($d_p < 10 \mu\text{m}$) mit herkömmlichen Abscheidemethoden nicht oder nur mit beträchtlichen Aufwand (Druckverlust in Filtern, Filterwechsel) zu entfernen sind. Zudem sind Abluftströme in der Regel mehrfach, d.h. gleichzeitig mit gas- und partikelförmigen Schadstoffen belastet, so daß häufig aufwendige Mehrschrittverfahren zur Abluftreinigung eingesetzt werden müssen. Sind diese organisch und damit vollständig zu CO_2 und H_2O oxidierbar können die Schadstoffe kontinuierlich in einem Verfahrensschritt durch die thermische Nachverbrennung beseitigt werden. Diese Aufgabe stellt sich im gewerblichen Bereich in der Lebensmittelverarbeitung, bei Abluftströmen aus Röstprozessen oder bei der Räucherwarenherstellung aber auch bei der Zerkleinerung von organischen Materialien (z.B. Holz), in der Fahrzeugtechnik ist die Reinigung von rußbeladenen Abgasen wie sie Dieselmotoren emittieren, eine aktuelle Problemstellung.

Bei der thermischen Abluftreinigung muß die gesamte Abluft auf Temperaturen oberhalb der Zündtemperatur der Schadstoffe aufgeheizt werden. Um die dadurch verursachten Energiekosten zu begrenzen, werden üblicherweise Wärmetauscher zur Vorwärmung der Abluft mit dem heißen gereinigten Reingas eingesetzt. Eine Weiterentwicklung dieses Konzeptes stellt der Gegenstromreaktor dar, bei dem Wärmetauscher und Brennkammer in einem Apparat integriert sind. Vorteil dieses Apparatekonzeptes ist, daß im Vergleich zur herkömmlichen Abluftreinigungsverfahren eine höhere Wärmeintegration erreichbar wird. Damit ist es mit diesen kompakten Apparaten möglich den Wärmebedarf bei der Abluftreinigung erheblich zu senken. Dadurch erschließen sich dem Verfahren Anwendungsgebiete, bei der eine konventionelle thermische Abluftreinigung aus wirtschaftlichen Gesichtspunkten auszuschließen wäre. Dabei kommen besonders Abluftströme mit geringer Schadstoffbelastung in Betracht, wie dies bei organischen Aerosolen häufig der Fall ist. In dieser Arbeit werden Untersuchungen zur thermischen Abluftreinigung im Gegenstromreaktor vorgestellt. Dazu wurde das Reaktorverhalten mit Hilfe von Modellaerosolen untersucht, die jeweils an einen potenziellen Anwendungsfall aus der Praxis angelehnt sind.

Bei der Behandlung von partikelförmigen Schadstoffen in Abluftströmen können Rohrleitungen und Apparate durch Ablagerungen belegt werden. Diese entstehen bevorzugt an Rohrkrümmungen u. ä.. Ein Schwerpunkt wurde daher auf die Optimierung der Strömungsführung im Apparat gelegt, die bei der Behandlung von partikelhaltigen Abluftströmen von besonderer Bedeutung ist.

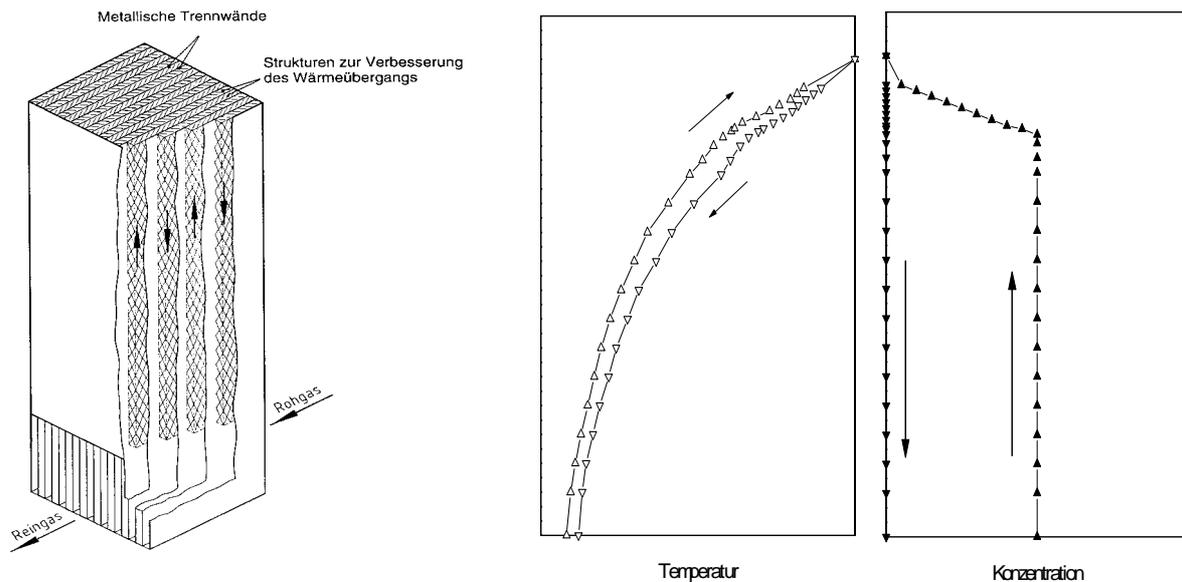


Abb. 1.1: Schema des Gegenstromreaktors, Temperatur- und Konzentrationsverlauf.

Abb 1.1 zeigt schematisch den Aufbau, sowie einen beispielhaften stationären Temperatur- und Schadstoffkonzentrationsverlauf im Gegenstromreaktor. Der Gegenstromreaktor in metallischer Bauweise ist aus einer Vielzahl paralleler Kanäle aufgebaut, die abwechselnd im Gegenstrom von ungeeinigter und gereinigter Abluft durchströmt werden. Dadurch ergibt sich eine definierte Strömungs- und Temperaturführung. Die Wärmeübertragung zwischen dem heißen Reingas und dem kühleren Rohgas erfolgt rekuperativ über die Kanalwände. Durch geeignete Einbauten in den Kanälen läßt sich ein hoher Wärmeaustausch bei moderatem Druckverlust erzielen. Im ersten Projektabschnitt werden optimierte Einbauten entwickelt und Ergebnisse dazu vorgestellt.

Die zu reinigende Abluft wird auf dem Weg zum Kopf auf die Zündtemperatur der Schadstoffe erhitzt. Im folgenden Bereich werden, ausreichende Verweilzeit vorausgesetzt, diese Stoffe mit Luftsauerstoff vollständig zu CO_2 und H_2O umgesetzt. Um eine kompakte Apparategröße zu verwirklichen müssen hohe Gaskeschwindigkeiten erreicht werden. Um trotzdem eine für Vollumsatz ausreichende Verweilzeit der Partikel zu gewährleisten, kann in der heißen Zone des Reaktors ein Rückhaltesystem eingesetzt werden. Dazu werden in diesem Bericht Untersuchungsergebnisse von verschiedenen Filtersystemen vorgestellt. Durch die hohen Temperaturen im Reaktorkopf ist es möglich, daß die auf dem Filter zurückgehaltenen Partikel kontinuierlich umgesetzt werden und somit eine Blockade des Filters durch den anwachsenden Filterkuchen vermieden wird. Dadurch läßt sich eine kontinuierliche Regeneration des Filters erreichen womit ein unterbrechungsfreier Betrieb des Reaktors möglich ist.

In dem jetzt abgeschlossenen, zweiten Teil des Projektes wurden Untersuchungen durchgeführt, um die für eine Reaktorauslegung maßgeblichen Parameter für die Verbrennung verschiedener technischer Aerosole, wie z.B. Feinstäube, Rauch oder Ruß zu ermitteln. Die Ergebnisse der Untersuchun-

gen führten zu einer optimierten Bauweise des Gegenstromreaktor mit einem Heißgasfilter der speziell für die Abluftreinigung von organischen Aerosolen optimiert ist.

2 Aerosolarten und ihre Entstehung

2.1 Eigenschaften von Aerosolen

Oxidierbare Aerosole sind so vielseitig, wie die technischen Prozesse in der Industrie, die zu deren Entstehung führen. Gemeinsam ist Ihnen die Eigenschaft der feindispersen Verteilung einer organischen, flüssigen oder festen Phase in einem Luftstrom. Teilweise können diese nativen Ursprungs sein (z.B. Bioaerosole wie Pollen etc.), ein anderer ständig steigender Anteil, der besonders in Ballungsräumen zunehmende die Luft belastet, sind Aerosole andropogenen Ursprungs (Ruß, Feinstäube, etc.). Ein erheblicher Anteil dieser Aerosole setzt sich aus organischen Materialien zusammen, die, sind sie über die Atemwege in den Körper des Menschen gelangt, Allergien und teilweise auch schwerwiegende Krankheiten auslösen können.

Größe und Form der Partikel in einem Aerosolsystem sind in aller Regel nicht einheitlich, sondern müssen über statische Funktionen beschrieben werden. In der Richtlinie VDI 3491 Bl.1 [1] werden verschiedene Partikeldurchmesser definiert. In Verbindung mit verschiedenen Mengenmaßen, z.B. Anzahl, Volumen und Masse, ergibt sich eine Vielzahl an Möglichkeiten der Messung und Darstellung einer Partikelgrößenverteilung. Bei Aerosolen bietet sich zur Beschreibung der Partikelgröße der aerodynamische Durchmesser an. Er beschreibt im Bereich über 0,5 µm Durchmesser das Verhalten der Partikel im gasgetragenen Zustand. Der aerodynamische Durchmesser stellt den Durchmesser einer Kugel einheitlicher Dichte ($\rho = 1 \text{ g/cm}^3$) dar, die die gleiche Sinkgeschwindigkeit wie das Partikel aufweist [2].

Die Partikelkonzentration beschreibt die Häufigkeit des Auftretens von Partikeln in einem Größenintervall pro Volumeneinheit des Trägermediums. Übliche Konzentrationsmaße sind die Massenkonzentration, die Volumenkonzentration oder die Anzahlkonzentration.

Je nach Entstehungsort und Erscheinungsbild des Aerosols spricht man entweder von Rauch oder von Staub, beidesmal ist eine feste Phase dispers in einem gasförmigen umgebenden Medium gelöst. Während gröbere Partikel in der Abluft ($> 10 \text{ µm}$ im Durchmesser) durch Entstaubungsanlagen (Zyklone, Elektro- oder Schlauchfilter) wirtschaftlich beseitigt werden können, stellen kleinere Partikel, die je nach Entstehungsart bis zu wenigen 10 nm im Durchmesser groß sein können, ein weit größeres Problem bei der Entfernung aus der Abluft dar. Zur Entfernung von Partikeln aus Abluftströmen werden in der Praxis verschiedene Wirkprinzipien eingesetzt.

Bei Massen-, Trägheits- und Fliehkraftabscheidern ist der Trenneffekt des Apparates bestimmt durch die Dichte und den Durchmesser der Teilchen, die abgeschieden werden sollen. Feinere und leichtere Stäube

können nur schwer abgeschieden werden. Bis herab zu Partikeldurchmessern von 12 μm werden bei der Staubabscheidung beispielsweise Zyklone eingesetzt, die besonders wirtschaftlich arbeiten. Auch bei der Naßentstaubung findet die Abscheidung der Partikel aufgrund ihrer Schwer- oder Trägheitskräfte statt. Allerdings sollen besonders die kleinen und damit leichteren Partikel an Tropfen einer Waschflüssigkeit gebunden werden, um so ihre Masse zu vergrößern und damit ihre Abscheidung zu erleichtern. Ein Nachteil des Verfahrens ist, daß bei der Naßentstaubung das Luftverunreinigungsproblem auf das Wasser verlagert wird.

Bei Prozessen, bei denen sehr feine oder leichte Partikel ($< \text{ca. } 1 \mu\text{m}$) in der Abluft anfallen, reichen Massenkraftabscheider und Naßentstaubung als Abluftreinigungsverfahren alleine nicht aus. In diesem Bereich werden teilweise Elektrofilter, insbesondere aber filternde Entstauber eingesetzt. Bei Elektrofiltern ist besonders bei kleinen Partikeln die Abscheideleistung durch die Abreinigung der Niederschlagsplatten negativ beeinflusst. Bei filternden Entstaubern müssen, für einen störungsfreien Betrieb, Feuchtegehalt und Temperatur des Gases innerhalb gewisser Grenzen liegen. Die siebmäßige Filterwirkung bei Gewebe- oder Vliesstoffen erfaßt dabei noch Partikel bis zu 1 μm [3], durch Tiefenfiltration können auch noch kleinere Partikel abgeschieden werden. Die Abscheideleistung eines filternden Entstaubers wird dadurch begrenzt, daß die für die Abscheidung von kleineren Partikeln durch Tiefenfiltration vorteilhafte Ablagerungsschicht zu dick wird und wegen des zu hoch gewordenen Druckverlustes entfernt werden muß. Somit ist die sichere Abscheidung von kleinsten Partikeln nicht gewährleistet, da die Abscheideleistung bei filternden Entstaubern im Dauerbetrieb durch die Notwendigkeit der periodischen Entfernung der Ablagerungsschicht schwankt.

Damit läßt sich sagen, daß Feinstaubanteile in Abluftströmen unter 1 μm mit bekannten industriellen Abscheideverfahren zur Zeit nicht sicher abgeschieden werden können. Bei staub- oder rauchförmigen Emission kommt aber gerade diesem Partikelanteil wegen seiner gesundheitsgefährdenden Potenzials besondere Bedeutung zu. In diesem Zusammenhang sind die Lungengängigkeit und die geringe Sinkgeschwindigkeit in der Atmosphäre besonders der kleineren Partikel zu nennen. In der Ersten Allgemeinen Verwaltungsvorschrift zum Bundes-Immissionsschutzgesetz (TA Luft) werden daher der Gesamtstaubgehalt und der Feinstaubanteil gewerblicher Anlagen begrenzt. Darin wird der Feinstaubgehalt auf Partikeldurchmesser von 5 bzw. 10 μm bezogen.

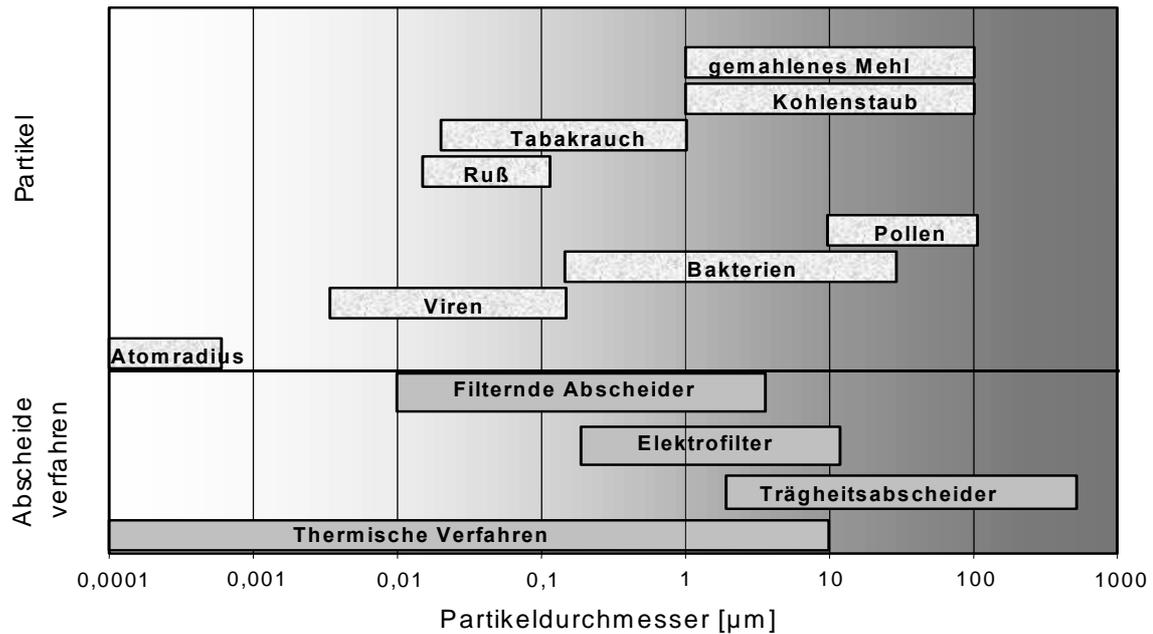


Abb. 2.1: Partikelspektren organischer Aerosole und Anwendungsbereiche technischer Reinigungsverfahren.

2.2 Physiologische Wirkungen partikelförmiger Luftverunreinigungen

Eine mögliche Gesundheitsgefährdung durch Partikel in der Atemluft ist seit langem bekannt. Erst in neuerer Zeit allerdings wird verstärkt die Gefährdung des Menschen durch besonders feine Partikel, auch in geringen Konzentrationen, diskutiert. Organischen Partikeln mit einem Durchmesser unter ca. $10 \mu\text{m}$ kommt in diesem Zusammenhang eine besondere Bedeutung zu, da diese lungengängige Fraktion teilweise bis in die Alveolen der Lungen gelangen, wo diese größtenteils abgeschieden werden.

Die Auswirkungen von inhalierten Aerosolen auf die menschliche Gesundheit sind noch nicht vollständig geklärt, sie hängen aber in erster Linie von der Partikelanzahl und deren Masse ab, die in einem Atemzyklus in den Bronchien und Alveolen des Atemweges abgelagert werden. Es gibt z. Zt. keine Möglichkeit, Menge und Anzahl der abgeschiedenen Partikel in den Teilen der Atemwegen *in vivo* zu bestimmen [4]. Der Atemweg in die menschliche Lunge ist in Einstömungsrichtung mit einer steigender Anzahl an Verzweigungen aufgebaut, wobei der Gesamtquerschnitt auf dem Weg der Atemluft in die Alveolen zunimmt, d. h. die Strömungsgeschwindigkeit abnimmt. Gleichzeitig sinken aber die Einzelquerschnitte der einzelnen Atemwege. Dies führt dazu, daß in den unterschiedlichen Atemwegen unterschiedliche Abscheidemechanismen dominieren. Größere Partikel ($1 \mu\text{m} < d_p < 10 \mu\text{m}$) werden relativ früh infolge von Trägheitskräften abgeschieden, kleinere Partikel ($d_p < 1 \mu\text{m}$) gelangen dagegen bis tief

in die Alveolen. Während es im oberen Atemtrakt natürliche Reinigungsmechanismen gibt, die in der Lage sind abgeschiedene Partikel abzutransportieren, können in den Alveolen abgelagerte Partikel nicht ausgetragen werden und müssen daher dort vom Körper abgebaut werden. Der Abbau benötigt im Vergleich zum Austrag eine große Zeitspanne, in der sich durch Zwischenprodukte oder durch körpereigene Abwehrreaktionen hervorgerufene pathologische Veränderungen ergeben können. Die gleichzeitige Superposition mit anderen gasförmigen Schadstoffen kann dabei weitere für die Gesundheit des Menschen schädliche Auswirkungen haben.

Eine eindeutige Bewertung des Gefährdungspotentials für den Menschen durch organische Partikel in der Atemluft ist daher schwierig. In neueren EU-Richtlinien wird dem Umstand Rechnung getragen daß die absolute Zahl der Partikel von höherer Bedeutung ist als ihre Masse mit der Konsequenz, daß kleine Partikel mit geringer Masse besonders gewertet werden. Ab dem Jahr 2005 wird ein Immissionsgrenzwert für die Summe der Partikelmasse im Spektrum unter $10\ \mu\text{m}$ (PM 10) festgeschrieben, Grenzwerte für das Spektrum kleiner $2,5\ \mu\text{m}$ (PM 2,5) sind geplant, für PM 1 werden sie bereits diskutiert. Bereits heute wird der naher Zukunft verbindliche PM 10-Grenzwert in Ballungsräumen überschritten, so daß dringender Handlungsbedarf bei Vermeidung von Partikelemissionen besteht.

Für die Abluftreinigung definieren sich daher die Ziele in einer effektiven Reduktion der Partikelkonzentration mit besonderer Beachtung kleinerer Partikel ($d_p < 10\ \mu\text{m}$), sowie in der Forderung nach der Beseitigung von gleichzeitig auftretenden gasförmigen Schadstoffen.

2.3 Generierung von Modellaerosolen

Für die Messungen zur Oxidation von organischen Aerosolen im Gegenstromreaktors wurden verschiedene Aerosole eingesetzt die für eine technische Anwendung des untersuchten Verfahrens Modellcharakter haben. Diese Modellaerosole wurden direkt an der Versuchsanlage in Anlehnung an natürliche Partikelentstehungsmechanismen erzeugt, wie Feststoffdispergieren (Feinstaub), Verschmelzung (Rauch) etc.. Um stationären Meßwerte am Reaktors zu erhalten, muß das Aerosol eine über die Meßdauer konstante Zusammensetzung hinsichtlich der Partikelkonzentration und deren Zusammensetzung aufweisen. Zur Generierung der Modellaerosole sind in Literatur verschiedene Verfahren beschrieben [5],[6].

Um staubförmige Partikel zu erzeugen muß von einem Dispergieren von Feststoff-Haufwerken ausgegangen werden, wobei es sich bei den Partikeln um feste Partikel handelt, die überwiegend unregelmäßig und von der Kugel stark abweichende Formen aufweisen und polydispers in Luft verteilt werden sollen. Die Größenordnung des damit abzudeckenden Partikelbereichs liegt grundsätzlich über ca. $1\ \mu\text{m}$ und geht bis zu großen Partikeln von $100\ \mu\text{m}$ Durchmesser. Mit diesem Verfahren lassen sich Modellaerosole wie

Holz- oder Mehlstäube in definierter Partikelkonzentration erzeugen. Durch die Möglichkeit des Einsatzes verschiedener Ausgangsmaterialien besteht mit diesem Verfahren mit einer Apparatur die Möglichkeit eine breite Palette von technischen Aerosolen zu erzeugen. Daher wurden diese Verfahren für die experimentellen Untersuchungen bevorzugt eingesetzt.

2.3.1 Rauch

Partikel können auch durch Kondensation von Dämpfen entstehen. Kondensiert dieser Dampf auf bereits vorhandenen kleinsten Partikeln (sog. Kondensationskeimen), spricht man von gesteuerter Kondensation. Bei ausreichend hoher Übersättigung kann die Bildung von Partikeln auch ohne Vorhandensein von Kondensationskeimen spontan und ungesteuert einsetzen. Bei vielen natürlichen Partikelentstehungsprozessen (Smog, Verbrennung, Verschmelzung) wird die, für die Kondensation notwendige Übersättigung der Dampfphase, durch eine chemische Reaktion ausgelöst [7]. Der übliche Partikelbereich variiert stark nach dem jeweiligen Verfahren und liegt bei ca. 0,01 bis 100 μm . Im Rauchgas liegen feste und flüssige Partikel aus Aggregaten vieler Primärpartikel vor, die im allgemeinen polydispers verteilt sind.

Durch eine Verschmelzung von organischem Material wird durch eine ungesteuerte Kondensation nach einer chemischen Reaktion ein sogenanntes Räucheraerosol erzeugt. Der Rauch enthält partikelförmige sowie gasförmige Verunreinigungen und ist daher für Untersuchungen zur simultanen Abluftreinigung besonders geeignet

2.3.2 Feinstäube

Die Zerkleinerung größerer Strukturen ist ein maßgeblicher Mechanismus, der zur Entstehung von Aerosolpartikeln führt. Hierzu zählt das Versprühen von Flüssigkeiten, das Dispergieren vorgegebener Haufwerke und das Zerkleinern und Dispergieren von Feststoffen. Da bei allen Zerkleinerungs- und Dispergierungsvorgängen mit abnehmender produzierter Partikelgröße der notwendige Energieaufwand beträchtlich steigt, sind die so erzeugbaren Partikelgrößen nach unten begrenzt.

Bei der Dispergierung von Feststoffen in Luft werden Stäube als Haufwerk vorgelegt. Je nach Stoffart, Korngröße, Feuchtegehalt und anderen Parametern weisen diese unterschiedliche Eigenschaften auf. Die Herstellung eines Aerosols aus Feststoffhaufwerken setzt sich zusammen aus dem Dosieren des Feststoff-Massenstromes und dessen anschließendem Dispergieren in einen Gasstrom. Die Güte der Dosierung ist für ein konstante Partikelbeladung des Gasstroms maßgeblich. Durch das Dispergieren wird das Haufwerk in einem vorgegebenen Gasstrom zerteilt. Dabei ist eine Desagglomeration erforderlich, da die Feststoffteilchen durch Haftkräfte verschiedener Art (Flüssigkeitsbrückenkräfte, van-der-Waals-Kräfte,

Kräfte auf Grund elektrostatischer Aufladung) in Form von Agglomeraten gebunden sind. Feinkörnige Pulver agglomerieren besonders stark [8]. Die Agglomeration kann im trockenen und feuchten Haufwerk stattfinden, wenn agglomerierende Bedingungen vorherrschen, aber auch in der Dispersion, beim Zusammenstoß von Partikeln, die im Gas dispergiert sind. Auch natürliche Aerosole sind agglomeriert. Die Desagglomeration der Agglomerate findet durch die Scherkräfte des strömenden Gases und durch die Wandreibung im Strömungskanal statt. Beanspruchungen in geradlinigen Rohrströmungen von unterhalb von 100 m/s genügen jedoch nur zur Auflösung von groben Agglomeraten [9].

Die im Rahmen dieses Projektes zu Meßzwecken eingesetzten Modellaerosole wurde aus Haufwerken hergestellt. Dazu wurde im ersten Projektabschnitt ein Aerosolgenerator aufgebaut. Durch den Einsatz verschiedener Ausgangsstoffe lassen sich so unterschiedliche Modellaerosole unter definierten Bedingungen erzeugen. Beispiel hierzu sind Feinststäube aus Hartholz, Cellulose und Getreidemehl.

2.3.3 Dieselruß

Im ersten Projektabschnitt konnte anhand von Messungen gezeigt werden, daß im Gegenstromreaktor eine Abluftreinigung von Schwelrauch möglich ist. Aufbauend auf diese Ergebnisse wurde in diesem Projektzeitraum untersucht, in wie weit Abgase aus Dieselmotoren im Gegenstromreaktor nachbehandelt werden können. Dieselmotoren emittieren neben anderen Schadstoffen wie gasförmigen Kohlenwasserstoffen (VOC) und Kohlenmonoxid (CO) auch Rußpartikel. Die Rußpartikel entstehen bei der unvollständigen Verbrennung von Kraftstoff im Brennraum des Motors. Während im Brennraum der Durchmesser der Partikel einige wenige Nanometer beträgt, wächst der mittlere Durchmesser der Partikel durch Agglomeration im weiteren Abgasweg auf einige 100 nm an. Das Partikelspektrum liegt damit im Bereich von 0,01 - 0,25 µm. Die Partikelkerne bestehen dabei primär aus elementarem Kohlenstoff auf den gasförmige Abgasbestandteile wie leichtflüchtige Kohlenwasserstoffe, Sulfate und Wasser adsorbieren [10]. Je nach Motor und Betriebszustand variiert die Partikelzusammensetzung erheblich. Durch die kleinen Durchmesser der Partikel und die adsorbierten Kohlenwasserstoffe weist Dieselruß ein besonders gesundheitsgefährdendes Potenzial auf, was sich in zunehmend strengeren Grenzwerten für diese Schadstoffklasse ausdrückt. Für die Versuche mit Dieselruß konnte das Aerosol nicht aus einem Haufwerk erzeugt werden. Partikel aus Dieselruß weisen starke Adhäsionskräfte untereinander auf und können daher nicht vollständig redispergiert werden. Aus diesem Grund wurde ein reales Dieselabgas eingesetzt, das von einem Kleindiesel erzeugt wurde. Der 4-Takt-Dieselmotor ist an einen Generator gekoppelt, über den durch elektrische Verbraucher die Leistungsabgabe im Bereich von 1500 bis 5500 Watt stufig eingestellt werden kann. Über eine verstellbare Abgasrückführung kann die Sauerstoffkonzentration der

Verbrennungsluft eingestellt werden. Das Abgas wurde durch den Reaktor geleitet, dem ein Schalldämpfer vorgeschaltet wurde.



Abb. 2.2: Kleindieselmotor für die Versuche mit Dieselabgas.

2.4 Bestimmung der Partikelbeladungen

Um die Partikelbeladungen der Abluftströme messen zu können, wurde in diesem Projekt ein gravimetrisches Meßverfahren mit Planfiltern in Anlehnung an VDI 2066 [11] eingesetzt. Dabei wurde das Meßverfahren auf die speziellen Erfordernisse der aufgebauten Versuchsanordnungen abgestimmt. Auf Grund der geringen Volumenströme mußten geeignete Filterköpfe zur Aufnahme von Planfiltern speziell entwickelt und angefertigt werden. Wirkungsweise und Aufbau dieser Apparatur sind bereits im ersten Bericht [12] dargestellt. Insbesondere an die Wägung der Filterproben werden durch die geringen Filterbeladungen erhöhte Anforderungen gestellt. Grundlage des Verfahrens ist eine isokinetische Entnahme eines Teilstromes aus der Abluft, die Abscheidung des enthaltenen Staubes auf einem Filter mit definierter Trenngrenze, sowie die zeit- und volumenbezogene gravimetrische Ermittlung der Staubmasse.

Auf Grund der kleinen Partikelgrößen wurden Filtermembranen aus Cellulose-Nitrat (Porengröße $0,1 \mu\text{m}$) und Faservliesfilter aus Glasfaser (Faserdurchmesser $1,2 \mu\text{m}$) sowie Quarzfaser (Faserdurchmesser $1 \mu\text{m}$) eingesetzt. Filtermembranen aus Cellulose-Nitrat wurden für die Versuche mit dem Räucher-aerosol eingesetzt, da dieser Filtertyp die geringste Porengröße aufweist und somit für eine Totalfiltration der Partikel dieses Aerosoles geeignet ist.

Quarzfaserfilter wurde für Feinstäube und Dieselruß eingesetzt. Das Filtermaterial ist temperaturstabil bis 850 °C und ist daher für die thermischen Analyse der Filterbeladung geeignet.

Die Filterbeladung wurde durch eine Differenzwägung der Proben auf einer Analysenwaage (Ablesegenauigkeit 1/100 mg) bestimmt. Alle Filter mußten vor der Wägung elektrostatisch entladen werden, da durch das Handling, sowie durch den eigentlichen Meßvorgang diese teilweise erheblich statisch aufgeladen wurden. Eine optische Auswertung der Filterproben erfolgte an einem Lichtmikroskop und an einem Raster-Elektronen-Mikroskop (REM).

3 Zünd- und Umsatzverhalten von organischen Aerosolen

3.1 Thermische Analysemethoden

Die Abluftreinigung von organischen Aerosolen hat die vollständigen Umsetzung aller Kohlenwasserstoffe zum Ziel. Oberhalb einer charakteristischen Zündtemperatur werden organische Partikel mit Luftsauerstoff zu CO_2 und H_2O umgesetzt. Partikel in technischen Abluftströmen sind in der Regel aus verschiedenen Stoffe zusammengesetzt. Daher existiert keine klar abgegrenzte Zündtemperatur der Partikel. Vor dem eigentlichen Zünden der Partikel können ab einer gewissen Temperatur durch einen thermischen Zersetzungsvorgang bereits vorhandene leichtflüchtige Kohlenwasserstoffe abdampfen bzw. durch die thermische Zersetzung neu entstehen.

Daher muß bei der Festlegung der Betriebstemperatur und der Verweilzeit der Schadstoffe in der Reaktionszone diese so gewählt werden, daß alle partikel- und gasförmigen Schadstoffe umgesetzt werden. Um diese Parameter für verschiedene oxidierbare Partikel zu ermitteln sind verschiedene thermische Untersuchungen notwendig, da Messungen im Gegenstromreaktor auf Grund des axialen Temperaturprofils keine eindeutige Aussagen zur Umsetzung der Partikel ermöglichen. Dazu wurden die Partikel in einer der Abluft vergleichbaren Atmosphäre (synthetische Luft) bei definierter Temperatur umgesetzt. Als Parameter für die Partikelumsetzung wurde das in der Verbrennungsluft enthaltene Kohlendioxid herangezogen, da innerhalb dieses Projektes eine aufwendige Online-Partikel-Meßtechnik nicht vorgesehen war. Um den Massenverlust der Partikel in Abhängigkeit der Temperatur zu ermitteln wurden eine thermogravimetrischen Analyse (TGA) mit angeschlossenem Wärmetönungssensor (DSC) durchgeführt.

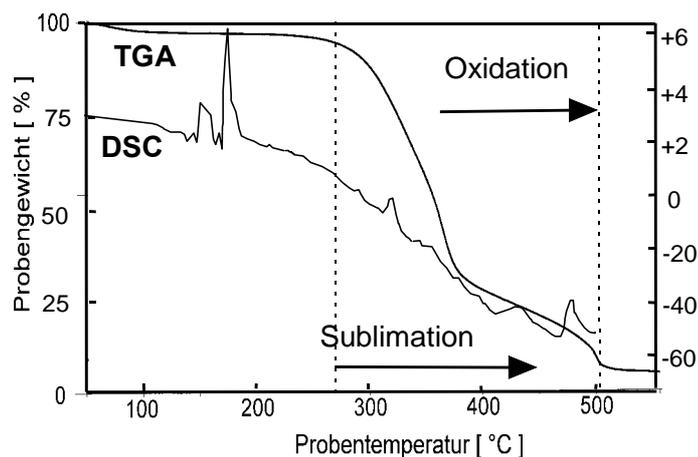


Abb. 3.1: Verlauf des Gewichtes (TGA) und Wärmetönung (DSC) einer Hartholzstaubprobe.

Beispielhaft ist in Abb. 3.1 der Verlauf der Masse und der Wärmetönung über der Temperatur einer Probe aus Hartholzprobe abgebildet. Im Diagramm lassen sich zwei Bereiche erkennen. Im Bereich ab etwa 280 °C findet die Umsetzung der Partikel und damit die Größen- bzw. Massenabnahme durch eine thermische Auflösung der Partikel, der Sublimation der organischen Partikelmasse vom äußeren Rand her statt. Mit zunehmender Temperatur beginnt die oxidative Umsetzung der Partikelmasse. Bei einer Temperatur von ca. 500 °C ist bereits 95 % der ursprünglichen Partikelmasse abgebaut. Bei den hier vorliegenden Proben (Haufwerk mit Partikelgrößen $d_p < 10 \mu\text{m}$) ist der geschwindigkeitsbestimmende Teilschritt des Reaktionssystems Partikel/Sauerstoff der Stofftransport der Reaktionskomponenten durch den das Partikel umschließenden Gasfilm [13]. Oberhalb von 550°C konnten mit diesem Analysensystem keine Messungen ausgewertet werden: Wie sich aus dem Diagramm entnehmen läßt, erfordert eine vollständige Umsetzung dieser Partikel eine höhere Temperatur.

3.2 Temperatur-programmierte-Oxidation (TPO)

Eine zusätzliche Information über den Verlauf der Partikelumsetzung liefert eine Analyse der durch die gasförmigen Verbrennungsprodukte wie Kohlendioxid (CO_2), die bei der vollständigen Verbrennung entstehen. Dazu wurde eine Versuchsanlage aufgebaut in der durch einen kontinuierlichen langsamen Temperaturanstieg, sowie einer kleinen Probenmenge auf einer wärmeleitenden Unterlage, Messungen bei näherungsweise isothermen Verhältnissen durchgeführt werden können. Die Partikel wurden auf einer metallischen, porösen Unterlage aufgetragen und in einem abgeschlossenen Testreaktor auf 600 °C aufgeheizt. Der Träger wurde dabei kontinuierlich mit Luft durchströmt.

Der Probenhalter besteht aus insgesamt zwei metallischen Filtern, wobei sich in einem die untersuchten Partikel befinden und das andere bei der Versuchsanordnung als Abdeckung dient. Die Probentemperatur wurde durch ein Thermoelement, das zwischen den beiden Filtern angebracht wurde, gemessen. Der elektrisch beheizte Testreaktor besteht aus einem gasdichten Gehäuse mit Anschlüssen für Spülluft, Analyseleitungen und Temperaturmessungstelle im Reaktorblock. Zur Versuchsdurchführung wird der Reaktor, ausgehend von Raumtemperatur mit einem Anstieg von ca. 10 K/min, auf die Maximaltemperatur von ca. 600 °C aufgeheizt (Abb.) Während dieses Aufheizvorganges wird der Reaktor mit einem konstanten Strom von 40 l/h synthetischer Luft (80 Vol % N_2 , 20 Vol % O_2) gespült. Ab einer, für die jeweiligen Probe charakteristischen Temperatur setzt die Oxidation der Partikel mit dem Sauerstoff des Spülgases ein. Der CO_2 -Anteil in der Spülluft wurde mittels Differenzmessung zwischen unbeladenem und beladenem Spülgas durch ein Infra-Rot-Spektrometer (URAS14, Hartmann & Braun) gemessen und zusammen mit der Reaktortemperatur auf einem Meßwertschreiber (Multireg C 734, Siemens) registriert und anschließend ausgewertet. Ein Fließbild der aufgebauten Versuchsanlage ist in Abb. gezeigt. Der

Verlauf der Probentemperatur sowie der auf den Maximalwert bezogenen CO_2 -Konzentration in der Spülluft ist in Abb 3.2 dargestellt.

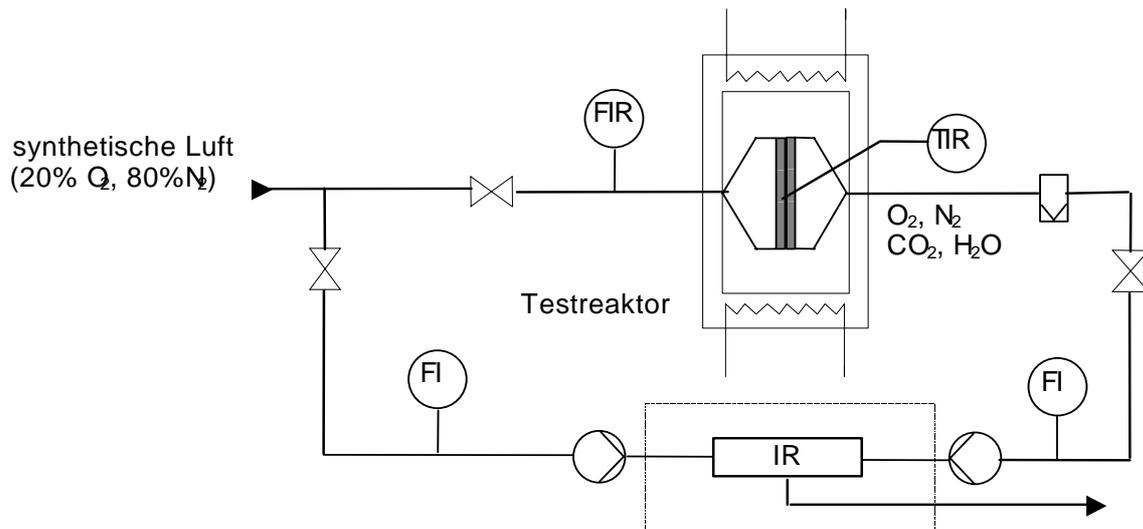


Abb.3.2: Fließbild der Versuchsdurchführung zur isothermen Umsatzbestimmung von Partikel über die CO_2 -Messung.

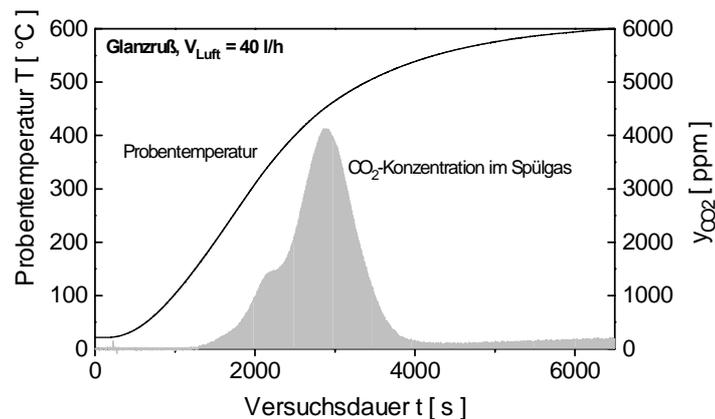


Abb.3.3 :Temperatur im Reaktor und CO_2 -Molanteil in der Spülluft bei der Oxidation von Glanzruß.

In Abb 3.4 und Abb. 3.5 ist die bezogenen CO_2 -Konzentrationen in der Spülluft über der Probentemperatur für Glanzruß- und Hartholzpartikel dargestellt. Wie die Meßergebnisse zeigen, zünden diese Partikel bereits bei Temperaturen um 300°C . Allerdings sind Temperaturen deutlich über 500°C notwendig, um alle organischen Bestandteile vollständig zu oxidieren. Ein dem Analysegerät vorgeschalteter Analysefilter zeigt, daß sich beim Durchfahren der Temperaturrampe durch eine unvollständige Verbrennung der organischen Partikelmasse Rauch bildet, der sich als deutliche Färbung auf einem Meßgasfilter niederschlägt. Mit den Meßergebnissen kann die Kohlenstoffbilanz der Partikelverbrennung nicht geschlossen

werden und somit alleine aus den gemessenen Werten für die Kohlendioxidkonzentration keine Reaktionskinetik für die Partikelverbrennung abgeleitet werden.

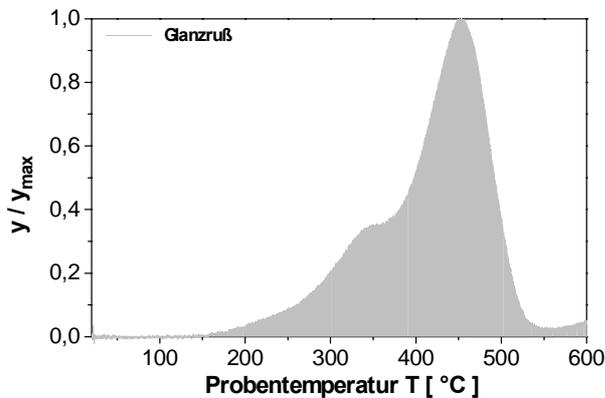


Abb.3.4: Glanzruß.

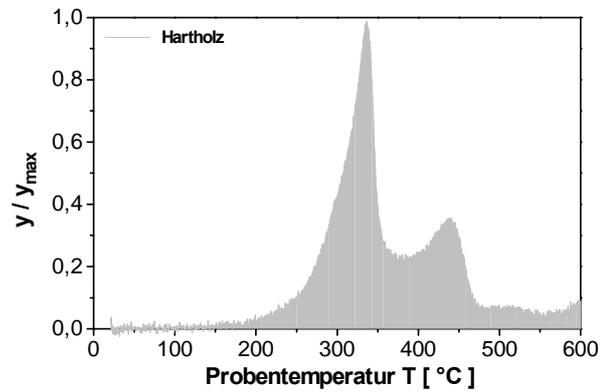


Abb.3.5: Hartholzpartikel Jeluxyl HaHo 120/f.

Jedoch läßt sich bei einer zusammenfassenden Darstellung der Meßergebnisse (Abb. 3.6) erkennen, daß bei den Versuchsbedingungen die untersuchten organischen Partikel bei Temperaturen um 600°C vollständig umzusetzen.

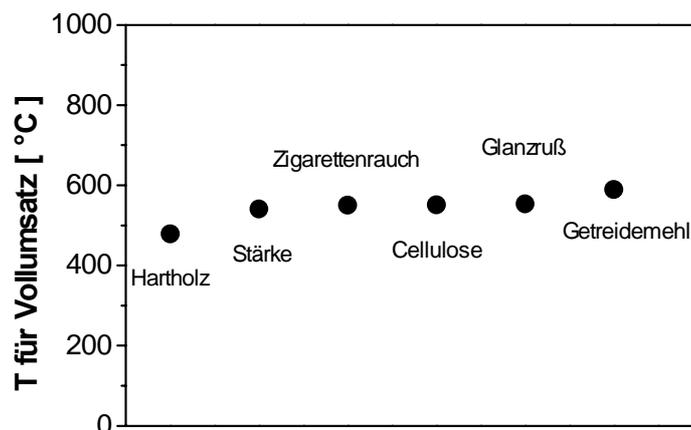


Abb.3.6: Temperaturen für Vollumsatz von partikelförmigen Abluftbeladungen.

Die Untersuchungen an abgeschiedenen Aerosolpartikeln zeigen, daß die Temperaturen, die im Versuch notwendig sind, um die Partikel umzusetzen, deutlich unter den Kopftemperaturen im Gegenstromreaktor liegen, die im Versch auch bei verhältnismäßig langsamer Strömungsgeschwindigkeit ($w \approx 1$ m/s) und der daraus resultierenden vergleichsweise hohen Verweilzeit in der heißen Zone notwendig sind, um Vollumsatz zu erhalten. Durch eine höhere Verweilzeit der Partikel, z.B. durch ein geeignetes Rückhaltesystem für die Partikel in der heißen Zone kann die Betriebstemperatur gesenkt werden, gleichzeitig ist eine höhere Strömungsgeschwindigkeit und damit eine optimierte Raumausbeute des Reaktors möglich.

3.3 Heißfiltration

3.3.1 Ziel

Feststoffpartikel wie Stäube oder Ruß benötigen mit steigendem Durchmesser eine zunehmend hohe Verweilzeit zur vollständige Umsetzung des organischen Materials. Um auch bei hohen Gasgeschwindigkeiten Vollumsatz zu erreichen müssen die Partikel in der heißen Zone zurückgehalten werden. Bei einer entsprechender Temperatur des Rückhaltesystem werden die Partikel dann dort vollständig umgesetzt. Evtl. in der Abluft vorhandene gasförmige Schadstoffe, sowie nicht vollständig umgesetzte Verbrennungsprodukte, werden je nach Verfahrenskonzept in einer homogenen Reaktion mit Luftsauerstoff oxidiert, oder katalytisch umgesetzt.

Um die Partikel in der heißen Zone des Reaktors zurückzuhalten, sind Filter aus temperaturbeständigen Materialien notwendig. Geeignet sind keramische und hochtemperaturbeständige metallische Werkstoffe. Das Filter muß dabei eine Dauerbeständigkeit gegenüber Temperaturen über 600 °C aufweisen, aber auch eine Thermoschockbeständigkeit. Ein Thermoschock tritt beim Aufheizen des Apparates, sowie beim Zünden und Abbrennen von auf der Filterfläche akkumulierten Partikeln auf. Hier liegt der Nachteil bei den bekannten keramischen Materialien wie Cordierit, die bei ausgeprägten Temperaturgradienten im Werkstück durch Rißbildung versagen können. Filter aus metallischen Werkstoffen (Sintermetalle, Faserfilter) sind dagegen wesentlich beständiger.

Durch das Filter wird ein zusätzlicher Druckverlust im Apparat hervorgerufen, der bei den großen Volumenströmen, die in Abluftreinigungsanlagen behandelt werden, aus betriebswirtschaftlichen Gründen gering gehalten werden muß. Die genannten Anforderungen erfüllt ein zur Oberflächenvergrößerung gefaltetes metallisches Faserfließ als Filter.

3.3.2 Vorversuche am Metallfilter

Durch eine Widerstandsbeheizung des Material kann in einem vergleichsweise einfachen Versuchsaufbau die Umsetzung abgeschiedener Partikel bei verschiedenen Filtertemperaturen untersucht werden. Parallel dazu kann durch die Messung des Druckverlustes am Filter eine Beziehung für diesen abgeleitet werden. Durch die Widerstandsbeheizung läßt sich der metallische Faserfilter, ohne Durchströmung, schnell auf eine Temperatur oberhalb der Zündtemperatur anheben. Dies kann im Falle der Abluftreinigung von organischen Aerosolen im Gegenstromreaktor genutzt werden, um eine periodische Regeneration durch das Abbrennen abgelagerter Partikel durchzuführen. Bei der feingliedrigen Faserstruktur des Filters wird, bei einer Regeneration im Luftstrom, ein maßgeblicher Anteil der Wärme mit der Abluft abgeführt. Eine periodische Regeneration des Filters im Luftstrom ist dann möglich, wenn die Differenz

zwischen der maximalen Heizleistung und der Wärmeabfuhr durch die Abluft sowie durch die Reaktorhülle ausreicht, um die Zündtemperatur der Partikel zu erreichen.

Die Wärmemenge, die mit der Abluft ausgetragen wird, hebt durch den internen Wärmerücktausch das Temperaturniveau im Reaktor und heizt damit die Abluft vor. Mit abnehmender Zeitdauer zwischen den Regenerationsschritten nimmt das Temperaturprofil im Reaktor eine zeitlich konstante Form an. Damit läßt sich eine kontinuierliche Regeneration des Filters erreichen. Um einen genauen Aufschluß über den Anteil der ausgetragenen Wärmemenge zu kennen wurden Vorversuche an einem Teilstück eines Filters durchgeführt.

3.3.3 Versuchsaapparatur

Für Umsatzmessungen an partikelbeladenen Luftströmungen, sowie zur Untersuchung des Druckverlustes des Partikelfilters bei unterschiedlichen Durchsätzen und Temperaturen verursacht wird und zur Bestimmung des Wärmeüberganges Filter/Luft wurde eine weitere Versuchsanlage aufgebaut. In einer speziell für diese Zwecke konstruierten Apparatur können Filterproben plaziert werden, durch die ein regelbarer Luftstrom geleitet werden kann. Durch eine direkte Beheizung können zu Versuchszwecken die Filtertemperaturen eingestellt werden. Die Beheizung findet in zwei Phasen statt. In der ersten Phase (0...1,5 s) wird die Probe mit einer hohen Heizleistung bis auf Versuchstemperatur aufgeheizt. Anschließend wird mit vermindert Leistung in der zweiten Phase (1,5...90 s) diese Temperatur gehalten. Die Dauer der Aufheizphase, sowie der Heizleistung in der zweiten Phase sind vom Luftstrom abhängig und müssen jeweils für die entsprechenden Versuchsbedingungen ermittelt werden. Die zur Beheizung des Filters notwendige hohe Stromstärke bei Niederspannung wurde durch regelbare Trenntransformatoren bereitgestellt. Zur Steuerung der Beheizung wurde ein Prozeßregler (Siemens, SIPART DR 24) eingesetzt.

Im Zu- und Ablauf der Luft und im Filter sind Thermoelemente (Typ K) angebracht. Über einen Differenzdruckaufnehmer (Fa. Halstrup) wird der Druckabfall über den Filter bestimmt. Eine nachgeschaltete Gasanalyse mit einem Infra-Rot-Spektrometer (URAS 14, Fa. Hartmann & Braun) ermöglicht eine Bestimmung des Verbrennungsproduktes CO_2 und von gasförmigen Kohlenwasserstoffen durch einen Flammen-Ionisations-Detektor (FID, Fa. Rathfisch). Die Partikelbeladungen der Gasströme wurden mit der Planfiltern gravimetrisch bestimmt. Die Meßwerte werden an der Anlage über einen Meßwertschreiber (Multireg 1732, Fa. Siemens) erfaßt. Bei der Anzahl der angeschlossenen Sensoren konnte so eine Datenerfassungsrate von 0,1875 s verwirklicht werden.

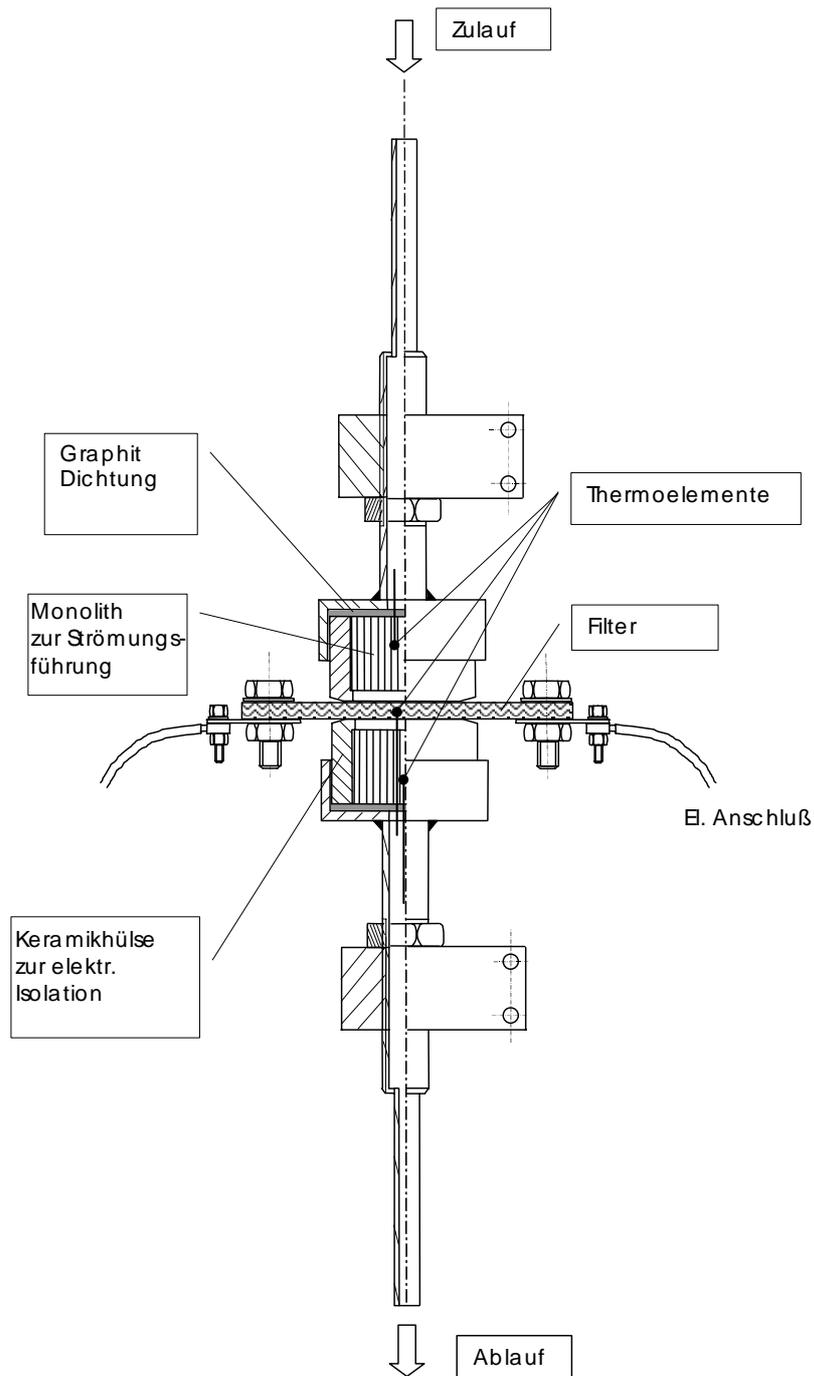


Abb. 3.7: Versuchsapparatur mit direkte Filterbeheizung zur Ermittlung von spezifischen Zündtemperaturen von organischen Aerosolen, Wärmeübergangsverhalten des Filtermaterials sowie des Druckverlustes.

3.3.4 Ergebnisse an der Versuchsapparatur

Das periodischen Zünden von auf dem Filter abgeschiedenen Partikeln wurde im kalten Luftstrom untersucht. Dazu wurden vorbeladene Filter sprunghörmig auf die Meßtemperatur aufgeheizt und anschließend 60 s auf dieser Temperatur gehalten. In Abb 3.8 sind gemessene Temperaturverläufe für einen vorbeladenen Filter mit einer Belegungsdichte von $25,5 \text{ g}_p/\text{m}^2_F$ einem unbeladenen gegenübergestellt.

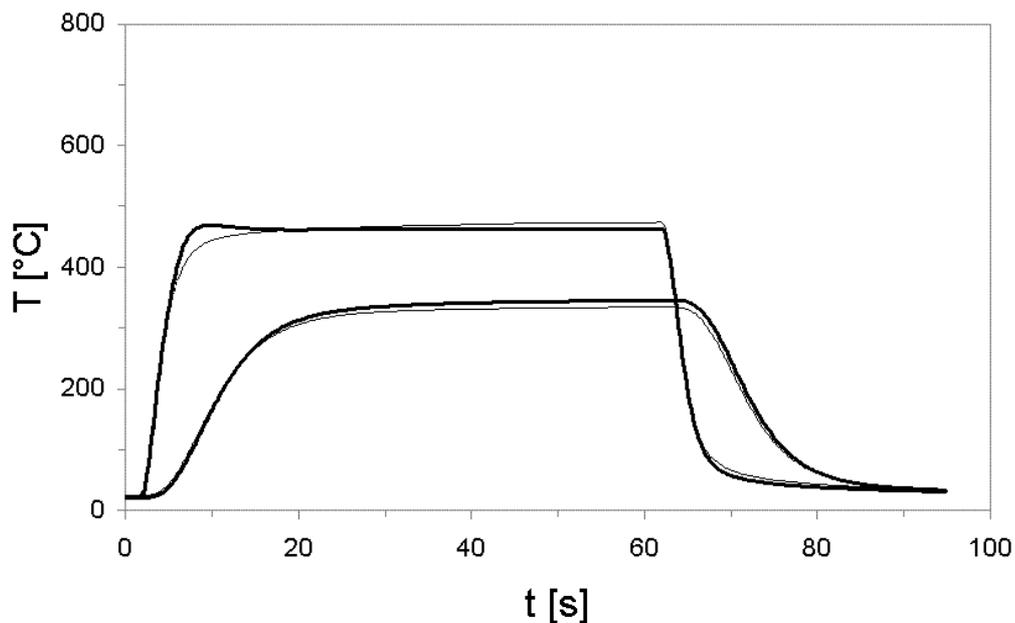


Abb. 3.8: Temperaturverlauf in Filter — $b = 26 \text{ g}/\text{m}^2$, — $b = 0,0 \text{ g}/\text{m}^2$, oben Filtertemperatur, unten Temperatur im Gasstrom nach Filter.

Bei der dargestellten Temperatur im Filter von $480 \text{ }^\circ\text{C}$ zündet ein Teil der abgeschiedenen Partikel. Die Temperaturerhöhung durch den Partikelabbrand erhitzt das Filtermaterial. Durch die poröse Struktur ist die Wärmeleitung zwischen dem Temperatursensor und dem Filtermaterial behindert, die gemessene Temperatur ist von der Luftströmung beeinflusst, so daß die tatsächliche Filtertemperatur über der gemessenen Temperatur liegt.

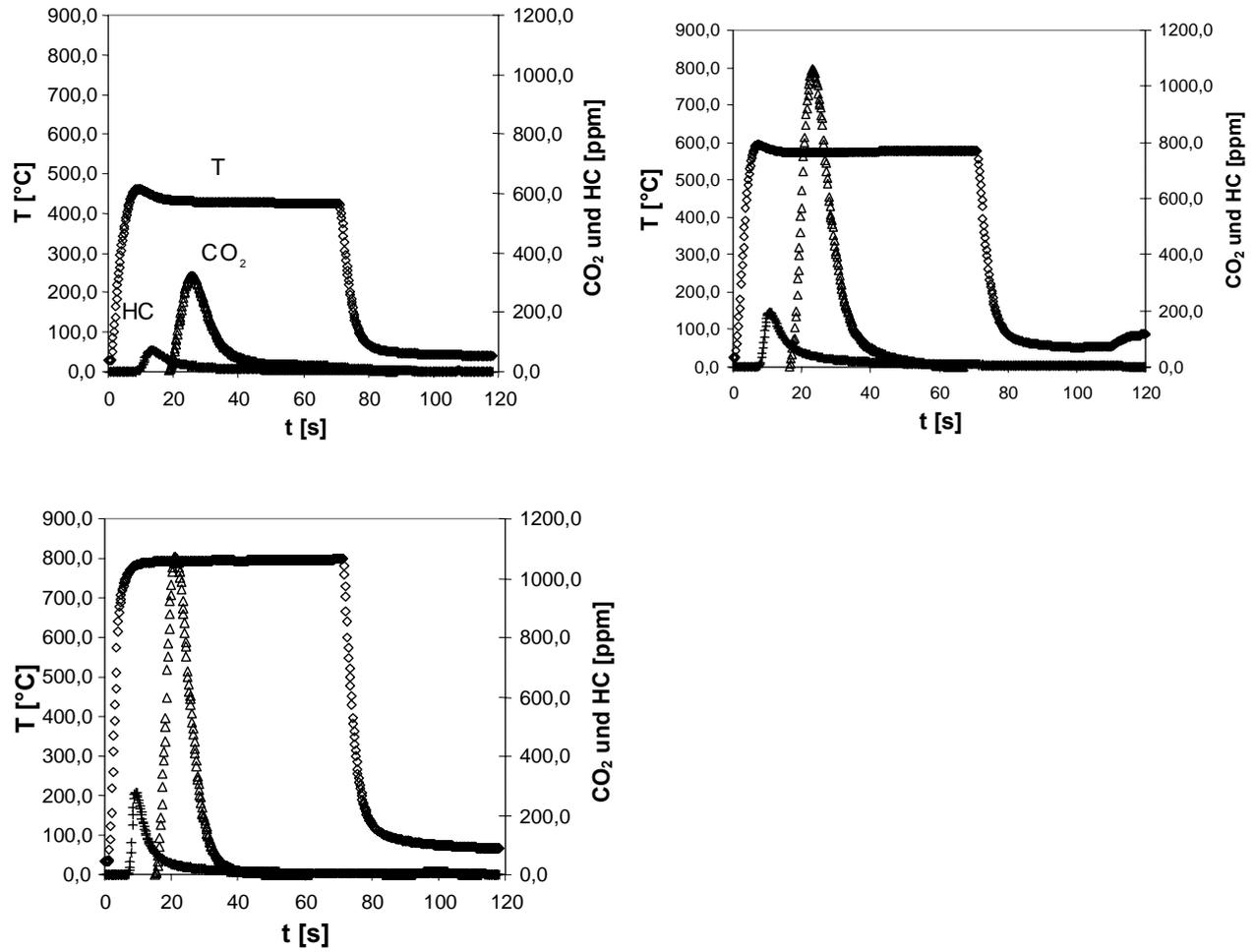


Abb. 3.9: Filtertemperatur, CO_2 - und Kohlenwasserstoff-Konzentration bei einer sprungförmigen Temperaturänderung eines vorbeladenen Filters (Stärke, $b=38 \text{ g}_P / \text{m}^2_F$, Filterbelastung $1067 \text{ m}^3 / (\text{m}^2 \text{h})$).

In Abb. 3.9 sind Meßergebnisse eines vorbeladenen Filters gezeigt. Dabei wurde eine gewisse Menge an Feinstaub auf einem Filter sprungförmig auf Versuchstemperatur beheizt. Dieser Versuch wurde mit unterschiedlichen Temperaturen aber jeweils derselben Staubmenge durchgeführt. Oben links erkennt man beim Aufheizen die Temperaturerhöhung, die durch die Reaktionswärme der Partikelverbrennung entsteht. Mit zunehmender Versuchstemperatur entstehen deutlich mehr Kohlendioxid und gasförmige Kohlenwasserstoffe als Verschwelungsprodukte. Bei den Versuchen oberhalb 600 °C ist die Menge des durch die Verbrennung entstehenden Kohlendioxids vergleichbar. Dies deutet darauf hin, daß bereits bei einer Filtertemperatur von 600°C ein Großteil der Partikelmasse umgesetzt ist.. In Abb. 3.10 sind die Meßergebnisse der CO₂-Konzentration einer Versuchsreihe zusammengefaßt.

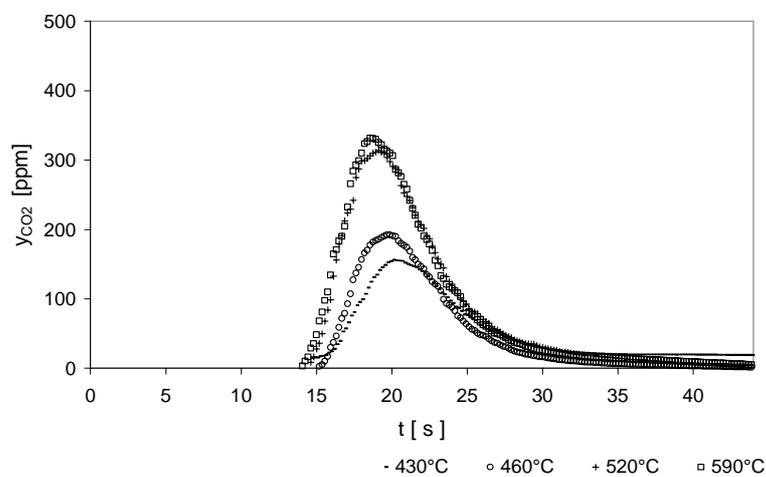


Abb.3.10: CO₂-Entwicklung bei unterschiedlichen Filtertemperaturen. $b = 38 \text{ g/m}^2$, Filterbelastung $3200 \text{ m}^3/(\text{m}^2\text{h})$.

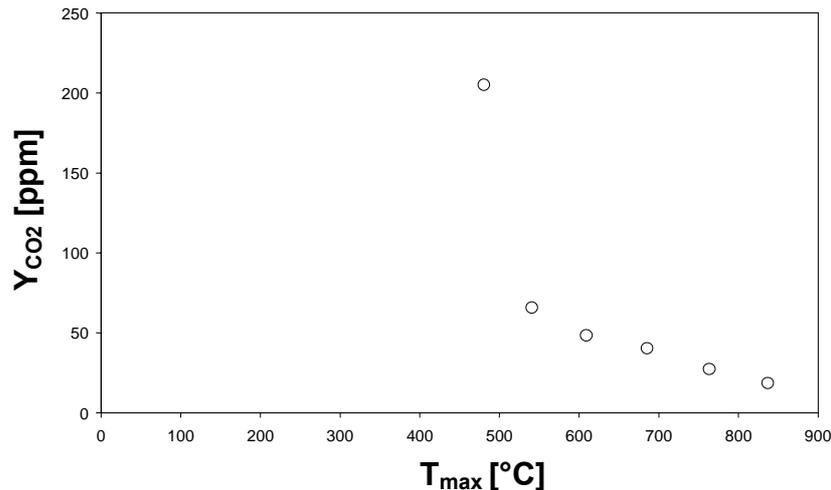


Abb.3.11: Bildung und Abbau einer Koksschicht auf dem Filter ($b = 26 \text{ g}_{\text{Stärke}} / \text{m}^2_{\text{Filter}}$, Filterbelastung $3200 \text{ m}^3 / (\text{m}^2 \text{h})$).

In Abb. 3.11 wurde von einem Beladungszustand des Filters ausgegangen. Dieser wurde zunächst auf 450°C aufgeheizt und auf dieser Temperatur 60 s gehalten. Bei dieser Temperatur ist das Partikelmaterial nicht vollständig umgesetzt. Daher wurde der Versuch bei einer jeweils um 100°C höheren Temperatur wiederholt. Da keine neuen Partikel auf das Filter kamen, zeigt sich anhand der Meßwerte, dass sich durch die sprungförmige Temperaturerhöhung auf 450°C thermische Zersetzungsprodukte (Koks) gebildet haben, die auch bei Temperaturen über 750°C noch nicht vollständig zu oxidieren sind. Daraus läßt sich die Schlußfolgerung ziehen, daß zu niedrige Temperaturen bei einer periodischen Regeneration auf Dauer eine schwer zu entfernende Filterbelastung erzeugen können.

3.3.5 Kontinuierliche Regeneration

Um die beim Einsatz des Filters im Gegenstromreaktor vorherrschenden Betriebsbedingungen zu simulieren, wurden Versuche durchgeführt mit staubbeladener Luft und beheiztem Filter. Ziel war es, die Temperatur zu ermitteln, bei der die kontinuierliche Regeneration gelingt. Kriterium für diese Temperatur ist es, daß der Druckverlust über das Filter bei konstanten Versuchsbedingungen nicht ansteigt. In Abb. 3.12 ist exemplarisch ein Versuchsergebnis gezeigt bei der keine kontinuierliche Regeneration erreicht wird. Im ersten Abschnitt wird bei 650°C der Filter erkennbar an dem Druckanstieg durch Aufbau eines Filterkuchens zunehmend beladen. Bei anschließenden 800°C gelingt eine Regeneration, der Druckabfall über den Filter sinkt auf den ursprünglichen Wert.

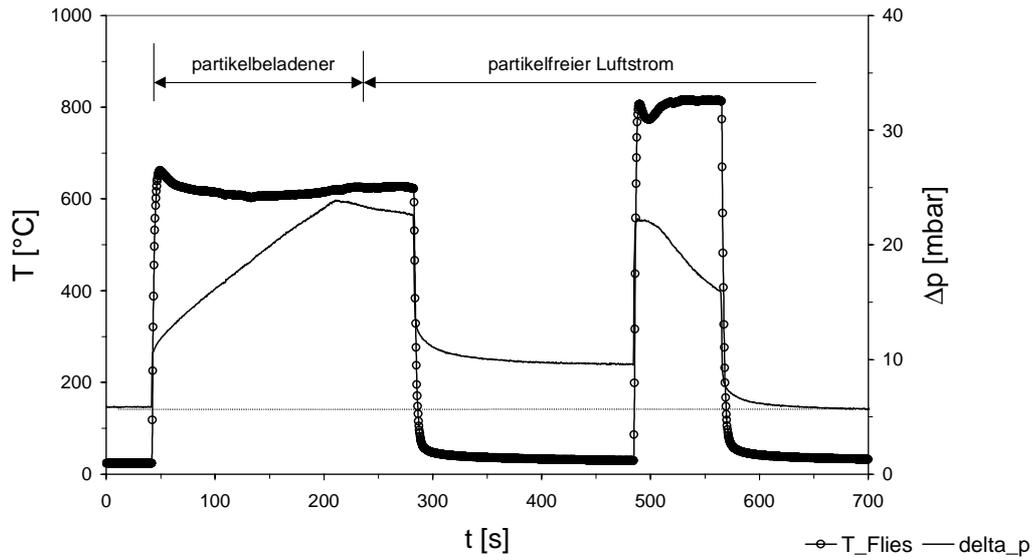


Abb.3.12: Kontinuierliche Regeneration - Ermittlung der Regenerationstemperatur. (Staubbelastung der Luft 30 mg/m^3 , Filterbelastung $3200 \text{ m}^3/(\text{m}^2\text{h})$).

Bei 750°C am Filter gelingt bei dem untersuchten Feinstaub (Stärke) eine kontinuierliche Regeneration, der Druckverlust steigt im Versuch auf einen konstanten Wert und fällt nach dem Abkühlen auf den ursprünglichen Wert (Abb. 3.13).

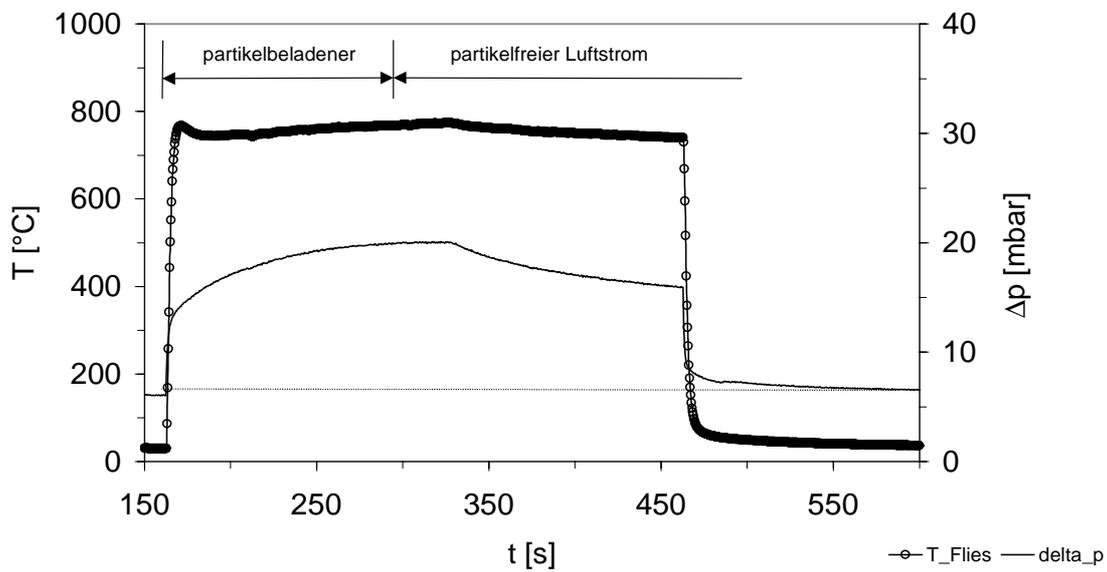


Abb.3.13: Staubbelastung der Luft $30 \text{ mg}_{\text{Staub}}/\text{Nm}^3_{\text{Luft}}$, Filterbelastung $3200 \text{ m}^3/(\text{m}^2\text{h})$, kontinuierliche Regeneration bei 750°C , Druckabfall über dem Filter sinkt auf den ursprünglichen Wert.

4 Konzepte des Gegenstromreaktors

4.1 Aufbau des Reaktors

Wie in Kapitel 1 dargestellt, lassen sich in einem Gegenstromreaktor im wesentlichen 3 Funktionseinheiten unterscheiden. Es sind dies zum einen die Ein- und Auslaufbereiche, in denen die zu reinigende Abluft auf die zahlreichen Strömungskanäle aufgeteilt wird. Bei der zweiten Funktionseinheit handelt es sich um die Wärmeübertragungszone (sog. inerte Zone), in der die einströmende Abluft aufgeheizt wird. Und schließlich einen Reaktionsbereich im Kopf des Reaktors (aktive Zone), in dem die Schadstoffe umgesetzt werden. In diesem Bereich herrscht die höchste Temperatur des Reaktors, hier sind Anfah- und Stützheizung sowie die Umlenkzone integriert. Für den Aufbau eines Gegenstromreaktors sind unterschiedliche Konzepte möglich. Ein am Institut für Chemische Verfahrenstechnik untersuchtes Konzept besteht aus modifizierten keramischen Wabenkatalysatorstrukturen. Dieses Konzept hat sich auf Grund von Werkstoffproblemen und einer aufwendigen Anströmung für die Abluftreinigung nicht bewährt. Das zweite Konzept besitzt metallische Wände mit dazwischen angeordneten Strukturen als Abstandshalter und zur Erhöhung des Wärmeübergangs. Für die Versuche zur katalytischen Abluftreinigung wurde zur Beschichtung der Strukturen ein System aus Aluminiumoxid als sog. Washcoat und einem Edelmetallkatalysator eingesetzt. In Abb. 4.1 ist ein schematischer Aufbau des Gegenstromreaktors mit metallischen Wänden gezeigt.

Gegenüber dem keramischen Aufbau bietet eine metallischen Bauweise mehrere Vorteile. Zunächst lassen sich fertigungstechnisch bedingt komplexere Bauweisen wirtschaftlicher realisieren. Der speziell entwickelte Reaktor zur thermischen Nachverbrennung von partikelbeladenen Abluftströmen besteht aus ebenen, parallelen Strömungskanälen, die im Gegenstrom durchströmt werden. Trennwände; Abstandshalter sowie der Reaktormantel bestehen dabei durchgehend dichtungsfrei aus temperaturbeständigem Werkstoff (1.4893). Der Temperaturgradient zwischen dem kalten Ende und der Reaktionszone, sowie die Temperaturwechselbeständigkeit sind bei dieser Bauweise, im Vergleich zur keramischen Bauweise, unproblematisch. Bei Verschmutzungen durch Partikelablagerungen speziell in der kalten Zone kann der gesamte Reaktor auf Zündtemperatur aufgeheizt werden, um so eine thermische Abreinigung einzuleiten.

Die gleichmäßige Anströmung der einzelnen Kanäle ist bei der vorliegenden Bauform von besonderem Interesse. Dazu wurden unterschiedliche Reaktorvarianten entwickelt und mit verschiedenen Methoden Untersuchungen zu deren optimalen Gestaltung durchgeführt.

Für die Einbaustrukturen wurden geometrische Formen entwickelt, die sich speziell für jede Anwendung durch einen besonders hohen Wärmeübergang bei gleichzeitig moderatem Druckverlust auszeichnen.

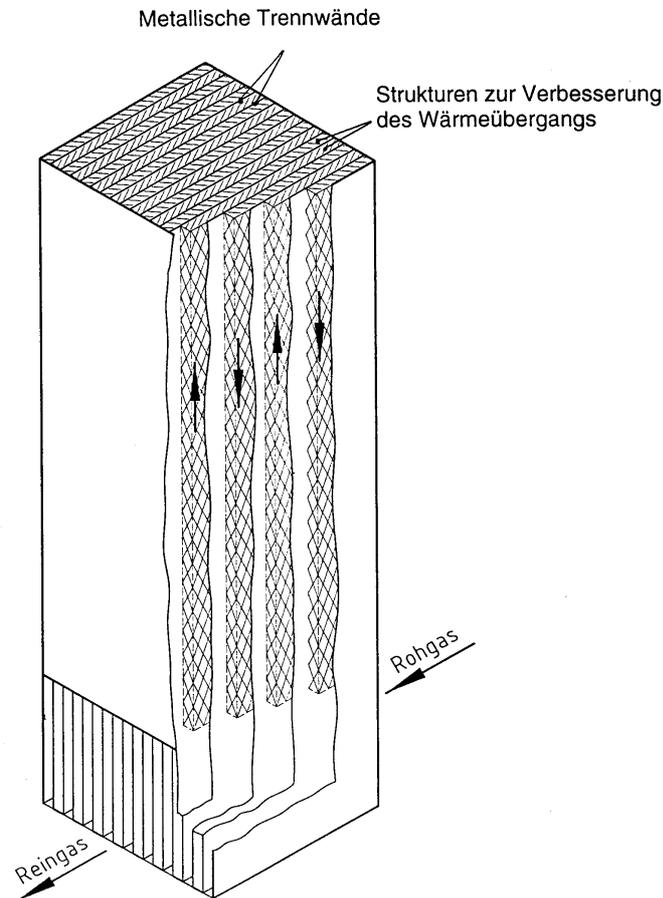


Abb. 4.1: Schematischer Aufbau des Gegenstromreaktors in metallischer Bauweise.

Im ersten Projektabschnitt wurden metallische Gegenstromreaktoren in unterschiedlicher Bauweise untersucht. Zur Abluftreinigung von staubförmigen Aerosolen sowie von Schwelrauch wurde ein Reaktortyp mit großen Spaltweiten ($d_s = 15 \text{ mm}$) und monolithischem Katalysator in der aktiven Zone eingesetzt (GSTR1). Die Untersuchungen zeigten, daß ab einem gewissen Temperaturniveau Vollumsatz von partikel- und gasförmigen Schadstoffen zu erreichen ist. Allerdings zeigte sich, daß die notwendige Verweilzeit für Vollumsatz der Partikel relativ hoch war. Daher kann die untersuchte Bauform nur bei geringen Raumgeschwindigkeiten eingesetzt werden, was einer wirtschaftlichen Umsetzung des Konzeptes entgegensteht. Die bei dieser Bauform auf Grund der großen Spaltweite relativ geringe spezifische wärmeübertragende Fläche schlägt sich auch in einer vergleichsweise niedrigen Wärmeintegration nieder, welche meßbar ist durch eine im Vergleich zu anderen Bauformen hohe Differenz zwischen Ein-

che meßbar ist durch eine im Vergleich zu anderen Bauformen hohe Differenz zwischen Ein- und Austrittstemperatur.

Daher wurde eine Apparateoptimierung mit den Zielen Verbesserung der Wärmeintegration und der Steigerung der Raumgeschwindigkeit durchgeführt. Zunächst wurde zur Verbesserung der Wärmeintegration durch kleinere Spaltweiten die wärmeübertragende Fläche erhöht. Zusätzlich wurden verschiedene Strukturen untersucht zur Intensivierung des Wärmetransportes zwischen den Kanälen. Als Ergebnis dieser Untersuchungen wurde ein Reaktor zur Abluftreinigung aufgebaut mit Abstandhalter zwischen den Kanälen aus gewendelten Blechstreifen (GSTR2). Dabei konnten eine stark verbesserte Wärmeintegration erreicht werden. An dieser Bauform wurden Versuche zur thermischen Inaktivierung von keimfähigen Partikel (Hefen) in Luftströmen durchgeführt. Eine weitere Optimierung der Wärmeintegration wurde erreicht indem die Drahtwendeln gegen ein flächige fischgrätförmig geprägte Blechstruktur ausgetauscht wurden (GSTR4). Die meßbare Differenz zwischen Ein- und Austrittstemperatur bei einer Raumgeschwindigkeit von 3000 l/h^{-1} lag dabei unter 10 K. In der nachfolgenden Tabelle ist eine Übersicht über die verschiedenen realisierten Bauformen gezeigt. Unterschiede liegen je nach Anwendungsgebiet in der Gestaltung der Ein- und Auströmbereiche sowie im Wirkungsgrad des Wärmerücktausches.

	Bauform 1	Bauform 2	Bauform 3
Anströmung			
Spaltweite d_s	15 mm	1,2 mm	2,5 mm
Spez. wärmeübertragende Fläche a_R	$57,14 \text{ m}^{-1}$	$695,6 \text{ m}^{-1}$	$342,8 \text{ m}^{-1}$
Abstandhalter, Strukturen zur Verbesserung des Wärmetransport			
Raumgeschwindigkeit	1000 h^{-1}	3000 h^{-1}	3000 h^{-1}
Temperaturprofile			
Differenz zwischen Ein- und Austrittstemperatur	62 K	6 K	121 K

4.2 Der Gegenstromreaktor mit integriertem Heißgasfilter

Zugrunde gelegt wurde dabei der Aufbau als metallischer Plattenapparat, allerdings ergänzt um einen Partikelfilter im Kopfbereich. Im wesentlichen läßt sich der Aufbau in drei Funktionsbereiche Untergliedern: dem Ein- und Auströmbereich, der Wärmeübertragerzone und dem Kopfbereich mit integriertem Heißgasfilter.

4.2.1 Ein- und Auslaufbereiche

Im Gegenstromreaktor können Partikel an den Einbauten und den Kanalwänden des Reaktors abgeschieden werden. Für den Langzeitbetrieb mit organischen Aerosolen muß daher die Verschmutzungsneigung des Gegenstromreaktors u.a. durch eine geeignete Strömungsführung minimiert werden. Die Bestimmung der Einflußgrößen auf die Verschmutzungsneigung des Reaktors wurden Vorversuche an einem Strömungsmodell vorgenommen.

Die Verschmutzung des kalten Teils des Reaktors durch abgeschiedene Partikel führt zu einem verringerten Wärmeübergang und verursacht dadurch einen vermehrten Wärmeaustrag und somit höhere Betriebskosten. Beläge an den Kanalwänden und Einbauten organischen Ursprungs lassen sich, wie vorhergehende Untersuchungen mit Holzrauch und Feinstaub zeigten, bei Temperaturen um 600°C oxidativ abreinigen. Starke Verschmutzungen bedingen jedoch kurze Intervalle für die thermischen Reinigungsschritte. Für die Verschmutzung der Einbauten und der Kanalwände können verschiedene Ursachen genannt werden: Zum einen laden sich Partikel durch Reibung und Stoßeffekte beim Transport elektrostatisch auf. Dies ist besonders bei trockenen Feinstäuben wie dem untersuchten Holzstaub mit eine Ursache für die Partikelabscheidung. Eine leicht realisierbare Maßnahme dagegen ist z.B. eine elektrisch leitfähige, metallische Bauweise mit durchgehendem Potenzialausgleich.

Durch eine ungünstige Strömungsführung der Abluft kann es, besonders im Einlaufbereich des Reaktors, nach vorhergehender Agglomeration von Partikeln zu Abscheidungen durch Trägheitskräfte kommen. Zur Bestimmung der Strömungsverhältnisse in diesen Bereichen wurden Strömungsuntersuchungen mit der Ammoniak-Methode [14] und Versuche mit staubbeladener Luft durchgeführt. Dabei wurden verschiedene Geometrie-Parameter im Einlauf variiert und ihr Einfluß auf die Strömungsverteilung bzw. Ablagerungen untersucht. In Abb. 4.2 sind Versuchsergebnisse abgebildet. Helle Bereiche entsprechen dabei einer schlechten Durchströmung, dunkle Bereiche werden bevorzugt durchströmt. Versuchsreihe a.) zeigt ein Einlaufhöhe/Kanalbreitenverhältnis $H/B = 1,0$. Bei kleinen Strömungsgeschwindigkeiten wird die Kanalbreite durch die Strömung nur unvollständig ausgenutzt. Als Folge davon sinkt der Grad des Wärmerücktausches, da sich besonders bei kleineren Geschwindigkeiten zunehmend Bereiche mit

ungünstiger Durchströmung ausbilden. Wie in Abb. 4.2 b.) gezeigt wird bei einem Einlaufhöhe/Kanalbreitenverhältnis $H/B = 0,5$ und Strömungsgeschwindigkeiten zwischen 0,9 und 6 m/s eine im Vergleich zu Abb. 4.2 a.) gleichmäßigere Verteilung der Strömung über die gesamte Kanalbreite erreicht. Um die Auswirkungen veränderter Einlaufgeometrien auf die Ablagerungen in diesen Bereichen bzw. in den anschließenden Strömungskanälen des Reaktors zu untersuchen, wurde im Modellkanal Untersuchungen mit verschiedenen Geometrien und Strömungsgeschwindigkeiten durchgeführt. In der 4. Spalte von Abb. 4.3 sind exemplarisch Ergebnisse zur Verschmutzungsneigung der Kanäle des Gegenstromreaktors mit Feinstaub abgebildet. Erkennbar sind Ablagerungen im Einlaufbereich, die bei seitlichen Anströmung im untersuchten Geometrie und Geschwindigkeitsbereich eine ähnlich hohe Wachstumsrate aufwiesen. Aus Gründen der Verschmutzungsneigung sollte daher eine umlenkungsfreie Strömungsführung in den Rohgaskanälen gewährleistet werden.

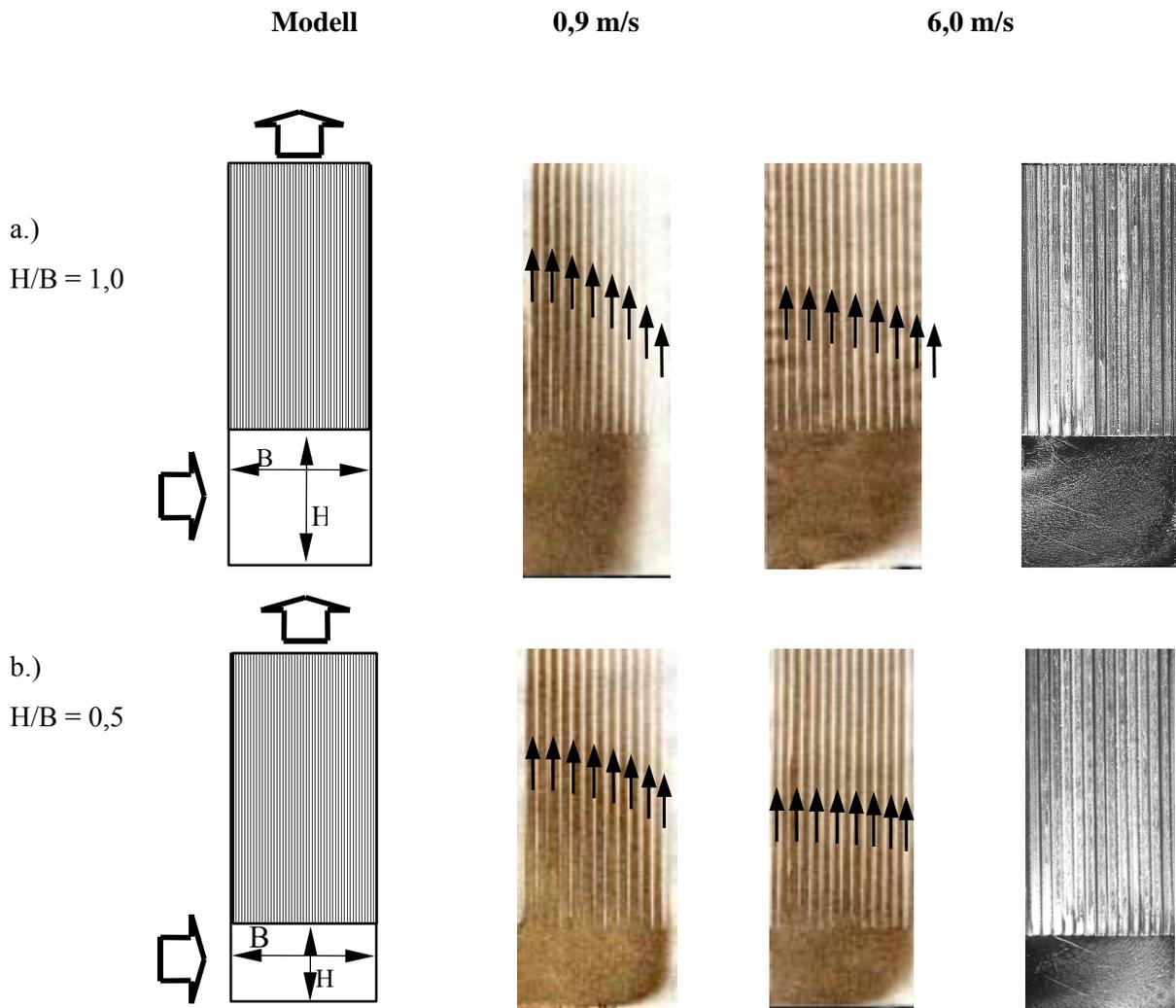


Abb. 4.2: Durchströmung des Gegenstromreaktors bei seitlicher An- und Abströmung
a.) $H/B = 1,0$; b) $H/B = 0,5$.

Geschwindigkeitsmessungen der austretenden Luft am oberen Rand am dargestellten Versuchsaufbau zeigten ein vergleichbares Ergebnis. Ein Höhen/Breiten-Verhältnis von 0,5 führt im untersuchten Geschwindigkeitsbereich zu einer gleichmäßigen Strömungsverteilung.

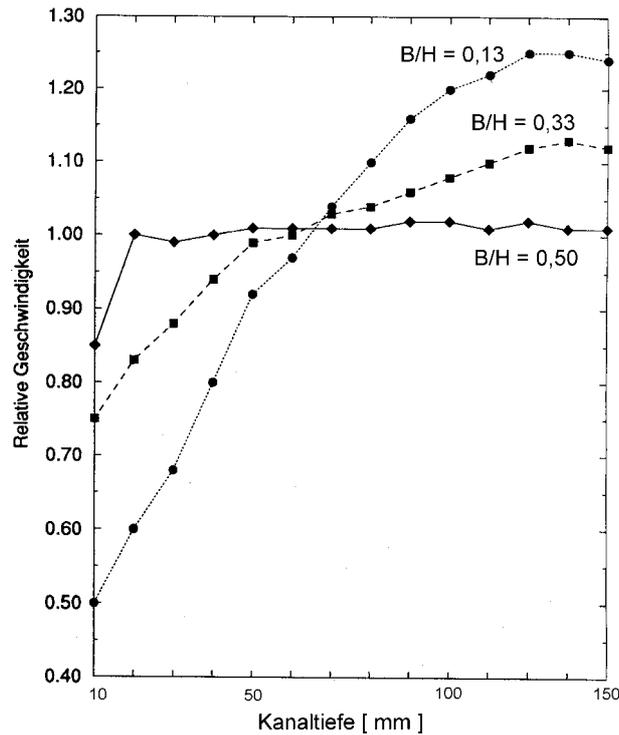


Abb. 4.3: Geschwindigkeitsprofile in den Strömungskanälen eines Gegenstromreaktors bei unterschiedlichen Einlaufgeometrien.

4.2.2 Ergebnis

Partikelbeladene Luftströme in Rohrleitungen müssen zu Minimierung von Ablagerungen mit hohen Geschwindigkeiten transportiert werden. Aus diesem Grund werden hohe Strömungsgeschwindigkeiten auch beim Gegenstromreaktor im Aerosolbetrieb angestrebt. Mit steigender Strömungsgeschwindigkeiten steigen die Trägheitskräfte auf die mitgeführten Partikel, so daß es bei Strömungsumlenkungen vermehrt zu Prallabscheidungen besonders der größeren Partikelfractionen kommt. Aus diesem Grund wurde eine Apparatebauweise entwickelt mit geradlinigen Strömungskanälen vom Rohgaseintritt bis zum Kopfbereich. Die Kanalwände werden durch ein einziges hitzbeständiges Dünoblech in gefalteter Bauweise hergestellt. Die entstehenden Gasräume müssen bei einer geradlinigen Strömungsführung durch eine veränderte Abdichtung zueinander verschlossen werden. Während bei seitlicher An- und Abströmung ohne Filter eine Abdichtung der Kanäle zueinander durch ein elastisches Dichtungsmaterial gelingt, müssen bei der neu entwickelten Bauweise die Kanalwände durch verschweißen gedichtet werden. Dazu wurden verschiedene Fertigungstechnologien untersucht.

4.2.3 Die Wärmeübertragerzone

In der Wärmeübertragerzone wird die einströmende, beladene Abluft auf Zündtemperatur aufgeheizt. Die Güte des Wärmerücktausches bestimmt die Energiemenge, die zum vollständigen Umsatz aller oxidierbaren Schadstoffe eingesetzt werden muß und ist somit maßgeblich für die Betriebskosten der thermischen Abluftbehandlung im Gegenstromreaktor.

Vergleichende Untersuchungen an unterschiedlichen Bauweisen führten zu einem Aufbau mit ebenen Trennwänden aus hitzebeständigen Stählen zwischen die Strukturen als Abstandshalter eingelegt werden.

Da die Vorgabe für den optimierten Wärmeübertrager eine möglichst geringe Temperaturdifferenz der Medien über die Trennwand ist, wird der Wärmerücktausch bestimmt durch die wärmeübertragende Fläche und damit durch die Kanalbreite, durch die Rippenwirkung der in die Kanäle eingelegten Strukturen, sowie dem wandseitigen Wärmeübergang der Luft an die Trennwand. Weitere Anforderungen sind eine Minimierung der besonders bei organischen Aerosolen auftretenden Ablagerungen in der Wärmeübertragerzone. Weiter ist es wichtig den Druckverlust des Reaktors in engen Grenzen zu halten können. Im ersten Projektabschnitt wurde durch den Einsatz geeigneter Einbauten in die Kanäle der Wärmerücktausch, sowie der Druckverlust des Reaktors optimiert.

Der Wärmetransport von der heißen Reingasseite zur kalten Rohgasseite wird durch die Rippenwirkung der Strukturen sowie die Größe der wärmeübertragende Fläche der Trennwände bestimmt. Gleichzeitig muß zur Verringerung von Wandbelagsbildungen durch abgeschiedene Aerosolpartikel der Wärmeübertragerteil des Reaktors glatte Oberflächen aufweisen und mit hohen Strömungsgeschwindigkeiten betrieben werden.

Daher wurden für die hier durchgeführten Untersuchungen parallel zur Strömungsrichtung gewellte Blechstrukturen als Abstandshalter zwischen den Trennwänden verwendet. Mit diesen Strukturen gelingt es, durch eine geeignete Anordnung (Abb. 4.4) im Ein- und Auslauf eine Gleichverteilung der Strömung über der Kanalbreite zu erhalten. Durch eine geeignete Materialauswahl ist es möglich, die Strukturen im gesamten Reaktor, auch in der heißen Reaktionszone einzusetzen und bei Bedarf die Oberfläche der Struktur beliebig katalytisch zu beschichten.

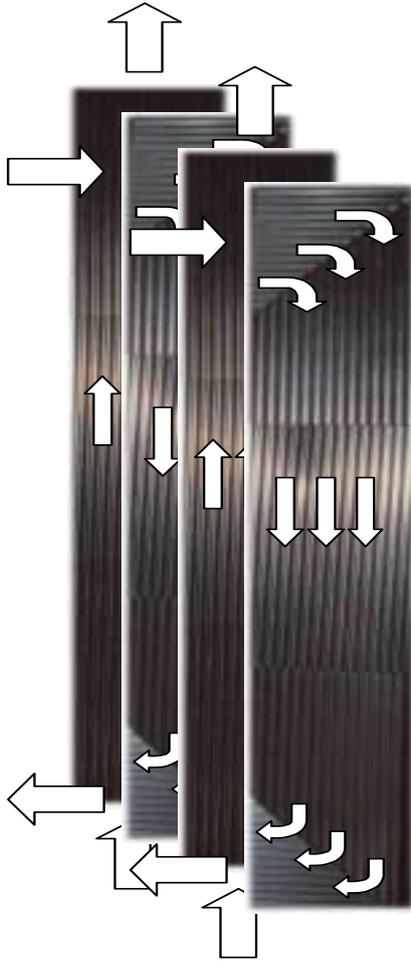
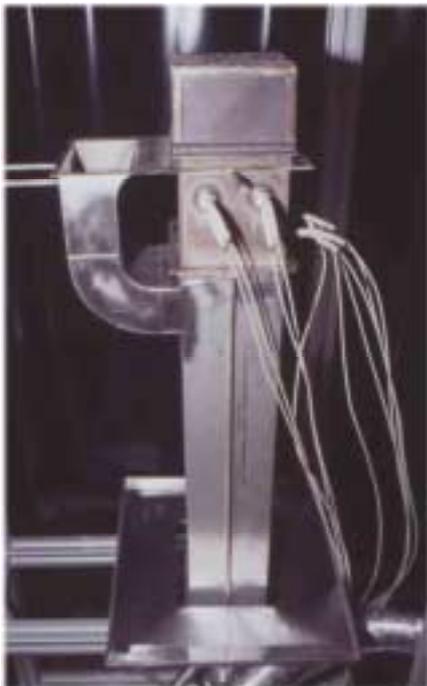


Abb. 4.4: Strömungsführung im Gegenstromreaktor der Bauform 3. Mit stirnseitige Anströmung.



Filter

Heizung

Wärme-
übertrager

Abb 4.5: Gefaltete Bauweise des Gegenstromreaktors mit Filter und Heizkopf.

4.2.4 Der Partikelfilter

4.2.4.1 Ziel

Für einen vollständigen Umsatz aller Partikel muß eine gewisse Kombination von Temperatur und Verweilzeit eingehalten werden. Zur Verringerung der Wandbelagsbildungen muß bei partikelbeladenen Abluftströmen hohe Gasgeschwindigkeiten in den Strömungskanälen gefahren werden. Zusätzlich sind hohe Geschwindigkeiten erwünscht, um aus wirtschaftlichen Gesichtspunkten ein möglichst geringes Apparatevolumen zu verwirklichen.

Die Bedingungen in der Reaktionszone des Reaktors müssen so gewählt werden, daß partikelförmige und in der Abluft evtl. vorhandene gasförmige Schadstoffe mit unterschiedlichen Zündtemperaturen vollständig umgesetzt werden. Da beim Gegenstromreaktor die Verweilzeit in der Reaktionszone prinzipbedingt kurz ist, muß zur vollständigen Umsetzung der organischen Abluftbestandteile die Temperatur entsprechend höher gewählt werden. Im Gegenstromreaktor ohne Filter in der heißen Zone sind bei Hartholzstaub und einer Flächenbelastung des Aerosols im Reaktor von $G_z = 1,0 \text{ kg/m}^2\text{s}$ Temperaturen in der Reaktionszone von über 750°C für einen Vollumsatz der Staubpartikel notwendig. Diese Temperaturen grenzen die Auswahl an geeigneten Werkstoffen erheblich ein, und erfordern aufwendige konstruktive Lösungen. Aus Kostengründen muß daher die Maximaltemperatur in der Reaktionszone auf niedrigere Werte begrenzt werden. Da bei niedrigeren Temperaturen die Reaktionsgeschwindigkeit der Oxidation abnimmt, müßte die Reaktionszone entsprechend länger gebaut werden, was ebenfalls nicht wünschenswert ist. Um die Verweilzeit vor allem großer Partikel in der Reaktionszone zu verlängern ohne die bekannten Nachteile in Kauf nehmen zu müssen, wird in einer neuen Versuchsanlage ein temperaturbeständiges Filter in der Reaktionszone eingebaut. Luftgetragene Partikel oberhalb der Trenngrenze des Filters werden abgeschieden und verbrennen auf der Filteroberfläche. Denkbar ist zusätzlich noch eine katalytische Beschichtung des Filters mit dem Ziel, die Zündtemperatur bei der Partikelverbrennung zu senken. Sowie eine katalytische Aktivität bezüglich eines der Abluftbeizumischenden Stützgasen, das im Betrieb des Reaktors durch die Wärmefreisetzung das Temperaturprofil aufrechterhält, indem es die Wärme genau dort freisetzt, wo sie zur Umsetzung der Partikel gebraucht wird.

Um ein solches Konzept umsetzen zu können muß das Filter auch in oxidierender Atmosphäre temperaturbeständig sein. Bekannt wurden solche Materialien für die Anwendung bei der Dieselabgasfiltration, Dieselruß zündet bei Temperaturen ab 350°C und wird bei ca. 600°C vollständig umgesetzt. Dort werden teilweise keramische oder metallische Materialien in unterschiedlicher Form verwendet. (Vliese, Matten, poröse Monolithe etc.). Um Bauvolumen und Betriebskosten zu begrenzen, sollte der Druckverlust auch bei hoher Filteranströmgeschwindigkeit möglichst gering sein. Die Differenzdruckbeständigkeit und die

Filterintegrität muß auch bei verschiedenen Betriebsbedingungen besonders hinsichtlich kurzzeitiger Übertemperaturen gewährleistet sein. Um die baulichen Vorteile eines Plattenapparates im vollen Umfang nutzen zu können, ist eine flexible Formbarkeit des Filtermaterials notwendig. Für weitere Untersuchungen ist eine katalytische Aktivität des Filters zur Senkung der Zündtemperatur partikelförmiger und gasförmiger Schadstoffe wünschenswert. Die genannten Anforderungen lassen sich mit einem metallischen Sintervlies erfüllen, das aus dünnen temperaturbeständigen Fasern aufgebaut ist. Das Filter besitzt dabei gleichzeitig einen hohen Hohlraumanteil und eine große Oberfläche, welche auf Grund der Materialeigenschaften gut katalytisch beschichtbar ist. Zusätzlich ist es, da es sich um einen metallischen Werkstoff handelt, mit üblichen Fertigungstechnologien wie z.B. Schweißen oder Biegen leicht bearbeitbar. Abb. 4.6 zeigt REM-Aufnahmen dieses Materiales, wie es zum Einbau in den Reaktor vorgesehen ist. Das Material ist bei 1000°C thermisch vorbehandelt. Durch diese Vorbehandlung bildet sich eine Al₂O₃-Schicht auf der Stahloberfläche, die einen Schutz des Werkstoffes darstellt und die Oberfläche stark vergrößert, so daß direkt darauf eine katalytisch aktive Imprägnierung erfolgen kann.

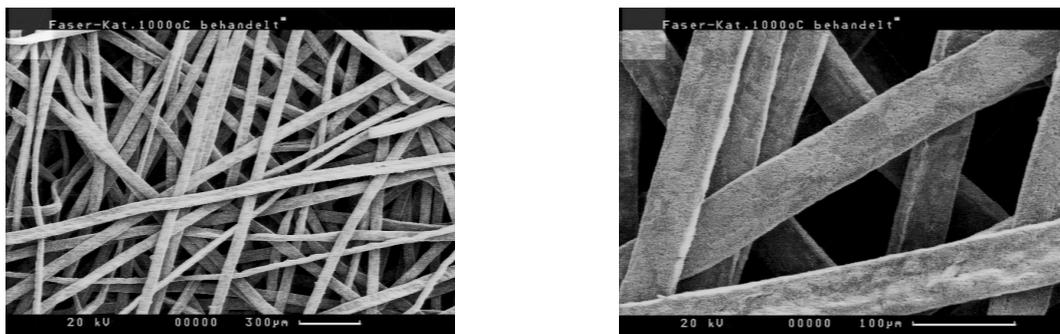


Abb. 4.6: Raster-Elektronen-Mikroskopaufnahmen des metallisches Sintervlieses.

Faserstärke	32 µm
Gesamtdicke	1,05 mm
Werkstoff	Fecralloy™
Temperaturbeständigkeit	1000 °C
Hohlraumanteil	87,5 %
Dichte des Vlieses	990 kg/m ³
Spez. Oberfläche	1,1 10 ⁵ m ² /m ³

Tabelle 4.1: Technische Daten des Filtermaterials, Bekipor® ST XL344 [15]



Abb. 4.7: Filter im Reaktorkopf aus metallischem Faservlies.

4.2.4.2 Druckverlust im Filter

Der gesamte Druckverlust des Reaktors setzt sich zusammen aus dem Druckverlust in der Wärmeübertragerzone und dem Druckverlust, der in der Reaktionszone verursacht wird. Bei der Bauweise mit Filter ist die Reaktionszone vollständig in den Kopf des Reaktors geschoben. Der Druckverlust in dieser Zone ist dabei bestimmt durch den Filter. Da die Herstellerdaten für das Grundmaterial für eine Auslegungsrechnung nicht ausreichend sind, wurden verschiedene Meßreihen zur Ermittlung einer Druckverlust-Korrelation durchgeführt. Maßgebliche Parameter sind dabei neben den Stoffwerten des Mediums (Luft) die Temperatur des Filters T_F sowie die Geschwindigkeit im Filtermaterial w .

$$\Delta p = \zeta \cdot \frac{w^2}{2} \cdot \rho_G \cdot \frac{H_F}{d_e}$$

Die für die Meßreihen vorbereiteten Proben wurden mit Thermoelementen zur Filtertemperaturmessung versehen, die formschlüssig mit dem Material verbunden wurden. Mit Versuchen zur Befestigung der Thermoelemente durch Anschweißen oder Hartlöten im Filtermaterial wurde keine ausreichende Stabilität erreicht. Als Grund ist die Al_2O_3 -Schicht an der Oberfläche des Filter-Werkstoffes zu nennen, die diese Verbindungstechniken erheblich erschwert. Die Proben wurden in der in Abschnitt 3.3.3 beschriebenen Versuchsapparatur eingebaut und vermessen. Als Meßwerte wurde der Luftdurchsatz, Filter-, Ein- und Auslauftemperatur, und der zugehörige Druckverlust ermittelt. Für die Bestimmung des filtermaterialabhängigen Druckverlustes wurde Umgebungsluft durch den Filter gedrückt, die unmittelbar danach frei auströmen konnte. Zur Bestimmung der Kennzahlen wird dabei ein äquivalenter Durchmesser d_e verwendet. Der äquivalente Durchmesser beschreibt dabei den Durchmesser des Hohlraumanteils im durchströmten Querschnitt.

$$d_e = \varepsilon \cdot d_F$$

Die Meßergebnisse für den Filterdruckverlust lassen sich als Druckverlustbeiwert ζ_F , der einen Kennwert für den Filter darstellt in dimensionsloser Form über der Reynolds-Zahl darstellen.

$$\text{Re} = \frac{w \cdot d_e}{\nu_G}$$

Die Reynolds-Zahl wird aus der örtlichen Geschwindigkeit im Filter w und mit den Stoffwerten von Luft gebildet. Zur Ermittlung der Stoffwerte zieht man das arithmetische Mittel zwischen Ein- und Auslauf der Lufttemperatur heran.

$$\theta_G = \frac{\theta_{\text{aus}} - \theta_{\text{ein}}}{2}$$

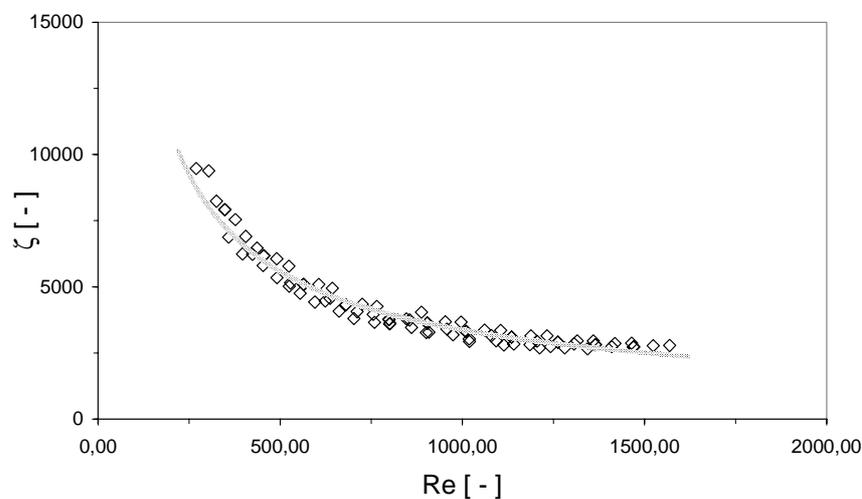


Abb. 4.8: Metallfaserfilter, Druckverlustbeiwert ζ über Re

Der Druckverlustbeiwert ζ läßt sich für den Metallfaserfilter aus der empirische ermittelten Gleichung berechnen:

$$\zeta = 5,161 \cdot 10^5 \cdot \text{Re}^{-0,728}$$

4.2.5 Wärmeübergang

Bei der Verbrennung von Partikeln auf der Filteroberfläche wird Wärme frei, die über den Gasstrom abgeführt werden muß. Es sind Verfahren zur Abluftreinigung von Rußpartikeln bekannt geworden, bei denen der Abbrand der Partikel auf der Filterfläche periodisch, durch ein Anheben der Temperatur eingeleitet wird. Problematisch bei diesen Verfahren sind örtlich materialschädigende Temperaturen auf dem Filter, die durch die Verbrennungswärme hervorgerufen werden. Übertemperaturen können dann auftreten, wenn die Zündtemperatur der Partikel auf längere Dauer unterschritten wird, so daß sich ein Filter-

kuchen aus unverbrannten Materialien aufbaut oder wenn Abgasströme mit schwankenden Beladungen verarbeitet werden müssen, so daß sich kurzzeitig erhöhte Filterbeladungen bilden können. Bei einer katalytischen Beschichtung des Filters kann der Reaktor mit einem Stützgas beheizt werden, das bei der Verbrennung die Wärme auf dem Filter freisetzt und somit die Temperatur anhebt.

Für eine Auslegung des Filters müssen solche Betriebszustände einbezogen werden.

In der in Kapitel 3.3.3 beschriebenen Versuchsanordnung wurde das Wärmeübergangsverhalten des Filters zum Gas bestimmt. Bei der zunehmenden Abgasbeladung muß die Verbrennungswärme und die abgeführte Wärme bei Temperaturen im Gleichgewicht stehen bei der eine Materialschädigung noch auszuschließen ist.

$$Q_R = m_G \cdot c_{p,G} \cdot \Delta T$$

Um das für eine erhöhte Filtertemperatur maßgebliche Temperaturdifferenz ΔT zwischen Filter und Luft berechnen zu können muß der Wärmeübergangskoeffizient α_F bekannt sein.

An der oben beschriebenen Anlage wurden dazu Messungen mit unbeladenen Luftströmen durchgeführt

4.2.6 Der Katalysator im Gegenstromreaktor

Bei der thermischen Nachverbrennung von Abluftströmen mit gasförmigen organischen Schadstoffen werden in der Technik zunehmend Katalysatoren eingesetzt. Als katalytisch aktive Substanzen werden dabei meist Edelmetalle wie Platin oder Palladium auf einem Aluminiumoxid-washcoat eingesetzt. Das Katalysatorsystem setzt die Zündtemperatur der Schadstoffe herab, so daß sich die Arbeitstemperatur der Abluftreinigung senken läßt. Durch die geringere Arbeitstemperaturen wird der Energiebedarf vermindert. Gleichzeitig sinkt die Wahrscheinlichkeit der Stickoxidbildung, die besonders bei hohen Temperaturen auftritt. Ein Einsatz von Katalysatoren zur Abluftreinigung ist allerdings nur dann sinnvoll, wenn Katalysatorgifte wie beispielsweise Silikone, Phosphorverbindungen u. a. in der zu behandelnden Abluft sicher ausgeschlossen werden können. Treten auf Grund einer mangelhaften Regelung der Anlage zeitweilig stark erhöhte Temperaturen auf, altern die bekannten Katalysatoren überproportional schnell, so daß deren Standzeit stark eingeschränkt ist. Diese Eigenschaften müssen auch beim Einsatz von Katalysatoren im Gegenstromreaktor berücksichtigt werden. In vorausgegangenen Untersuchungen zur Abluftreinigung von gasförmigen Schadstoffen im Gegenstromreaktor wurden erfolgreich Katalysatoren auf Platin-Basis eingesetzt. Die dort eingesetzten Katalysatoren bestehen aus metallischen Strukturen mit einer washcoat-Beschichtung, die als Abstandhalter am Kopfende des Gegenstromreaktors in die Kanäle eingelegt wurden. Ist die Zündtemperatur der Schadstoffe im Katalysator erreicht, muß für einen Voll-

umsatz die Verweilzeit mindestens so groß sein, wie die Zeit die die Schadstoffe benötigen um aus der Strömung zur Katalysatoroberfläche zu gelangen.

5 Modellbildung

Für eine Simulation des Betriebsverhaltens des Gegenstromreaktors wurde eine Modellbildung durchgeführt. Dabei war es das Betriebsverhaltens des Gegenstromreaktors bei unterschiedlichen Schadstoffbelastungen und Durchsätzen zu simulieren.

5.1 Bilanzierung

Jeder Bilanzraum läßt sich durch geeignete Bilanzgleichungen beschreiben. Diese Bilanzgleichungen sind im folgenden durch ein differentielles Volumenelement dargestellt. Für den Gegenstromreaktor umfaßt das Bilanzelement der Länge dz jeweils ein Stück Trennwand (Dicke d_w) und den halben Kanal (Spaltbreite d_s) in jeweils beiden Strömungsrichtungen.

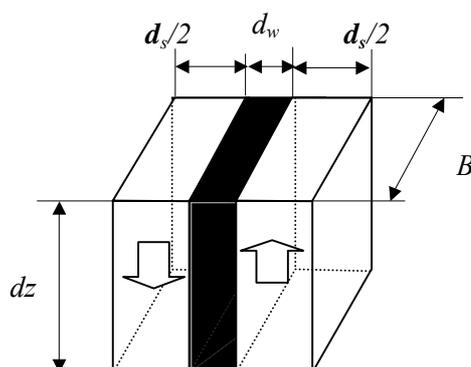


Abb. 5.1: Bilanzelement für den Gegenstromreaktor

Das Bilanzelement umfaßt die Trennwand zwischen den Kanälen, einen Teil der Feststoffstrukturen und die Luftströme. Je nach Detaillierungsgrad wird das Bilanzelement in weitere Bilanzelemente zerlegt. Die einzelnen Phasen (Struktur und Luft) im Bilanzelement sind in einem Kanal sowohl miteinander als auch jeweils mit der Trennwand mit denen des benachbarten Kanales verknüpft. Die Trennwand ist mit allen Phasen der beiden Kanäle verknüpft. In einem Bilanzelement ergeben sich so insgesamt 5 Phasen. (Abb. 5.2) für die jeweils eine Gleichung für die Energie- und für die Massenbilanz aufgestellt werden muß. Wird Blockströmung in den Spalten angenommen kann die Modellierung des Gegenstromreaktors in einem eindimensionalen Modell erfolgen. Unter dieser Annahme treten Konvektions- und Diffusions-/Dispersionsterme ausschließlich in Strömungsrichtung (z -Achse) auf. Zusätzlich müssen zur Modellierung Reaktions-, Wärmeübergangs- und Verlustterme entlang der Strömungsrichtung eingeführt werden. Die Kantenlängen des Bilanzelements senkrecht zur Strömungsrichtung entsprechen den Abmessungen

des Kanalquerschnitts (Abb 5.1). Alle weiteren Betrachtungen beziehen sich auf eindimensionale Modelle.

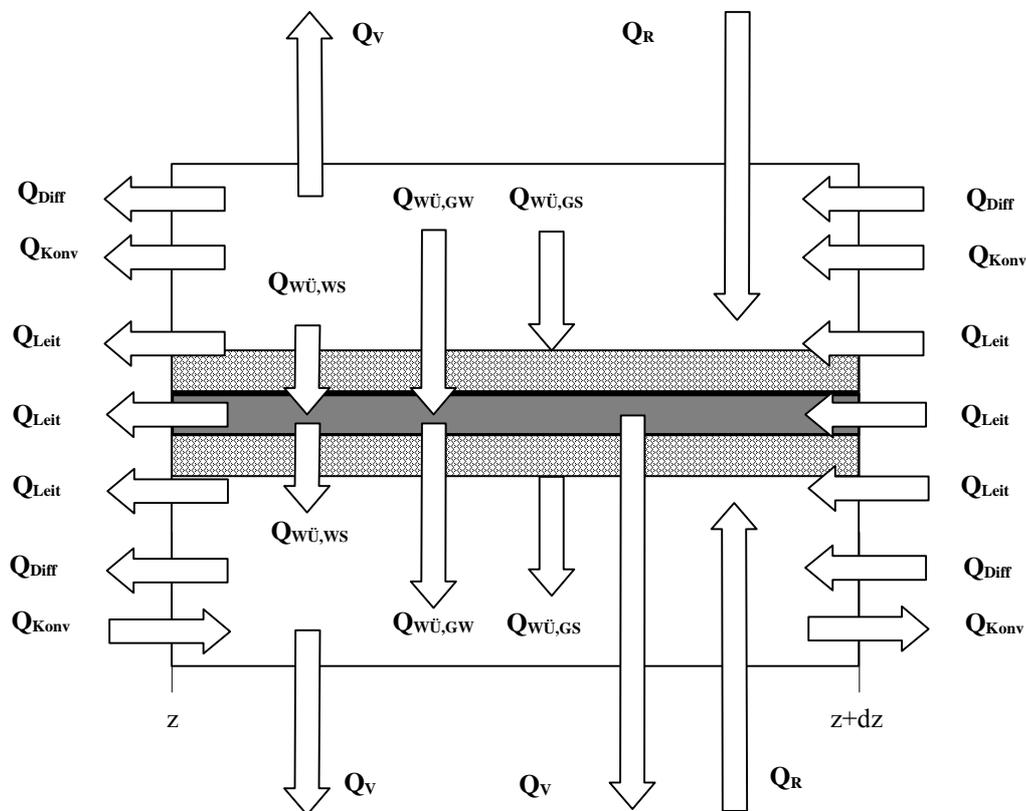


Abb. 5.2: Bilanzelement mit Energieströmen für den Gegenstromreaktor

Allgemein ist eine Bilanzgleichung folgendermaßen aufgebaut:

$$B_m \frac{\delta \bar{U}}{\delta t} = -Q_{\text{Konv}} \frac{\delta \bar{U}}{\delta z} + \frac{\delta}{\delta t} \left(\text{Diff} \frac{\delta \bar{U}}{\delta z} \right) + \bar{Q}_{\text{Quelle}} \quad (5.1)$$

Idealisierende Annahmen im Modell sind:

- Ein vernachlässigbarer Druckverlust
- Für die Stoffwerte des Luft/Schadstoff-Gemisch werden die von Luft eingesetzt
- Es wird nur die katalytische Umsetzung der Schadstoffe berücksichtigt
- Die radiale Dispersion der Zustandsgrößen wird vernachlässigt
- am Reaktoraustritt wird adiabatisch ausströmendes Gas vorausgesetzt
- Strahlungseinflüsse werden vernachlässigt

Enthält der Bilanzraum außer dem strömenden Fluid noch eine zweite Phase, z.B. eine katalysatorbeschichtete Trägerstruktur, so teilt man den Bilanzraum entweder in zwei neue Bilanzräume (1. Fluid, 2.

Feststoff) auf oder man berücksichtigt die zweite Phase durch die Einführung des Leerraumanteils in den Bilanzen. Die erste Möglichkeit führt zu dem detaillierteren aber aufwendigeren Zweiphasenmodell, die zweite Möglichkeit zum quasihomogenen Modell.

5.2 Quasihomogenes Modell

5.2.1 Quasihomogenes Modell des adiabaten Festbettreaktors

Im quasihomogenen Modell wird die strömender Luft und der Feststoff als homogenes Kontinuum betrachtet. Dieses Modell wird für den adiabaten Festbettreaktor aus einem Zweiphasenmodell hergeleitet [16]. Der gesamte Reaktor wird als ein einziger Bilanzraum aufgefaßt. Gas und Schüttung tragen dabei entsprechende Anteile zu den einzelnen Termen in den Bilanzgleichungen bei.

Die folgenden Annahmen müssen für die Herleitung des quasihomogenen Modells gemacht werden:

- Die Krümmung der Temperaturprofile von strömendem Gas und Schüttung sind an jedem Ort identisch

$$\frac{\partial^2 T_s}{\partial z^2} \approx \frac{\partial^2 T_G}{\partial z^2} \quad (5.2)$$

- Die Wärmespeicherfähigkeit des Gases wird gegenüber derjenigen der Feststoffschüttung vernachlässigt.

$$\rho_G \cdot c_{p,G} \cdot \varepsilon \ll \rho_S \cdot c_S \cdot (1-\varepsilon) \quad (5.3)$$

Die obigen Annahmen führen auf folgende Bilanzgleichungen:

Energiebilanz

$$\rho_S (1-\varepsilon) c_{p,S} \cdot \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\dot{m}}{A_q} c_{p,G} \cdot \frac{\partial T}{\partial z} + \lambda_{\text{eff}} \cdot \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} - (-\Delta h_R) \cdot r \cdot a_v \quad (5.4)$$

Massenbilanz

$$\rho_G \varepsilon \cdot \frac{\partial w}{\partial t} = -\frac{\dot{m}}{A} \cdot \frac{\partial w}{\partial z} + D_{\text{eff}} \cdot \varepsilon \cdot \frac{\partial^2 w}{\partial z^2} - M \cdot r \cdot a_v \quad (5.5)$$

In der Energiebilanz wird die axiale Dispersion mit einer effektiven axialen Wärmeleitfähigkeit λ_{eff} beschrieben.

$$\lambda_{\text{eff}} = \lambda_s (1 - \varepsilon^*) + \left(\frac{\dot{m} c_{p,G}}{A} \right)^2 \frac{1}{\alpha a_v} \quad (5.6)$$

Die effektive Wärmeleitfähigkeit berücksichtigt einen konvektiven Anteil des Gases und die Wärmeleitfähigkeit des Feststoffes und die Wechselwirkungen zwischen ihnen. Die axiale Dispersion in der Massenbilanz D_{eff} wird als konstant angenommen.

5.2.2 Quasihomogenes Modell des Gegenstromreaktors

Auch für den Gegenstromreaktor kann man ein quasihomogenes Modell aufstellen.

Die quasihomogene Energiebilanz für den Gegenstromreaktor lautet:

$$\rho_s (1 - \varepsilon^*) c_s \cdot \frac{\partial T}{\partial t} = \lambda_{\text{eff}} \cdot \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} + (-\Delta h_R) \cdot (r_1 + r_2) \cdot \frac{a_v}{2} \quad (5.7)$$

λ_{eff} wird nach (3.6) berechnet. ε^* bezeichnet einen über den gesamten Reaktor bezogenen Hohlraumanteil. Die Konvektionsterme in die verschiedenen Richtungen heben sich gegenseitig auf. Die Simulationsrechnungen wurden mit dem Programmpaket PDEX-Pack durchgeführt. Die Struktur von PDEX-Pack setzt sich zusammen aus mehreren Unterprogrammen die vom Hauptprogramm verwaltet werden [17].

5.2.3 Die Stützheizung

Die el. Stützheizung befindet sich im Kopf des Reaktors. Dort wird am Rand Wärme in den Reaktor eingetragen um das Temperaturprofil einzustellen oder zu stützen. Da es sich um den heißesten Punkt im Reaktor handelt entstehen dort auch die höchsten Verluste. Der Wärmestrom an der Heizung läßt sich in einen konvektiven (s.o.) und einen Strahlungsanteil zerlegen. Der Strahlungsanteil wird den Feststoffstrukturen in den Kanälen zugeführt.

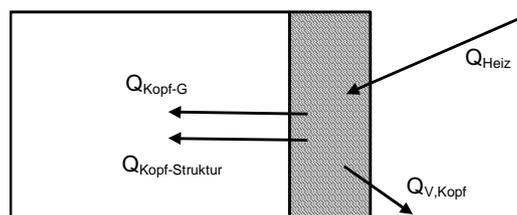


Abb. 5.3: Schema der Wärmeströme beim Aufheizvorgang

5.2.4 Die Mittenfunktion

Am oberen Ende des Reaktors, in der Umkehrzone, läßt sich das Temperaturprofil im Reaktor am effektivsten beeinflussen. Eingriffsmöglichkeiten sind:

- Einspeisung eines kalten Gasstromes
- Ausschleusung eines Teils des heißen Gasstromes
- Auskopplung von Wärme durch Ausschleusung, Kühlung und Wiedereinspeisung eines Teils des heißen Gasstromes

Im ersten Fall einer Zugabe, stellt sich direkt nach dem Zugabepunkt eine Mischtemperatur und eine Mischkonzentration in dem vergrößerten Massenstrom ein. Im zweiten Fall wird nur ein Teil des Massenstroms abgezogen (negative Zugabe). Die Temperatur und Schadstoffkonzentration bleiben unverändert. Im dritten Fall, der mit den z. Zt. vorhandenen Reaktoren nicht experimentell verifiziert werden kann, wird ein heißer Gasstrom abgezogen, abgekühlt und dann wieder dem Reaktor zugeführt. Im Programm wird von der konvektiv mit dem Gas transportierten Wärme einfach ein Teil abgezogen und so die Temperatur des Massenstroms erniedrigt.

5.3 Parameter und Stoffwerte

5.3.1 Geometrieparameter

Der Gegenstromreaktor in der untersuchten Bauweise besteht aus mehreren aufwärts- und abwärtsströmenden Kanälen, getrennt durch dünne Blechwände. Unter der Annahme, daß die äußeren Kanäle immer beide zu den abwärtsströmenden gehören, kann man für jede ungerade Gesamtanzahl von Kanälen die Anzahl der in entgegengesetzter Richtung durchströmten Kanäle nach folgender Formel aus dem Parameter n berechnen.

n = Zahl der Trennwände zwischen den Kanälen

$n/2$ = Zahl der aufwärtsströmenden Kanäle

$n/2+1$ = Zahl der abwärtsströmenden Kanäle

Über die Längen sind auch die Flächen, die z.B. zur Wärmeübertragung zur Verfügung stehen festgelegt.

$A_{WT} = n \cdot B \cdot H$ Fläche zwischen Kanal 1 und Wand, bzw. Kanal 2 und Wand,
bzw. Kanal 1 u. Kanal 2

$$A_1 = \frac{n}{2} \cdot B \cdot d_s \quad \text{Durchströmte Fläche aller Kanäle 1}$$

$$A_2 = \left(\frac{n}{2} + 1\right) \cdot B \cdot d_s \quad \text{Durchströmte Fläche aller Kanäle 2}$$

$$A_w = n \cdot d_s \cdot B \quad \text{„Durchströmte“ Fläche aller Trennwände}$$

$$A_{wU} = 2 \cdot n \cdot d_s \cdot H \quad \text{Fläche aller Trennwände zur Reaktor Umgebung}$$

$$A_{1U} = n \cdot d_s \cdot H \quad \text{Fläche aller Kanäle 2 zur Reaktor Umgebung}$$

$$A_{1U} = (n + 2) \cdot d_s \cdot H + 2 \cdot B \cdot H \quad \text{Fläche aller Kanäle 1 zur Reaktor Umgebung}$$

Für die Energiebilanzierung werden die durch diese Flächen übertragenen Wärmeströme durch Summation über einzelne Reaktorsegmente ermittelt.

Da die Reaktionsgeschwindigkeit flächenbezogen ist, jedoch in der Simulation nur der Ort im Reaktor und somit das durchströmte Volumen bekannt ist, berechnet man die spezifische Oberfläche a_v . Für die Strukturen wurde eine relative Auflagefläche a_{rel} an der Wand definiert, die in den Kontaktwärmeübergang zwischen Struktur und Wand eingeht, die für die jeweilige Struktur gemessen werden muß.

5.3.2 Stoffdaten

Die Stoffwerte für das Abgas bzw. die Luft wurden aus [18] entnommen und durch Polynome angenähert. Es wurde jeweils nur eine Abhängigkeit von der Temperatur betrachtet, eine Druckabhängigkeit der Stoffwerte wurde nicht betrachtet. Für die Stoffdaten der Feststoffe wurden druck- und temperaturunabhängige Mittelwerte angenommen. Die Wärmedurchgangskoeffizienten zwischen dem Reaktor und der Umgebung sowie zwischen Kopf und Umgebung wurden auf Basis von Meßdaten an einem Gegenstromreaktor (GSTR2) angepaßt. Die gefundenen Werte liegen im Bereich von :

k_{Reaktor}	0,5 - 1,2 - 1,5 [W/(m ² K)]
k_{Kopf}	1,5 - 3,8 - 5,0 [W/(m ² K)]

Tabelle 5.1: Wärmedurchgangskoeffizienten zwischen dem Reaktor und der Umgebung sowie zwischen Kopf und Umgebung

Für die Simulation wurde nur in den Energiebilanzen des Gases in beiden Kanälen und der Energiebilanz der Trennwände ein Verlustterm an die Umgebung berücksichtigt. Der Wärmeübergang von der strö-

menden Luft an die Trennwand und umgekehrt wurde für verschiedene Strukturen mit der Ammoniak-Methode [19] ermittelt. Aus diesen Ergebnissen folgt für gewendelte Blechstrukturen die Abhängigkeit

$$\text{Nu}_{G,W} = 0,4271 \cdot \text{Re}^{0,4819} \quad (5.8)$$

Für den Wärmeübergang zwischen strömender Luft und den Strukturen existiert keine durch Meßwerte bestätigte Beziehung. Im Modell ist der Wärmeübergang deshalb als Mehrfaches des Luft-Wand-Wärmeübergangs berücksichtigt. Der Faktor wurde durch eine Anpassung an Meßwerte vorgenommen .

$$\text{Nu}_{G,S} = 5,0 \cdot \text{Nu}_{GW} \quad (5.9)$$

Die größte Unsicherheit liegt allerdings in der Festlegung der Größenordnung des Feststoff-Feststoff-Wärmeübergangs. Da er experimentell nicht ermittelt werden konnte wurde er zunächst aus Literaturangaben abgeschätzt und anhand von Meßergebnissen angepaßt.

Die angepassten Werte ergaben sich zu:

$k_{WS,inert}$	500 W/m ² K
$k_{WS,Kat}$	200 W/m ² K

Im Einlaufbereich wurde zur Berechnung des wandseitigen Wärmeübergangs der angepaßte Ansatz verwendet

$$\text{Nu}_E = 0,35 \cdot \text{Nu}_{G,W} \quad (5.10)$$

Der Stoffübergangskoeffizient β wird aus einer experimentell ermittelten Beziehung für die Sherwood-Zahl berechnet.

$$\text{Sh} = 0,529 \cdot \text{Re}^{0,4819} \quad (5.11)$$

mit

$$\text{Sh} = \frac{d_h \cdot \beta}{D} \quad (5.12)$$

6 Das thermische Verhalten des Gegenstromreaktors

6.1 Energiebilanz

6.1.1 Leistungsbedarf der Stützheizung

Über eine im Kopf des Gegenstromreaktor eingebaute elektrische Widerstandsheizung wird bei allen untersuchten Bauformen das für die Abluftreinigung geeigneten Temperaturprofils eingestellt und gehalten. Es wurden zwei Bauformen für die Stützheizung untersucht: Bei der kompakteren Variante sitzen die Heizelemente in einem plattenförmigen Bauteil das direkt im Umkehrpunkt der Strömung gleichzeitig als Abschluß des Gegenstromreaktors nach außen dient. Die Reaktoren GSTR2, GSTR3 und GSTR4 werden auf diese Weise beheizt. Auf der Luftseite sind Rippen zur Verbesserung der Wärmeabgabe eingefräst (Abb. 6.1). Durch verschiedene Bohrungen am Heizkopf ist es möglich durch Abziehen von Heißgas oder Einspeisung von Kaltgas die Maximaltemperatur bei hohen Schadstoffkonzentrationen zu begrenzen. Bei der zweiten Variante für den Heizkopf, wie beim GSTR1 und GSTR5, wird das Gas durch ein Heizregister geleitet, bevor es umgelenkt wird oder durch einen Filter geleitet wird. Als Heizregister ist eine Konstruktion aus versetzt angeordneten Rohrhülsen geeignet, die auf der Außenseite zur Verbesserung der Wärmeabgabe mit Rippen versehen ist (Abb. 6.2).



Abb. 6.1: Heizkopf wie er in den Gegenstromreaktoren GSTR2, GSTR3 und GSTR4 eingesetzt wird. Mit Bohrungen für Heizpatronen und Mittenabzug.

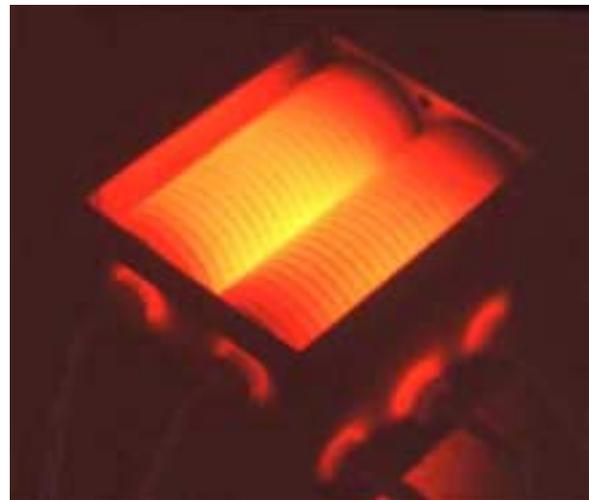


Abb.6.2: Heizkopf in der Bauform wie er in den Gegenstromreaktoren GSTR1 und GSTR5 eingebaut wurde ($T = 750\text{ °C}$).

Die Arbeitstemperatur wird über einen PID-Regler eingestellt. Als Ist-Wert für den Regler wird die Temperatur des Heizkopfes herangezogen. Die Taktrate des Reglers stellt die Heizleistung ein, die zur Aufrechterhaltung der Kopftemperatur notwendig ist. Die Heizleistung wurde experimentell über die Abtastung der Heizintervalle bestimmt. Mit Hilfe der Spannung, die im belasteten Zustand an der Heizung anliegt und einer $R(T)$ - Kennlinie der Heizung kann so der zugeführte Wärmestrom ermittelt werden.

6.1.2 Wärmedämmung

Der obere heiße Reaktorbereich und dort besonders der Kopfbereich muß zur Verringerung der äußeren Verluste mit einer geeigneten Wärmedämmung versehen werden. Bei die Messungen zeigte sich, daß durch die geringen Baugrößen der Versuchsreaktoren ein ungünstiges Oberflächen-/Volumenverhältnis vorliegt. Da der Gegenstromreaktor eine sehr effiziente Wärmeintegration aufweist, sind die konvektiv mit der behandelten Abluft ausgetragene Wärmemengen im Vergleich zu den äußeren Verlusten gering. Wie Messungen zeigten, haben die äußeren Verluste im heißen Reaktorbereich einen großen Einfluß auf das Temperaturprofil im Reaktor. Zur Wärmedämmung wurde eine hitzebeständigen Keramikfasermatte verwendet, die durch eine metallische Abdeckung verschlossen wird.

Die Heizleistung berechnet sich aus:

$$Q_{\text{Heiz}} = \frac{\Delta t_{\text{ein}}}{\Delta t_{\text{ges}}} \cdot n \cdot Q_p \quad (6.1)$$

6.1.3 Konvektion

Der konvektive Wärmeaustrag stellt den mit der behandelten Abluft ausgetragenen Wärmestrom dar.

$$\dot{Q}_{\text{Konv}} = \dot{m}_{\text{ein}} \cdot c_{p,G} \cdot T_{\text{ein}} + \dot{m}_{\text{mitte}} \cdot c_{p,G} \cdot T_{\text{mitte}} + \dot{m}_{\text{aus}} \cdot c_{p,G} \cdot T_{\text{aus}} \quad (6.2)$$

Wird über den Mittenabzug ein Teilstrom entnommen, so muß dieser mit eingerechnet werden. Im stationären Zustand ohne Reaktion und ohne Zufuhr oder Abzug in der Mitte ergibt sich die Temperaturdifferenz am unteren Ende in Abhängigkeit vom Durchsatz und der Regeltemperatur. Überschlägig ergibt sich der konvektive Wärmeaustrag dann zu:

$$\dot{Q}_{\text{Konv}} = \dot{m}_{\text{ein}} \cdot c_{p,G} \cdot (T_{\text{aus}} - T_{\text{ein}}) \quad (6.3)$$

Aus den Messungen sind die Ein- und Austrittstemperaturen und der Luftdurchsatz bekannt.

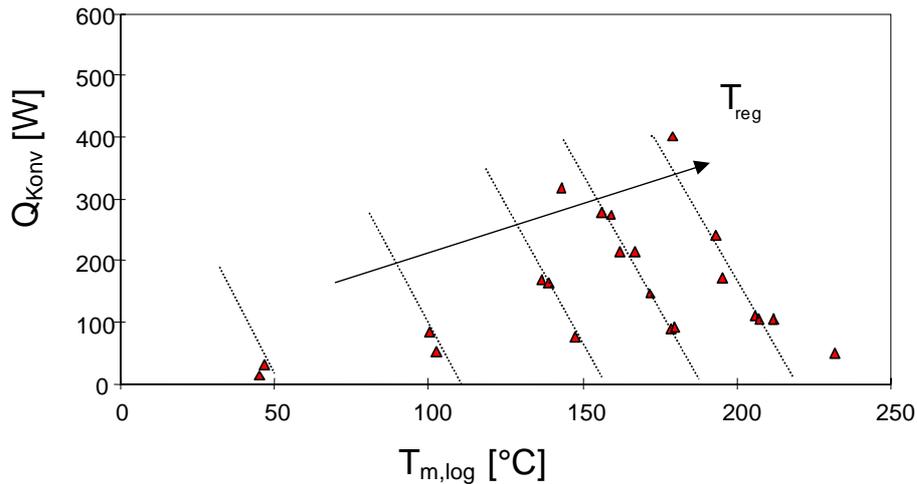


Abb. 6.3: Konvektive Verluste des Gegenstromreaktors GSTR2 über der mittleren logarithmischen Temperaturdifferenz im Reaktor ($G_z = 0,83 \text{ kg}/(\text{m}^2\text{s})$).

6.1.4 Wärmespeicherung

Die Wärmespeicherung im Reaktor und im Reaktorkopf spielt nur bei instationären Zuständen des Temperaturprofils eine Rolle, z.B. bei Aufheiz- und Abkühlvorgängen und während der Übergangszeit bei Änderungen der Betriebsbedingungen oder beim Einschalten eines Regelkonzeptes mit Mittenfunktion.

Während sich die Wärmespeicherung im Reaktor aufgrund der thermischen Trägheit seiner Masse langsam über mehrere Stunden hinweg dem Wert Null nähert, erreicht der Kopf innerhalb kurzer Zeit nach dem Einschalten der elektrischen Heizung seine Endtemperatur. Als stationärer Zustand wird daher eine Temperaturänderung am Austritt des Reaktors definiert, die kleiner als 1 K/h ist. Der vernachlässigte Anteil der gespeicherten Wärme im als stationär definierten Zustand gegenüber dem endgültig stationären läßt sich abschätzen:

$$Q_{\text{Speicher}} = m_R \cdot c_{p,R} \cdot \frac{\partial T_R}{\partial t}$$

$$m_R = 50 \text{ kg}$$

$$c_{p,R} = 500 \text{ J/kgK}$$

$$Q_{\text{Speicher}} = m_R \cdot c_{p,R} \cdot \frac{1 \text{ K}}{3600 \text{ s}}$$

$$Q_{\text{Speicher}} = 7 \text{ W}$$

Der Fehler durch die Definition des stationären Zustands bei einer maximalen Änderung einer Temperatur im Reaktor von 1 K/h liegt damit im Bereich von ca. 2% der Heizleistung.

6.1.5 Äußere Verluste

Die Verluste können nur als Differenz aus der Heizleistung und der konvektiv ausgetragenen Wärme berechnet werden. Da der Kopf durch das aufgeschweißte Rohr (Mittenfunktion) einen anderen Wärmedurchgangskoeffizient an die Umgebung besitzt als der Reaktor, muß eine Aufteilung der berechneten Verluste in Kopfverluste und Reaktorverluste vorgenommen werden. Diese Aufteilung ist zudem für die Berechnung der vom Kopf an die vorbeiströmende Abluft im Umkehrbereich abgegebene Wärme notwendig. Die einzelnen Wärmeströme können dann berechnet werden.

$$\begin{aligned} \dot{Q}_V &= \dot{Q}_{V,\text{Kopf}} + \dot{Q}_{V,R} \\ \dot{Q}_V &= \dot{Q}_{\text{Heiz}} - \dot{Q}_{\text{Konv}} \\ \dot{Q}_{V,\text{Kopf}} &= \dot{Q}_{\text{Heiz}} - \dot{Q}_{\text{Kopf-R}} \\ \dot{Q}_{V,R} &= \dot{Q}_{\text{Kopf-R}} - \dot{Q}_{\text{Konv}} \end{aligned} \tag{6.4}$$

$$\begin{aligned}
 \dot{Q}_{\text{Kopf-R}} &= \alpha_{\text{Kopf-G}} \cdot A_{\text{Kopf-G}} \cdot (T_{\text{Kopf}} - T_{\text{G}}) \\
 \dot{Q}_{\text{V,Kopf}} &= k_{\text{K-amb}} \cdot A_{\text{K-amb}} \cdot (T_{\text{Kopf}} - T_{\text{amb}}) \\
 \dot{Q}_{\text{V,R}} &= k_{\text{R-amb}} \cdot A_{\text{R-amb}} \cdot (T_{\text{m,R}} - T_{\text{amb}}) \\
 T_{\text{m,R}} &= \frac{(T_{\text{Bezug}} - T_{\text{amb}}) - (T_{\text{m,x.2}} - T_{\text{amb}})}{\ln\left(\frac{(T_{\text{Bezug}} - T_{\text{amb}})}{(T_{\text{m,x.2}} - T_{\text{amb}})}\right)}
 \end{aligned} \tag{6.5}$$

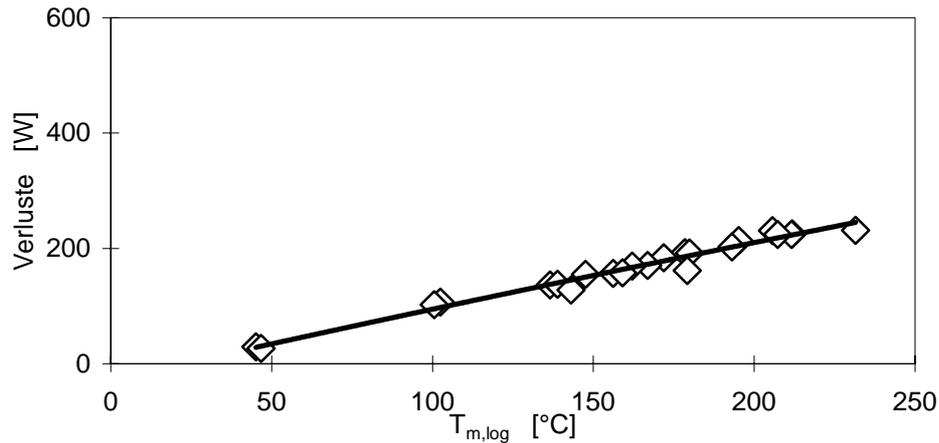


Abb. 6.3: Äußere Verluste des GSTR2 über der mittleren logarithmischen Temperatur im Reaktor (unabhängig vom Durchsatz).

6.2 Temperaturprofile bei verschiedenen Betriebsbedingungen

Bei einem Betrieb des Reaktors ausschließlich mit der elektrischen Stützheizung (Abb. 6.4) stellen sich im Vergleich zum autothermen Betrieb (Abb. 6.5) mit einem gasförmigen Modellschadstoff verschiedene Temperaturprofile ein. Der signifikante Unterschiede beider Profilformen hat seine Ursache im Ort der Wärmefreisetzung. Bei elektrischer Beheizung im Kopf, so daß das Profil einen nahezu linearen Anstieg zeigt. Bei der Wärmefreisetzung durch eine Umsetzung des gasförmigen Schadstoffes am Katalysator wird die Wärme bereits im aufströmenden Kanal, vor Eintritt in den Kopf freigesetzt. Nach der Umsetzung kühlt sich das Gas auf Grund der äußeren Verluste wieder ab. Auf dem Rückweg erhitzt sich das gereinigte Gas bis zum Ort der Wärmefreisetzung um dann anschließend auf die Austrittstemperatur abgekühlt zu werden.

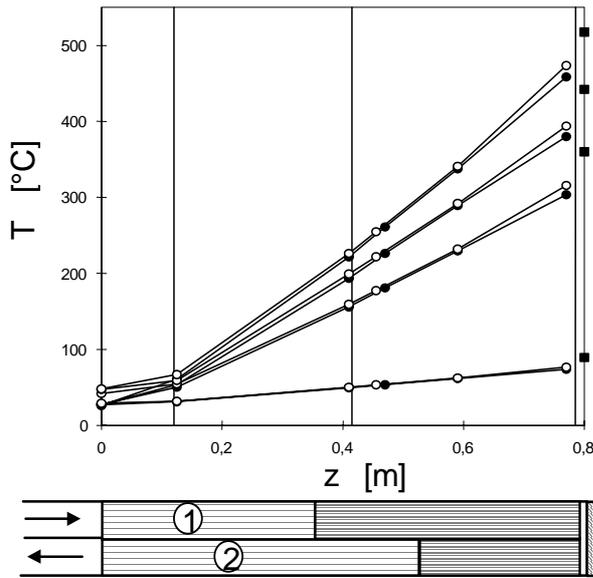


Abb. 6.4: Temperaturprofile im GSTR2 mit Stütz-

heizung

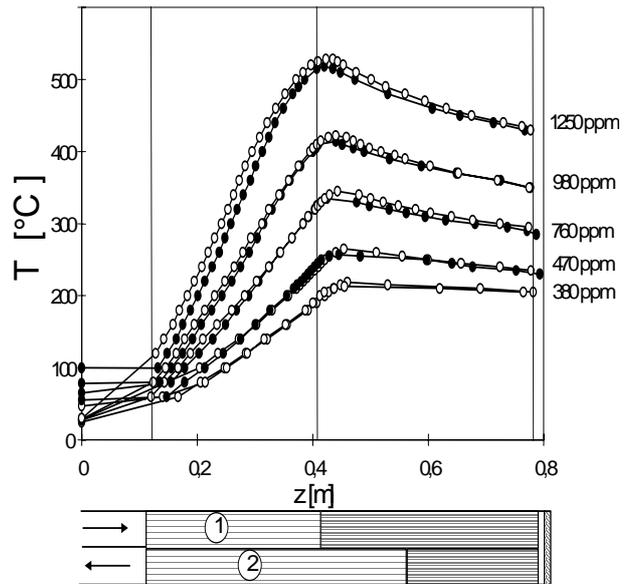


Abb. 6.5: Temperaturprofil im GSTR2 im auto-

thermen Betrieb mit Propen

6.3 Optimierung der Wärmeintegration

Mit kleinerer Spaltweite erhält man eine höhere spezifische wärmeübertragende Fläche im Gegenstromreaktor. Durch diese Maßnahme erhöht sich der Grad des Wärmerücktauses. Die drückt sich in einer niedrigeren Temperaturdifferenz der Gasströme am Ein- und Austritt aus. Dazu wurden Messungen an zwei Reaktoren mit unterschiedlichen Spaltweiten vorgenommen. In Abb 6.6 sind Ergebnisse dieser Messungen dargestellt. Mit zunehmendem Durchsatz steigt auch die Temperaturdifferenz. Bei einer optimierten Bauform (Spaltweite 1,2 mm) können im technisch relevanten Bereich bereits Temperaturdifferenzen von 25 K realisiert werden.

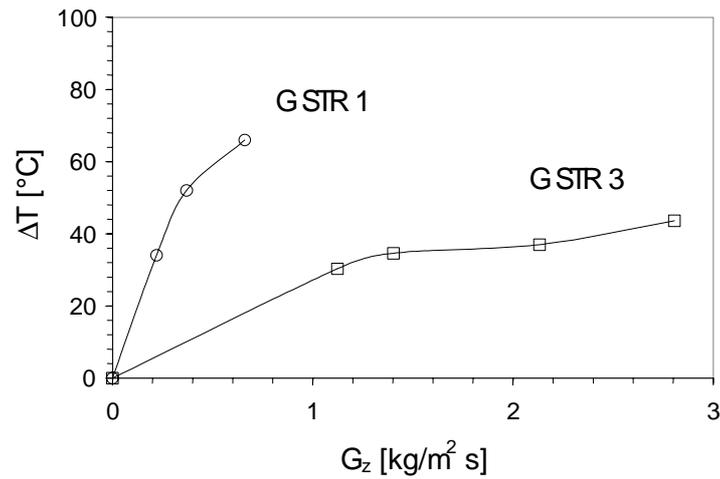


Abb. 6.6: Temperaturdifferenz zwischen Aus- und Eintritt am GSTR 1 und GSTR 3 (mit optimierter Wärmeintegration) bei einer Betriebstemperatur von $T_{\text{Kopf}} = 590$ °C.

In Abb. 6.7 sind Meßergebnisse zum Druckverlust über den Reaktor gezeigt. Aus der Abbildung erkennt man, daß dieser auch bei der wärmetechnisch optimierten Bauform des Gegenstromreaktors GSTR3 in einem engen Rahmen bleibt.

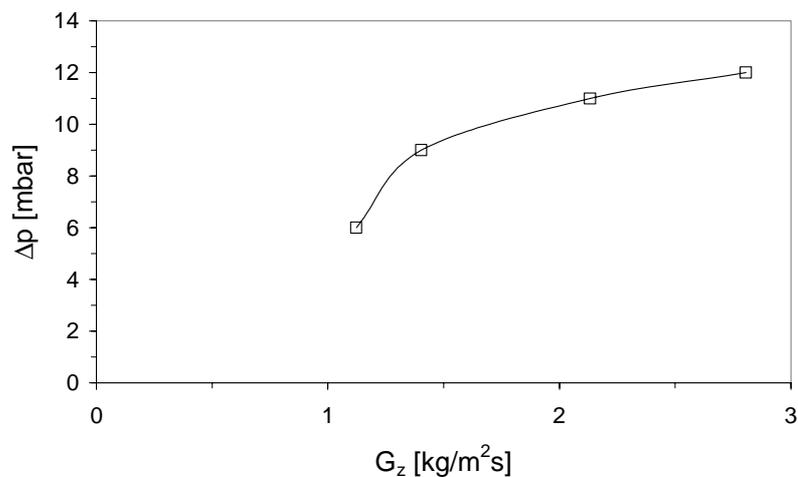


Abb. 6.7: Druckverlust des Reaktors GSTR3 mit optimierter Wärmeintegration bei einer Betriebstemperatur von $T_{\text{Kopf}} = 590$ °C.

7 Regelungskonzepte

7.1 Stabilitäts-/ Arbeitsbereich des Reaktors

Der Arbeitsbereich jedes einzelnen Reaktors wird festgelegt durch zwei charakteristische Schadstoffkonzentrationen. Diese Konzentrationen sind sowohl von der Reaktionswärme als auch der Kinetik der vollständigen Oxidation des Schadstoffs abhängig. Deshalb sind diese Konzentrationen nur für den jeweils betrachteten Stoff oder das betrachtete Stoffgemisch aussagekräftig.

Die untere Grenzkonzentration kennzeichnet dabei die Konzentration des Schadstoffes in der ein autothermen Betriebs bei der Abluftreinigung gerade aufrecht gehalten werden kann. Die Simulationsergebnisse liefern hierfür ca. 30% kleinere Werte als die vergleichbaren Experimente. Der Unterschied zwischen Simulation und Experiment ist durch das Fehlen genauer Koeffizienten für den Reaktionsgeschwindigkeitsansatz des Schadstoffumsatzes bedingt. Vor allem im Bereich kleiner Konzentrationen und niedriger Temperaturen, also im kinetisch limitierten Bereich der Reaktion macht sich dies in einer Abweichung bemerkbar.

Die zweite wichtige Konzentration, die obere Grenzkonzentration, wird durch die verwendeten Werkstoffe und die Bauweise des Reaktors bestimmt. Bei der Umsetzung des Schadstoffs wird Reaktionswärme frei. Diese bestimmt im autothermen Betrieb die im Reaktor auftretende Maximaltemperatur. Die maximal zulässige Temperatur ist jedoch durch Werkstoffe und Konstruktion begrenzt. Bei einer Über-temperatur kann es zur irreversiblen Schädigung des Reaktors und zur thermische Deaktivierung des Katalysators kommen.

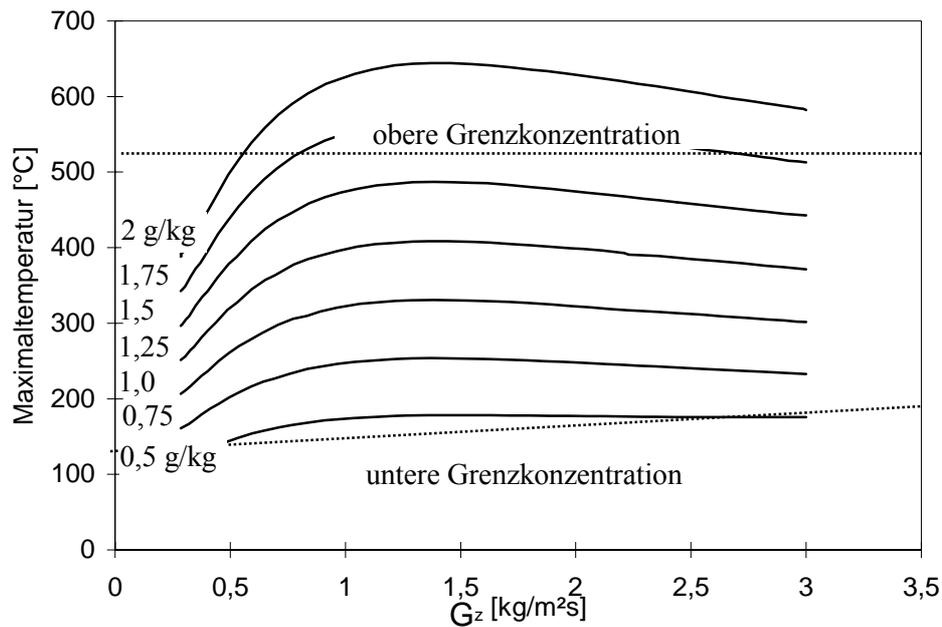


Abb. 7.1: Arbeitsbereich des Reaktors mit Propen.

Die Maximaltemperatur ist außer von der Schadstoffkonzentration und der Bauweise auch vom Luftdurchsatz abhängig (Abb 7.1). Die untere Grenzkonzentration steigt mit höherem Durchsatz im gesamten Bereich der Querschnittsbelastung an. Die obere Grenzkonzentration nimmt bis zu einer Flächenbelastung von ca. $G_z = 1,2 \text{ kg/m}^2\text{s}$ ab. Erst mit sehr viel höherem Luftdurchsatz nimmt die obere Grenzkonzentration wieder zu. Dieses Verhalten wird durch das Verhältnis zwischen Wärmeeintrag und Verlusten und durch den Stoffübergang kombiniert mit der Kinetik bestimmt.

Unterhalb von $G_z = 1,2 \text{ kg/m}^2\text{s}$ sinken die Wärmeverluste an die Umgebung relativ zu der konvektiv ausgetragenen Wärme. Die Maximaltemperatur im Reaktor steigt bei konstanter Schadstoffkonzentration mit dem Luftdurchsatz an. Der Wärmerücktausch wird etwas schlechter, da der Wärmeübergangskoeffizient nicht linear mit dem Durchsatz ansteigt. Die untere Grenzkonzentration muß ansteigen, da in diesem Bereich der schlechtere Wärmerücktausch die nur leicht ansteigenden Verlusten dominiert. Die obere Grenzkonzentration sinkt ab, da bei hohen Konzentrationen der Anstieg der Verluste durch höhere Temperaturen keinen so großen Einfluß hat. Steigert man den Durchsatz über $G_z = 1,2 \text{ kg/m}^2\text{s}$ hinaus, so wird durch die hohe Strömungsgeschwindigkeit mit schlechterem Wärmeübergang die Temperaturdifferenz zwischen den Kanälen erhöht und der Wärmerücktauschgrad sinkt. Zudem kann der Stoffübergang ebenfalls nicht linear mit dem Durchsatz gesteigert werden. Der Ort an dem die Maximaltemperatur auftritt, wandert stromab vom Beginn der Katalysatorzone weg in den Katalysatorbereich hinein. Die obere Grenzkonzentration steigt also mit höheren Durchsätzen leicht an.

7.2 Betriebsverhalten bei Überkonzentration

Wie man aus Abb 7.1 erkennt, kann bereits eine Schadstoffkonzentration, die um Faktor 5 über der unteren Grenzkonzentration liegt, zur Beschädigung des Reaktors führen. Der Arbeitsbereich des Reaktors liegt ohne zusätzliche Maßnahmen zwischen der unteren Grenzkonzentration und der oberen Grenzkonzentration, die ca. um Faktor 5 darüber liegt. Um eine Beschädigung des Reaktors zu vermeiden, muß man zuerst eine mögliche Übertemperatur erkennen und dann geeignete Maßnahmen zur Senkung der Maximaltemperatur einleiten. Zudem ist es notwendig, die Dynamik mit der sich die Übertemperatur einstellt zu kennen.

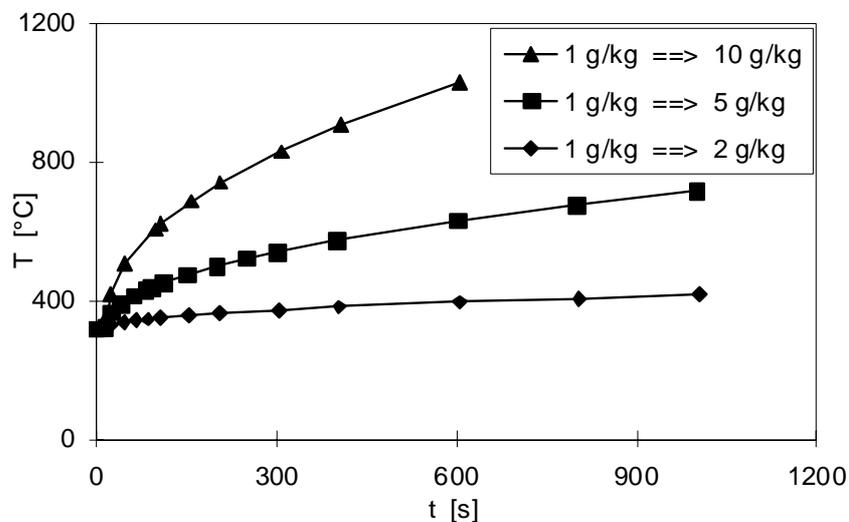


Abb. 7.2: Zeitlicher Verlauf der Maximaltemperatur nach einem Sprung in der Zulaufkonzentration.

Läßt man ausgehend von einer Schadstoffkonzentration von $1 \text{ g}_{\text{Propen}}/\text{kg}_{\text{Luft}}$ bei 60 kg/h Luftdurchsatz, die Schadstoffkonzentration innerhalb von 10 Sekunden auf 2, 5 oder $10 \text{ g}_{\text{Propen}}/\text{kg}_{\text{Luft}}$ ansteigen (Abb. 7.2), so ergeben sich aus dem Übergangverhalten in den neuen stationären Zustand verschiedene zeitliche Gradienten der Maximaltemperatur. Je größer die Konzentrationserhöhung, desto höher ist auch die sich einstellende neue Maximaltemperatur. Die Maximaltemperatur steigt unabhängig von der Größe des Konzentrations Sprunges relativ zum Gesamttemperaturanstieg in den ersten Minuten mit gleicher Geschwindigkeit an. Das bedeutet, daß nach 15 Minuten sowohl bei einer Verdopplung der Konzentration als auch bei einer Verfünffachung etwa ein Drittel des Anstiegs der Maximaltemperatur erreicht ist. Bei bekanntem Luftdurchsatz und bekannter Schadstoffzusammensetzung kann man also aus dem Anstieg der Maximaltemperatur nach einem Sprung schon nach kürzester Zeit den sich im stationären Zustand einstellenden Wert abschätzen. Kennt man im umgekehrten Fall die Schadstoffkonzentrationen vor und nach dem Sprung, so kann man die Zeit abschätzen, die für einen Regeleingriff zur Verfügung steht.

7.3 Regelungskonzepte bei Überkonzentration - Mittenfunktion

Um eine Beschädigung des Reaktors durch Übertemperaturen zu vermeiden gibt es verschiedene Eingriffs- und Regelungskonzepte. Diese Konzepte müssen es erlauben, den Reaktor bei voller Funktionsfähigkeit auch bei Überkonzentrationen ohne Schädigung zu betreiben. Ein Abstellen des Reaktors und ein Bypass der schadstoffhaltigen Luft an die Umgebung sind also nicht möglich.

Im folgenden sollen 5 Regelungsmöglichkeiten verglichen werden:

- Verdünnen des Abluftstroms mit schadstofffreier Frischluft vor dem Eintritt in den Reaktor (**Verdünnung**)
- Zugabe von schadstofffreier Frischluft durch die Öffnung im Kopf des Reaktors (**Kaltgaseinspeisung**)
- Abzweigung eines Teils der Abluft vor dem Reaktoreintritt und Zuführung im Kopf (**Rohgaseinspeisung**)
- Abzug eines Teils der Abluft am Kopf (**Heißgasabzug**)
- Abzug eines Teils der Abluft am Kopf, Abkühlung dieses Teilstroms und Rückgabe in den Reaktor am Kopf. (**Wärmeauskopplung**)

Während die reine Verdünnung der Abluft keine weiteren Öffnungen oder Anschlüsse im Reaktor erfordert, sind für die Kaltgas-, Rohgaszufuhr und den Heißgasabzug eine Öffnung und für die Wärmeauskopplung mit Rückgabe der Abluft in den Reaktor zwei Öffnungen im Reaktorkopf notwendig. Die Rohgaszufuhr und der Heißgasabzug können, solange der Druckverlust in den Leitungen nicht größer als der im Reaktor ist, ohne ein weitere Gebläse oder Verdichter auskommen. Für die Zugabe von Frischluft und für die Wärmeauskopplung in einem Wärmeübertrager ist auf jeden Fall ein weiterer Verdichter notwendig. In den Fällen wo heiße Gase aus dem Reaktor abgezogen werden, müssen die Rohrleitungen entsprechend ausgelegt sein. Beim Heißgasabzug muß der gesamte Schadstoff schon im Katalysatorbereich der aufströmenden Kanäle abreagiert sein. In diesem Punkt hat die Wärmeauskopplung einen Vorteil gegenüber dem Heißgasabzug. Bei der Wärmeauskopplung kann man auch einen nicht vollständig gereinigten, heißen Gasstrom abziehen, abkühlen und wieder zugeben. Dies ist z.B. denkbar bei Schadstoffgemischen die überwiegend aber nicht ausschließlich aus leicht oxidierbaren Anteilen bestehen. Die leicht oxidierbaren Komponenten reagieren schnell ab, führen zu einer hohen Maximaltemperatur und sind bis zum Kopf vollständig umgesetzt. Die schwerer oxidierbaren Anteile reagieren bei den hohen Temperaturen ebenfalls gut mit dem Luftsauerstoff. Sie sind aufgrund ihrer kleineren Reaktionsge-

schwindigkeit am Mittenabzug jedoch noch nicht völlig umgesetzt und benötigen zusätzlich noch die katalytisch aktive Strecke in den abwärtsströmenden Kanälen.

7.4 Experimentelle Ergebnisse zu den Regelungskonzepten

Zum Vergleich zeigen Abb. 7.3 und Abb. 7.4 die mit den fest eingebauten und den über die Reaktorhöhe verschiebbaren Thermoelementen gemessenen Temperaturprofile jeweils für den autothermen, unregulierten Ausgangszustand (oberster Verlauf), sowie für Heißgasabzug, Kaltgaszufuhr und Rohgaszufuhr. Aus Abb. 7.3 und Abb. 7.4 geht hervor, daß alle drei realisierten Regelungskonzepte eine Absenkung der Maximaltemperatur bewirken. Bei 25% Rohgaszufuhr kann im Versuch kein stationäres Temperaturprofil mehr eingestellt werden. Die Konzentrationsfront bricht auf der Austrittsseite durch. Beim vorhandenen Reaktor ist auf der abströmenden Seite die Katalysatorzone nur 200 mm lang. Im Simulationsmodell ist die Katalysatorzone auf beiden Seiten 370 mm lang. Deshalb erhält man in der Simulation (Abb. 7.4) auch bei 30% Rohgaszufuhr noch einen stationären Betriebszustand. Im Experiment bricht Propan bei 30% Rohgaszufuhr auf der Austrittsseite durch. Der unterste Verlauf ist die Wiedergabe eines instationären Temperaturprofils, wodurch auch die Krümmung des Temperaturverlaufs im Inertbereich nach oben erklärt wird.

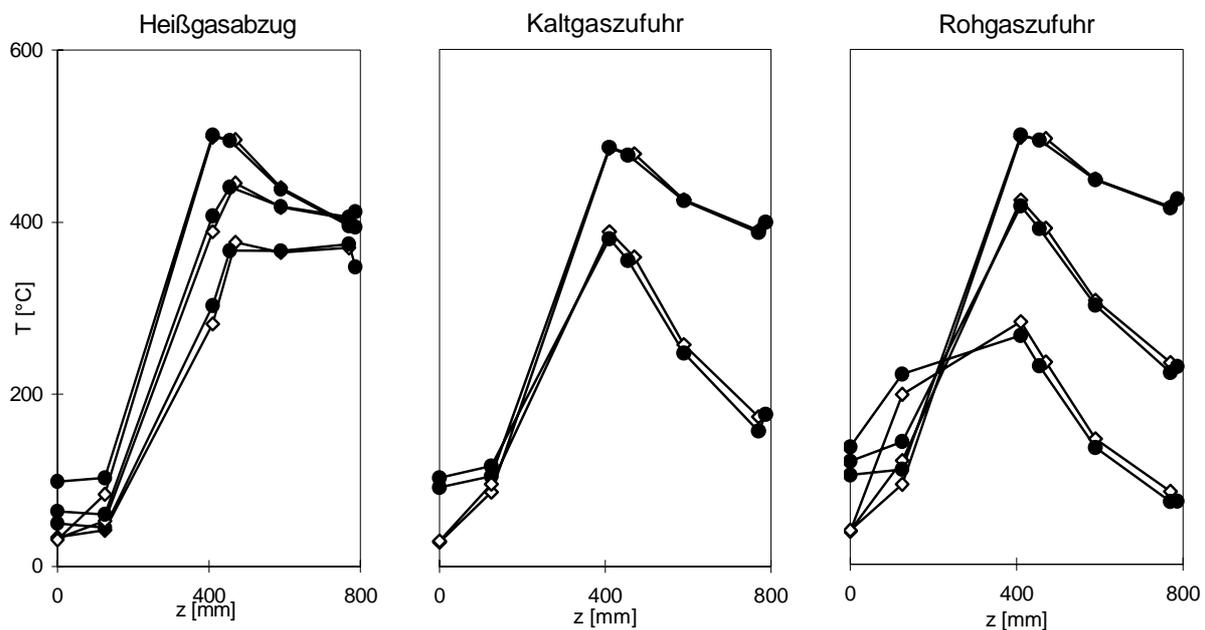


Abb. 7.3: Heißgasabzug (0%, 15%, 30% instat.), Kaltgaszufuhr (0%, 15%), Rohgaszufuhr (0%, 10%, 25% instat.) ($G_z = 0,83 \text{ kg/m}^2\text{s}$, $\Delta T_{ad} = 82,3 \text{ K}$).

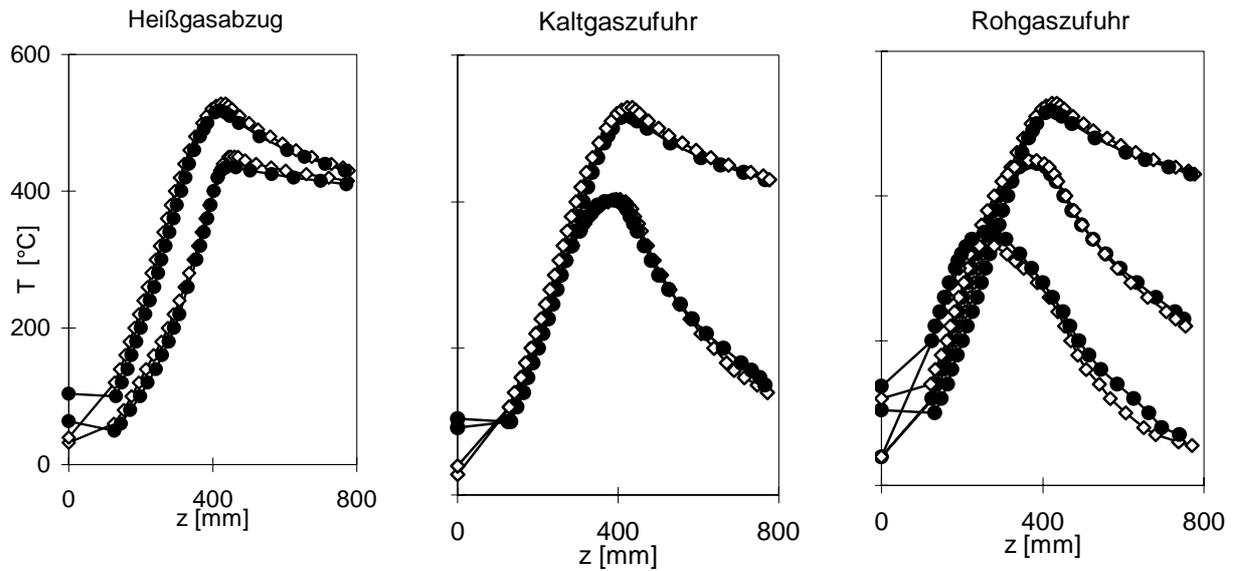


Abb. 7.4: Heißgasabzug (0%, 15%), Kaltgaszufuhr (0%, 15%), Rohgaszufuhr (0%, 10%), ($G_z = 0,83 \text{ kg/m}^2\text{s}$, autothermer Betrieb mit $\Delta T_{ad} = 82,3 \text{ K}$, Propen).

7.5 Simulationen zu verschiedenen Regelungskonzepten

In Abb. 7.5 sind ausgehend vom Standardprofil (60 kg/h, 1250 ppm Propen) Simulationsergebnisse für 10 %, 20 %, und 30 % Heißgasabzug dargestellt. Im linken Bild wird der Kopf als Wärmeübertrager betrachtet, der von dem ausströmenden heißen Gas beheizt wird und dessen Verluste nicht aus dem Reaktor gedeckt werden müssen. In der rechten Abbildung müssen die Verluste aus dem Reaktor gedeckt werden. Die Temperaturprofile liegen unter denen in der linken Abbildung und der Gradient im oberen Reaktorbereich ist ausgeprägter.

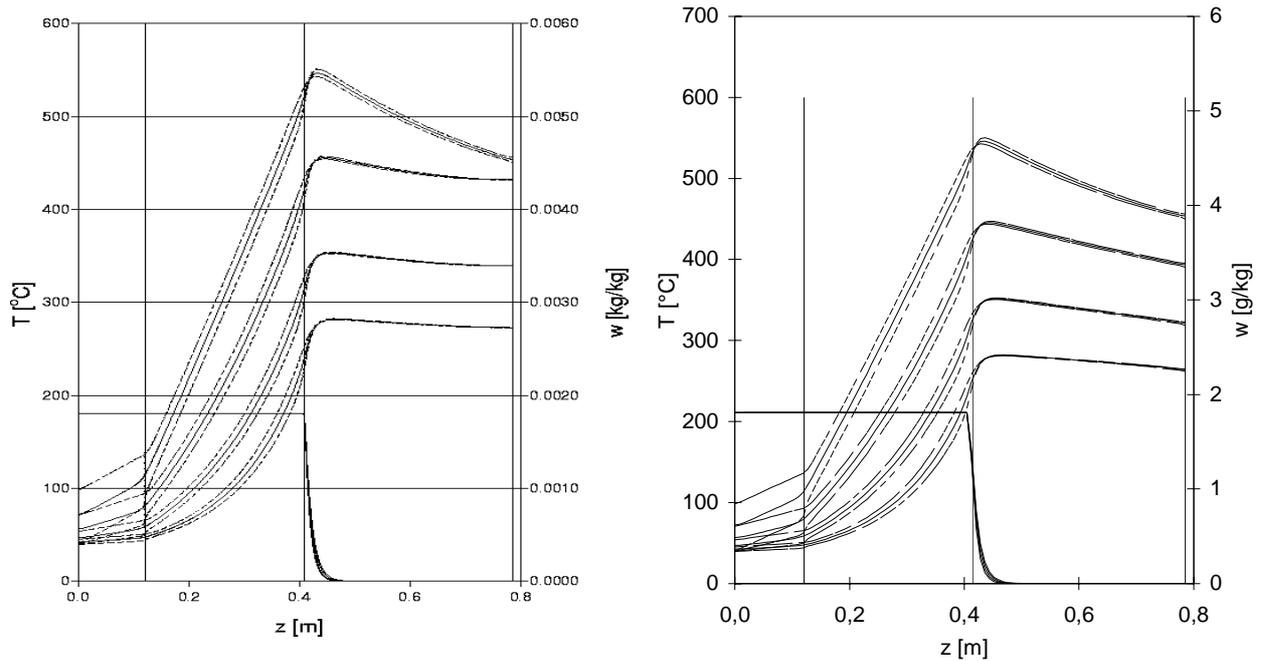


Abb. 7.5: Einfluß des Heißgasabzugs auf das Temperatur- und Konzentrationsprofil (von oben nach unten: 0%, 10%, 20%, 30% Heißgasabzug).

Die Betrachtungsweise in der rechten Abbildung entspricht einem Heißgasabzug, bei dem die Luft nicht durch viele lange dünne Kanäle im Reaktorkopf muß. Dies wäre z.B. der Fall wenn der Reaktor am oberen Ende nur eine Kappe aus Blech anstelle eines Kopfs besäße. Die Betrachtungsweise aus der linken Abbildung zeigt einen vergleichbare Ergebnisse wie die der Messungen.

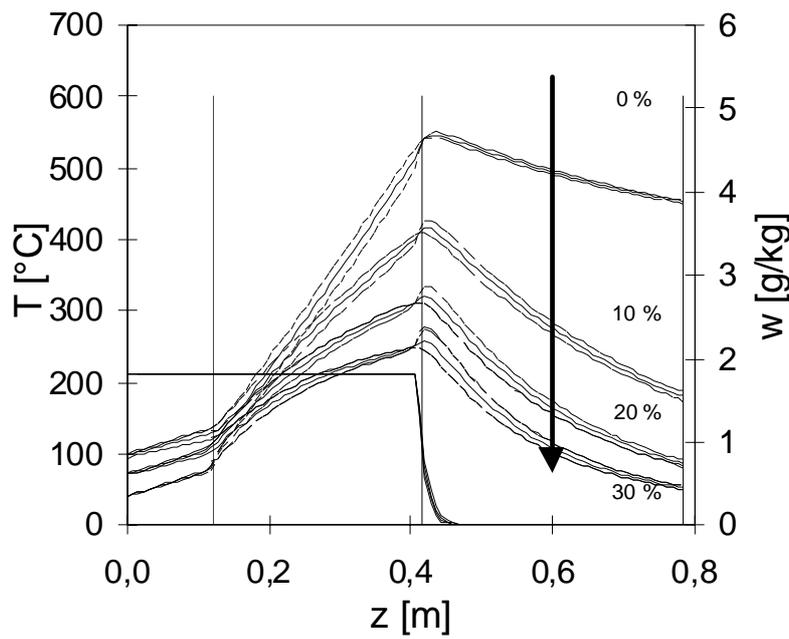


Abb. 7.6: Einfluß der Wärmeauskopplung auf das Temperatur- und Konzentrationsprofil.

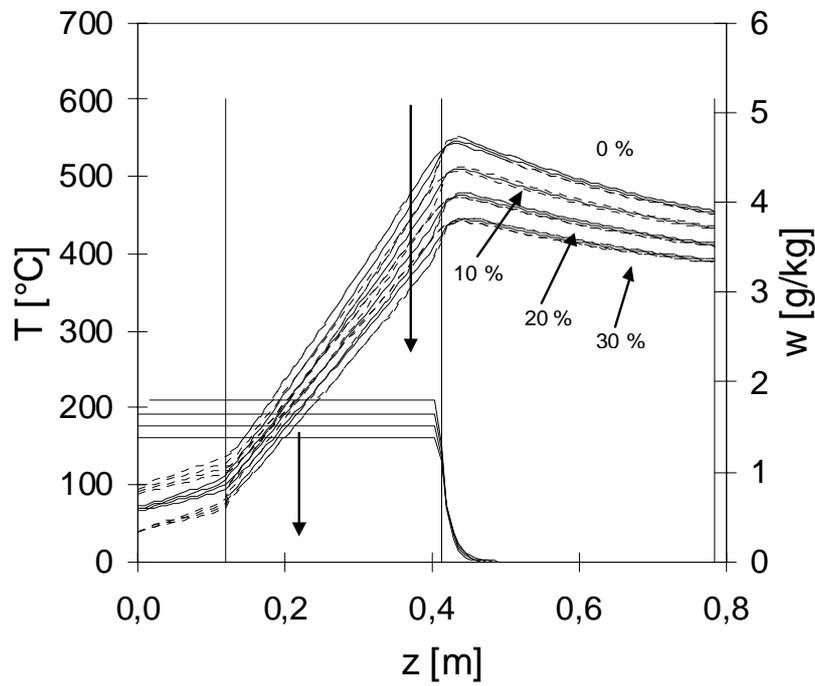


Abb. 7.7: Einfluß der Zuluftverdünnung auf das Temperatur- und Konzentrationsprofil.

Die Simulationsergebnisse werden durch die Messungen qualitativ bestätigt. Quantitative Abweichungen sind neben den grundsätzlichen Schwierigkeiten bei der Anpassung der Modellparameter vor allem auf die im Modell nicht berücksichtigte Wärmekapazität des Reaktorkopfs zurückzuführen.

7.6 Vergleich und Beurteilung der Regelungskonzepte

Für die Eignung eines Regelungskonzeptes ist neben der Auswirkung eines Regeleingriffs bei gleichem Aufwand auch die Geschwindigkeit, mit der ein Regeleingriff zur Absenkung der Maximaltemperatur im Reaktor führt, entscheidend. Aus Abb. 7.6 und Abb. 7.7 geht hervor, daß die Zuluftverdünnung und die Wärmeauskopplung im Verhältnis zu den anderen Möglichkeiten eine viel geringere Absenkung der Maximaltemperatur bewirken. Zur Vergleichbarkeit sei angemerkt, daß die Prozentangaben sich auf den Gesamt-Abluftstrom beziehen. Bei der Wärmeauskopplung wird die Wärme auf die Reaktionswärme bezogen. Aus den in dargestellten Temperaturverläufen lassen sich Rückschlüsse auf die Maximaltemperatur ziehen. Die beiden Thermoelemente deren Temperatur dargestellt ist liegen 5mm unterhalb der Katalysatorzone im Inertbereich bzw. 60 mm oberhalb davon, also 55 mm im Katalysatorbereich.

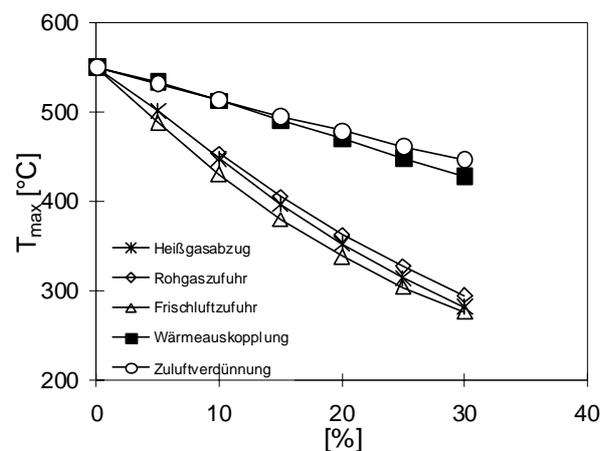


Abb. 7.8: Maximaltemperaturen im Reaktor für verschiedene Regelungskonzepte.

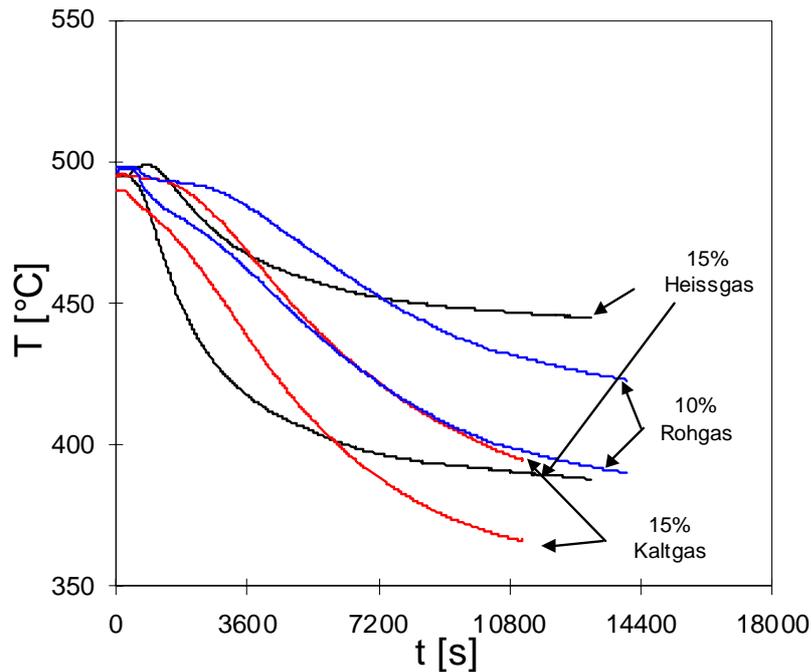


Abb. 7.9: Zeitlicher gemessener Verlauf der Temperaturen der beiden zur Maximaltemperatur benachbarten Thermoelemente bei Übergang aus dem stationären, autothermen Fall ohne Regelung auf den Betrieb mit einem Regelungskonzept.

Aufgrund der sehr schmalen Reaktionszone an der Unterkante des katalytisch aktiven Bereichs, erfaßt das in der Inertzone gelegene Thermoelement eine höhere Temperatur als das weiter entfernte Thermoelement in der Katalysatorzone. Aus den Temperaturverläufen, die mit den verschiebbaren Thermoelementen gemessen wurden, geht hervor, daß die Lage der Maximaltemperatur mit zunehmendem Eingriff bei der Kaltgas- und vor allem der Rohgaszufuhr stromauf in Richtung Inertzone verschoben wird.

Beim Heißgasabzug tritt die Maximaltemperatur gegenüber dem unregulierten Fall weiter stromabwärts in der Katalysatorzone auf. In der Simulation kann eine Verschiebung der Maximaltemperatur in die Inertzone hinein nicht auftreten. Allerdings kann im Experiment, hervorgerufen durch sehr große Temperaturgradienten im Bereich der Reaktionszone und durch die axiale Wärmeleitung der Thermoelementhülse, eine solche scheinbare Verschiebung möglich sein. Exemplarisch ist in Abb. 7.10 die Maximaltemperatur für verschiedene Propenkonzentrationen bei Heißgasabzug dargestellt.

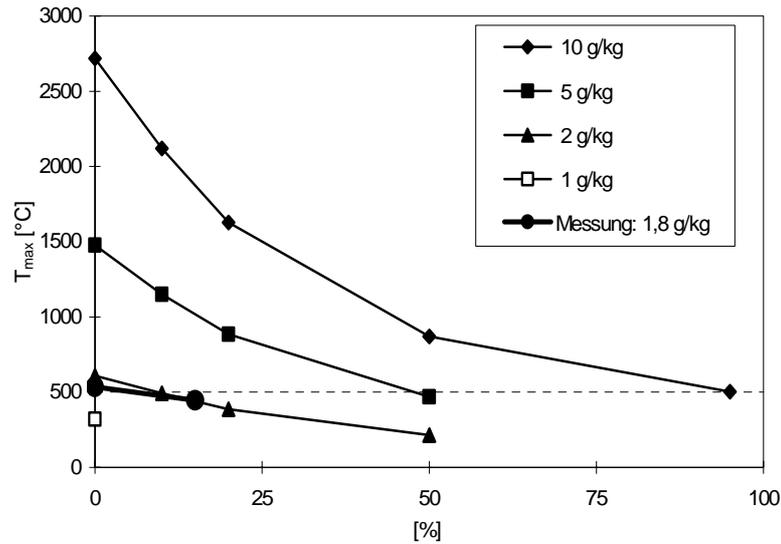


Abb. 7.10: Maximaltemperatur in Abhängigkeit vom Heißgasabzug und von der Propenkonzentration ($G_z = 0,83 \text{ kg/m}^2\text{s}$).

Die extrem hohen Maximaltemperaturen im Reaktor bei Konzentrationen über der oberen Grenzkonzentration können durch Heißgasabzug auf den zulässigen Wert gesenkt werden. In der Simulation könnte man den Arbeitsbereich des Reaktors so vom 4 fachen der unteren Grenzkonzentration auf das 20 fache erhöhen. Bei allen drei Regelungskonzepten sinkt der Reaktorverlust mit zunehmender Stärke des Eingriffs ab. Dieses Verhalten resultiert bei allen Regelkonzepten aus der Temperaturabhängigkeit des Druckverlusts. Mit sinkender Maximaltemperatur, sinkt auch die Strömungsgeschwindigkeit der Luft in den Kanälen. Beim Heißgasabzug und der Rohgaseinspeisung ist darüberhinaus der Luftdurchsatz in der einen Strömungsrichtung geringer als im Normalbetrieb. Bei der Kaltgaseinspeisung ist der Luftmassenstrom im Kanal 2 größer als ohne Regeleingriff. Tabelle 7.1 gibt einen Überblick.

	Ohne Regelein- griff 0%	15% Heißgasabzug, 15% Kaltgaseinspeisung 10% Rohgaseinspeisung	instationär 30% Heißgasabzug, 25% Rohgaseinspeisung
Heißgasabzug	13,6 mbar	-22%	-38%
Rohgaseinspeisung	13,6 mbar	-17%	-41%
Kaltgaseinspeisung	13,6 mbar	-7%	/

Tabelle 7.1: Änderung des Druckverlusts infolge Regelein-
griffs am Mittenabzug.

7.7 Anfahren des Reaktors

Zum Anfahren wird der Gegenstromreaktor mit einem reduzierten Luftstrom elektrisch aufgeheizt. Das Maximum des sich einstellende Temperaturprofil liegt direkt an der Heizung (Abb. 7.11). Mit Überschreiten der Zündtemperatur des Schadstoffes am Katalysator heizt sich der Reaktor durch die freiwerdende Reaktionswärme weiter auf. Das Temperaturmaximum zieht in die Katalysatorzone, dem Ort der Schadstoffumsetzung.

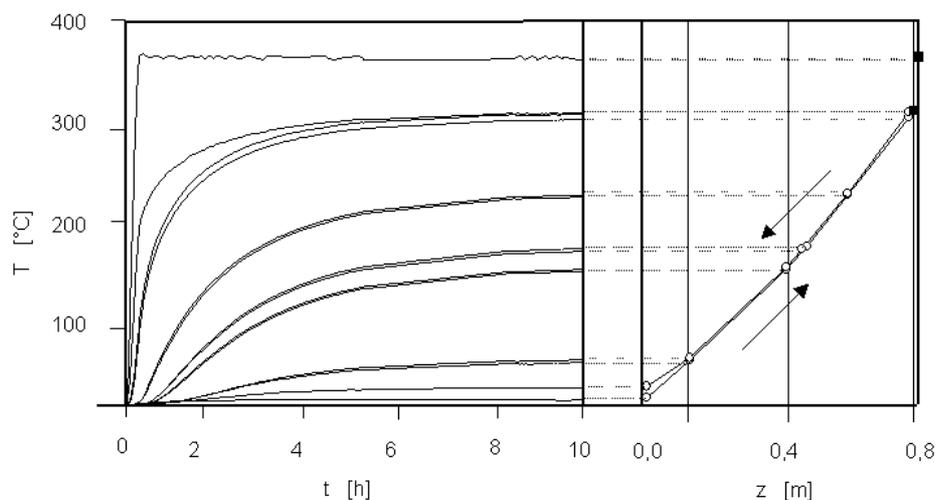


Abb. 7.11: Aufheizen des Gegenstromreaktor mit el. Beheizung (GSTR 2).

Das sich bei einem autothermen Betrieb einstellende stationäre Temperaturprofil zeigt, wie man aus Abb. 7.12 erkennt daß sich das Temperaturmaximum am Eintritt in die Katalysatorzone einstellt auf dem weiteren Strecke des Gases zur Umlenkung wird keine oder nur ein geringer Anteil an Reaktionswärme frei, so daß dort die äußeren Verluste dominieren. Untersuchungen an einem Reaktor mit optimierter Wärmeintegration zeigten, daß ein so genannter autothermer Betrieb, d. h. ohne zusätzliche Beheizung, bereits bei adiabaten Temperaturerhöhungen ab ca. 25 K möglich ist. Bei der Abluftreinigung kann nähe-

rungsweise von einer vollständigen Oxidation der in Luft in Spuren enthaltenen Schadstoffe ausgehen, so daß sich die adiabate Temperaturerhöhung näherungsweise berechnen läßt:

$$\Delta T_{\text{ad}} = y_i \cdot \frac{-\Delta h_{r_i}}{C_{P_Luft}} \quad (7.1)$$

$-\Delta h_{r_Propan}$	2.040.236,0	kJ/kmol
$-\Delta h_{r_Propen}$	1.922.886,0	kJ/kmol
$-\Delta h_{r_CO}$	-282.800	kJ/kmol
C_{P_Luft} (25°C, 1013mbar)	28,93	kJ/(kmol K)

Tabelle 7-2: Stoffwerte einiger Modellschadstoffe bei 350°C, 1013mbar und für Luft bei 25°C, 1013mbar.

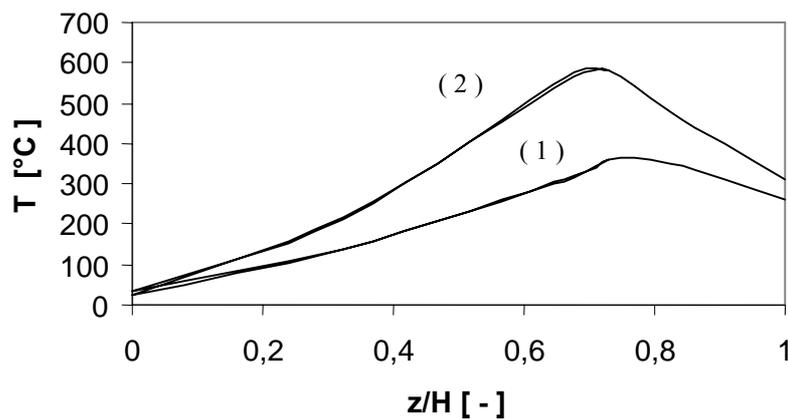


Abb.7.12: Temperaturprofile im Gegenstromreaktor (GSTR3) bei autothermen Betrieb mit 40 K (1) und 128 K (2) adiabater Temperaturerhöhung (Modellschadstoff Propan, $G_z = 0,83 \text{ kg}/(\text{m}^2 \text{ s})$).

Die Versuche zeigten, daß je nach Bauweise und trotz einer starken Wärmeisolation des Reaktors die äußeren Verluste einen maßgeblichen Anteil an der Gesamtwärmebilanz des Reaktors einnehmen. Die gemessenen Profile sind daher nicht im adiabaten Reaktor, sondern im realen Betrieb gemessen. Bei einer technischen Anwendung und den dort vorliegenden großen Abluftströmen nimmt der Reaktor ein günstigeres Verhältnis Oberfläche/Volumen ein, so daß der Anteil der Verluste wesentlich kleiner ist.

Die Umsetzung von gasförmigen Schadstoffen ist, wie auch in vorhergehenden Untersuchungen gezeigt wurde, in einem Gegenstromreaktor mit katalytisch aktiver Zone auf Grund des frühen autothermen Betriebs wirtschaftlich sinnvoll.

8 Aufbau der Versuchsanlage

8.1 Anlagenkomponenten

Maßgeblich für den Einsatz eines Gegenstromreaktors zur thermischen Abluftreinigung ist die vollständige Oxidation der Schadstoffe zu Kohlendioxid und Wasser. Dies aber unter der Vorgabe, daß die Betriebskosten, die durch eine Stützbeheizung, sowie durch die Anschlußleistung der Verdichter zur Förderung der Abluft entstehen so gering als möglich sind. Weiter müssen Ablagerungen im Reaktor, die beim Betrieb mit partikelförmigen Schadstoffen entstehen problemlos zu entfernen sein, ohne daß längere Betriebsunterbrechungen notwendig sind. Die Bereitstellung einer synthetischen Abluft, sowie die anstehenden Messungen zur Wärmeintegration am Gegenstromreaktor machten eine Versuchsanlage im Technikumsmaßstab notwendig.

Zu den einzelnen Komponenten des Versuchsaufbaus gehören neben dem eigentlichen Reaktor die gesamten Versorgungssysteme (Luft, Brenngas, Aerosole, Druckluft, Kühlwasser), die Anlagensteuerung und die Meßwerterfassung. Zur Erzeugung eines synthetischen Abluftstromes als Feedgas für den Reaktor können sowohl gasförmige Modellschadstoffe (Propan, Propen oder Toluol), als auch einen luftgetragenen Partikelstrom einem regelbaren Hauptluftstrom zugemischt werden (Abb.). Als Trägerluftstrom wird mit einem regelbaren Seitenkanalgebläse Umgebungsluft gefördert. Der Luftstrom durch die Anlage kann dabei durch eine zusätzliche Bypassregelung im Bereich von 0 bis ca. 200 m³/h stufenlos eingestellt werden. Die Abluft aus dem Reaktor kann auf Grund des geringen Temperaturniveaus ohne weitere Behandlung über einen geeigneten Abluftkanal in den Außenbereich abgeleitet werden.

8.2 Ausstattung der Gegenstromreaktoren

Zum Anfahren und für einen Betrieb des Reaktors bei Schadstoffbeladungen unterhalb der Konzentration, bei der der Reaktor autotherm betrieben werden kann, kann elektrisch beheizt werden. Die Heizleistungen betragen dabei je nach Reaktortyp zwischen 500 Watt und 4 kW. Durch einen Mittenabzug ist es möglich, Regeleingriffe in den Energiehaushalt des jeweiligen Reaktors vorzunehmen, um so materialzerstörerische Übertemperaturen bei hohen Schadstoffkonzentrationen zu vermeiden. Über einen speziell zu diesem Zweck aufgebauten, temperaturbeständigen Wärmetauscher wird der Teilstrom aus dem Mittenabzug auf annähernd Umgebungstemperatur abgekühlt. Die Kühlung ist notwendig um das Regelventil betreiben zu können, sowie für die angeschlossene Analyse des Gasstroms.

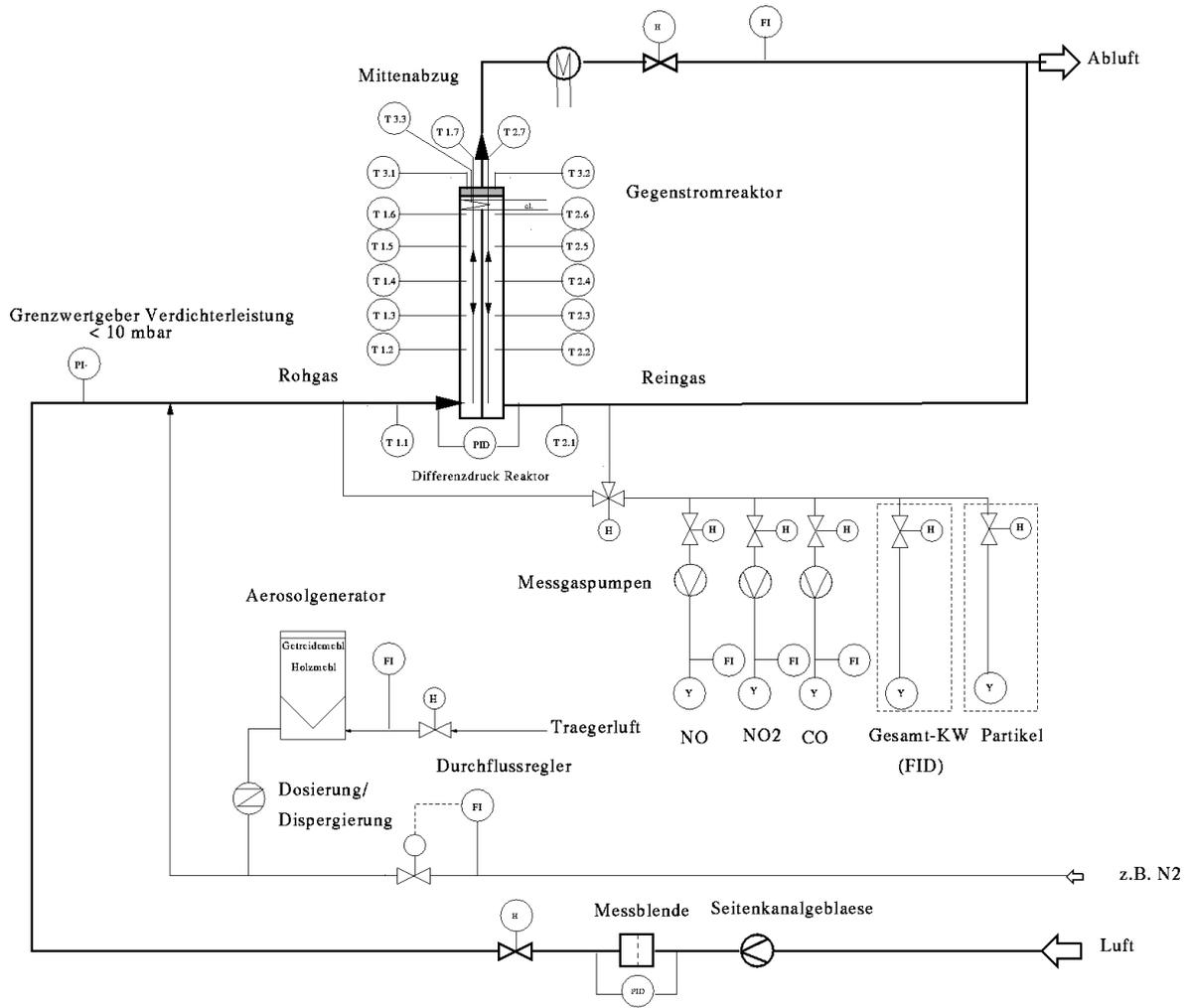


Abb. 8.1: Fließbild der Versuchsanlage mit Hauptluftstrom, Aerosolerzeugung, Durchflußmessung, Gegenstromreaktor, Mittenabzug und Meßeinrichtungen.

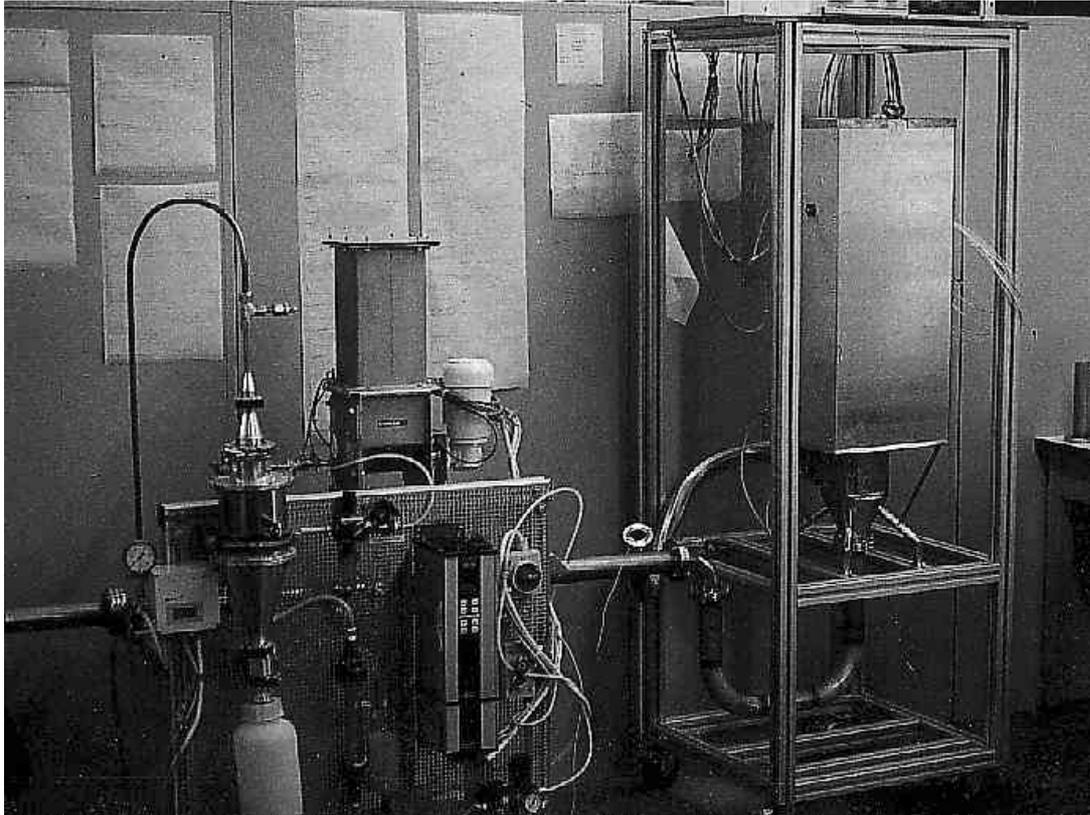


Abb. 8.2: Versuchsanlage mit Aerosolgenerator und Gegenstromreaktor bei Versuchen mit Feinstäuben.

8.3 Durchsatz- und Temperaturmessung

Die Durchsatzmessung des Hauptluftstromes an den verschiedenen Gegenstromreaktoren muß geeignet sein, einen breiten Volumenstrombereich zu erfassen. Während der kleinste Reaktortyp (Gegenstromreaktor 3) mit einem Volumenstrom um $5 \text{ m}^3/\text{h}$ betrieben wird, sind beim Gegenstromreaktor 1 Durchsätze von über $75 \text{ m}^3/\text{h}$ möglich. Gleichzeitig muß die Volumenstrombestimmung im Aerosol-Betrieb unempfindlich gegenüber Verschmutzungen sein, bzw. leicht zu reinigen sein. Bei einer Messung am Reaktoraustritt ist zusätzlich noch ein breiter Temperaturbereich nötig, da die dort maßgebliche Reingastemperatur abhängig vom Wärmerücktausch des angeschlossenen Reaktors um 100 °C betragen kann. Zur Durchsatzmessung des Hauptluftstromes an der Versuchsanlage wurde deshalb eine Differenzdruckmessung an einer Vierteilkreisdüse mit Eckdruckentnahme nach DIN [20] eingesetzt. Für größere Reaktor-Durchsätze als $75 \text{ m}^3/\text{h}$ wurde der Volumenstrom auf der Saugseite des Gebläse mit einem Degu-Flow-Gerät bestimmt. Kleinere Durchsätze als $3 \text{ m}^3/\text{h}$ im Druckluftstrom des Aerosolerzeugers werden mit Schwebekörperdurchflußmessern erfaßt. Die Durchflußregulierung von Stützgas zur Reaktorbeheizung, sowie die Verbrennungsluftdosierung des Schwelrohres erfolgt durch Mass-Flow-Controller. Alle Temperaturen werden durch Thermoelemente des Typs K erfaßt und zur Sichtbarmachung zeitlicher Tempe-

raturverläufe auf einem Meßdatenschreiber angezeigt. Das Umsatzverhalten von Kohlen-Wasserstoffen wird durch eine Konzentrationsmessung mit einem FID (Flammen-Ionisations-Detektor, Fa. Rathfisch) realisiert.

9 Organische Aerosole im Gegenstromreaktor

9.1 Einleitung

Für experimentelle Untersuchungen mit organischen Aerosolen wurde im ersten Projektabschnitt ein Gegenstromreaktor mit einem monolithischen Katalysatorträger in der aktiven Zone eingesetzt. Die Untersuchungen zeigten, daß eine Reinigung von partikelförmigen beladenen Abluftströmen möglich ist. Allerdings muß bei der kurzen Verweilzeit der Schadstoffe im heißen Bereich die für einen Vollumsatz der Schadstoffe notwendige Temperatur wesentlich höher (ab 800 °C) gewählt werden als bei gasförmigen Schadstoffen, die bei den untersuchten Modellschadstoffen im Bereich von 300 - 500 °C lag. Die im zweiten Projektabschnitt durchgeführten Untersuchungen führten auf ein Konzept mit einem Filter in der heißen Zone des Reaktors. Dieses Konzept wurde in einer für die Anwendung mit organischen Aerosolen im Gegenstromreaktor optimierten Bauform umgesetzt. Die vorgestellten Messungen wurden an diesem Reaktor (GSTR5) vorgenommen.

9.2 Anlagerungen und deren Abreinigung

Ablagerungen von kondensierbaren Bestandteilen wie sie z.B. bei Holzrauch auftreten müssen innerhalb eines gewissen Zeitraumes abgereinigt werden. Untersuchungen zeigen, daß sich diese Ablagerungen durch eine entsprechende Temperaturbehandlung entfernen lassen. Im aufgebauten Gegenstromreaktor wurde diesem Umstand dadurch Rechnung getragen, daß der gesamte Reaktor dichtungsfrei ausgeführt wurde. Durch die entsprechende Wahl des temperaturbeständigen Werkstoffes läßt sich dieser durchgehendes Aufheizen und somit organische Wandablagerungen entfernen. Abb. 9.2. zeigt Strukturen, wie sie im Gegenstromreaktor als Abstandshalter eingesetzt wurden. Im Versuch wurde diese mit Holzrauch beaufschlagt. Die entstandenen Ablagerungen lassen sich durch eine Temperaturbehandlung bei 500°C rückstandsfrei entfernen.

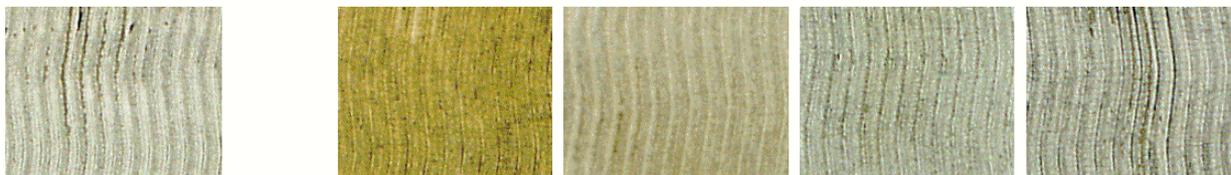


Abb. 9.2: Ablagerungen auf den Abstandshalter des GSTR 3. V. L. n. R. ohne Ablagerungen, Ablagerungen von Rauch aus der Holzverschmelzung, Temperaturbehandlung bei 300 °C, 400 °C und 500 °C.

9.3 Experimente am Gegenstromreaktor mit Heißgasfilter

Im Gegenstromreaktor mit Heißgasfilter wurden experimentelle Untersuchungen mit Holzstaub und Dieselabgasen durchgeführt. Dabei wurde die maßgebliche Temperatur für eine kontinuierliche Regeneration des Filters aus den Vorversuchen gewählt. Die höchste einstellbare Kopftemperatur beträgt 750 °C, die für eine kontinuierliche thermische Regeneration des Filters bei Stäuben liegt abhängig von der Beladungsart und -menge bei Temperaturen um 600°C.

Zu den Versuchen mit Holzstaub wurden der Metallfilter als Abscheider eingesetzt. Als Modellaerosol wurde Holzstaub der Größenklasse $d_p < 10 \mu\text{m}$ eingesetzt. Dieses wurde in der aufgebauten Versuchsanlage über den Aerosolgenerator dem Hauptluftstrom zudosiert und durch den Reaktor geführt. Vor Versuchsbeginn wurde der Reaktor mit Umgebungsluft auf eine Betriebstemperatur im Kopf von 720°C aufgeheizt. Beim Versuch konnte durch das oberhalb des Filters installierte Schauglas beobachtet werden, daß einzelne gezündete Partikel den Filter passieren (Abb. 9.3).

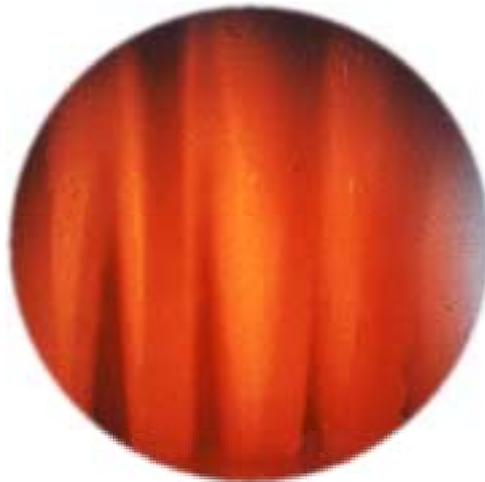


Abb. 9.3: Metallfaserfilter bei 720°C, Betrieb mit Holzstaub, Blick durch die Schauglasöffnung von oben auf den Filter.

Am Reaktoraustritt konnten bei dieser Temperatur keine Partikel nachgewiesen werden. Bei Versuchen mit hoher Partikelkonzentration und hohem Reaktordurchsatz wurde das Filter durch eine lokale Überhitzung zerstört. Ein Ausbau des Filters zeigte, daß das Filter dabei lokal aufgeschmolzen wurde (Abb. 9.4). Ursächlich für die Überhitzung waren eine kurzzeitige Überkonzentration an Partikeln, die in der sauerstoffreichen Abluft eine hohe lokale Wärmeentwicklung bewirkt haben, was zum Aufschmelzen des Filters führte.



Abb. 9.4: Durch Übertemperatur zerstörter Metallfilter des Gegenstromreaktors.

Die Überkonzentration von Partikeln, auch eine kurzzeitige ist bei Anwesenheit von Sauerstoff im Bereich von 20 Vol%, wie sie hier vorliegt, wirkt sich für alle bekannten Filtermaterialien zerstörerisch aus. Für einen sicheren Betrieb des Reaktors müssen daher Überkonzentrationen ausgeschlossen werden.

9.4 Experimente mit Dieselabgasen

Im ersten Projektabschnitt konnte anhand von Messungen gezeigt werden, daß im Gegenstromreaktor eine Abluftreinigung von Schwelrauch wie er bei der Räucherung von Lebensmittel als Abluft anfällt möglich ist. Daran anschließend wurde in diesem Abschnitt die Abgasreinigung von oxidierbaren Bestandteilen im Dieselmotorabgas untersucht. Dieselabgas weist neben gasförmigen Schadstoffen wie CO und Kohlenwasserstoffen auch Rußpartikel auf. Da im Abgas noch ausreichend Sauerstoff vorhanden ist können die Schadstoffe durch eine thermische Nachbehandlung im Gegenstromreaktor gereinigt werden.

Ähnlich wie bei gewerblichen Abluftströmen ist allerdings das Temperaturniveau, bei dem das Abgas anfällt, für ein Zünden der Partikel zu gering. Sollen die Partikel im Gasstrom verbrannt werden, muß der gesamte Abluftstrom auf Zündtemperatur aufgeheizt werden. Da dies aus energetischen Gesichtspunkten nicht möglich ist, werden bei den derzeit untersuchten Verfahren die Partikel auf einem Filter abgeschieden und periodisch abgebrannt. Das Abbrennen der abgeschiedenen Partikel wird durch externe Wärmezufuhr mittels Brenner oder durch ein kurzzeitiges Anfetten des Abgases und somit durch die Exothermie von unverbrannten gasförmigen Kohlenwasserstoffen eingeleitet, die in einem vorgeschalteten Oxidationskatalysator umgesetzt werden.

Die noch weitgehend ungelösten Probleme dieser Verfahren liegen in den materialzerstörerischen Temperaturspitzen auf dem Filter, die durch das periodische Abbrennen des Filterkuchens hervorgerufen wird. Ein weiterer Nachteil den diese Verfahren gemeinsam haben ist, daß ein maßgeblicher Anteil des Kraftstoffs für die energieintensive Regeneration des Filters eingesetzt werden muß, da die Verbrennungswärme mit dem Abgasstrom ausgetragen wird.

Bei einem Einbau des Filter in der heißen Zone eines Gegenstromreaktors ist es möglich diesen bei geringem Energieeinsatz kontinuierlich oberhalb der Zündtemperatur zu betreiben. Dadurch sammeln sich zunächst weit weniger Partikel an. Kurzzeitige lokale Temperaturspitzen die durch das Abbrennen von Partikelanhäufungen entstehen können dadurch ausgeschlossen werden. Um die zum Halten der Zündtemperatur im Filter notwendige Wärme in das System einzutragen ist es möglich, ähnlich den bekannten Verfahren einen Oxidationskatalysator einzusetzen um somit die Exothermie der gasförmigen Schadstoffe zu nutzen.

Untersuchungen an Dieselruß mit thermogravimetrischen Verfahren zeigten, daß Temperaturen von 600°C notwendig sind um den Ruß thermisch abzubauen. An einem Motorprüfstand beladene Dieselfilter konnten durch eine Temperaturbehandlung bei 550°C regeneriert werden, d.h. es war kein Ruß mehr auf der Oberfläche des Filters erkennbar und der Druckverlust ging auf den Wert des Filters zurück. Als Filter wurde bei Dieselruß ein keramischer Monolith aus der Kraftfahrzeugtechnik eingesetzt. Diese Filter werden als Wandfilter konzipiert, d.h. durch wechselseitig offene und geschlossene Kanäle tritt das zu reinigende Gas ein. Das Gas strömt durch die Wand, wobei diese als Tiefenfilter wirkt. Abb. 9.5 zeigt den im Kopf des Reaktors eingebauten Filter.

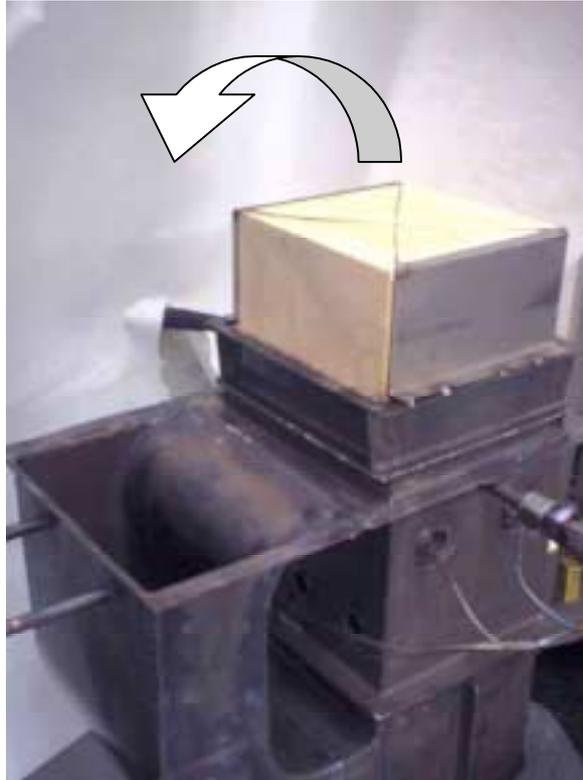


Abb. 9.5: Keramischer Monolith als Heißgasfilter im Kopfbereich des Gegenstromreaktors. Äußere Abmessungen des Filters: angeströmte Grundfläche 100 x 100 mm, Bauhöhe 70 mm.

Zunächst wurde der Druckverlust des gesamten Reaktors mit eingebautem Filter mit Luft bei Umgebungstemperatur bestimmt. Abb. 9.6 zeigt, daß der Druckverlust für eine Motoranwendung im akzeptablen Bereich liegt.

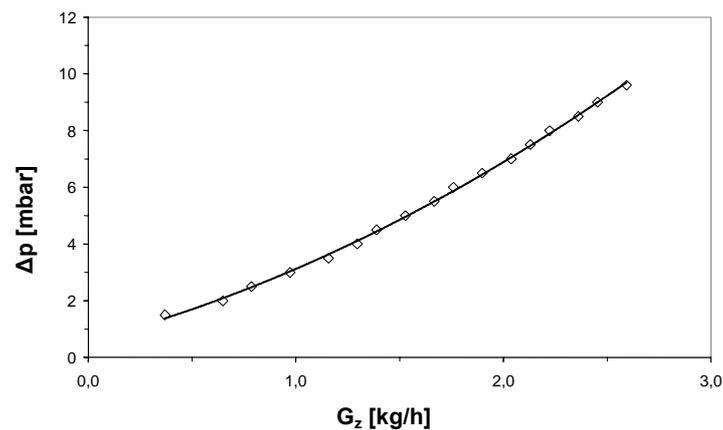


Abb. 9.6: Druckverlust über den gesamten Reaktor (Luft bei Umgebungsbedingungen).

Mit steigender Temperatur nimmt durch die abnehmende Dichte der Luft die Geschwindigkeit im Reaktorkopf und die kinematische Viskosität des Gases zu. Als Folge davon steigt der Druckverlust. Auch bei hohen Durchsätzen und Temperaturen steigt der Druckverlust nicht über 30 mbar.

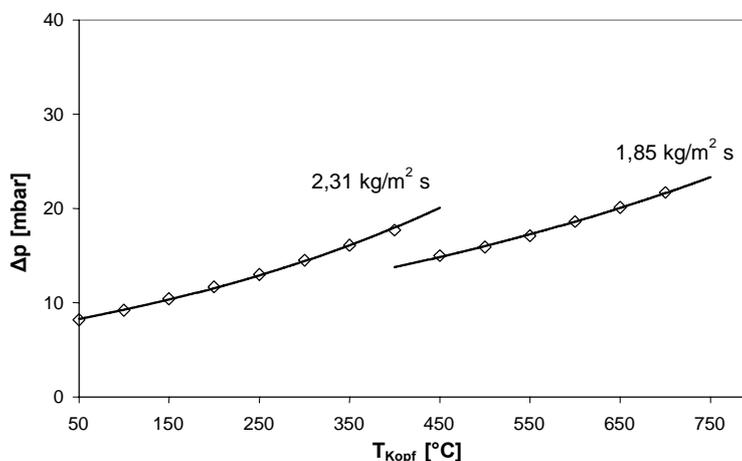


Abb. 9.7: Einfluß der Temperatur im Kopf des Reaktors auf den Druckverlust.

Das Reaktorabgas wurde mit einem Fourier-Transformations-Spektrometer (FTIR) analysiert. Um Kondensation in den Meßleitungen zu vermeiden wurde das Meßgas vorher auf einen Taupunkt von 4°C eingestellt (Sättigungsdampfdruck bei 4°C : 61,7 mbar).

Kohlenwasserstoffe y_{CH} (bezogen auf Propen)	525 ppm ($\Delta T'_{\text{ad}}=35\text{K}$)
Kohlendioxid y_{CO_2}	4,27 %
Kohlenmonoxid y_{CO}	500 ppm ($\Delta T_{\text{ad}} = 5 \text{ K}$)
Luftzahl λ	2,36

Tabelle 9.1: Abgaszusammensetzung des Dieselmotors bei einer Nennlast von 27 % der Maximallast.

Zur Versuchsdurchführung wurde der Reaktor auf 700°C vorgeheizt und anschließend mit dem Abgas beaufschlagt. Danach wurde die Temperatur im Kopf in 50 K Schritten gesenkt. Nach ca. 1 h Betriebszeit war dann wieder ein stationäres Temperaturprofil im Gegenstromreaktor erreicht. Während der Versuchsdurchführung wurde die Abgaszusammensetzung und der Abgasgegendruck online ermittelt und mitgeschrieben. Bis zu einer Temperatur im Versuch von 500°C konnte kein Ansteigen des Gegendrucks ermittelt werden. Das läßt darauf schließen, daß bei Temperaturen über 500°C der abgeschiedene Ruß schneller umsetzt, als neuer Ruß abgeschieden wird. Bei hohen Temperaturen konnte deutlich mehr Kohlenmonoxid am Reaktorausstritt gemessen werden, als im Motorabgas ursprünglich vorhanden ist (Abb.

9.8). Die zunehmende CO-Bildung mit steigender Temperatur im Gegenstromreaktor lässt sich durch eine Umsetzung von Ruß und Kohlenwasserstoffen im Abgas erklären. Die Selektivität der Rußoxidation zu CO nimmt mit steigender Temperatur zu.

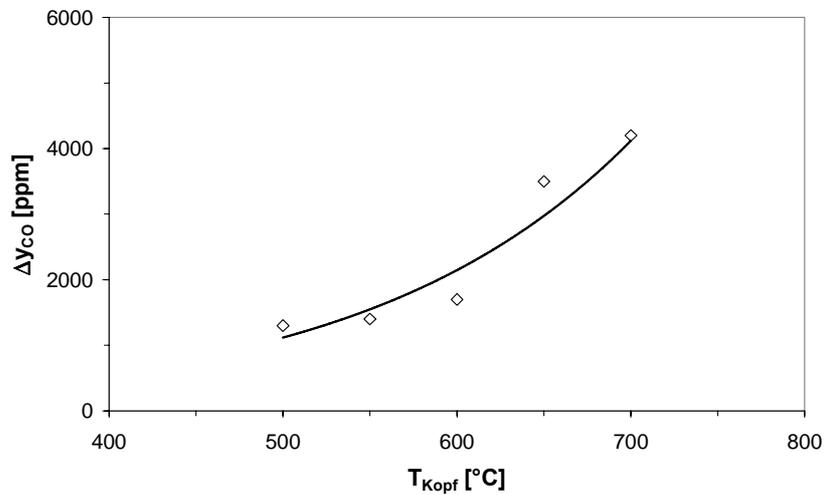


Abb. 9.8: Bildung von Kohlenmonoxid im Reaktor (Dieselabgas $G_z = 1,00 \text{ kg}/(\text{m}^2\text{s})$).

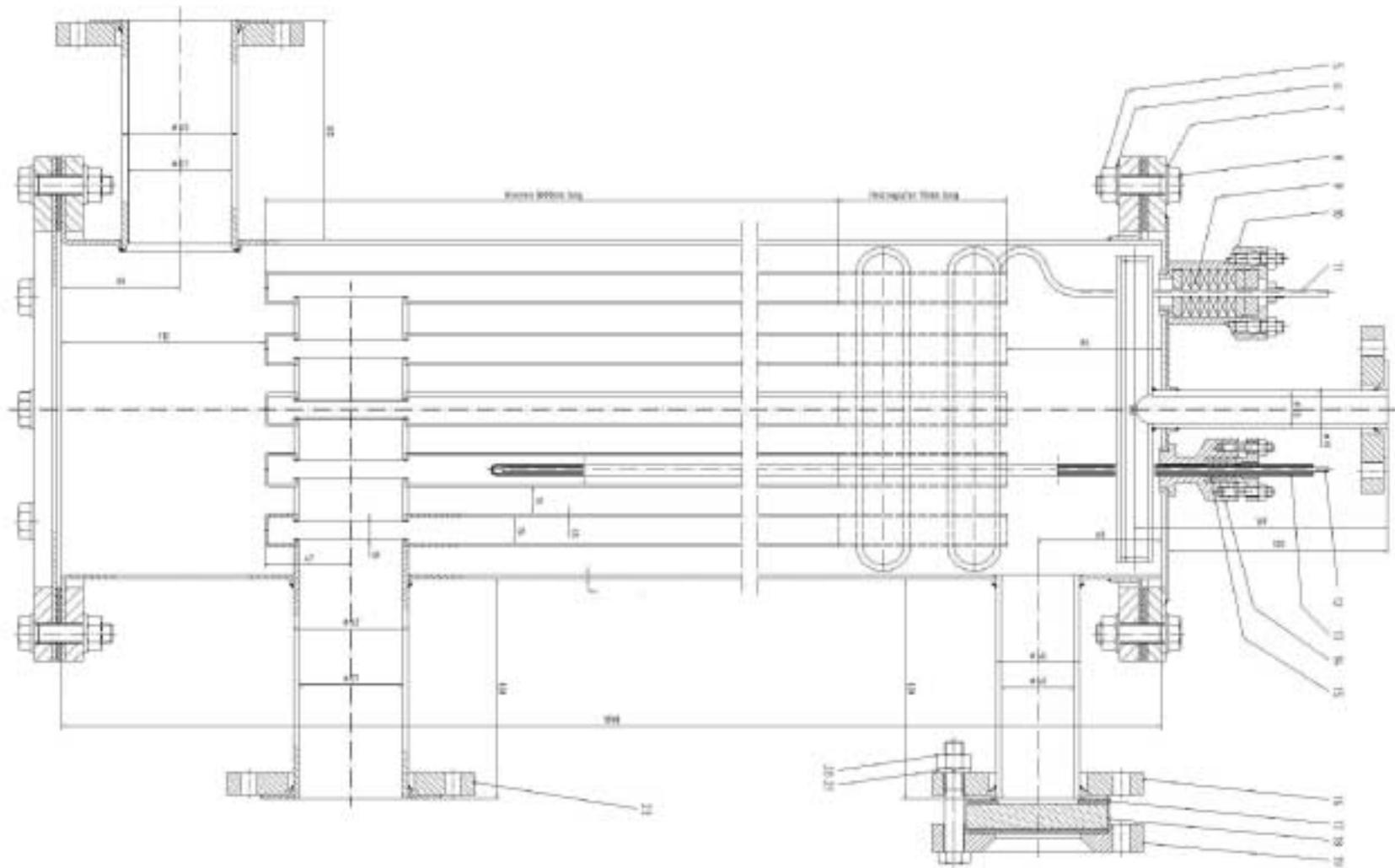


Abb. A.1: Gegenstromreaktor mit großer Spaltweite und monolithischem Katalysator (GSTR1).

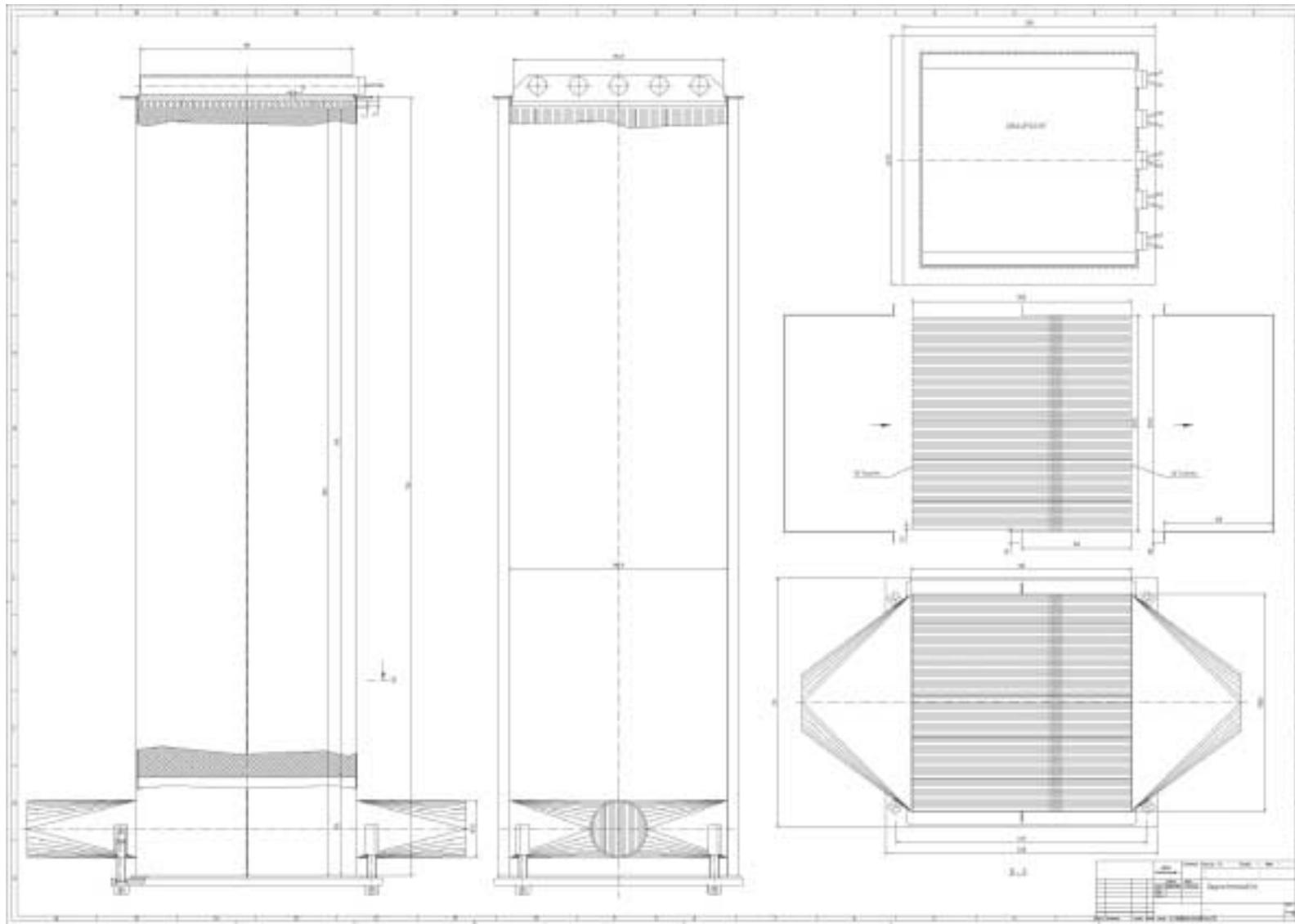


Abb. A.2: Gegenstromreaktor mit katalytisch beschichteten Strukturen (GSTR2).

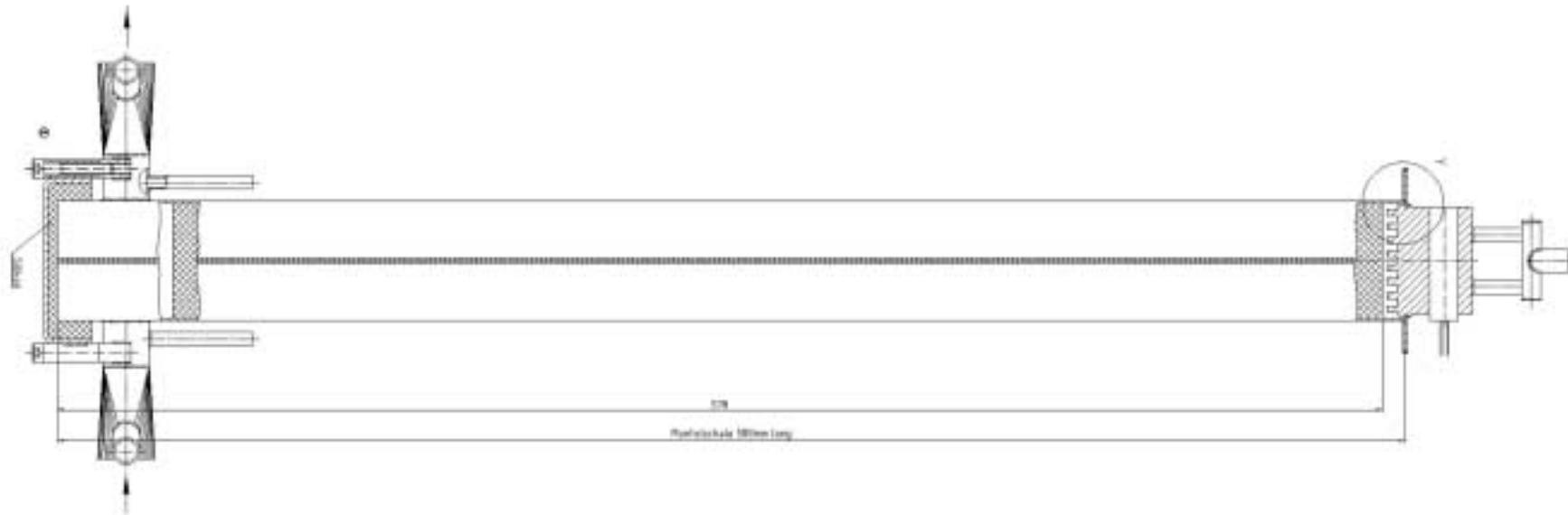


Abb. A.3: Gegenstromreaktor Gegenstromreaktor mit optimierter Wärmeintegration und katalytisch beschichteten Strukturen (GSTR3).

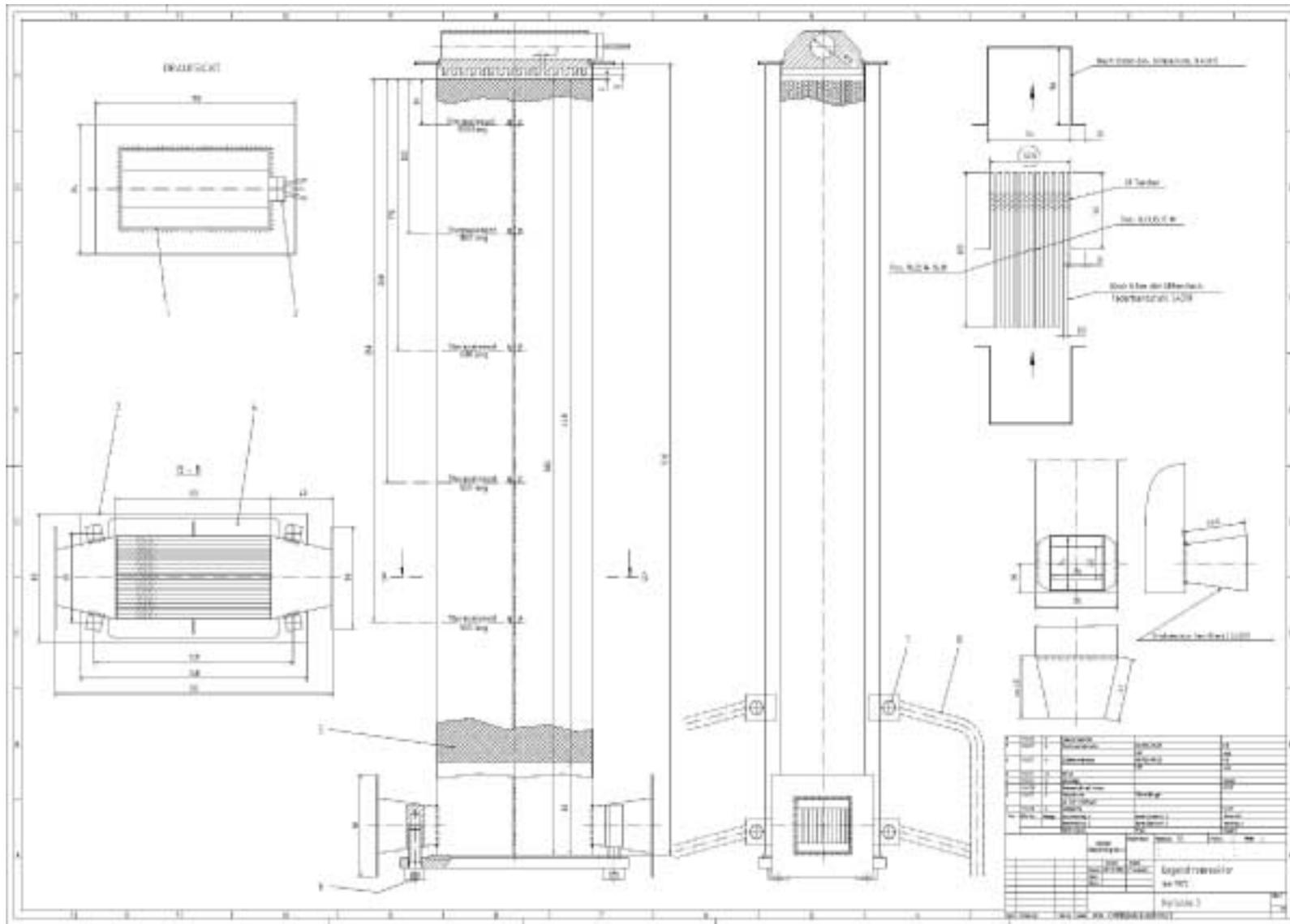


Abb. A.4: Gegenstromreaktor zur thermischen Abluftreinigung (GSTR4).

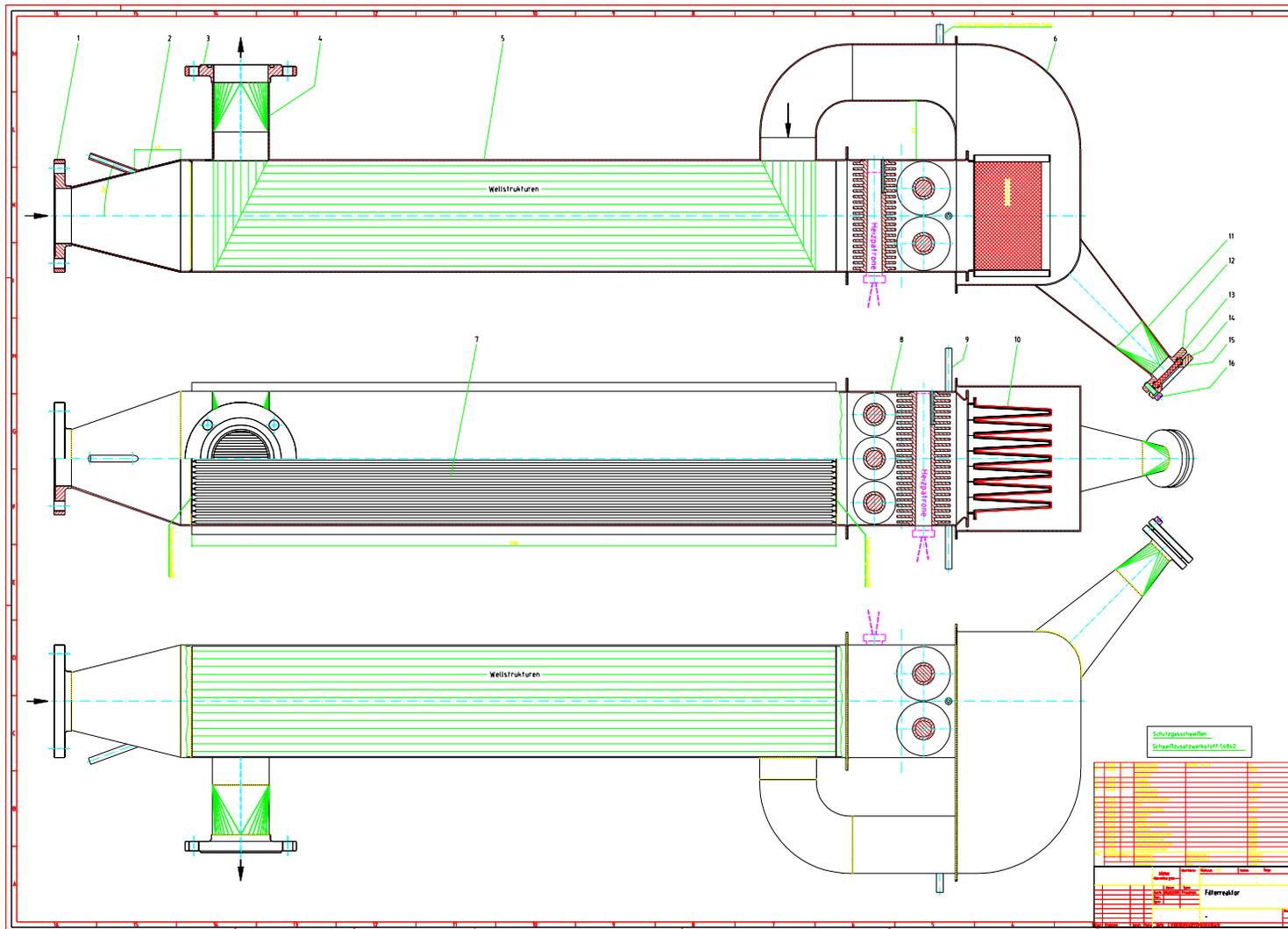


Abb. A.5: Gegenstromreaktor mit Heißgasfilter (GSTR5).

Literatur

- [1] VDI 3491, Messen von Partikel, Blatt 1: Kennzeichnung von Partikeldispersionen in Gasen, Begriffe und Definitionen. VDI-Handbuch Reinhaltung der Luft, Band 4, VDI-Verlag, Düsseldorf (1980)
- [2] Reist, P.C.; Aerosol Science and Technology, Second Edition, McGraw-Hill, Singapore (1993)
- [3] Baumbach, G.; Luftreinhaltung, 3. Auflage; Springer, 1994
- [4] Hofmann, W.; Balásházy, I.; Heistracher, T.; The Lung as a Filter for Inhaled Aerosols - Particle Deposition Patterns in Human Airways Bifurcations; Advances in Aerosol Filtration; ed. by Spurny, K. R.; Lewis Publishers, 1998
- [5] VDI 3491 Blatt 4 - 16, Messen von Partikeln, Herstellungsverfahren für Prüfaerosole, VDI-Handbuch Reinhaltung der Luft, Band 4, VDI-Verlag, Düsseldorf
- [6] Zahradnicek, A.; Löffler, F.; Eine neue Dosiervorrichtung zur Erzeugung von Aerosolen aus vorgegebenen feinkörnigen Feststoffen; Staub Reinhaltung der Luft 36 (1976) Nr.11 S.425-427
- [7] Helsper, C.; Mölter, L.; Erzeugung von Prüfaerosolen für die Kalibrierung von optischen Partikelmeßverfahren nach VDI 3491, Technisches Messen tm 56 (1989), S.229-234
- [8] Rumpf, H.; Die Wissenschaft des Agglomerierens, Chemie Ingenieur Technik 46 (1974) Nr.1 S.1-11
- [9] A.Zahradnicek, Methoden zur Aerosolherstellung aus vorgegebenen Haufwerken, Staub-Reinhaltung der Luft 35 (1975) Nr.6, S.226-231
- [10] Summers, J.C., Van Houtte, S., Psaras, D.; Simultaneous control of particulate and NO_x emissions from diesel engines.
- [11] VDI 2066, Messen von Partikeln, Staubmessung in strömenden Gasen, Gravimetrische Bestimmung geringer Staubgehalte, Planfilterkopfgeräte, VDI-Handbuch Reinhaltung der Luft, Band 4
- [12] F. Opferkuch, G. Gaiser, G. Eigenberger; Entfernung oxidierbarer Aerosole aus Abluftströmen. (PEF-Forschungsbericht), 1998
- [13] Levenspiel, O; The Chemical Reactor Omnibook; OSU Book Stores, Inc. Corvallis, OR, 1979
- [14] Kottke, V; Blenke, H.; Schmidt, K.G.: Eine remissionsfotometrische Meßmethode zur Bestimmung örtlicher Stoffübergangskoeffizienten bei Zwangskonvektion in Luft. Wärme-und Stoffübertragung 20 (1977) 9-21.
- [15] Bekaert-Faser-Vetriebs GmbH, Produktinformation Bekipor
- [16] Vortmeyer, D. und Schäfer, R. J.: Equivalence of one and two-phase models for heat transfer processes in packed beds, one dimensional theorie. Cemical Engineering Science, 29: 485 - 491, 1974.
- [17] J. Frauhammer Numerische Lösung von eindimensionalen parabolischen Systemen mit adaptiven Gittern, Diplomarbeit ICVT 1992
- [18] VDI-Wärmeatlas, 7. Auflage
- [19] Kottke, V; Blenke, H.; Schmidt, K.G.: Eine remissionsfotometrische Meßmethode zur Bestimmung örtlicher Stoffübergangskoeffizienten bei Zwangskonvektion in Luft. Wärme-und Stoffübertragung 20 (1977) 9-21.
- [20] DIN 1952 bzw. VDI 2041, Durchsatzbestimmung mit Normblenden