Inhaltsverzeichnis

1	Du	rchfi	ührende Forschungsstellen	1
2	For	schu	angsthema	2
	2.1	Pro	blemstellung	2
	2.2	For	schungsziele	3
	2.3	An	gestrebte Forschungsergebnisse	3
	2.4	Lös	sungsweg	4
3	Erg	gebni	isse des Forschungsvorhabens	6
	3.1	Bet	riebsmessungen an einer Vorcalcinieranlage (FIZ)	6
	3.1.	.1	Beschreibung der Ofenanlage	6
	3.1.	.2	Erste Versuchsreihe	8
	3.1.	.3	Zweite Versuchsreihe	23
	3.2	Мо	dellierung Gasphasenkinetik / heterogene Reaktionen (LUAT/FIZ)	36
	3.2.	1	Modellierung der Calcinierungsreaktion	\$6
	3.2.	.2	Experimentelle Untersuchung der SNCR-Chemie	37
	3.2.	.3	Modellierung der NO _x -Bildung und -Reduktion4	4
	3.2.	.4	Validierung anhand von Laboruntersuchungen4	19
	3.3	Мо	dellierung der Partikel-Tropfen-Interaktionen (LEAT)5	52
	3.3.	1	Experimenteller Aufbau5	52
	3.3.	.2	Experimentelle Daten	56
	3.3.	.3	Modellierung der Zerstäubung6	51
	3.3.	.4	Stochastisches Kollisionsmodell	56
	3.3.	.5	Simulation der Versuchsanlage7	'5
	3.4	Ver	rbrennungsversuche am Fallrohrreaktor (LEAT/LUAT)	<i>'</i> 9
	3.4.	1	Experimenteller Aufbau	<i>'</i> 9
	3.4.	.2	Durchgeführte Umbauten am Fallrohrreaktor	31
	3.4.	.3	Randbedingungen und Messprogramm	32
	3.4.	.4	Vergleich der experimentellen und simulierten Ergebnisse	33

3	5.5	CFI	D-Simulation einer industriellen Calcinierungsanlage (LUAT)	
	3.5.	1	Simulationsphänomene	
	3.5.	2	Modellierungen der Vorcalcinatorgeometrie	92
	3.5.	3	Parameterstudie am generischen Calcinator (2-D Geometrie)	94
	3.5.	4	Simulation eines 3-D Vorcalcinators	96
3	6.6	CFI	D-Simulation eines generischer Calcinator (LEAT)	110
	3.6.	1	Geometrie und Randbedingungen	110
	3.6.	2	Simulationsergebnisse	
3	5.7	Zus	sammenfassung	117
3	5.8	Lite	eraturverzeichnis	
4 Un	Wi terne	rtsch ehm	naftliche Bedeutung des Forschungsthemas für kleine und en (KMU)	mittlere 122
4	.1 ler e	Daı rziel	rstellung des wissenschaftlich-technischen und wirtschaftlichen ten Forschungsergebnisse	Nutzens 122
4 H	.2 Forsc	Inn hun	ovativer Beitrag und industrielle Anwendungsmöglichkeiten der gsergebnisse	erzielten 123
5	Erg	ebni	istransfer in die Wirtschaft	
6	Na	chwo	eise über die Verwendung der Zuwendungen	
ϵ	5.1	Wis	sstechn. Personal (Einzelansatz A.1 des Finanzierungsplans)	
	6.1.	1	LEAT	
	6.1.	2	LUAT	
	6.1.	3	FIZ	
6	5.2	Ger	räte (Einzelansatz B des Finanzierungsplans)	127
6	5.3	Leis	stungen Dritter (Einzelansatz C des Finanzierungsplans)	127
7	Zus	samr	menstellung aller Veröffentlichungen	
8	No	twer	ndigkeit und Angemessenheit der geleisteten Arbeit	
9	För	derł	ninweis	

1 Durchführende Forschungsstellen

Forschungsstelle 1:

LEAT, Ruhr-Universität Bochum, Lehrstuhl für Energieanlagen und Energieprozesstechnik, Universitätsstr. 150, D-44780 Bochum

Leiter der Forschungsstelle:	UnivProf. DrIng. V. Scherer
Projektleiter:	DrIng. S. Wirtz

Forschungsstelle 2:

LUAT, Universität Duisburg-Essen, Campus Essen, Lehrstuhl für Umweltverfahrenstechnik und Anlagentechnik, Leimkugelstraße 10, D-45141 Essen

Leiter der Forschungsstelle:	UnivProf. DrIng. habil. K. Görner
Projektleiter:	UnivProf. DrIng. habil. K. Görner

Forschungsstelle 3:

FIZ, Forschungsinstitut der Zementindustrie, Tannenstr. 2, D-40476 Düsseldorf

Leiter der Forschungsstelle: Dr. rer. nat. M. Schneider

Projektleiter: Dr.-Ing. V. Hoenig

2 Forschungsthema

Entwicklung eines hoch-effizienten SNCR-Verfahrens mit gestufter Verbrennung für reduzierte NO_X- und NH₃-Emissionen an Drehofenanlagen der Zementindustrie mit Vorcalciniertechnik.

2.1 Problemstellung

Mit der novellierten Fassung der 17. BImSchV (Stand 02.05.2013 [1]) gelten in Deutschland künftig strengere Emissionsgrenzwerten für bestehende Anlagen zur Herstellung von Zementklinker und Zementen. Darunter fällt auch der NO_x-Grenzwert, welcher im Tagesmittel auf einen Wert von 200 mg/Nm3 (bezogen auf 10 % O2) abgesenkt wurde. Diese Verschärfung soll ab 01.01.2019 in Kraft treten und stellt die deutsche Zementindustrie vor eine große Herausforderung. Zur Minderung von Stickstoffoxiden (NO_X) wird gegenwärtig an fast allen deutschen Zementdrehofenanlagen das Verfahren der selektiven nicht-katalytischen Reduktion (SNCR) angewandt. Theoretisch ist mit dieser Technik eine Einhaltung der verschärften Grenzwerte auch möglich, allerdings bisher nur unter der Voraussetzung, dass das NO_X-Ausgangsniveau bereits niedrig ist. Außerdem muss das Reduktionsmittel (in der Regel Ammoniaklösung) überstöchiometrisch eingesetzt werden. Dies verursacht zum einen erhöhte Betriebsmittelkosten und zum anderen unerwünscht hohe Ammoniakemissionen (NH3-Schlupf). Deshalb besteht noch erheblicher Optimierungs- und Forschungsbedarf, insbesondere was das Detailverständnis für die komplexen Wechselwirkungen des SNCR-Verfahrens mit der gestuften Verbrennung und der Entsäuerungsreaktion im Calcinator anbelangt. Die Strömung in Calcinatoren ist extrem hoch mit Partikeln beladen, so dass die Mischung von Reduktionsmittel und Rauchgas sehr schwer zu beschreiben und in der Planungsphase vorauszusagen ist. Generell kann allerdings die erfolgreiche Anwendung einer hoch-effizienten SNCR-Technologie in Kombination mit gestufter Verbrennung ein kostengünstiges Verfahren zur NOx-Minderung darstellen. Dazu ist es dringend erforderlich, dass die komplexen Wechselwirkungen bei hohen Ersatzbrennstoffraten in einer hoch mit Staub angereicherten Atmosphäre grundlegend untersucht werden. Die Kenntnisse aus diesen Untersuchungen sind zur weiteren Entwicklung sowie zum wirtschaftlichen Betrieb des Minderungsverfahrens mittels optimierter SNCR-Technologie mit gestufter Verbrennung zwingend notwendig, damit insbesondere die kleinen mittelständischen Unternehmen (KMU) der deutschen Zementindustrie den steigenden Anforderungen erfolgreich begegnen können.

2.2 Forschungsziele

Das Forschungsprojekt zielt auf eine allgemeine NO_X-Emissionsminderung auf 200 mg/m³ bei geringem NH₃-Schlupf von maximal 30 mg/m³ in Drehofenanlagen der Zementindustrie mit Vorcalciniertechnik ab. Um dieses Emissionsniveau einhalten zu können, sind je nach NO_X-Ausgangsniveau, dauerhaft NO_X-Reduktionsgrade von 60 bis über 80 % zu erreichen. Das Forschungsziel setzt ein wissenschaftlich/technisches Detailverständnis für die komplexen Wechselwirkungen des SNCR-Verfahrens mit der gestuften Verbrennung und der Entsäuerungsreaktion in Calcinatoren bei hohen Sekundärbrennstoffraten voraus. Auf dieses Detailverständnis aufbauend, sollen Modelle und Werkzeuge bereitgestellt werden, die eine gezielte technische Auslegung von Drehofenanlagen mit Calcinator sowie eine Optimierung des Anlagenbetriebs in Hinsicht auf maximale NO_X-Reduktion bei minimalem NH₃-Schlupf ermöglichen. Als Werkzeuge werden experimentelle Untersuchungen und die CFD-Simulation eingesetzt.

2.3 Angestrebte Forschungsergebnisse

Wissenschaftlich-technische Ergebnisse

Als wesentliches technisches Ergebnis sollen Werkzeuge und Methoden für ein hoch effizientes SNCR-Verfahren in der Zementindustrie bereitgestellt werden, das in Vorcalcinieranlagen die Einhaltung der angekündigten Grenzwerte für NO_X und NH₃ ermöglicht. Dazu sind die wesentlichen Phänomene im Labormaßstab zu untersuchen und es ist die Kombination von geeigneten Berechnungsmethoden zu einem Gesamtmodell, welches eine Vorhersage der Auswirkung von Parameteränderungen auf das Emissionsverhalten des Prozesses ermöglicht, notwendig. Dementsprechend sollen Modelle für die folgenden Phänomene zusätzlich entwickelt werden:

- Verdampfung und Verteilung des Reduktionsmittels in der Mehrphasenströmung
- NH₃/NO Reduktions- und Oxidationsreaktionen in der Gasphase, Wechselwirkungen mit der Verbrennung (CO) und den Feststoffen (Koks, CaO)

Insbesondere ist eine verbesserte Eindüsung des Reduktionsmittels über mehrere Ebenen in den Calcinator und eine gute Vermischung mit dem Gasstrom erforderlich, um hohe NOx-Minderungsraten bei geringem Reduktionsmittelüberschuss und somit niedrigem NH₃- Schlupf zu realisieren.

Wirtschaftliche Ergebnisse

Für die Betreiber von Zementwerken besteht ein entscheidender betriebswirtschaftlicher Vorteil, wenn durch die kombinierte Anwendung eines effektiven SNCR-Verfahrens mit der Vorcalciniertechnik die Investitionskosten für eine SCR-Anlage vermieden werden können. Weiterhin verringern sich die Betriebskosten, da ein optimaler Einsatz des Reduktionsmittels einen geringeren Überschuss bedingt und somit weniger davon eingesetzt werden muss. Außerdem wird durch ein sicheres Einhalten der Grenzwerte für NO_X und zukünftig auch NH₃ eine höhere Produktionsflexibilität und Produktionssicherheit gewährleistet. Da sich die Betreiber von Zementwerken laufend auf eine schwankende Zusammensetzung der Roh- und Brennstoffe einstellen müssen, muss beispielsweise die Temperaturführung im Prozess laufend angepasst werden, um eine hohe Produktqualität zu gewährleisten. Dadurch können zeitweise erhöhte NOx-Emissionen auftreten, was aufgrund der Genehmigung nur eingeschränkt zulässig ist. Auch prozessbedingte Schwankungen der Produktion mit einem zeitweise erhöhten NOx-Niveau lassen sich mit einem optimierten SNCR-Verfahren besser ausgleichen. Wenn durch die gezielte Anwendung des SNCR-Verfahrens die Grenzwerte trotzdem eingehalten werden können, bedeutet dies eine gesicherte Produktqualität in einem weiten Variationsbereich der Einsatzstoffe. Dies sichert die Wettbewerbsfähigkeit der deutschen Zementindustrie, da eine breitere Basis an kostengünstigen sekundären Roh- und Brennstoffen erschlossen werden kann. Schließlich werden durch ein verbessertes Verfahren Investitionen der Zementindustrie in eine Nachrüstung der bestehenden Anlagen angeregt, was zusätzliche Aufträge für die ausführenden Ingenieurbüros und Anlagenbauer bedeutet.

2.4 Lösungsweg

Zur Umsetzung der Forschungsziele ist eine Kombination aus Laborversuchen, Messungen sowie stofflichen Analysen in einer Industrieanlage und die Entwicklung von Berechnungsmethoden erforderlich, um realitätsnahe und für die Industrie umsetzbare Ergebnisse zu erhalten. Eine Veranschaulichung des Lösungsweges kann Abbildung 2.1 anhand der Verknüpfung der Arbeitspakete entnommen werden. Während LEAT und FIZ die Fragestellungen vor allem experimentell untersuchen, liegen die Schwerpunkte des LUAT bei der Modellierung der experimentell untersuchten Phänomene und der Simulation einer Vorcalcinieranlage. Im Rahmen dieses Projektes werden dabei sowohl bestehende experimentelle Anlagen (Laborofen am FIZ und Fallrohrreaktor am LEAT), als auch eine neu errichtete Versuchseinrichtung am LEAT zur Untersuchung der Wechselwirkung von Tropfen und Partikeln verwendet. Das Ziel der Laborversuche am FIZ ist dabei die Bestimmung der spezifischen Einflüsse des Rohmaterials auf die SNCR-Kinetik. Die wesentlichen Wechselwirkungen von Verbrennung und Reduktion im Flugstrom werden dagegen im vorhandenen Fallrohrreaktor mit einem Gemisch aus Kohlenstaub und Ofenmehl untersucht. Die gewonnenen Erkenntnisse der experimentellen Arbeiten sollen anschließend in Zusammenarbeit von LUAT und LEAT als Submodelle in das CFD-Tool integriert werden. Die Praxistauglichkeit der entwickelten Modellansätze und deren Wechselwirkungen sollen anhand der CFD Simulation einer realen Vorcalcinieranlage aufgezeigt werden. Als Basis für die Simulation dienen die im Vorfeld vom FIZ durchgeführten Betriebsmessungen bei hohen Sekundärbrennstoffraten und gleichzeitigem SNCR-Betrieb an einer Vorcalcinieranlage.



Abbildung 2.1: Übersicht und Verknüpfung der Arbeitspakete

3 Ergebnisse des Forschungsvorhabens

3.1 Betriebsmessungen an einer Vorcalcinieranlage (FIZ)

Das Forschungsinstitut der Zementindustrie führte zwei Betriebsmessungen an einer Vorcalcinieranlage, die bei hohen ABS-Raten und gleichzeitiger NO_x-Minderung mittels SNCR-Anlage betrieben wird, durch. Während die erste Betriebsmessung zur Aufnahme der betrieblichen Randbedingungen, der Festlegung der Randbedingungen für die CFD-Simulation und zur Validierung der bisher entwickelten CFD-Submodelle diente, dienten die Ergebnisse des zweiten Betriebsversuches zur Verifizierung der Simulationsergebnisse durch die Projektpartner. Hierfür wurden bei beiden Messungen neben Profilmessungen der Gaskonzentrationen im Calcinator, der Temperaturen und Volumenströme auch umfangreiche Feststoffanalysen durchgeführt. Darüber hinaus wurden nasschemische Analysen hinsichtlich NH₃ an verschiedenen Messebenen und -stellen im Calcinator durchgeführt.

3.1.1 Beschreibung der Ofenanlage

Die Messungen wurden an einem In-Line-Calcinator eines Zementdrehofens durchgeführt. Auf der Abbildung 3.1 ist das Werk und die Ofenanlage schematisch dargestellt. Die Drehofenanlage arbeitet nach dem Vorcalcinierverfahren und besteht aus einem fünfstufigen Zyklonvorwärmer, Calcinator mit Tertiärluftleitung, Drehofen und Rostkühler. Das feingemahlene Rohmehl wird in die oberste Stufe des Zyklonvorwärmers gefördert und im Gegenstromverfahren erhitzt. Nachdem das Rohmehl alle Zyklonstufen durchlaufen hat, wird es mit einer Materialtemperatur von etwa 850 °C über den Ofeneinlauf dem Drehofen zugeführt. Im Drehofen wird das Ofenmehl zu Klinkergranalien gesintert und im anschließenden Klinkerkühler hinreichend schnell abgekühlt. Der Drehofen hat eine Länge von 40 m, einen Innendurchmesser von 4,0 m und ist mit feuerfestem Material ausgemauert. Durch die Drehbewegung wird das Brenngut vom Ofeneinlauf in Richtung des am Ofenauslauf installierten Hauptbrenners bewegt. In der sogenannten Sinterzone erreicht das Brenngut Temperaturen von bis zu 1.450 °C. Die Durchlaufzeit des Materials durch den Ofen beträgt ca. 20 Minuten. Die am Ofenkopf installierte Hauptfeuerung des Drehofens wird mit Braunkohlenstaub betrieben. Eine Genehmigung für den Einsatz von Sekundärbrennstoffen ist an dieser Stelle ebenfalls vorhanden. In der Zweitfeuerung wird neben der Braunkohle auch Fluff als Sekundärbrennstoff eingesetzt. Der Brennstoffeinsatz im Calcinator dient sowohl für die Bereitstellung der Energie, als auch zur Einstellung

einer reduzierenden Zone im unteren Teil des Calcinators, um das im Ofengas vorhandene NO_x teilweise zu reduzieren. Die für den vollständigen Ausbrand des in der Zweitfeuerung zugegebenen Brennstoffs benötigte Verbrennungsluft wird als Tertiärluft dem Calcinator zugeführt. Diese vorgewärmte Tertiärluft wird am heißen Ende dem Klinkerkühler entnommen, am Ofen vorbeigeführt und im unteren Teil des Calcinators zugegeben. Die verbleibende Kühlerabluft wird durch einen Luft-Luft-Kühler konditioniert und in einem Gewebefilter entstaubt. Der Anteil der Calcinatorfeuerung an der Gesamtfeuerungswärmeleistung beträgt ca. 60 %. Das Rohgas wird im VDK konditioniert. Im Verbundbetrieb wird das Rohgas zur Mahltrocknung der Rohmaterialien verwendet. Das gemahlene Rohmehl wird in einem Vorschaltfilter abgeschieden und dem Rohmehlsilo zugeführt. Anschließend wird das vorgereinigte Rohmühlenabgas gemeinsam mit dem restlichen Abgas im Elektrofilter entstaubt. Bei Direktbetrieb gelangen die Ofenabgase nach dem Entstaubungsventilator und dem Verdampfungskühler direkt in beide Elektrofilter und dann über einen Schornstein ins Freie. Ein Teil des Abgases (<10%) wird am Ofeneinlauf abgezogen und in der Mischkammer mit Luft heruntergekühlt. Mit Hilfe des Bypass-Abgasgebläses wird dieser Teil des Abgases dem Bypass-Gewerbefilter zugeführt, entstaubt und danach mit dem Abgasstrom des Drehofens nach den Elektrofiltern des Drehofens zusammengeführt und über den Kamin ins Freie geleitet.



Abbildung 3.1: Verfahrensfließbild des Werkes

3.1.2 Erste Versuchsreihe

3.1.2.1 Versuchsplan

Für die Validierung des Modells wurden Messstellen für die Gaszusammensetzung an den Systemgrenzen des Calcinators und im Calcinator eingerichtet. Dazu wurden Profilmessungen hinsichtlich Gaszusammensetzung und Temperaturverteilung durchgeführt. Die Zusammensetzungen an den Systemgrenzen des Calcinators wurden über die Messstelle im Ofen-einlauf und am Ende des Schwanenhalses ermittelt. In Tabelle 3.1 sind die für eine Validierung notwendigen Messgrößen und Werksdaten zusammengefasst.

	Tabelle 3.1: Messgrößen und Werksdaten							
Nr.	Messgröße							
1	Gaszusammensetzung / Kontinuierlich / Nasschemisch							
	Ofeneinlauf (Werk), Profilmessungen im Calcinator auf 3 Ebenen, 2 Messpunkte pro Mess- stelle, Schwanenhals auf 1 Messstelle, Steigschacht auf 1 Messpunkt, Reingas							
2	Massenstrom							
	Brennstoffe, Ofenmehl							
3	Chemische Zusammensetzung							
	Brennstoffe, Heissmehl vor und nach Calcinator							
4	Volumenstrom							
	Rohgas, Tertiärluft, Bypass, Bypassfrischluft, Primärluft, Kühlerzuluft, Kühlerabluft, Ammo- niak-Wasser							
5	Temperaturprofil							
	Calcinator (4 Messpunkte), Calcinatoraußenwand							

Abbildung 3.2 (links) zeigt schematisch die Messstellen für die Ermittlung von Temperaturen und Gaszusammensetzungen. Für die Messung im Ofeneinlauf wurde die werkseigene Ofeneinlaufsonde verwendet. Über die Messstelle im Ofeneinlauf wurde die Zusammensetzung des in den Calcinator eintretenden Gases ermittelt.



Abbildung 3.2: Links: Schematische Darstellung der Messstellen im Calcinator; Rechts: Messtellen in den Calcinatorebenen (Mitte)

Die Profilmessungen im Steigschacht und in der mittleren und oberen Ebene des Calcinators mit jeweils vier Messpunkten dienten einer Beurteilung der Gaszusammensetzung im Quer-schnitt. Die Gaszusammensetzung an den Messpunkten im Profil sollte Erkenntnisse über die Strähnenbildung liefern. Für diese Messungen wurde jeweils eine Sonde pro Ebene mit einer Länge von zwei Metern eingesetzt. Der Calcinator hat an den Messtellen Calcinator Mitte und oben und Schwanenhals einen runden Querschnitt. Die Außenmesspunkte lagen ca. 90 cm von der Calcinatoraußenwand entfernt. Über diese Messstellen sollten Erkenntnisse über die Gaskonzentrationen und Temperaturen in Wandungsnähe gewonnen werden. Bei den Innenmesspunkten betrug die Distanz zwischen Außenwand und den Messpunkten ungefähr 1,8 m. Diese Messpunkte dienten der Validierung der Gaszusammensetzung und Strömungsverhältnisse im Innenraum des Calcinators. Die Dicke der Ausmauerung betrug ca. 20 cm.

Die Eintrittsstellen für die Profilmessstellen an der Calcinatorwand liegen auf allen Ebenen ca. 90° voneinander entfernt (siehe Abbildung 3.18 als Beispiel). Die in den Abbildungen gestrichelten Linien stellen jeweils die Position des vorgefundenen Ansatzes dar, der besonders im mittleren Calcinatorbereich (Messstelle Calcinator Mitte und Oben) sehr stark ausgeprägt war. Der Calcinator weist im unteren Eintrittsbereich der Brennstoffe und des Heißmehls einen rechteckigen Querschnitt auf (siehe Abbildung 3.3). Aus vier Förderleitungen strömen die Brennstoffe tangential in den Calcinator. Etwas oberhalb der Feuerungsstellen für BKS und Fluff befindet sich die Messstelle Steigschacht. An dieser Messstelle wurde ebenfalls die Gaszusammensetzung gemessen, um den Einfluss der einsetzenden Verbrennung der Calcinatorfeuerung auf die Gaszusammensetzung zu untersuchen.



Abbildung 3.3: Calcinatorfeuerung mit BKS und ABS

3.1.2.2 Versuchsprogramm

Um die Auswirkungen der SNCR Anlage richtig beurteilen zu können, wurden die Massen- und Volumenströme der Drehofenanlage während des Versuchs möglichst konstant gehalten. Der Brennstoffmix für die Feuerung im Calcinator bestand während der Versuche lediglich aus Braunkohlenstaub (BKS) und dem Alternativbrennstoff (ABS) Fluff. Dabei wurden gleichzeitig zwei unterschiedliche Fluffqualitäten verfeuert. Zu gleichen Teilen wurde der fertig aufbereitet angelieferter Fluff und ein im Werk selbst aufbereiteten Fluff eingesetzt. Die Aufgabe in den Calcinator erfolgte separat über die jeweiligen Ersatzbrennstoff-Brenner im Bereich des Steigschachtes (siehe Abbildung 3.3).

Um die Bildung und den Abbau von NO_x in der gestuften Verbrennung (ohne zusätzliche Reduktionsmitteleindüsung) richtig modellieren zu können, wurde während des 1. Messtages auf den SNCR-Betrieb verzichtet. Am 2. Messtag wurden die Versuche bei Betrieb der SNCR Anlage durchgeführt. Tabelle 3.2 gibt einen Überblick über das Versuchsprogramm.

Parameter	Zeichen	Einheit	Einheit Messtag 1		Messtag 2			
Versuchsreihe		Nr.	V1	V2	V3	V4		
BKS-Rate	Хвкз	[%] ¹⁾	100	50	50	100		
ABS-Rate	X _{ABS}	[%] ¹⁾	0	50	50	0		
Rohmehl-Massen- strom	M _{RM}	t/h	180					
SNCR-Betrieb			Oh	ine	N	Mit		

Tabelle 3.2: Versuchsprogramm

¹⁾ des Wärmeenergiebedarfs des Calcinators

Am ersten Versuchstag, bei Betrieb mit 100% BKS, musste die Ofenmehlaufgabe von ca. 180 t/h auf ca. 165 t/h aus betrieblichen Gründen reduziert werden. Diese Versuchsreihe dient als Referenzzustand. Die Ergebnisse aus diesem Versuch dienen als Basisdaten für die Modellierung. In Versuchsreihe 2 wurden die Massenströme der Brennstoffe Kohle und Fluff soweit angepasst, dass 50% der benötigten Wärmemenge im Calcinator mit Kohle und die restlichen 50% mit Fluff abgedeckt. In dieser Versuchsreihe sollen die Veränderungen gegenüber dem Referenzzustand ermittelt werden. In der Versuchsreihe 3, in der die SNCR-Anlage betrieben wurde, blieb die Einstellung mit den Massenströmen für Kohle und Fluff konstant und zusätzlich wurde NH₃ eingedüst. In diesem Versuch wurde der Einfluss der SNCR Technik untersucht. In Versuchsreihe 4 wurde der Calcinator wieder mit 100 % Kohle befeuert und die SNCR-Anlage wurde weiter betrieben. Bei diesem Versuch wurde ebenfalls der Einfluss der SNCR-Technik untersucht (gegenüber dem Referenzzustand).

3.1.2.3 Analyse der Brennstoffe

Ein wichtiger Bestandteil der CFD-Modellierung ist der Ausbrand der Brennstoffe. In den folgenden Abschnitten werden daher zunächst die Ergebnisse der Brennstoffanalysen zusammengefasst. Es wurde gemahlener Braunkohlenstaub mit einem unteren Heizwert von ca. 22 MJ/kg sowie 2 unterschiedliche Fluffqualitäten verfeuert. Der fertig aufbereitet angelieferter Fluff (ABS 1) hatte einen unteren Heizwert von 22,9 kJ/kg und eine Feuchte von 17,1 Masseprozent. Für den im Werk selbst aufbereiteten Fluff (ABS 2) liegt der Heizwert bei 16,7 MJ/kg. Er ist damit deutlich niedriger als beim angelieferten Fluff, was maßgeblich auf die deutlich höhere Feuchte von 33,1 Masseprozent zurückzuführen ist.

Braunkohenstaub (BKS)

Der BKS wird gemahlen und getrocknet angeliefert. Tabelle 3.3 enthält die gemittelten Analysenergebnisse aus der Lieferantenerklärung.

Probenkennung			Durchschnitt, roh
Material			Braunkohlenstaub - BKS
Mittelwert-Elementaranalyse			
Kohlenstoff	С	%	59,50
Wasserstoff	Н	%	4,30
Stickstoff	Ν	%	0,70
Gesamtschwefel	S	%	0,35
Sauerstoff, angenommen als Rest	O als Rest	%	20,30
Kurzanalyse			
Wassergehalt	w	%	11,00
Asche	а	%	4,00
Summe	Σ	%	100,15
Heizwert	Hu	kJ/kg	22
Heizwert, gerechnet*	Hu, gerechnet	kJ/kg	22.45
Mittelwert-Oxidanalyse der Asche			
SiO ₂	SiO ₂	%	4,00
Calciumoxid	CaO	%	36,0
Aluminiumoxid	Al ₂ O ₃	%	5,00
Eisenoxid	Fe ₂ O ₃	%	12,00

 Tabelle 3.3: Braunkohlenstaubanalyse als Durchschnitt

* Heizwert vom BKS wurde auf Basis der Analysenergebnisse berechnet.

Alternativer Brennstoff Fluff

Die Analysewerte für den Fluff wurden von Seiten des Werkes zur Verfügung gestellt. Sie sind in Tabelle 3.4 angegeben.

Tubene on Tubene of the transmission									
Messstelle			ABS 1	ABS 2					
Versuch			V 1 – V 4	V 1 – V 4					
Feuchte bei 105 °C	w	%	17,1	33,1					
С	С	%	51,5	40,5					
Н	Н	%	7,1	5,8					
N-ges	N-ges	%	0,46	0,26					
S	S	%	0,08	0,27					
Cl	Cl	%	0,82	0,48					
Asche	а	%	8,5	7,9					
Heizwert Originalprobe	Hu (roh)	MJ/kg	22,9	16,7					

Tabelle 3.4: Fluffanalysen

Der mittlere Stickstoffgehalt aus dem Fluff liegt mit 0,26 bzw. 0,46 Ma.-% unterhalb des Stickstoffgehaltes im Braunkohlenstaub (0,7 Ma.-%), wodurch das Potential der Brennstoff-NO-Bildung geringer ist.

3.1.2.4 Analyse des Rohmehls und des Heißmehls

Nachfolgend sind die Ergebnisse der Analysen Roh- und Heißmehle dargestellt.

Rohmehl

Die homogenisierten Bestandteile des Rohmaterials werden nach der Aufmahlung in der Rohmühle in die oberen Zyklonstufen des WT-Turms gefördert. Tabelle 3.5 enthält die Ergebnisse der Rohmehlanalysen für den Versuchszeitraum. Durch die Entsäuerung des Rohmehls können aus den Edukten Calcium- und Magnesiumcarbonat der Rohmehlzusammensetzung maximal zwischen 33,0 und 33,5 Masseprozent CO₂ gebildet werden.

V							
Versuchsphase		Versuchsreihe 1					
Versuch		V 1	V 2	V 3	V 4		
Datum		05.09.12	05.09.12	06.09.12	06.09.12		
Zeit	Beginn	08:00	14:00	08:00	14:00		
Zeit	Ende	12:00	18:00	12:00	18:00		
Parameter	Einheit	%					
CO ₂ aus CaCO ₃	%	33,51	33,41	33,47	33,00		
Glühverlust	%	34,57	34,56	34,78	34,78		

Tabelle 3.5: Ofenmehlzusammensetzung für den Versuchszeitraum

Heißmehl

Die Systemgrenze des Calcinators für eintretendes Heißmehl wurde an den Austrittsstellen der Zyklonstufe 4 definiert/festgelegt. Das aus den Zyklonstufe 4 austretende Heißmehl gelangte teilentsäuert in den Calcinator. Über ein Heißmehlsplitting wurden ca. 60 % des Materials im unteren Bereich des Steigschachtes und die übrigen 40 % oberhalb aufgegeben.

Die Probenahme fand mit einem Handprobenehmer unter Zyklon 4 und 5 statt. Je Versuchseinstellung und Probenahmestelle wurden zwei Proben gezogen, aus denen später im Labor eine Mischprobe hergestellt wurde. Es ist zu vermuten dass das Heißmehl nach Austritt aus dem Calcinator in der Zyklonstufe 5 geringfügig weiter entsäuert wird, der Entsäuerungsgrad nach Austritt aus dem Calcinator also geringfügig höher liegt. Tabelle 3.6 enthält die Ergebnisse der Heißmehlanalysen aus dem Austritt der Zyklonstufe 4.

Messstelle			Zyklon 4	Zyklon 4	Zyklon 4	Zyklon 4			
Versuch			V 1	V 2	V 3	V 4			
Kohlendioxid	CO ₂	%	28,91	29,47	29,35	29,48			
Entsäuerungs- grad		%	14	14	13	13			
Glühverlust	Glv, ber.	%	29,58	29,94	30,34	30,14			

Tabelle 3.6: Durchschnittliche Heißmehlanalyse, Zyklon 4

Das analysierte Heißmehl am Austritt der Zyklonstufen 5 (nach Calcinator) enthielt nur noch zwischen 1 und 2 Masse-% CO₂, war also bei allen Versuchen weitgehend entsäuert. Der durchschnittliche Entsäuerungsgrad betrug 96,5 % (siehe Tabelle 3.7).

Messstelle			Zyklon 5	Zyklon 5	Zyklon 5	Zyklon 5
Versuch			V 1	V 2	V 3	V 4
Kohlendioxid	CO ₂	%	0,70	1,97	1,10	0,97
Entsäuerungs- grad		%	98	94	97	97
Glühverlust	Glv, ber.	%	1,92	3,85	3,54	3,05

Tabelle 3.7: Durchschnittliche Heißmehlanalyse, Zyklon 5

Ein signifikanter Einfluss der einzelnen Versuchsreihen auf die Entsäuerung des Heißmehls durch die verschiedenen Sekundärbrennstoffraten wurde bei den Versuchen 1, 3 und 4 weder vor Eintritt in den Calcinator noch nach Austritt aus Zyklonstufe 5 festgestellt. Bei Versuch 2 stellte sich im Vergleich zu den anderen Versuchen ein etwas geringerer Vorentsäuerungsgrad von 94 % ein.

3.1.2.5 Ermittelte Massenströme

Tabelle 3.8 enthält die Prozessdaten aller Massenströme des auf den Ofen aufgegebenen Rohmehls und aller in der Haupt- und Sekundärfeuerung eingesetzten Brennstoffe für den jeweiligen Versuchszeitraum.

Versuchsphase		Versuchsreihen				
Versuch		V 1	V 2	V 3	V 4	
Parameter	Einheit					
Rohmehl	t/h	164	167	165	167	
m, BKS CF	t/h	11,18	2,90	3,98	10,45	
m, Fluff (Koch) CF1	t/h	0	3,67	2,43	0	
m, Fluff (Eig) CF2	t/h	0	2,69	2,91	0	
m, BKS HF	t/h	5,97	5,74	5,89	5,88	
Σm, Br	t/h	17,14	15,00	15,20	16,34	

Tabelle 3.8: Massenströme des Rohmehls und der Brennstoffe

Bei den Versuchen konnte die Ofenmehlaufgabe und die dem Hauptbrenner aufgegebene Brennstoffmenge weitgehend konstant gehalten werden. Die dem Calcinator aufgegebenen Brennstoffmengen wurden von Versuchseinstellung zu Versuchseinstellung entsprechend der Vorgabe variiert. Während der jeweiligen Versuchseinstellungen blieben die Brennstoffströme jedoch weitestgehend konstant.

3.1.2.6 Gemessene Volumenströme

Alle Angaben der Volumenströme beziehen sich auf den trockenen Normzustand, soweit nicht etwas anderes angegeben ist. Die wesentlichen Volumenströme für die Bilanzierung des Calcinators wurden über Staudruckmessungen mit Prandtl-Sonden ermittelt. Volumenströme der Förderlüfte für die Brennstoffe im Calcinator wurden ebenfalls gemessen, weil diese anteilig relativ gering ausfielen. Alle gemessenen Volumenströme und die berechneten Werte für die Volumenströme aus der Entsäuerung und der Rauchgasmenge im Ofeneinlauf sind in Tabelle 3.9 zusammen gefasst. Der Volumenstrom der Rauchgasmenge aus der Hauptfeuerung wurde gemäß folgender Gleichung

$$\dot{V}_{HF} = \dot{V}_{Rohgas} - \dot{V}_{Tertiarl} - \dot{V}_{primarlCal} - \dot{V}_{Falschl} - \dot{V}_{Ents} - \dot{V}_{Feuchte} - \dot{V}_{Verbr.} + \dot{V}_{Byp}.$$

über den gemessenen Rohgasvolumenstrom berechnet. Dabei wurde ein 4,5-prozentiger Anteil vom gemessenen Volumenstrom des Rohgases für eintretende Falschluft angenommen (inklusive 2.000 m³/h Lufteintritt über die Ofeneinlaufdichtung). Der durch die Verbrennung im Calcinator zusätzlich erzeugte Gasvolumenstrom (Mindestabgasmenge abzüglich Mindestluftbedarf) wurde über eine Verbrennungsrechnung ermittelt (inklusive Brennstoff-Feuchte). Die Bypassabzugmenge berechnet sich aus der Bypassrauchgasmenge abzüglich der Bypassfrischluftmenge.

Versuch	V1 V2		V3	V4		
	[m³/h]					
Bypassfrischluft	36.407	37.302 41.738 4		41.738		
Primärluft	8.125					
Rohgas	138.762		128.857			
Kühlerzuluft	176.362					
Kühlerabluft	103.800					
Bypass	43.938	46.503	50.456	47.317		
Tertiärluft	45.451	47.194	42.026	37.627		
Rauchgas HF ger.*	49.439	48.088	52.950	54.080		
Entsäuerung, ger.	28.168	28.598	28.306	28.247		

Tabelle	3.9:	Volumen	ströme

*für die Berechnung wurde ein Mittelwert aus den beiden Rohgasvolumenstrommessungen verwendet.

Bei fehlenden Messwerten zur Berechnung der einzelnen Volumenströme des Rauchgases in der Hauptfeuerung wurden die Durchschnittswerte herangezogen. Der durchschnittliche Volumenstrom für die Rauchgasmenge im Ofeneinlauf betrug 51.100 m³/h. Die im Rohgas gemessenen Volumenströme lagen bei 128.900 m³/h bzw. 138.800 m³/h.

3.1.2.7 Gaszusammensetzung und Temperaturverteilung

In den folgenden Abschnitten werden die Gaszusammensetzung und die Temperaturverteilung im Calcinator dargestellt. Als eintretende Systemgrenze für die Gaszusammensetzung im Calcinator diente die Messstelle im Steigschacht, als austretende die hinter dem Schwanenhals. Das Ausbrandverhalten im Calcinator wurde durch die gemessenen CO-Konzentrationen in den Messebenen Calcinator Mitte und Calcinator oben ermittelt.

Verlauf der NO_X-Konzentrationen

Aus den vorherigen Forschungsvorhaben liegen gesicherte Ergebnisse der Prozesssimulation mit dem Primärbrennstoff Kohle und dem alternativen Brennstoff Fluff vor. Das Ausbrand- und Strömungsverhalten von Kohlepartikeln kann mit CFD-Methoden realistisch modelliert werden. Um die Strömungs- und Ausbrandverhältnisse im Calcinator sicher abschätzen zu können, wurde zunächst der Versuch V 1 mit dem Primärbrennstoff BKS ohne SNCR-Einsatz als Referenz für die weiteren Versuche durchgeführt. Auf diese Weise können die Messergebnisse mit BKS mit ausreichender Genauigkeit für die Validierung des CFD-Modells am Calcinator verwendet werden. Die Messwerte an den Messstellen "Steigschacht", "Calcinator Mitte", "Calcinator oben" und "Schwanenhals" wurden über die jeweiligen Versuchszeiträume gemittelt.

Das NO_x-Profil für die Versuchsreihe 1 ist in aufgetragen. Im Ofeneinlauf wurde eine NO_x-Konzentration von 1.985 mg/Nm³ gemessen. Dieser Wert ist in erster Linie auf den Mechanismus der thermischen NO-Bildung in der Hauptfeuerung zurückzuführen. Reduzierende Bedingungen nach der Messstelle Steigschacht führten zu einem durchschnittlich geringen NO_x-Wert von 673 mg/Nm³ an der Messstelle Calcinator Mitte. Mit Ablauf der Restkoksverbrennung und der vollständigen Einmischung des Sauerstoffs aus der Tertiärluft stieg der mittlere NO_x-Wert in der Messebene Calcinator oben und Schwanenhals geringfügig auf ca. 700-720 mg/Nm³ an. Hierbei ist zu berücksichtigen, dass entlang des Calcinators eine Verdünnung der Abgase durch die Entsäuerung des Rohmehls stattfindet, wodurch eine Verzerrung des NO_x-Profils auftritt. Der Anstieg der NO_x-Fracht ist demnach höher als der Anstieg der NO_x-Konzentration.



Abbildung 3.4: NOx-Konzentrationen im Profil, Versuch 1 (O2-Konzentrationen in Vol.-%) Das NO_x-Profil aus diesem Referenzversuch V 1 wird im Folgenden zusammen mit den Ergebnissen aus den übrigen Versuchsphasen dargestellt (Abbildung 3.5). Auf diese Weise kann ein direkter Vergleich der NO_x-Konzentrationen innerhalb der einzelnen Versuche vorgenommen werden.





Bei allen Versuchen hatte das NO_x-Konzentrationsprofil entlang des Calcinators einen vergleichbaren Verlauf. Nach Brennstoffzugabe sinkt das NO_x-Niveau durch die reduzierenden Bedingungen sehr deutlich ab und steigt dann nach Tertiärlufteinmischung wieder ganz leicht an. Die Ausgangs-NO_x-Konzentrationen am Steigschacht lagen bei den Versuchen auf sehr unterschiedlichem Niveau. Bei Versuch 1 wurde die geringste NO_x-Fracht aus der Hauptfeuerung festgestellt, bei Versuch 2 die höchste. Dies ist jedoch nicht auf die Versuchseinstellungen im Calcinator sondern auf die schwankenden Verbrennungsbedingungen und Temperaturen in der Hauptfeuerung / im Drehrohr zurückzuführen. Sowohl bei Einsatz von 100% BKS als auch bei Einsatz von BKS und Fluff wurde eine deutliche Reduzierung des NO_x nach Brennstoffzugabe festgestellt. Die Reduzierung war umso höher je höher die NO_x-Fracht aus der Hauptfeuerung war. Die Zunahme der NO_x-Konzentration nach Tertiärlufteinmischung fiel bei der Versuchen, bei denen Fluff eingesetzt wurde, etwas höher aus, als bei reinem Braunkohleeinsatz. Bei den Versuchen, bei denen keine SNCR-Anlage betrieben wurde (V1 und V2) nahm die NO_x-Konzentration zwischen den Messebenen Calcinator oben und Schwanenhals geringfügig ab. Bei Versuch 3, bei dem die SNCR-Anlage betrieben wurde, ist eine merkliche Absenkung der NO_x-Konzentration um ca. 200 mg/Nm³ zu erkennen. Bei Versuch 4 hingegen stieg die NO_x-Konzentration leicht an. Bedenkt man, dass durch den Fortschritt der Entsäuerung -insbesondere durch Umlenkung im Schwanenhals eine Verdünnungswirkung eintritt, ist die NO_x-Minderung durch Reduktionsmittelzugabe bei den beiden Versuchen als relativ gering oder sogar negativ einzuschätzen. Der Anstieg ist vermutlich auf eine teilweise Oxidation des Reduktionsmittels zurückzuführen.

Verlauf der O₂- und CO-Konzentrationen

Die durchschnittlichen CO-, und O₂-Konzentrationen aus den Versuchen sind in Abbildung 3.6 und Abbildung 3.7 aufgetragen. Ausgehend von einer geringen Sauerstoffkonzentration an der Messstelle Steigschacht (nach Brennstoffzugabe) steigt der Sauerstoffgehalt im Calcinator nach Zugabe der Tertiärluft an und liegt an der Messstelle Calcinator Mitte bei ca. 8 Vol.-%. Mit fortschreitender Verbrennung sinkt der Sauerstoffgehalt dann wieder auf ca. 6 bzw. 4 Vol.-% ab. Der Verlauf der CO-Konzentration erfolgt erwartungsgemäß umgekehrt zum Verlauf der Sauerstoffkonzentration. Bemerkenswert ist, dass sich die CO-Konzentrationen zwischen den Messstellen Calcinator Mitte und Calcinator oben bei den Versuchen, bei denen Fluff im Calcinator eingesetzt wurde, kaum ändern. Bei Braunkohleverbrennung hingegen sind die Verläufe gleichmäßig fallend. Dies weist darauf hin, dass die Verbrennung von Fluff in diesem Bereich nicht optimal verläuft. Erst an der Messstelle Schwanenhals sind die CO-Konzentrationen deutlich gesunken. Möglicherweise kommt es bei der Verbrennung von Fluff zu verstärkter Strähnenbildung im Calcinator, so dass der CO-Ausbrand erst nach Durchmischung des Gasstroms nach der Messstelle "Calcinator oben" effektiv ablaufen kann.



Abbildung 3.6: Mittlere O₂-Konzentrationen im Profil, in verschiedenen Messebenen



Abbildung 3.7: Mittlere CO - Konzentrationen im Profil, in verschiedenen Messebenen

Verlauf der CO₂-Konzentration

In Abbildung 3.8 sind die Profil-Mittelwerte der CO₂-Konzentration im Calcinator dargestellt. Entlang des Calcinators steigt die CO₂-Konzentration aufgrund der fortschreitenden Entsäuerung des Rohmehls stetig an. Lediglich bei den Versuchen 2 und 4 trifft dies zwischen Messebene Steigschacht und Calcinator Mitte nicht zu. Die Auswertung der einzelnen Messpunkte in den Messebenen zeigt, dass an den Messpunkten im unteren Teil des Calcinators die CO₂-Konzentrationen ungleichmäßig über den Querschnitt verlaufen, im oberen Teil hingegen recht gleichmäßig. Dies weist auf eine nicht sehr homogene Mehlentsäuerung im unteren Calcinatorteil hin, die sich im oberen Teil jedoch vergleichsmäßig. Grund hierfür kann eine nicht optimale Aufgabe von Brennstoff und/oder Rohmehl auf den Calcinatorquerschnitt sein. Daraus resultiert Strähnenbildung. Die Messungen in den Messebenen Calcinator Mitte und Calcinator oben konnten jeweils nur 2 statt 4 Messpunkte erfassen, da der Strömungsquerschnitt aufgrund von sehr starker Ansatzbildung verringert war. Die Mittelwerte an diesen beiden Messebenen sind mit einer höheren Ungenauigkeit behaftet, da Brennstoff- und Temperatur- und Mehlsträhnen nicht optimal erfasst werden konnten. Vermutlich findet also im unteren Calcinatorteil keine Abnahme der CO₂-Konzentration statt, wie es Abbildung 3.8 vermuten lässt. Stattdessen ist an der Stelle mit Messungenauigkeiten zu rechnen.



Abbildung 3.8: Mittlere CO₂ - Konzentrationen im Profil, in verschiedenen Messebenen

Verlauf der Temperaturen

Die Temperaturprofile aus allen Versuchen sind im folgenden Abbildung 3.9 dargestellt. Die gemessenen Temperaturen an der Messebene Steigschacht lagen bei allen Versuchen in ähnlicher Höhe (Zwischen ca. 820 und 840°C). Bei den Versuchen 3 und 4 sank die gemessene Temperatur im weiteren Verlauf entlang des Calcinators nur leicht ab (auf ca. 800-820°C), bei den Versuchen 1 und 2 hingegen verringerte sie sich deutlich (auf ca. 700-720°C). Bis zur Messebene Schwanenhals stieg die gemessene Temperatur bei allen Versuchen wieder an (auf ca. 840-870°C). Wie auch bei den gemessenen Gaskonzentrationen ist bei den Messebenen Calcinator Mitte und Calcinator Oben eine größere Ungenauigkeit der gebildeten Mittelwerte zu vermuten, da Temperatursträhnenbildung nicht optimal erfasst werden konnte. Dies könnte eine Erklärung dafür sein, dass teilweise Temperaturen gemessen wurden, die unterhalb der theoretischen Entsäuerungstemperatur von 800-900°C liegen.



Abbildung 3.9: Mittlere Temperaturprofile aus allen Versuchen in verschiedenen Messebenen

Normierte NO_X-Mittelwerte im Calcinator

Nachfolgend werden die mittleren NO_x-Werte der 4 Messstellen aus allen Versuchen auf 10 Vol.-% Sauerstoffbezug normiert (Tabelle 3.10). Es wird deutlich, dass die NO_x-Fracht aus der Hauptfeuerung von Versuch zu Versuch sehr stark schwankte. Aufgrund der NO_x-Minderung der gestuften Feuerung im Calcinator und in gewissem Maß auch auf Grund der Verdünnung durch die Entsäuerung liegen die Unterschiede zwischen den Versuchen an der Messebene Schwanenhals deutlich niedriger.

Versuchsreihe		V1	V2	V3	V4
Steigschacht	mg/m ³	1310	2757	3382	1791
Calcinator Mitte	mg/m ³	557	941	727	525
Calcinator oben	mg/m ³	534	953	760	542
Schwanenhals	mg/m ³	465	842	530	476

Tabelle 3.10: Normiertes NO_x-Profil bezogen auf 10 Vol.-% Sauerstoff

3.1.2.8 Schlussfolgerung zum ersten Betriebsversuches und Zielsetzung des zweiten Betriebsversuches

Im ersten Versuch stellte sich heraus, dass durch die Eindüsung des Reduktionsmittels in den Calcinator nicht die gewünschte Minderung der Stickstoffoxide erreicht werden konnte. Anschließende Simulationen der Vorgänge im Calcinator durch die Universitäten Bochum (LEAT) und Duisburg-Essen (LUAT) zeigten, dass die gewählten Eindüsepositionen nicht die ausreichende Verweilzeit gewährleisten, damit die Stickoxidminderungsreaktionen effizient ablaufen können. Daher wurde auf Grundlage der Simulationsergebnisse neue Positionen für die Eindüsestellen und die Menge des Reduktionsmittels vorgeschlagen. Zur Überprüfung der Optimierungsvorschläge wurde nunmehr ein zweiter Ofenversuch an der gleichen Ofenanlage durchgeführt. Mit Hilfe der vorgeschlagenen Maßnahmen sollte überprüft werden, inwiefern das Hauptziel des Forschungsprojektes, eine allgemeine NO_x-Emissionsminderung auf 200 mg/Nm³ bei geringem NH₃-Schlupf von maximal 30 mg/Nm³ in Drehofenanlagen der Zementindustrie mit Vorcalciniertechnik zu erreichen, möglich ist. Mit Hilfe der Messergebnisse sollten zudem die zugrundeliegenden Simulationsmodelle verifiziert und gegebenenfalls angepasst werden.

3.1.3 Zweite Versuchsreihe

Für die Überprüfung der vorhergehenden Vorschläge des LUAT hinsichtlich der Optimierung der Reduktionsmittelaufgabe und zur Validierung des Simulationsmodells wurden beim zweiten Versuch wiederum Messstellen für die Gaszusammensetzung an den Systemgrenzen des Calcinators und im Calcinator eingerichtet. Dazu wurden wiederum Profilmessungen hinsichtlich Gaszusammensetzung und Temperaturverteilung durchgeführt. Die Zusammensetzungen an den Systemgrenzen des Calcinators wurden über die Messstelle im Ofeneinlauf und am Ende des Schwanenhalses ermittelt. In der Tabelle 3.11 sind die für eine Validierung notwendigen Messgrößen und Werksdaten zusammengefasst.

Nr.	Messgröße					
1	Gaszusammensetzung / Kontinuierlich / Nasschemisch					
	Ofeneinlauf (Werk), Profilmessungen im Calcinator (3 Ebenen, 2 Messpunkte pro Mess- stelle(FIZ)), Schwanenhals (1 Messstelle(FIZ)), Steigschacht (1 Messpunkt (FIZ), Reingas (Werk/FIZ)					
2	Massenstrom					
	Brennstoffe, Ofenmehl, NH ₃ -Wasser					
3	Chemische Zusammensetzung					
	Brennstoffe, Heißmehl vor und nach Calcinator					
4	Volumenstrom					
	Rohgas, Tertiärluft, Bypass, Bypassfrischluft, Primärluft, Kühlerzuluft, Kühlerabluft					
5	Temperaturprofil					
	Calcinator (4 Messpunkte), Calcinatoraußenwand					

Tabelle 3.11: Messgrößen und Werksdaten

3.1.3.1 Versuchsprogramm

Um die Effektivität des eingedüsten Reduktionsmittels in Abhängigkeit von der Höhe der eingedüsten Menge und dem Eindüseort richtig beurteilen zu können, wurden die Massen- und Volumenströme der Drehofenanlage während des gesamten Versuches möglichst konstant gehalten. Der Brennstoffmix bestand während der Versuche lediglich aus Braunkohlenstaub (BKS) und dem Sekundärbrennstoff (ABS) Fluff. Es wurden insgesamt 4 verschiedene Eindüsekonfigurationen untersucht:

- 1. Eindüsung im Bereich der Messstelle M1 (Steigschacht).
- 2. Eindüsung im Bereich der Messstelle M4 (Schwanenhals).
- 3. Eindüsung im Bereich der Messstelle M3 (Calcinator oben).
- 4. Eindüsung im Bereich der Messstellen M3 und M4 (Schwanenhals).

Mit dem Ziel die NO_x-Emissionen unter 200 mg/Nm³ im Abgas zu senken, wurde das Reduktionsmittel bei jeder Versuchseinstellung solange erhöht, bis der gewünschte Zielwert erreicht, betriebliche Grenzen oder die obere Grenze der Zugabemenge erreicht wurden. Der Ammoniakschlupf sollte unterhalb von 30 mg/Nm³ liegen. Tabelle 3.12 gibt einen Überblick über die Versuchseinstellungen.

Parameter	Zeichen	Einheit	Messtag 1				
Versuchsreihe		Nr.	V1	V2	V3	V4	
Eindüsungsstelle			Calcinator Un- ten	Schwanenhals	Calcinator Oben	Calcinator Oben & Schwanen- hals	
Reduktionsmittel	NH ₃ Wasser	l/h	568	400	511	302*	
NO _x Steigschacht- FIZ Messung	NOx	mg/Nm ³	3380	3340	2804	2050	
NO _x Ofeneinlauf - Werksmessung	NOx	mg/Nm ³	3366**	3216**	3534**	Ausfall	
NO _x am Kamin	NOx	mg/Nm ³	217	202	202	195*	
Rohmehl-Massen- strom	m _{RM}	t/h	170				

Tabelle 3.12: Versuchseinstellungen und über den Versuchszeitraum gemittelte Werte

3.1.3.2 Versauswertung

Verlauf der NO_X-Konzentration

Bei allen Versuchen hatte das NO_x-Konzentrationsprofil entlang des Calcinators einen vergleichbaren Verlauf, wie dies beispielhaft für die Versuchseinstellung 1 in der Abbildung 3.10 dargestellt ist. Nach der Brennstoffzugabe im Steigschacht sinkt das NO_x-Niveau durch die reduzierenden Bedingungen sehr deutlich ab und fällt im weiteren Verlauf des Calcinators bis zur Messstelle Schwanenhals langsamer ab. In den Versuchseinstellungen 2 und 3 konnte im Bereich zwischen der Mitte und des oberen Abschnittes des Calcinators sogar ein leichter Anstieg der NO_x-Konzentration festgestellt werden. Dieser Anstieg wird aber durch eine deutliche Reduzierung im weiteren Verlauf ausgeglichen, so dass im Bereich Schwanenhals niedrigere NO_x-Konzentrationen registriert werden konnten. Entsprechend der stark reduzierenden Bedingungen im Steigschacht nimmt die sehr hohe CO-Konzentration von der Messstelle Steigschacht bis zur Messstelle Schwanenhals deutlich ab. Die Sauerstoffkonzentration nimmt hingegen bis zur Calcinatormitte zu, um anschließend wieder leicht abzufallen. Die Ausgangs-NO_x-Konzentrationen am Steigschacht lagen bei den Versuchen auf sehr unterschiedlichem Niveau (siehe Abbildung 3.12).



Abbildung 3.10: Verlauf der NOx-Konzentrationen in der 1. Versuchsreihe





Vor Beginn jeder Versuchseinstellung wurde die Ammoniakwasser-Eindüsung für 10 Minuten abgestellt, um die NO_x-Emissionen im Reingas bei einem sogenannten "Nullversuch" zu registrieren. Vor der 1. Versuchsreihe lagen die NO_x-Konzentrationen bei abgeschalteter NH₃-Eindüsung bei 744 mg/Nm³. In der Versuchsreihe 1 wurden 100% des Reduktionsmittelbedarfs durch die Eindüsungsstelle "Calcinator Unten" eingedüst. Um den NO_x-Zielwert von 200 mg/Nm³ zu erreichen, reichte die zunächst vorgesehene Eindüsung über 2 Lanzen mit bis zu 400 l/h nicht aus. Erst durch den Betrieb mit 3 Lanzen und einer Ammoniakwassermenge von bis zu 568 l/h (bezogen auf die NO_x-Konzentration im Ofeneinlauf liegt das Molverhältnis NH₃/NO_x bei 1,15; bezogen auf die NO_x-Konzentration im Reingas des Nullversuches liegt das Molverhältnis NH₃/NO_x bei 2,07) sank die NO_x-Emission am Kamin auf etwa 217 mg/Nm³ (bei 10 Vol.-% O₂).

Basierend auf der vom Werk gemessenen NO_x -Konzentration von 3.366 mg/Nm³ (2.021 mg/Nm³ bei 10 Vol.-% O_2) im Ofeneinlauf ergibt sich rechnerisch eine Minderungsrate von 89%. Dies bestätigend lag die durch das FIZ gemessene NO_x -Konzentration im Bereich des Steigschachtes (Messstelle M1) bei 3.383 mg/Nm³.





Im weiteren Verlauf des Calcinators zeigen die FIZ-Messungen, dass die NO_x-Konzentration deutlich abfällt. Die Reduktion der Stickoxide wird besonders im unteren Bereich des Calcinators durch die Reaktion mit dem eingedüsten Ammoniakwasser und die gestufte Verbrennungsführung deutlich. Wie man in der Abbildung 3.12 sieht, nahm die NO_x-Konzentration zwischen den Messebenen Steigschacht und Calcinator Mitte sehr stark ab. Dort fällt die NO_x- Konzentration bis auf 1.286 mg/Nm³ (882 mg/Nm³ bei 10 Vol.-% O₂). Dieser starke Abfall ist vermutlich vornehmlich auf die Reduktion durch die gestufte Verbrennungsführung (hohe CO-Konzentration) zurückzuführen. Im weiteren Verlauf fällt die NO_x-Konzentration von 1.286 mg/Nm³ bis 1.026 mg/Nm³ (704 mg/Nm³ bei 10 Vol.-% O₂) zwischen den Messstellen Calcinator Mitte und Calcinator Oben geringer ab. Das ist vermutlich auf die abnehmende Reaktion zwischen CO und NO zurückzuführen.

Durch die Einspeisung der Tertiärluft kommt es zunehmend zu einer Oxidation des CO, wodurch die Reaktion zwischen NO und CO zurückgedrängt wird. Im weiteren

Verlauf des Calcinators kommt es nunmehr zu einer Reaktion zwischen dem eingedüsten Ammoniak und dem NO, wodurch es bis zur Messstelle Schwanenhals zu einer weiteren deutlicheren Reduktion des NO kommt. Die NO_x-Konzentration fällt bis auf 590 mg/Nm³ (390 bei 10 Vol.-% O₂). Aufgrund der Tatsache, dass die NO_x-Konzentration im Reingas mit 217 mg/Nm³ unterhalb des vorgenannten Wertes liegt, schreitet die Reduktion des NO_x im weiteren Verlauf des Calcinators fort. Dies bestätigend zeigen die NH₃-Messungen, dass an der Messstelle Schwanenhals noch geringe NH₃-Konzentrationen gemessen wurden (siehe Tabelle 3.14). Die weiteren Versuchseinstellungen bestätigen weitestgehend die vorgenannten Betrachtungen.

Während der Versuchsreihe 2 wurde zur Erreichung des Zielwertes von 200 mg/Nm³ NO_x im Reingas 400 l/h (bezogen auf die NO_x-Konzentration im Ofeneinlauf liegt das Molverhältnis NH₃/NO_x bei 0,84; bezogen auf die NO_x-Konzentration im Reingas des Nullversuches liegt das Molverhältnis NH₃/NO_x bei 1,46) Ammoniakwasser durch die Eindüsungsstelle "Schwanenhals" eingedüst. Im Vergleich zur 1. Versuchsreihe konnte somit bei geringerer Eindüsemenge der Zielwert erreicht werden.

Basierend auf der vom FIZ gemessenen NO_x-Konzentration von 3.340 mg/Nm³ (2.026 mg/Nm³ bei 10 Vol.-% O₂) im Bereich des Steigschachtes ergibt sich rechnerisch eine Minderungsrate von 90%. Dies bestätigend lag die durch das Werk gemessene NO_x-Konzentration im Bereich des Steigschachtes bei 3.216 mg/Nm³ (1.951 mg/Nm³ bei 10 Vol.-% O₂) etwas höher als die Werksmessung im Ofeneinlauf (siehe Abbildung 3.13).



Abbildung 3.13: Verlauf der NOx-, O2- und CO-Konzentrationen in der 2. Versuchsreihe

Vor dieser Versuchsreihe lag die NO_x-Konzentrationen im "Nullversuch" bei 727 mg/Nm³ im vergleichbaren Bereich wie in der Versuchsreihe 1. Während bei dieser Versuchseinstellung die NOx-Reduktion im unteren Teil des Calcinators geringer ausfiel als in der ersten Versuchsreihe, war die Reduktion im oberen Teil des Calcinators und im Bereich des Schwanenhalses deutlich höher. Die geringere Reduktion im unteren Teil des Calcinators ist vermutlich darauf zurückzuführen, dass das Ammoniakwasser später in den Calcinator eingedüst wird und so nicht zur Reduktion der Stickstoffoxide beitragen kann. Positiver Nebeneffekt ist jedoch, dass die starke CO-Bildung, die in Versuchsreihe 1 registriert wurde, durch die spätere Eindüsung des Reduktionsmittels in dieser Versuchsreihe unterdrückt wird (siehe Abbildung 3.13). Dies ist darauf zurückzuführen, dass die Konkurrenzreaktion zwischen der CO-Oxidation und der NH₃-Oxidation nicht stattfindet. Hingegen ist die Reduktion des NO_x nach Eindüsung des Ammoniakwassers im Bereich des Schwanenhalses deutlicher ausgeprägt. Insbesondere nach der Messstelle Schwanenhals (814 mg/Nm³ NO_x) werden die Stickstoffoxide stark reduziert, so dass im Reingas 200 mg/Nm³ NO_x erreicht werden kann. Dies bestätigend konnten an der Messstelle Schwanenhals noch NH3-Konzentrationen von 164,3 mg/Nm³ festgestellt werden.

Während der Versuchsreihe 3 wurde zur Erreichung des Zielwertes von 200 mg/Nm³ NO_x im Reingas 511 l/h (bezogen auf die NO_x-Konzentration im Ofeneinlauf liegt das Molverhältnis NH₃/NO_x bei 0,99; bezogen auf die NO_x-Konzentration im Reingas des Nullversuches liegt das Molverhältnis NH₃/NO_x bei 2,14) Ammoniakwasser durch die Eindüsungsstelle "Calcinator Oben" eingedüst. Im Vergleich zur 2. Versuchsreihe konnte somit bei etwas höherer Eindüsemenge als in der 2. Versuchsreihe der Zielwert erreicht werden. Die NO_x-Konzentration bei Abschaltung der SNCR-Anlage lag zu Versuchsbeginn mit 743 mg/Nm³ im vergleichbaren Bereich wie in der Versuchsreihe 1 und 2.



Abbildung 3.14: Verlauf der NO_x-, O₂- und CO-Konzentrationen in der 3. Versuchsreihe Basierend auf der vom Werk gemessenen NO_x-Konzentration von 3.534 mg/Nm³ (2.054 mg/Nm³ bei 10 Vol.-% O₂) im Ofeneinlauf ergibt sich rechnerisch eine Minderungsrate von 90%. Die durch das FIZ gemessene NO_x-Konzentration im Bereich des Steigschachtes lag mit 2.804 mg/Nm³ (1.630 mg/Nm³ bei 10 Vol.-% O₂) niedriger als die Werksmessung im Ofeneinlauf (siehe Abbildung 3.14).

Zwischen den Messstellen "Steigschacht" und "Calcinator Mitte" nahm die NO_x-Konzentration (von 2.804 bis 1.078) deutlich ab, hingegen an der Messstelle Calcinator Oben nahm die NO_x-Konzentration wieder zu (von 1.078 bis 1.259 mg/Nm³). Im weiteren Verlauf nahm die NO_x-Konzentration wieder ab und lag bei 583 mg/Nm³ an der Messstelle "Schwanenhals". Auch hier konnten geringe NH₃-Konzentrationen festgestellt werden, die darauf hindeuten, dass die NO_x-Reduktion im weiteren Verlauf des Calcinators fortschreitet. Auffallend ist bei dieser Versuchsreihe der NO_x-Anstieg zwischen den Messstellen M2 und M3. Dieser Anstieg ist vermutlich auf die anfängliche Oxidation des eingedüsten Ammoniakwassers durch der Zuführung der Tertiärluft zurückzuführen. Dies bestätigend fällt die Sauerstoffkonzentration von Messstelle M2 nach M3.

Bei der Versuchsreihe 4 wurde im Reingas 302 l/h (bezogen auf die NO_x-Konzentration im Ofeneinlauf liegt das Molverhältnis NH₃/NO_x bei 1,0; bezogen auf die NO_x-Konzentration im Reingas des Nullversuches liegt das Molverhältnis NH₃/NO_x bei 1,51) Ammoniakwasser zwischen den Eindüsungsstellen aufgeteilt, sodass ca. 50% durch die Düse "Calcinator- Oben" und 50% durch die Düse "Schwanenhals" eingedüst wurde. Vor dieser Versuchsreihe lag die NO_x-Konzentrationen im "Nullversuch" bei 537 mg/Nm³ deutlich niedriger als in der vorherigen Versuchsreihen. Basierend auf der vom FIZ gemessenen NO_x -Konzentration von 2.050 mg/Nm³ (1.261 mg/Nm³ bei 10 Vol.-% O₂) im Bereich des Steigschachtes ergibt sich rechnerisch eine Minderungsrate von 84% (siehe Abbildung 3.15).



Abbildung 3.15: Verlauf der NOx-, O2- und CO-Konzentrationen in der 4. Versuchsreihe

Obwohl bei dieser Versuchseinstellung ebenfalls eine effektive NO_X-Reduktion festgestellt wurde, sollten die Ergebnisse wegen der zum Ende der Versuchsreihe aufgetretenen Ofenstörung nochmals überprüft werden.

Nachfolgend sind die mittleren NO_x-Werte der 4 Messstellen aus allen Versuchen auf 10Vol.-% Sauerstoffbezug normiert (Tabelle 3.13) nochmals zusammenfassend dargestellt.

Versuchsreihe		V1	V2	V3	V4
Steigschacht	mg/Nm ³	2031	2026	1630	1261
Calcinator Mitte	mg/Nm ³	882	1231	878	764
Calcinator oben	mg/Nm ³	704	1245	895	951
Schwanenhals	mg/Nm ³	390	534	368	533
Reingas	mg/Nm ³	217	202	202	195*

Tabelle 3.13: Normiertes NOx-Profil im trockenen Zustand bezogen auf 10 Vol.-% Sauerstoff

*Aus handschriftlichen Zeichnungen des FIZ während der Messung abgeschätzt.

Es wird deutlich, dass die NO_x-Fracht aus der Hauptfeuerung in den Versuchsreihen 1 und 2 deutlich höher war als in den beiden anderen Versuchseinstellungen. Möglicherweise ist dies auf die sich andeutende Betriebsstörung zurückzuführen, die in der während des Versuchsabschnitts 4 auftretenden Zyklonverstopfung mündeten.

Je nach Versuchseinstellung kommt es in unterschiedlichen Bereichen des Calcinators zu einer erheblichen NO_x -Reduktion. Diese Reduktion schreitet im weiteren Verlauf des Calcinators fort (nach Schwanenhals), so dass in allen Versuchseinstellungen des NO_x -Zielwert von 200 mg/Nm³ erreicht werden konnte.

Verlauf der NH₃-Emissionen nach der Eindüsung

Während des Versuches wurden die NH₃- Konzentrationen nach der Eindüsung des Reduktionsmittels in der Messstelle "Schwanenhals" und im Reingas nasschemisch bestimmt. Die Ergebnisse dieser Messungen sind in der Tabelle 3.14 dargestellt.

	Zeitraum		Temp.	Druck	abges. Vol.	Abgas- konz.
Probennummer	Beginn	Ende	[°C]	[mbar]	[NL]	[mg NH ₃ /Nm ³] (N., tr.)
Schwanenhals-NH ₃ -V1	09:40	10:10	27,3	1005	62,8	4,7
Schwanenhals-NH ₃ -V1	11:26	11:56	21,8	1008	64,4	6,9
Schwanenhals-NH ₃ -V2	13:35	14:05	28,4	1009	70,6	164,3
Schwanenhals-NH ₃ -V3	15:10	15:40	20,4	1008	74,7	23,6
Schwanenhals-NH ₃ -V4	17:24	17:54	30,4	1008	71,4	23,4
Reingas-NH₃-V1	09:48	10:18	11,1	1006	69,6	2,7
Reingas-NH₃-V3	15:00	15:30	10,9	1008	71,0	2,6

Tabelle 3.14: Ergebnisse der Nasschemie Analyse von dem ersten Messtag

Alle Versuchseinstellungen wurden im Verbundbetrieb durchgeführt. Im Verbundbetrieb werden die NH3-Konzentrationen in der Regel in der Rohmühle an den Rohmehlpartikeln adsorbiert, so dass im Reingas nur geringe NH3-Emissionen auftreten. Dementsprechend zeigten die Ergebnisse der vom FIZ durchgeführten Analysenwerte zwischen 2,6-2,7 mg/Nm3 NH3 im Reingas. (Das Werk hat im Anschluss dieses Versuches einen Versuch im Direktbetrieb durchgeführt. Laut dieser Messung lagen die NH3-Emissionen bei etwa 65 mg/Nm³.)

Die NH₃-Emissionen an der Messstelle "Schwanenhals" haben je nach Versuchseinstellung unterschiedliche Ergebnisse gezeigt. Die höchste NH₃-Emission von 164,3 mg/Nm³ wurde bei der Versuchsreihe 2 erzielt. In dieser Versuchsreihe wurde 100% Reduktionsmittelbedarfs am Schwanenhals eingedüst. Die höhere NH₃-Konzentration ist daher vermutlich auf die noch nicht vollständig abgeschlossenen NH₃/NO_x Reaktion zurückzuführen. Bei den anderen Versuchsreihen wurden ebenfalls geringe Ammoniakkonzentrationen an der Messstelle Schwanenhals festgestellt (siehe Tabelle 3.13). Dies belegt, dass die NO-Reduktion nach der Messstelle Schwanenhals weiter fortschreitet.

Verlauf der gemessenen Temperaturen an den Messstellen

Die Temperaturprofile aus allen Versuchen sind in der folgenden Abbildung 3.16 dargestellt. Die gemessenen Temperaturen an der Messebene Steigschacht lagen bei allen Versuchen in ähnlicher Höhe (Zwischen ca. 819 und 911°C). Wegen der Ofenstörung konnten nicht alle geplanten Temperaturmessungen durchgeführt.



Abbildung 3.16: Mittlere Temperaturprofile aus allen Versuchen in verschiedenen Messebenen Beim Versuch 1 steigt die gemessene Temperatur entlang des Calcinators von 831°C bis auf 873°C kontinuierlich leicht an. In der Versuchsreihe 2 wurde an der Messstelle "Calcinator Oben" mit 862°C eine vergleichbare Temperatur wie in Versuchsreihe 1 gemessen. In der 3.Versuchsreihe war der Temperaturverlauf deutlich schwankender als in den ersten beiden Versuchsreihen. Die Temperatur stieg bis zur Calcinator Mitte stark an, fiel anschließend an der Messstelle M3 ab und anschließend wieder bis auf knapp 900°C wieder an. Diese Schwankungen sind möglicherweise auf eine zunehmende Strähnenbildung im Calcinator zurückzuführen, die ein erstes Indiz für die aufgetretenen Ofenstörung (Zyklonverstopfung) sind. Dementsprechend trat dieser Effekt auch in der letzten Versuchsreihe verstärkt auf.

3.1.3.3 Schlussfolgerung zum zweiten Betriebsversuches

Folgende Aussagen können aus den Versuchsergebnissen abgeleitet werden:

Unabhängig von den Versuchseinstellungen wurden im Bereich des Ofeneinlaufes vergleichsweise hohe NO_x-Konzentrationen (zwischen 3.383 - 2.050 mg/Nm³) festgestellt.

- Im unteren Bereich des Calcinators kommt es zu einer deutlichen Reduktion des NO_x durch die gestufte Verbrennungsführung.
- Dementsprechend lagen die NO_x-Emissionen bei abgeschalteter Ammoniakwasser-Eindüsung ("Nullversuch") bei allen Versuchen mit etwa 730 - 740 mg /Nm³ deutlich niedriger als im Bereich des Ofeneinlaufes. Nach dem letzten Versuch lag die NO_x-Konzentration im Nullversuch aufgrund einer sich ankündigenden Ofenstörung bei etwa 540 mg/Nm³. Dies wurde bei der Auswertung berücksichtigt, indem nur die Versuchszeit vor Eintritt der Ofenstörung ausgewertet wurde.
- Nach der Reduktion der Stickstoffoxide durch die gestufte Verbrennungsführung im Bereich des Steigschachtes kommt es – in Abhängigkeit der eingedüsten Menge und des Zugabeortes des Ammoniakwassers – zu einer weiteren NO_x-Reduktion. Die NO_x-Emissionen konnten in allen Versuchseinstellungen auf das Zielniveau von 200 mg/Nm³ abgesenkt werden.
- Dabei zeigte sich, dass die Eindüsung im Bereich der Messstelle M4 "Schwanenhals" scheinbar der effektivste Zugabeort ist. Der NO_x-Zielwert von 200 mg/Nm³ konnte mit der geringsten Ammoniakwassermenge (etwa 400 l/h: bezogen auf die NO_x-Konzentration im Ofeneinlauf lag das Molverhältnis NH₃/NO_x bei 0,84; bezogen auf die NO_x-Konzentration im Reingas des Nullversuches lag das Molverhältnis NH₃/NO_x bei 1,46) erreicht werden.
- Demgegenüber wurde in den Versuchseinstellungen "Eindüsung im Bereich der Messstelle M1 "Steigschacht" und Messstelle M3 "Calcinator oben" ein höheres Molverhältnis von 1,15 bzw. 0,99 (auf die NO_x-Konzentration im Nullversuch bezogen, lag das Molverhältnis bei 2,07 bzw. 2,14) benötigt, um den Zielwert einzuhalten.
- Bei der Versuchseinstellung 4 im Bereich der Messstellen M3 "Calcinator oben" und M4 "Schwanenhals" lag das Molverhältnis bei 1,0 (auf die NO_x-Konzentration des Reingases im Nullversuch bezogen, lag das Molverhältnis bei 1,51).
- Ein signifikanter Ammoniakschlupf konnte in allen Versuchseinstellungen nicht festgestellt werden. Bei allen durchgeführten Kurzzeitversuchen lag die NH₃-Emission im Reingas (im Verbundbetrieb) bei ca. 3 mg/Nm³.
Die Messungen haben somit gezeigt, dass die auf Grundlage der ersten Simulationsergebnisse vorgeschlagenen Maßnahmen, eine deutliche Verbesserung hinsichtlich der Effektivität der SNCR-Reaktion im untersuchten Calcinatorsystem brachte.

3.2 Modellierung Gasphasenkinetik / heterogene Reaktionen (LUAT/FIZ)

Die Zielsetzung der Entwicklung eines effizienten SNCR-Verfahrens an Drehofenanlagen der Zementindustrie erweitert das Anforderungsprofil an handelsübliche numerische Simulationen. Dieser Anwendungsfall erfordert eine detaillierte Modellierung der im Vorcalcinator beginnenden Umsetzung von Rohmehl zu Zementklinker. Hierbei sind die Abläufe der Calcinierung und der Sulfatisierung zu berücksichtigen. Weiterhin wird zur fundierten Beurteilung der Effizienz von SNCR-Verfahren eine detaillierte und realitätsgetreue Abbildung der Stickoxidkonzentration sowie des Ammoniakschlupfes im Vorcalcinator benötigt. Zu diesen Zementanlagen sowie zielsetzungsspezifischen Phänomenen wurden jeweils Simulationsmodelle auf Grundlage des aktuellen Forschungsstandes entwickelt. Sie werden im Folgenden vorgestellt.

3.2.1 Modellierung der Calcinierungsreaktion

Die Simulation der Calcinierungs- und der Sulfatisierungsvorgänge an (Kalkmehl-) Partikeloberflächen werden nach einem erweiterten Shrinking Core Modell berechnet. Hierbei wird das Kalkmehlpartikel als eine Kugel betrachtet, deren Kern von den inerten Bestandteilen (silizium- und aluminiumoxidischen Verbindungen) gebildet wird. Dieser Kern ist von einer Calciumcarbonat-Schale (CaCO3) umgeben, die wiederum von einer Calciumoxid-Schale (CaO) ummantelt ist. Die äußere Schale des Partikels besteht aus einer CaSO4-Schicht. Im Verlauf des Calcinierungsvorgangs wandern die Reaktionsfronten zwischen den Schalen von außen ins Korninnere; die an den chemischen Reaktionen beteiligten Gase Kohlenstoffdioxid (CO2) und Schwefeldioxid (SO2) diffundieren durch die Schalen hindurch. Bei dieser Modellvorstellung finden die Reaktionen ausschließlich an den Reaktionfronten, die sich von der Partikeloberfläche nach innen bewegen, statt. Hierzu entgegengesetzt, diffundieren die gasförmigen Reaktionsprodukte und Edukte durch die darüber liegenden Schichten nach außen (Calcinierung) bzw. innen (Sulfatisierung).

Bei der endothermen Calcinierungsreaktion ($\Delta h = 170 \text{ kJ/mol}$) wird das CaCO3 des Kalkmehls in CaO und CO2 an die Gasphase überführt. Das freigesetzte CO2 und die dafür benötigte Reaktionswärme werden in der Berechnung der Gasphase durch Quell- und Senkterme berücksichtigt. Die Reaktionsgeschwindigkeit wird nach dem Modell von Vonderbank durch die Kopplung von vier Reaktionswiderständen ermittelt. Berücksichtigt werden hierbei der kinetische Widerstand (R1), der Widerstand der Diffusion durch die poröse CaO-Schicht (R2), die Diffusion durch die CaSO4-Schicht (R3), sowie der Widerstand der Diffusion durch den Grenzfilm in die Gasphase (R4).



Calcinierung:

$$CaCO_3 \rightarrow CaO + CO_2$$

$$\frac{\partial M_{CaCO_3}}{\partial t} = -\pi \cdot d_{CaCO_3}^2 \cdot M_{CaCO_3} \cdot \frac{\partial CO_2, s1}{\sum_{i=1}^4 R_{i,C,ST}}$$

Sulfatisierung:



Abbildung 3.17: Calcinierungs- und Sulfatisierungsmodell

Bei der Sulfatisierung reagiert ein Teil des entstandenen CaO mit dem in der Gasphase befindlichen SO₂ zu CaSO₄. Die Sulfatierung verläuft unter den im Calcinator vorliegenden Bedingungen deutlich langsamer und der Calcinierung entgegen. Das SO₂ reagiert mit dem bei der Calcinierung gebildeten CaO und Sauerstoff zu CaSO₄. Die Reaktionsgeschwindigkeit wird analog zur Calcinierung durch die Kopplung von drei Widerständen (Reaktion, Diffusion durch die CaSO₄ Schicht und die Diffusion durch die Grenzschicht der Gasphase) berechnet. Für eine genauere Betrachtung der Calcinierungs- und Sulfatisierungsmodelle sei auf [2–4] verwiesen.

3.2.2 Experimentelle Untersuchung der SNCR-Chemie

Das Forschungsinstitut der Zementindustrie (FIZ) führte zur Bestimmung der spezifischen Einflüsse des Rohmaterials auf die SNCR-Kinetik umfangreiche Laborversuche durch.

3.2.2.1 Experimenteller Aufbau

Hierfür wurden Untersuchungen an einem Modellofen (siehe Abbildung 3.18 links) in einer realitätsnahen Rohgasatmosphäre einer Drehofenanlage der Zementindustrie angestellt. Dabei wird Rohmehl mit Hilfe von Quarzwolle in einer dreidimensionalen Matrix (siehe Abbildung 3.18 rechts) eingebunden und in einem beheizten Reaktionsraum von Mischgasen umströmt. Die Messungen der Gaszusammensetzung vor Eintritt und nach Austritt aus dem Reaktionsraum sollten Auskunft über die Einbindung der N-haltigen Gaskomponenten bei unterschiedlichen Bedingungen an der Partikeloberfläche des Rohmaterials geben. Dabei wurden zunächst Referenzversuche mit einer definierten Gasmischung ohne Rohmaterial bei betriebsähnlichen Temperaturen durchgeführt. In weiteren Versuchen wurden die Gase O₂, CO, CO₂, NO, NH₃, CH₄ und Wasser sowie die Temperatur variiert. Anschließend wurde bei gleichen Versuchsparametern eine definierte Menge an Rohmehl in die Matrix eingesetzt. Auf diese Weise sollten konkurrierende Mechanismen der Anbindung der Gaskomponenten an der Partikeloberfläche des Feststoffkorns festgestellt werden.



Abbildung 3.18: Links: Laboröfen mit Rohrreaktoren; Rechts: Rohmehl im Rohrreaktor

Der Aufbau der Versuchsanlage ist in Abbildung 3.19 dargestellt. Die Temperaturmessung erfolgte über ein gekapseltes Ni-Cr-Ni-Thermoelement, das entlang der Modellofenachse angebracht war. Der Temperaturmesswert wurde als Ist-Wert für die Regelung des Modellofens verwendet, so dass die Temperatur im Festbett zuverlässig auf einen Soll-Wert eingestellt werden konnte. Die Aufzeichnung der Temperatur- und Gaskonzentrations-Messwerte erfolgten über eine Messdatenerfassung. Messungen der Gaszusammensetzung vor Eintritt und nach Austritt aus dem Reaktionsraum geben Auskunft über die Einbindung der N-haltigen Gaskomponenten bei unterschiedlichen Prüfgasmischungen an der Partikeloberfläche des Rohmaterials.



Abbildung 3.19: Aufbau der Laborapparatur zur Untersuchung der SNCR-Kinetik Zur Einstellung der speziellen Atmosphären wurde ein Mehrkanal-Gasflussregler verwendet, über den der Volumenstrom der jeweiligen Gaskomponente in cm³/min einzustellen ist. Über die anschließende Gasanalyse konnten die Zusammensetzung durch Variation der Zuflüsse geregelt werden.

Eine zusätzliche Kontrollmessung der Sauerstoffkonzentration diente dazu, Undichtigkeiten in der Apparatur auszuschließen. Um die Gasanalysatoren von Feuchtigkeit zu schützen, wurde das Abgas zuvor in einem Glaskühler mit Kondensatabscheider auf 2 °C gekühlt. Der Modellofen verfügt über zwei Gasaustritte. Über den Einen wurde das Gas durch den Modellofen und über die Feststoffprobe zur Gasanalyse gesaugt. Über den Anderen konnte überschüssiges Gas unter atmosphärischen Druck entweichen. Dadurch wurde sichergestellt, dass die Versuche trotz Schwankungen des Gasvolumenstroms am Modellofeneintritt bei konstantem Druck stattfinden.

3.2.2.2 Versuchsplan

Im Rahmen der Laborversuche wurden mehr als 50 Versuchsreihen durchgeführt. Die Versuche wurden zur Reproduzierbarkeit mehrfach wiederholt. Die Tabelle 3.15 enthält die Versuchseinstellungen die während Laborversuche detailliert untersucht wurden. Im Modellofen wurde in allen Versuchen (mit Ausnahme des Ersten Versuches) eine übliche Rohgasatmosphäre (3 Vol.-% O₂, 500 ppm NO und 30 Vol.-% CO₂) eingestellt. Bei allen Versuchen wurde die Temperatur stufenweise von 600 °C auf 750 °C und schließlich auf 990 °C erhöht. Nachdem in Versuchsreihe 1 die SNCR-Reaktion unter Luft untersucht wurde, wurden die folgenden Versuche grundsätzlich unter Rohgasbedingungen durchgeführt. Anschließend wurde in den folgenden Versuchsreihen durch Variation der NH₃-Konzentrationen zwischen 50 und 200 ppm, der NO-

Konzentrationen zwischen 200 und 1.000 ppm, der CO₂ - Konzentrationen zwischen 10 und 30 Vol.-%, der H₂O- Konzentrationen zwischen 4 und 10 Vol.-%, der CH₄-Konzentration von 50 bis 200 ppm und die O₂ -Konzentration zwischen 1 und 8 Vol.-% deren Einfluss auf die SNCR-Reaktion untersucht. Anschließend wurden zum Einfluss des Kalksteins auf die SNCR-Chemie drei Versuchsreihen durchgeführt (Versuchsreihen 10 bis 12).

Marca at	Versuch		Temperatur	NO	O2	со	NH ₃	H ₂ O	CO ₂	N ₂	CH4
Versuch			[°C]	[ppm]	[%]	[%]	[mgq]	[%]	[%]		[%]
				675 mg							
Vorversuch 1 (langsame Temperaturrampe)			600 bis 990	500	3,0	-	100	10	30	Rest	
			(600, 750, 990)								
variation NH3		а	600/750/990	500	-	-	50	-	-	Rest	
	4	b	600/750/990	500	-	-	100	-	-	Rest	
	1	С	600/750/990	500	-	-	150	-	-	Rest	
		d	600/750/990	500	-	-	200	-	-	Rest	
	2	а	600/750/990	500	3	500 ppm	50	10	30	Rest	
		b	600/750/990	500	3	500 ppm	100	10	30	Rest	
alle Komponenten, variation NH3		с	600/750/990	500	3	500 ppm	150	10	30	Rest	
		d	600/750/990	500	3	500 ppm	200	10	30	Rest	
		а	600/750/990	500	3	100 ppm	100	10	30	Rest	
alle Komponenten Apriation CO	2	b	600/750/990	500	3	300 ppm	100	10	30	Rest	
alle Komponenten, variation CO	3	с	600/750/990	500	3	500 ppm	100	10	30	Rest	
		d	600/750/990	500	3	800 ppm	100	10	30	Rest	
		а	600/750/990	500	1	500 ppm	100	10	30	Rest	
alle Komponenten, variation O2		b	600/750/990	500	2	500 ppm	100	10	30	Rest	
	4	С	600/750/990	500	4	500 ppm	100	10	30	Rest	
		d	600/750/990	500	8	500 ppm	100	10	30	Rest	
alle Komponenten, variation H2O	5	а	600/750/990	500	3	500 ppm	100	4	30	Rest	
		b	600/750/990	500	3	500 ppm	100	6	30	Rest	
		с	600/750/990	500	3	500 ppm	100	8	30	Rest	
		d	600/750/990	500	3	500 ppm	100	10	30	Rest	
alle Komponenten, variation CO2	6	а	600/750/990	500	3	500 ppm	100	10	10	Rest	
		b	600/750/990	500	3	500 ppm	100	10	15	Rest	
		С	600/750/990	500	3	500 ppm	100	10	20	Rest	
		d	600/750/990	500	3	500 ppm	100	10	30	Rest	
	7	а	600/750/990	500	3	500 ppm	100	10	30	Rest	50 ppm
		b	600/750/990	500	3	500 ppm	100	10	30	Rest	100 ppm
alle Komponenten, variation CH4		с	600/750/990	500	3	500 ppm	100	10	30	Rest	150 ppm
		d	600/750/990	500	3	500 ppm	100	10	30	Rest	200 ppm
	8	а	600/750/990	200/268	-	-	100	-	-	Rest	
variation NO		b	600/750/990	400/536	-	-	100	-	-	Rest	
		с	600/750/990	600/804	-	-	100	-	-	Rest	
		d	600/750/990	800/1072	-	-	100	-	-	Rest	
alle Komponenten, variation NO	9	а	600/750/990	200/268	3	500 ppm	100	10	30	Rest	
		b	600/750/990	400/536	3	500 ppm	100	10	30	Rest	
		С	600/750/990	600/804	3	500 ppm	100	10	30	Rest	
		d	600/750/990	800/1072	3	500 ppm	100	10	30	Rest	
		d2	600/750/990	800/1072	3	500 ppm	100	10	30	Rest	
	10	а	600/750/990	500	-	-	50	-	-	Rest	
variation NH3, Mit Heißmehl		b	600/750/990	500	-	-	100	-	-	Rest	
		С	600/750/990	500	-	-	150	-	-	Rest	
		d	600/750/990	500	-	-	200	-	-	Rest	
variation NO, Mit Heißmehl	11	а	600/750/990	200/268	-	-	100	-	-	Rest	
		b	600/750/990	400/536	-	-	100	-	-	Rest	
		С	600/750/990	600/804	-	-	100	-	-	Rest	
		d	600/750/990	800/1072	-	-	100	-	-	Rest	
		а	600/750/990	200/268	3	500 ppm	100	10	30	Rest	
alle Komponenten, variation NO, Mit Heißme	e 12	b	600/750/990	400/536	3	500 ppm	100	10	30	Rest	
		b2	600/750/990	400/536	3	500 ppm	100	10	30	Rest	
		с	600/750/990	600/804	3	500 ppm	100	10	30	Rest	
		d	600/750/990	800/1072	3	500 ppm	100	10	30	Rest	

Tabelle 3.15: Versuchsprogram zur Bestimmung der kalksteinspezifischen Einflüsse auf die SNCR-Chemie

3.2.2.3 Versuchsdurchführung und Diskussion der erzielten Ergebnisse

Versuche ohne Partikel

Zunächst wurde die Reaktion zwischen NH₃ und NO unter den realitätsnahen Rohgasbedingungen untersucht. Die NO-Konzentrationen wurden dabei bei 500 ppm konstant gehalten und die NH₃-Konzentrationen wurden zwischen 50 und 200 ppm variiert. Die Ergebnisse dieser Versuche sind in Abbildung 3.20 zu finden. Er zeigt sich, dass die Reaktion zwischen NH₃ und NO bei ca. 800 °C startet und bei 870 °C am effektivsten abläuft. Mit zunehmender Temperatur nimmt die Reduktion ab, da oberhalb von 850 °C die Oxidation von Ammoniak zunimmt. Diese Ergebnisse bestätigen die aus Literatur bekannten Abläufe.





Als nächstes wurde die vorgenannte Reaktion unter Variation von anderen Gaskomponenten – wie CO, O₂, CO₂, CH₄ und Wasser - durchgeführt. Es wird deutlich, dass durch die Anwesenheit von CO die Reduktion von NO im Temperaturbereich zwischen 650 und 850 °C gefördert wird. Oberhalb von 850 °C ist keine Minderung mehr zu erkennen. Hier scheint eine Oxidation von CO zuzunehmen. Hinsichtlich der Erhöhung des Sauerstoffgehaltes wird deutlich, dass bei Temperaturen oberhalb von 750°C die NO-Reduktion im Vergleich zum Referenzzustand abnimmt. Die Oxidation von NH₃ scheint sich hier deutlich zu erhöhen, sodass die Bildung von NO zunimmt. Ein signifikanter Einfluss konnte nicht festgestellt werden.



Abbildung 3.21: Verlauf der NH₃/NO Reaktion abhängig von der Temperatur und anderen Gaskomponenten

Die übrigen Untersuchungen haben gezeigt, dass die Gaskomponenten CH_4 , CO_2 und H_2O nur geringe beziehungsweise nicht messbare Einflüsse auf die SNCR-Chemie haben.

Versuche mit Kalksteinpartikeln

Im nächsten Schritt sollte der Einfluss des Rohmehls auf die vorgenannten Reaktionsabläufe untersucht werden. Dazu wurden die gleichen Versuchseinstellungen wie zuvor eingestellt. In den Versuchsreaktor wurde eine definierte Menge an Rohmehl eingesetzt. Bei den Versuchen mit Kalksteinpartikel wurde bei einer konstanten NO-Konzentration von 500 ppm die NH₃-Konzentrationen zwischen 50 und 200 ppm variiert.



Abbildung 3.22: Einfluss des Heißmehls auf die SNCR-Reaktion

Bei allen Versuchen zeigte sich, dass durch die Anwesenheit von Kalkstein die NO-Reduktion bevorzugt wird (siehe Abbildung 3.22). Diese Beobachtungen wurden sowohl bei den Variationen der NH₃-Konzentrationen als auch bei den Variationen der NO-Konzentrationen festgestellt - unabhängig von der Gasatmosphäre (N₂ oder Rohgasbedingungen).

Die Laborversuche zur Bestimmung kalksteinspezifischer Einflüsse auf die SNCR-Chemie wurden in Absprache mit den anderen Projektpartnern planmäßig durchgeführt. Die gewonnenen Erkenntnisse wurden vom LUAT direkt auf eine reale Anlage übertragen, um eine strömungstechnische Optimierung der Vermischung im Reaktionsraum zu erarbeiten. Daraus wurden generelle Aussagen abgeleitet, die auf Vorcalcinieranlagen anderer Bauart übertragen werden können. Mit der aus mehreren Submodellen zusammen geführten Simulationsmethodik wurde dann die Untersuchung einer Industrieanlage durchgeführt.

3.2.3 Modellierung der NO_x-Bildung und –Reduktion

Im Rahmen der CFD-Simulation benötigen neben der Rohmehlumsetzung auch die Bildung und die Reduktion von Stickoxiden (NO_x) eine detaillierte Betrachtung. Die NO_x-Bildung findet hierbei durch Oxidation von molekularem Stickstoff N₂ statt. Hierzu sind drei unterschiedliche Reaktionswege bekannt: die thermische NO_x-Bildung, das Brennstoff-NO_x sowie das prompten NO_x [5]. Abbildung 3.23 gibt eine schematische Übersicht über die einzelnen Reaktionswege der NO_x-Bildung und Reduktion. Die Bildungswege sind in dieser Abbildung grün sowie hell- und dunkelblau dargestellt und werden im folgenden Abschnitt näher erläutert.

Zur Reduktion des gebildeten Stickoxidanteils wird in diesem Forschungsprojekt die selektive nichtkatalytische Reduktion (selective non-catalytic reduction, SNCR) durch Zugabe einer Ammoniaklösung untersucht. Die SNCR-Umwandlungsprozesse sind in Abbildung 3.23 rot dargestellt und werden in Abschnitt X detailliert beschrieben.



Abbildung 3.23: NO_X-Bildung und -Reduktion

3.2.3.1 NOx-Bildung

Unter thermischer NOx-Bildung wird die Oxidation von gasförmigem Stickstoff verstanden. Dieser Reaktionsweg wird allgemein auch als Zeldovich-Mechanismus bezeichnet und ist durch die Reaktionen

$$0 + N_2 \rightleftharpoons N + NO \tag{Gl. 3.1}$$

$$N + O_2 \rightleftharpoons O + NO \tag{Gl. 3.2}$$

charakterisiert. Eine erweiterte Beschreibung berücksichtigt zusätzlich die Umsetzung von Hydroxyl-Radikalen OH aus der Verbrennung.

$$N + OH \rightleftharpoons H + NO \tag{Gl. 3.3}$$

Die Ausgangsreaktionen der thermischen NO_x-Bildung sind hierbei endotherm. Dies äußert sich in einer exponentiellen Temperaturabhängigkeit, welche auch in Abbildung 3.24 ersichtlich wird. Ab Temperaturen von etwa 1000-1200 °C ergeben sich signifikante Stickoxidkonzentrationen aus der thermischen NOx-Bildung. Der Calcinierungsprozess bei der Zementherstellung läuft üblicherweise deutlich unterhalb dieser Temperatur ab.

Weitere NO_x-Bildungsraten ergeben sich bei der thermischen Umsetzung von stickstoffhalten Brennstoffen. Die hieraus entstehenden Stickoxide werden als Brennstoffoder Fuel-NO_x bezeichnet. Die Umwandlung findet hierbei über Radikale wie HCN, NH₃, N, CN oder NH statt, welche anschließend oxidiert werden.

$$Brennstoff N \longrightarrow HCN, NH_3, N, CN, NH \xrightarrow{Oxidation} NO \qquad (Gl. 3.4)$$

Die Bildung von Brennstoff-NO_x verläuft proportional zur Verbrennungstemperatur (vgl. Abbildung 3.24) und stellt bei anwendungstypischen Temperaturen die ausschlaggebende Quelle der NO_x-Bildung dar. Weiterhin sorgen die Kohlenwasserstoffradikale CH des Brennstoffes für einen separaten Reaktionsweg der NO_x-Bildung. Dieser wird allgemein als promptes NO_x bzw. als Fenimore-Mechanismus bezeichnet. Nach der Umsetzung der Kohlenwasserstoffe mit molekularem Stickstoff zu Blausäure HCN

$$CH + N_2 \rightleftharpoons HCN + N$$
 (Gl. 3.5)

reagiert die entstandene Blausäure über Cyanide CN zu Stickstoffmonoxid.

$$HCN + OH \rightleftharpoons CN + H_2O \tag{Gl. 3.6}$$

$$CN + O_2 \rightleftharpoons NO + CO$$
 (Gl. 3.7)

Gleichzeitig wird der elementare Stickstoff der Ausgangsreaktion thermisch zu NO umgesetzt.

$$N + O_2 \rightleftharpoons O + NO \tag{Gl. 3.8}$$

Dieser Mechanismus des prompten NO_x nimmt insgesamt in allen Temperaturbereichen nur einen geringen Anteil an der Gesamtstickoxidbildung ein und steigt mit höheren Temperaturen geringfügig an.



Abbildung 3.24: Temperaturabhängigkeit der NO_X-Bildung nach [6]

Im Wesentlichen setzen sich Stickoxide aus Stickstoffmonoxid NO und in geringen Umfang aus Stickstoffdioxid NO₂ zusammen. In der numerischen Simulation werden die Umsetzung und der Transport von Stickoxiden daher durch NO abgebildet. Dies ist aufgrund der Tatsache, dass NO im typischen Anwendungsfall etwa 95% der Stickoxide ausmacht, eine plausible Annäherung. Numerisch wird die zuvor beschriebene NO_x-Bildung durch eine zusätzliche Transportgleichung für Stickstoffmonoxid NO berechnet. Die Rechenzeit der Simulation wird hierdurch nur sehr geringfügig erhöht. [7]

3.2.3.2 NOx-Reduktion

Zur Reduktion der gebildeten Stickoxide wird in diesem Forschungsprojekt die Zugabe von Ammoniakwasser im Zuge der selektiven nichtkatalytischen Reaktion (SNCR) untersucht. Das zugeführte Ammoniak NH₃ ermöglicht die Oxidation des Stickstoffmonoxids NO zu Stickstoff N₂ und Wasserdampf H₂O. Zur Modellierung dieses Reaktionsweges existieren mehrere Ansätze mit unterschiedlichen Detaillierungsgraden. Im verwendeten Simulationsprogramm ANSYS Fluent 14.0 ist ein globales Reaktionsmodell implementiert, welches auf zwei Reaktanden basiert [7]. Weiterführend wurde im Rahmen des Forschungsprojektes ein erweitertes Reaktionsmodell als User Defined Function (UDF) erarbeitet, welches vier zusätzliche Stoffe als Zwischenprodukte der chemischen Umsetzung berücksichtigt. Beide Modelle werden nachfolgend vorgestellt.

Globales Standard-Reaktionsmodell (2 Reaktanden)

Das globale Modell bildet den Effekt der NH_3 -Zugabe anhand von zwei homogenen Reaktionen innerhalb der Gasphase ab. Neben der Oxidation des NH_3 zu N_2 wird die Reduktion zu NO berücksichtigt. [5]

$$NO + NH_3 + \frac{1}{4}O_2 \rightleftharpoons N_2 + \frac{3}{2}H_2O$$
 Oxidation (Gl. 3.9)

$$NH_3 + \frac{5}{4}O_2 \rightleftharpoons NO + \frac{3}{2}H_2O$$
 Reduktion (Gl. 3.10)

Die Reduktion des NH₃ setzt es unter relativ hohem Sauerstoffbedarf zu NO um und erhöht auf diese Weise die NO_x-Konzentration. Die Oxidation des NH₃ wirkt entgegengesetzt: Unter geringem Sauerstoffeinsatz wird NO mit NH₃ zu N₂ und H₂O umgewandelt. Zur effizienten NO_x-Minderung ist ein verstärkter Ablauf der NH₃-Oxidation anzustreben. Dies geschieht insbesondere bei niedrigem O₂- und hohem NO-Gehalt. Dieses globale Reaktionsmodell gibt die Umsetzung von NH₃ zu Stickstoff oder NO anhand der zwei angegebenen Reaktionen wieder. Dabei entstehende Zwischenprodukte und deren spezifische Umwandlung werden hingegen vernachlässigt. Diesen Ansatz greift das in diesem Forschungsprojekt entwickelte erweiterte Reaktionsmodell auf.

Erweitertes Reaktionsmodell (6 Reaktanden)

Im erweiterten Reaktionsmodell werden neben den beiden Reaktionen der NH₃-Oxidation und -Reduktion vier weitere Reaktionen berücksichtigt. Eine solche Berechnung umfasst die als Zwischenprodukte gebildeten Radikale H^{*}, OH^{*} und NH₂^{*}. So reagiert Ammoniak NH₃ mit OH^{*}-Radikalen unter der Bildung von Wasserdampf zu NH₂^{*}-Radikalen.

$$NH_3 + 0H^* \rightleftharpoons NH_2^* + H_20 \tag{Gl. 3.11}$$

Für deren Weiterumsetzung existieren zwei Reaktionswege. Zum einen können sich NH₂*-Radikale mit Stickstoffmonoxid NO zu Stickstoff N2 sowie Wasserdampf H₂O umwandeln. Dieser Vorgang wird als Reduktion bezeichnet und durch die Gleichung

$$NH_2^* + NO \rightleftharpoons N_2 + H_2O \tag{Gl. 3.12}$$

beschrieben. Weiterhin besteht die Möglichkeit einer Oxidation der NH₂*-Radikale zu HNO sowie H*-Radikalen entsprechend der Gleichung:

$$NH_2^* + 0^* \rightleftharpoons HNO + H^* \tag{Gl. 3.13}$$

Das so entstehende HNO würde in einer Anschlussreaktion Zuge einer Reaktion mit OH*-Radikalen Stickstoffmonoxid NO bilden.

$$HNO + OH^* \rightleftharpoons NO + H_2O \tag{Gl. 3.14}$$

Die Berücksichtigung der Zwischenprodukte in Form von H^{*}, OH^{*} und NH₂^{*}-Radikalen hat somit im Wesentlichen zwei Reaktionswege: Die Bildung von Stickoxiden durch eine NH₂^{*}-Oxidation sowie ein Abbau von Stickoxiden durch NH₂^{*}-Reduktion. Dies ist in roter Farbe in der schematischen Abbildung 3.23 dargestellt.

Das Verhältnis zwischen NH₂*-Oxidation und -Reduktion ist hierbei stark temperaturabhängig. So läuft bei niedrigeren Temperaturen verstärkt die NH₂-Reduktion und somit eine NO-Verringerung ab. Bei hohen Temperaturen konzentriert sich die NH2-Umwandlung auf die Oxidation und somit eine NO-Bildung. Daher ist aus diesen Gesichtspunkten bei der NO_x-Reduktion mittels SNCR prinzipiell die Eindüsung bei niedrigen Temperaturen wünschenswert. Dem entgegen steht die Tatsache, dass bei niedrigen Temperaturen die NH₃-Umsetzung generell absinkt und somit ein NH₃-Schlupf ansteigt. Daher existiert ein optimales Temperaturfenster, das zur ausreichenden NH₃-Umsetzung hoch genug ist, aber zur möglichst effizienten NO-Reduktion möglichst niedrig liegt. Ein solches Temperaturfenster liegt zwischen etwa 870 und 970 °C. Die folgende Abbildung 3.28 stellt dies schematisch dar.



Abbildung 3.25: Temperaturabhängige NO-Bildung und NH₃-Schlupf

Simulationsimplementierung

Die Implementierung der vorgestellten Reaktionsmodelle in die numerische Simulation findet auf zwei unterschiedliche Weisen statt. Das globale Standard-Modell ist in der genutzten Simulationsumgebung ANSYS Fluent 14.0 integriert und kann über eine Menüauswahl der Berechnung zugeschaltet werden. Das erweiterte Reaktionsmodell wurde als ein eigenes Programm unter Berücksichtigung der von ANSYS Fluent 14.0 eröffneten Schnittstellen als User Defined Function (UDF) implementiert und als solches im Programm aktiviert verwendet.

3.2.4 Validierung anhand von Laboruntersuchungen

Die entwickelten Modelle zur Beschreibung der Calcinierung und SNCR-Vorgänge wurden anhand von Laboruntersuchungen validiert, siehe Abschnitt 3.2.2. Die beschriebene Versuchsanordnung wurde am LUAT im Rahmen einer eindimensionalen CFD-Simulation modelliert. Die nachfolgende Abbildung 3.26 zeigt den erstellten Versuchsaufbau.



Abbildung 3.26: Simulation der Laborversuche am VDZ

Exemplarisch wird in Abbildung 3.27 die NO-Umsetzung in Abhängigkeit der Verweilzeit im Rohrreaktor für zwei ausgewählte NH₃/NO-Molverhältnisse dargestellt. Die labortechnisch aufgenommenen Versuchswerte sind dort als Messpunkte eingefügt. Die mittels globalem Standard- sowie detailliertem Reaktionsmodell berechneten Simulationsergebnisse sind als gestrichelte bzw. durchgezogene Linien hinterlegt.





Das globale Reaktionsmodell liefert für diese Untersuchungen Ergebnisse mit einer mittleren absoluten Abweichung von 28,1 Prozent. Das detaillierte Modell weist für die dargestellten Kurven eine mittlere absolute Abweichung von 7,7 Prozent zu den experimentellen Daten auf. Hierbei spiegelt das detaillierte Reaktionsmodell insbesondere bei niedrigen Verweilzeiten die Versuchsergebnisse genauer wider. Darüber hinaus liegen seine Ergebnisse durch die Berücksichtigung der Radikale H^{*}, OH^{*}, NH₂^{*} als Zwischenprodukte bei allen Untersuchungsparametern näher an den Messwerten.

Auf Grundlage der durchgeführten Validierungsrechnungen wird ersichtlich, dass das detaillierte Reaktionsmodell eine höhere Ergebnisgenauigkeit besitzt als das globale Standardmodell. Daher wird im Rahmen der in diesem Forschungsprojekt durchgeführten CFD-Simulationen das detaillierte Reaktionsmodell zur NO_x-Modellierung genutzt.

3.3 Modellierung der Partikel-Tropfen-Interaktionen (LEAT)

Für die Anwendung des SNCR-Verfahrens, bei dem ein flüssiges Reduktionsmittel in den Rauchgasstrom eingedüst wird, bietet in einem modernen Zementwerk der Calcinator grundsätzlich die besten Bedingungen. Vor allem liegt die Rauchgastemperatur im Bereich von 850 °C (resultierend aus dem Gleichgewichtszustand der endothermen Entsäuerungsreaktion) innerhalb des engen wirtschaftlichen Temperaturfensters der Technik. Allerdings macht die Zerstäubung in einen derart hoch mit Partikel beladenen Gasstrom die Beschreibung des komplexen Systems sehr schwierig, da davon ausgegangen werden muss, dass Partikel-Tropfeninteraktionen das Verdampfungsverhalten des Sprays beeinflussen können. Vor allem für die sensible SNCR-Chemie ist jedoch das Verständnis um lokale Mischungsverhältnisse und Verdampfungsraten ein Schlüsselelement für die Stickoxidreduktion. Nur wenn die dominanten Transportmechanismen verstanden sind, können geeignete Düsenparameter (Druck und Öffnungswinkel) und der Injektionsort gewählt werden, um eine gleichmäßige Verteilung des Reduktionsmittels zu gewährleisten.

Dieser Fragestellung widmet sich der folgende Abschnitt, in welchem zunächst die experimentellen Erkenntnisse einer im Rahmen dieses Projektes erstellten Versuchsanlage zur Untersuchung von möglichen Partikel-Tropfen-Interaktionen vorgestellt werden. Dabei wurde die Versuchseinrichtung in Anlehnung an industrielle Calcinatoren konstruiert und aufgebaut, mit der unter eindeutig definierten Randbedingungen die Wirkung verschiedener Einflussgrößen auf die Verdampfung untersucht werden kann. Basierend auf den gewonnenen Erkenntnissen erfolgt die Implementierung eines stochastischen Kollisionsmodelles, welches den klassischen Partikel-Partikel Kollisionsansatz um Tropfen-Partikel Kollisionen erweitert. Anschließend werden die damit erzielten Simulationsergebnisse der Versuchsanlage mit den experimentellen Daten verglichen und diskutiert.

3.3.1 Experimenteller Aufbau

Die im Rahmen dieses Projektes erstellte experimentelle Versuchsanlage ist so konstruiert, dass die Wechselwirkung zwischen einer mit Partikeln beladenen Strömung und einer zerstäubten Flüssigkeit untersucht werden kann. Der in Abbildung 3.28 illustrierte Aufbau zeigt, dass das Hauptelement der Versuchsanlage aus einem vertikalen Rohrelement mit einer Höhe von 2 m und einem Durchmesser von 163 mm besteht. Innerhalb der Untersuchungsstrecke wird ein kontinuierlicher Strom von in heißer Luft dispergierten Partikeln, welche sich in einem thermischen Gleichgewicht befinden, erzeugt. Die Luft wird dabei durch einen Verdichter bereitgestellt und mit Hilfe eines Bypasses bis zu einen maximalen Wert von 200 m³/h geregelt. Zur Aufheizung der Luft wird ein elektrischer Luftvorwärmer verwendet, der die Luft bis auf eine Temperatur von 200 °C vorwärmt. Die kontinuierliche Zugabe der Partikel erfolgt mittels einer Schneckendosierung. Als Partikelart wurde in den meisten Betriebseinstellungen ein Quarzsand mit einem mittleren Durchmesser von 110 µm verwendet. Die maximale Förderleistung beträgt 50 kg/h. Die anschließende, vertikal angeordnete und ca. 1 m lange Mischstrecke wurde so konzipiert, dass eine gute Durchmischung der Partikel-Luft-Strömung gewährleistet ist. Auf einer Höhe von ca. 0,658 m erfolgt die zentrische Zerstäubung von Wasser in Förderrichtung der Zweiphasenströmung. Als Zerstäubungsdüse wird eine Einstoffdüse mit einem hohlkegeligen Sprühbild der Firma Bete GmbH aus Bochum verwendet. Deren Sprühbild weist bei einem Düsenvordruck von 8 bar und einem Öffnungswinkel von 63° einen mittleren Sauter-Tropfendurchmesser von etwa 40 µm auf. Das Verdampfungsverhalten wird anschließend auf einer Länge von 1,5 m oberhalb der Düse mit einer Vielzahl an Thermoelementen untersucht. Die radiale Position der Thermoelemente kann dabei so verändert werden, dass ein Temperaturprofil in der Ebene gemessen werden kann. Alternativ zur Temperaturmessung erlaubt der modulare Aufbau der Messstrecke einen teilweisen oder auch vollständigen Austausch der verwendeten Module. So ermöglicht die Verwendung eines speziellen Glasmodules eine optische Auswertung der Partikelund Tropfenverteilung in der Messstrecke. Nach der Messstrecke werden die Partikel und die Luft in einem Zyklon getrennt und die Partikel fallen zurück in den Bunker. Die getrennte Luft wird nach einem Filter an die Umwelt entlassen.

a) Experimenteller Aufbau

b) Untersuchungstrecke



Abbildung 3.28: Schematische Abbildung der Versuchsanlage zur Untersuchung von Partikel-Tropfen-Interaktionen

Da eine gleichmäßige Verteilung der Partikel und der zentrische, symmetrische Aufbau des Sprays die Grundlage für eine adäquate Deutung der Messungen darstellen, wurden zunächst die Verteilungen von Partikel und Tropfen in der Messstrecke mittels des Laserlichtschnittverfahrens untersucht. Bei dieser Methode wird ein Querschnitt der zu untersuchenden Strömung durch einen Laserstahl, der durch eine senkrechte Zylinderlinse in eine nahezu perfekte horizontale Lichtebene hoher Intensität aufgespalten wird, ausgeleuchtet. Das Streulicht der in der Ebene befindlichen Partikel lässt sich mit einem geeigneten Aufnahmemedium (Kamera) erfassen. Bei den Aufnahmen wurde eine lange Belichtungszeit von mehreren Sekunden gewählt, da bei dieser Untersuchung der Fokus auf der Konzentrationsverteilung und nicht auf der Visualisierung der Partikelbewegung lag. Sowohl die in Abbildung 3.29 abgebildeten vertikalen als auch horizontalen Aufnahmen zeigen dabei eine gleichmäßige Verteilung der verwendeten Partikel in der Messstrecke. Ferner verweisen die vertikalen Aufnahmen auf eine erwartete Verschiebung der Intensität des gestreuten Lichtes bei unterschiedlichen Partikelkonzentrationen. Generell kann daher davon ausgegangen werden, dass für alle relevanten Förderzustände die Mischung der Zweiphasenströmung bis zur Injektionsstelle des Wassers vollständig abgeschlossen ist und damit an jedem Punkt der Messtrecke eine vergleichbare Partikelbeladung vorzufinden ist.



Abbildung 3.29: Vertikale und horizontale Laserlichtschnittaufnahmen der Partikelverteilung in der Messstrecke

Die Verteilung des Sprays wurde ebenfalls mit dem Laserlichtschnittverfahren untersucht und kann Abbildung 3.30 entnommen werden. Infolge der geringen Tropfendurchmesser und der damit verbundenen geringeren Streuintensität konnte für die Aufnahmen der vertikalen Schnitte keine senkrechte Position der Kamera zur Untersuchungsebene realisiert werden. Erst bei einem Winkel von ca. 38° zur Lichtebene (1. Brechungsindex von Wassertropfen) zeigte sich eine hinreichende Streuungsintensität zur Visualisierung des Sprays. Trotz der perspektivischen Verzerrung veranschaulicht die Aufnahme einen dichten Bereich im Düsennahbereich, gekennzeichnet durch eine extrem hohe Tropfenanzahldichte. Wie zu erwarten, nimmt die Intensität des gestreuten Lichtes infolge der Verdampfung und der Wassertropfen mit steigenden Abstand zu der Düse ab. Die geometrischen Abmessungen lassen sich am besten durch horizontalen Aufnahmen veranschaulichen. Es zeigt sich, dass das Spray sich zentrisch in der Strömung ausbreitet und es auch im oberen Bereich der Messtrecke zu keinem Kontakt mit der Glaswand kommt. Der in den Laserlichtschnittaufnahmen abgebildete symmetrische Verlauf wurde anschließend auch durch Profilmessungen der Gastemperaturen bestätigt. Ebenfalls zu erkennen ist, dass die optische Auswertung zwar die Zweiphasenströmungen visualisieren kann, eine Auswertung der Dreiphasenströmung ist aber nicht aussagekräftig, da die Streuintensität der Partikel dominiert und jene der Tropfen überlagert. Zwar kann der grobe Verlauf des Sprays im Düsennahbereich erahnt werden, für eine ausführliche Auswertung hinsichtlich einer Verschiebung der Verdampfungscharakteristik kann diese Methode allerdings nicht herangezogen werden.



Abbildung 3.30: Vertikale und horizontale Laserlichtschnittaufnahmen der Partikel- und Tropfenverteilung in der Messstrecke

3.3.2 Experimentelle Daten

Da der Einfluss der Partikelphase auf das Verdampfungsverhalten durch eine optische Untersuchung des Systems nicht geklärt werden konnte, wurde als nächstes die Temperaturverteilung in der Messtrecke bestimmt. Eine Veränderung der lokalen Temperaturverhältnisse kann indirekt auf eine Verschiebung der Verdampfungscharakteristik hinweisen. Zur Veranschaulichung des beobachteten Effektes werden zunächst die axialen Temperaturmessungen der vier in Tabelle 3.16 aufgelisteten Betriebseinstellungen ausgewertet. Dabei dienen die ersten drei Versuche als Grundlage für die Charakterisierung der Einzelphänomene, während der vierte Versuch anschließend die Dreiphasenströmung untersucht.

Tabelle 3.10: Betriebseinstellungen der Partikei-Tropfen-Interaktion Versuche									
Parameter	Einheit	V1	V2	V3	V4				
Temperatur (T_{MP_0})	[°C]	150	150	150	150				
Luftvolumenstrom	[m ³ /h]	150	150	150	150				
Partikelmassenstrom	[kg/h]	0	50	0	50				
Wasservolumenstrom	[l/h]	0	0	1,2	1,2				

stallumman day Daytilal T

Die experimentellen Ergebnisse des vertikalen Temperaturverlaufes werden in Abbildung 3.31 veranschaulicht. Für die ersten zwei Einstellungen (Luft und Luft + Partikel) zeigt sich eine nahezu gleichmäßige Temperaturverteilung, so dass davon ausgegangen werden kann, dass es zu keiner Verschiebung der lokalen Gastemperaturen infolge der Partikelströmung kommt. Erst durch die Zerstäubung (V3 und V4) zeigt sich eine deutliche Abnahme der Temperatur aufgrund des aus der Verdampfung des Wassers resultierenden Energieverbrauchs. Besonders die Messstellen im Düsennahbereich weisen eine konstante Temperatur von 40°C auf, welche damit signifikant von der Eingangstemperatur von 150°C abweicht. Der Verdacht, dass es dabei zu einer Benetzung der Thermoelementspitzen kommt, hat sich durch eine anschließende optische Auswertung bestätigt. Die weiteren Temperaturverläufe von V3 und V4 zeigt zunächst einen qualitativ ähnlichen Verlauf, wobei die Temperatur der Dreiphasenströmung in der dichten Spray Zone leicht höher und anschließend durchgängig kälter ist. Die höhere Temperatur kann durch die zusätzliche Wärmemenge der an dem sich bildenden Film klebenden warmen Partikel erklärt werden. Allerdings können die kälteren Temperaturen stromabwärts nicht damit erklärt werden und weisen auf ein sich veränderndes Verdampfungsverhalten hin.



Abbildung 3.31: Gemessene Temperaturverteilung entlang der Mittelachse

Für die Interpretation des beobachteten Phänomens reicht die eindimensionale Auswertung der vertikalen Temperaturmessung nicht aus, da das Sprühbild einer Hohlkegeldüse zumindest einen zweidimensionalen Charakter aufweist und somit weitere radiale Messungen herangezogen werden müssen. In Abbildung 3.32 wurden dafür die Konturzeichnungen der Versuche 3 und 4, sowie das für die Erstellung verwendete Interpolationsgitter, veranschaulicht. Es kann beobachtet werden, dass bei der Dreiphasenströmung die Temperaturen im Düsennahbereich geringer ausfallen. Dies weist grundsätzlich darauf hin, dass die Kombination aus Partikel-Tropfen Interaktionen und die zusätzliche Wärmekapizität im System die Verdampfung der Tropfen unterstützten. Ähnliche Beobachtungen wurden in den Arbeiten von Zhu beschrieben [8]. Trotzdem führt die Geometrie des sich bildenden Sprays dazu, dass eine schnellere Verdampfung zu einer schmaleren, aber dafür axial mehr ausgeprägten Verdampfungszone führt.



Abbildung 3.32: Verwendete Interpolationsgitter und die Konturplots der gemessenen Temperaturen

3.3.2.1 Variation der Systemtemperatur

Die Ergebnisse einer Temperaturvariation (125-175°C) werden in Abbildung 3.33 illustriert. Neben der Temperatur wurden alle anderen Randbedingungen in Anlehnung an Tabelle 3.16 eingestellt. Generell zeigt sich, dass mit steigender Gastemperatur die Länge der dichten Verdampfungszone abnimmt. Dies ist zu erwarten, da die Temperatur der dominierende Einflussparameter für die Verdampfungszeit eines Wassertropfens darstellt. Weiterhin ist die gemessene Temperatur in diesem Bereich nahezu unabhängig von der Systemtemperatur, was wiederum die vorangegangene These eines benetzten Thermoelementes stützt. Die anschließende Verschiebung der Temperaturverläufe infolge der Partikelphase ist für alle Temperaturbereiche deutlich erkennbar. Grundsätzlich zeigt sich dabei ein qualitativ sehr ähnlicher Verlauf, wobei in Abhängigkeit von der Temperatur die Ausdehnung der kühleren Regionen tendenziell variiert. Besonders für eine Temperatur von 125°C führt die Interaktion mit den Partikeln zu einer deutlich längeren Verdampfungszone entlang der Messstrecke. So steigt die Anzahl der benetzten Thermoelemente von 3 auf nahezu 5 an. Mit steigender Systemtemperatur fällt der Unterschied kleiner aus. Dies liegt vor allem daran, dass durch eine höhere Temperatur auch die Verdampfung schneller stattfindet und damit weniger Zeit für Partikel-Tropfen Interaktionen bleibt.



Abbildung 3.33: Gemessene Temperaturverteilung bei einer Variation der Gasphasentemperatur

3.3.2.2 Variation der Partikel- und Tropfenkonzentration

In einer weiteren Messreihe wurde der Einfluss der Partikel- und Tropfenkonzentration auf die Temperaturverteilung untersucht. Die Ergebnisse werden in Abbildung 3.34 zusammengefasst. Für eine anschauliche Darstellung wurde der Temperaturquotient nach (Gl. 3.15) gewählt.

$$Quotient = \frac{Temperatur ohne Partikel}{Temperatur mit Partikel}$$
(Gl. 3.15)

Die Variation des Partikelmassenstromes (links) zeigt dabei, dass bei einer höheren Beladung der Quotient außerhalb des dichten Bereiches tendenziell kleinere Werte annimmt, was wiederum bedeutet, dass der Unterschied im Vergleich zur konventionellen Zweiphasenverdampfung höher ausfällt. Eine ähnliche Beobachtung kann bei der Variation des Wassermassenstromes (rechts) festgestellt werden, da der höhere Wassermassenstrom unabhängig von der Gasphasentemperatur ebenfalls zu kleineren Werten führt. Die Variation verdeutlicht, dass sowohl die Partikel- als auch die Tropfenbeladung großen Einfluss auf die Unterschiede zwischen den Temperaturen haben. In Bezug auf mögliche Partikel-Tropfen-Interaktionen, steht diese Beobachtung im Einklang mit dem generellen Kollisionsmodell, siehe Abschnitt 3.3.4, da die Kollisionswahrscheinlichkeit hauptsächlich von der Anzahldichte der Partikel bzw. Tropfen abhängig ist.



Abbildung 3.34: Variation des Partikelmassenstroms (links) und Wasservolumenstroms (rechts)

3.3.3 Modellierung der Zerstäubung

Die Zerstäubung von Flüssigkeiten zählt zu den grundlegenden Methoden der mechanischen Verfahrenstechnik und spielt in einer Vielzahl von industriellen Anwendungen eine wichtige Rolle. Dabei ist das Ziel der meisten Anwendungen, so auch im Fall der SNCR-Technik, eine Vergrößerung der reaktiven Oberfläche des Fluids um den Wärme- und Stoffaustausch mit dem umgebenden Medium zu begünstigen. Die Modellierung der Zerstäubung von Flüssigkeiten ist dabei ein hoch komplexes Themengebiet, welches bereits seit Jahrzehnten Gegenstand aktueller Forschungsvorhaben darstellt. Da diese zwar bei der Abbildung der Versuchsanalage eine wichtige Rolle einnimmt, allerdings nicht im Fokus des aktuellen Forschungsvorhabens liegt, werden für die folgenden Simulationen die bereits im ANSYS FLUENT Paket implementierten Modelle herangezogen. Die Anwendbarkeit der Modelle wird anschließend durch einen Vergleich mit experimentellen Messungen der charakteristischen Spraygrößen mittels eines PDA-Systems nachgewiesen. Dementsprechend wird an dieser Stelle auf eine detaillierte Beschreibung der einzelnen Modelle verzichtet und die Hauptpunkte der einzelnen Modelle stichpunktartig aufgezeigt. Für eine detaillierte Beschreibung wird auf weiterführende Literatur verwiesen. [7]

Modellierung des Primärzerfalls

Die Bildung von kleinen Tropfen innerhalb einer Düse und im Düsennahbereich wird als Primärzerfall bezeichnet und wird vor allem durch das Kräftespiel an der Flüssigkeitsoberfläche hervorgerufen. Unter gewissen Bedingungen wachsen die sich ergebenden Schwingungen bis zu einem Maximum an, was zum Aufbruch der Flüssigkeitsoberfläche führt und sich somit vereinzelt Fragmente ausbilden können. Die Fragmente sind beispielsweise beim Lamellenzerfall durch einzelne Flüssigkeitsfäden gekennzeichnet, welche anschließend weiter in Tropfen zerfallen. Um den komplexen Vorgang des Lamellenzerfalls mathematisch abbilden zu können, bezieht sich diese Arbeit auf das Linearized Instability Sheet Atomization (LISA) Model von Schmidt [9]. Das Model unterteilt sich in die drei Stufen: Filmausbildung, Lamellenzerfall und Zerstäubung. Zusammenfassend lässt sich sagen, dass im ersten Teil die Geschwindigkeitskomponenten und die Lamellendicke am Düsenaustritt berechnet werden. Im zweiten Teil wird anhand der Gas-Weberzahl die Lamellenausbreitungsform anhand kurzer bzw. langer Wellen unterschieden. Daraus ergeben sich zwei unterschiedliche Betrachtungsweisen, die endgültig zur Berechnung eines Tropfendurchmessers führen. Die statistische Verteilung der einzelnen Tropfengrößen wird durch eine Verteilungsfunktion nach Rosin-Rammler-Sperling-Bennet (RRSB) berücksichtigt. Dieses Modell wird in der Literatur oft herangezogen und beschreibt die Primärzerstäubung einer Hohlkegeldüse hinreichend genau.

Modellierung des Sekundärzerfalls

Befindet sich ein entstandenes Tropfenkollektiv in einer strömenden Gasphase, werden die einzelnen Flüssigkeitstropfen unter gewissen Bedingungen weiter zerteilt, diese Zerfallsart wird als sekundärer Zerfall bezeichnet. Dies geschieht in erster Betrachtungsweise wenn die zusammenhaltende Oberflächenkraft des einzelnen Tropfens im Vergleich zu den wirkenden aerodynamischen Kräften kleiner ist. Für die Abbildung des Sekundärzerfalls wurden in dieser Arbeit das Taylor Analogy Breakup (TAB) Model herangezogen, da es insbesondere für geringe Weberzahlen (We < 100) ein oft verwendetes Modell darstellt. Es basiert auf der Annahme, das Tropfen durch eine wachsende Schwingung beim Erreichen eines kritischen Wertes zerfallen. Zu Grunde liegt der Zusammenhang zwischen einem schwingenden, sich verformenden Tropfen und einem Feder-Masse-System (FSM). Dabei beschreibt die Viskosität eine dämpfende Wirkung, die Oberflächenspannung die Rückstellkraft und die deformierende Kraft auf den Tropfen die von außen wirkende Kraft in Bezug zum FSM. Erreicht die Auslenkung einen Grenzwert so zerbricht der Tropfen.

Modellierung der Verdunstung und Verdampfung

Die Verdunstung der Tropfen ist vor allem durch die Diffusion des Wassers in die umgebende Gasphase geprägt. Die treibende Kraft ist dabei der Konzentrationsunterschied des Wasserdampfes an der Tropfenoberfläche und der Gasphase. Die verdampfte Menge ist ferner von der Tropfenoberfläche und dem Diffusionskoeffizienten abhängig. Die Verdampfung der Partikeltropfen erfolgt nachdem der Tropfen die Verdampfungstemperatur erreicht hat. Die Massenabnahme erfolgt dabei unter der Annahme, dass die gesamte Wärmemenge, die von außen auf das Partikel strömt, für die Verdampfung aufgewendet wird und es somit zu keiner weiteren Aufheizung der Tropfen kommt. Dementsprechend errechnet sich die Massenabnahme über die Verdampfungswärme und die durch Konvektion und Strahlung übertragene Wärmemenge.

Vergleich mit experimentellen Daten

Das Sprühbild der verwendeten Düsen wurde mithilfe eines Phasen-Doppler-Anemometers (PDA) vermessen. Dabei handelt es sich um eine berührungslose Messeinrichtung, die eine Bestimmung von Tropfengeschwindigkeit und –Durchmesser ermöglicht. Es basiert auf einem sich bildenden Interferenzmuster zweier kohärenter Laserstrahlen in ihrem Schnittvolumen. Tropfen bzw. Partikel, die sich durch das Schnittvolumen bewegen, erzeugen eine Streulichtintensität einer Frequenz, die proportional zur Geschwindigkeit der bewegten Tropfen ist. Weiterhin kann aus der Phasenlage des Streulichtsignals auch der jeweilige Durchmesser bestimmt werden. Aus der Mittelung tausender einzelner Messungen kann ein Sprühbild hinsichtlich der charakteristischen Tropfendurchmesser und der Geschwindigkeitsverteilung vermessen werden. Der Aufbau des Systems erfolgte unter einem Streuwinkel von 38° (Brechung 1. Ordnung) und wird in Abbildung 3.35 illustriert.



Abbildung 3.35: Schematischer Aufbau des LDA/PDA-Systems zur Tropfengrößenvermessung

Die Charakterisierung der verwendeten Düsen erfolgt durch eine Messung der Tropfengrößenverteilung und der Tropfengeschwindigkeit bei der Zerstäubung von Wasser in einen luftstillen Raum. Dabei wurde auf mehreren Ebenen (horizontal und vertikal) eine Vielzahl an Messpunkten automatisiert abgefahren. Eine Übersicht des verwendeten Messgitters kann Abbildung 3.36 entnommen werden. Pro Messstelle wurden dabei mindestens 1000 Einzelmessungen herangezogen, um eine statistisch hinreichende Aussagegraft zu gewährleisten.



Abbildung 3.36: Verwendetes Messgitter der horizontalen (links) und vertikalen (rechts) Ebene Die im Folgenden beschriebene Auswertung bezieht sich dabei auf die volumengemittelten Werte in den jeweiligen Messpunkten, wobei für die Beschreibung des Tropfendurchmessers der Sauterdurchmesser und für die Tropfengeschwindigkeit die Geschwindigkeitskomponente in Richtung der wirkenden Gravitationskraft, in diesem Fall ist das die Z-Koordinate, herangezogen werden. Der Vergleich zwischen experimentellen und simulierten Ergebnissen erfolgt in Abbildung 3.37 und Abbildung 3.38 exemplarisch für eine Hohlkegeldüse mit einem Öffnungsdurchmesser von 0,1 mm und einem Zerstäubungswinkel von 45°. Aufgetragen sind jeweils die Konturplots der einzelnen Größen, wobei die experimentellen Daten zwischen den Messstellen interpoliert wurden. Der Vergleich zeigt, dass die charakteristische Struktur einer Hohlkegeldüse sowohl experimentell, als auch numerisch klar erkennbar ist. Generell liegt eine gute Übereinstimmung vor. Lediglich im Düsennahbereich ergibt sich bei den Simulationsergebnissen eine deutlich schärfere Kontur, was vor allem an der feineren Auflösung des Berechnungsgitters im Vergleich zum Messgitter liegt.



Abbildung 3.37: Vergleich der gemessenen (oben) und simulierten (unten) Tropfengrößenverteilung



Abbildung 3.38: Vergleich der gemessenen und simulierten Tropfengrößenverteilung (links) und – Geschwindigkeit (rechts)

Quantifiziert wird die gute Übereinstimmung in Tabelle 3.17, in welcher die gemittelten Tropfengrößen und Geschwindigkeiten in den einzelnen horizontalen Ebenen hinterlegt sind. Damit kann davon ausgegangen werden, dass die hier verwendeten Modelle zur Abbildung der Zerstäubung eine für den Anwendungsfall hinreichende Genauigkeit aufweisen.

Tabelle 3.17: Vergleich der über die horizontalen Ebenen gemittelten Tropfengrößen und Geschwindigkeiten

Ebene (unterhalb der Düse)	[mm]	20	90	600
Messung mittlerer Sauterdurchmesser	[µm]	38	38	51
Simulation mittlerer Sauterdurchmesser	[µm]	39	40	51

Messung mittlerer Tropfengeschwindigkeit	[m/s]	-12	-5	-1,5
Simulation mittlerer Tropfengeschwindigkeit	[m/s]	-27	-6	-1

3.3.4 Stochastisches Kollisionsmodell

3.3.4.1 Partikel-Partikel Kollisionen

Als Basis für die folgende Modellierung von Partikel-Tropfen-Interaktionen in industriellen Calcinatoren dient ein stochastisches Kollisionsmodel, welches in der Literatur vor allem für die Betrachtung von Partikel-Partikel Stößen verwendet wird. Das im Rahmen dieser Arbeit verwendete Modell basiert auf den Arbeiten von Sommerfeld [10,11], wobei die hier verwendete Version auf der Modellbeschreibung aus der Dissertationsschrift von Hußmann basiert [12]. Bei diesem, sowie bei allen anderen stochastischen Kollisionsansätzen, erfolgt keine Kollision zwischen den während der Simulation durchgängig abgebildeten Partikelbahnen, sondern es wird für jeden Partikelzeitschritt eine Wahrscheinlichkeit für eine Kollision zwischen dem aktuell verfolgten Partikel und einem fiktiven Partikel berechnet. Das fiktive Partikel kann dabei als Repräsentant aller sich in dem vorangegangenen Partikeliterationsschritt im entsprechenden Kontrollvolumen befindlichen Partikeln verstanden werden. Kommt es dabei zum Stoß, so erfolgt nur eine Anpassung des simulierten Partikels, da das fiktive Partikel nach der Kollisionsroutine wieder verworfen werden kann. Dementsprechend teilt sich der Vorgang in die folgenden fünf Schritte auf:

- 1. Erzeugung eines fiktiven Partikels anhand der hinterlegten Partikelinformationen.
- 2. Berechnung der Kollisionswahrscheinlichkeit anhand der hinterlegten Partikelinformationen für jeden Partikelzeitschritt.

Für den Fall dass es zu einer Kollision kommt:

- 3. Berechnung der relativen Lage der Partikel zueinander.
- 4. Änderung der Partikelgeschwindigkeit durch die Lösung der Impulsgleichungen.

Am Ende der Berechnung aller Partikeltrajektorien:

5. Bestimmung der mittleren Partikelinformation für jedes Kontrollvolumen.

Die nachfolgende Beschreibung der einzelnen Teilschritte beschränkt sich an dieser Stelle auf die Schwerpunkte, für eine detaillierte Übersicht wird auf weiterführende Literatur verwiesen [12,13]. Ferner erfolgt am Ende des Abschnitts noch eine kurze Diskussion der Einschränkungen dieses Modelles.

Bestimmung der relevanten Partikelinformationen

Wie in diesem Abschnitt noch gezeigt wird, ist die Kollisionswahrscheinlichkeit stark von den im Kontrollvolumen vorherrschenden Bedingungen der diskreten Phase abhängig. Unter Berücksichtigung des sequentiellen Berechnungsansatzes für die Partikelbahnen folgt jedoch, dass diese nur aus der vorangegangen Lagrange-Iteration herangezogen werden können, da bei der aktuell berechneten Partikelbahn noch unklar ist, ob weitere Partikelbahnen das Kontrollvolumen durchqueren. Die Aufstellung der relevanten Partikelinformationen erfolgt demnach erst wenn alle Partikelbahnen berechnet worden sind und kann anschließend für die nächsten Kollisionsentscheidungen herangezogen werden.

Eine der wichtigsten Größen ist dabei die Partikelanzahldichte n_P , welche die Anzahl der Partikel N_P pro Zellvolumen V_Z des Berechnungsgitters widerspiegelt. Da bei dem Euler-Lagrange Ansatz in der Regel keine Einzelpartikel, sondern sogenannten Partikeltrajektorien repräsentativer Partikel berechnet werden, erfolgt die Berechnung über die Partikelanzahlrate \dot{n}_P und die Verweilzeit im Kontrollvolumen $\Delta \tau_{i,j}$.

$$n_P = \frac{N_P}{1 m^3} = \frac{1}{V_Z} \sum_{i=1}^{n_{Traj}} \dot{n}_{P_i} \,\Delta\tau_i \tag{Gl. 3.16}$$

Da in den meisten Anwendungsfällen von einer polydispersen Verteilung ausgegangen werden kann, wird für die restlichen Größen neben dem massengewichteten Mittelwert auch die Standardabweichung σ_i in den jeweiligen Kontrollvolumen gespeichert, so dass sich zum Beispiel der Partikeldurchmesser des fiktiven Partikels mit Hilfe einer normalverteilten Zufallszahl χ (mit dem Mittelwert null und einer Standardabweichung von eins) durch die folgende Gleichung ergibt:

$$d_{P2} = \overline{d_P}\Big|_{(n)} + \sigma_{d_p} \cdot \chi \tag{Gl. 3.17}$$

Berechnung der Kollisionswahrscheinlichkeit

Unter Berücksichtigung der in jedem Berechnungsvolumen hinterlegten Partikelinformationen errechnet sich die Kollisionswahrscheinlichkeit P_{coll} zwischen dem aktuellen Partikel P1 und dem fiktiven Partikel P2 nach (Gl. 3.18) aus dem Produkt der Kollisionsfrequenz, abgeleitet aus der kinetischen Gastheorie, und dem Lagrangen Zeitschritt. Die Herleitung dieser Gleichung kann zum Beispiel [10] entnommen werden.

$$P_{coll} = 1 - \exp(-f_c \Delta t) = 1 - \exp\left(-\frac{\pi}{4} \cdot (d_{P1} + d_{P2})^2 \cdot |\overrightarrow{v_{P1}} - \overrightarrow{v_{P2}}| \cdot n_P \Delta t\right)$$
(Gl. 3.18)

Dabei wird für die Momentangeschwindigkeiten v_P der Partikel eine mögliche Korrelation der turbulenten Schwankungsgeschwindigkeit durch die folgende Anpassung der Geschwindigkeitskomponenten *i* berücksichtigt: [12]

$$v_{P2,i} = \overline{v_{P1,i}} + R \cdot v'_{P1,i} + \sigma_{v_P} \sqrt{1 - R^2} \cdot \chi$$
 (Gl. 3.19)

Die in der Gleichung verwendete halbempirische Geschwindigkeitskorrelationsfunktion wurde von Sommerfeld vorgeschlagen [11] und basiert auf einer Anpassung an Daten aus LES-Berechnungen eines homogenen isotropen Turbulenzfeldes [14]. Laut (Gl. 3.20) ist die Funktion von der turbulenten Stokeszahl St_T abhängig.

$$R = \exp(-0.55 \, St_T^{0,4}) \tag{Gl. 3.20}$$

Mit den bekannten Größen kann dann über eine gleichverteilte Zufallszahl zwischen null und eins eine Entscheidung getroffen werden, ob es zu einem Stoß kommt.

Sollte es zu keinem Stoß kommen, erfolgt die Partikelbewegung wie gewohnt über das Kräftegleichgewicht der Gravitations- und Widerstandskraft. Bei einem Stoß erfolgt hingegen eine deterministische Behandlung des Stoßvorganges und die Partikelbewegung wird hauptsächlich durch die resultierende Impulsänderung beschrieben.

Kollisionspunkt und die relative Lage der Partikel zueinander

Für den Fall, dass es zu einem Stoß kommt, erfolgt die Bestimmung des Kollisionspunktes mittels eines sogenannten Stoßzylinders. Dieser virtuelle Zylinder ist dabei so ausgelegt, dass der Mittelpunkt von P1 auf der Mittellinie des Zylinders liegt, der Zylinderdurchmesser der Summe beider Partikeldurchmesser entspricht und die Mittelachse des Zylinders in Richtung des Relativgeschwindigkeitsvektors der beiden Partikel liegt. Veranschaulicht wird dies in Abbildung 3.39.



Abbildung 3.39: Schematische Abbildung des Kollisionszylinders zur Bestimmung der relativen Lage des fiktiven Partikels

Unter diesen Annahmen folgt, dass der Mittelpunkt des zweiten Partikels innerhalb des Zylinders liegen muss und dass die Kontaktstelle dem Relativgeschwindigkeitsvektor zugewandten Bereich liegt. Dabei ist die Wahrscheinlichkeit, den Mittelpunkt des zweiten Partikels an einer Stelle der Querschnittsfläche zu finden überall gleich. Demnach ergibt sich die Position des Stoßpartners im abgebildeten Zylinderkoordinatensystem zu:

$$y', z' \in \left[\pm \frac{1}{2}(d_{P1} + d_{P2})\right]$$
 und $x' = \sqrt{\frac{1}{4}(d_{P1} + d_{P2})^2 - {y'}^2 - {z'}^2}$ (Gl. 3.21)

Die Position des Partikels kann somit durch eine normalverteilte Zufallszahl innerhalb der zwei angegebenen Bereiche bestimmt und anschließend über eine geeignete Transformationsmatrix in das globale Koordinatensystem überführt werden.

Impulsaustausch

Die Geschwindigkeit des Partikels nach dem Stoß kann über eine Impulsübertragung berechnet werden. Dabei wird in dieser Arbeit von einem Stoß zwischen zwei nicht rotierenden kugelförmigen Partikeln ausgegangen. Zur Vereinfachung der Berechnungsgleichungen wird wiederum ein neues Koordinatensystem herangezogen, dessen Lage und Orientierung Abbildung 3.40 entnommen werden kann.



Abbildung 3.40: Schematische Abbildung des Koordinatensystems bei einem zentrischen Stoß Grundsätzlich ergibt sich der neue Betrag der jeweiligen Geschwindigkeitskomponente $v_{i,1}$ in dem definierten Koordinatensystem aus dem übertragenen Impuls und dem alten Betrag $v_{i,0}$ zu:

$$v_{i,1} = v_{i,0} + \frac{J_i}{m_{P1}}$$
 (Gl. 3.22)

Der übertragene Impuls in x" Richtung kann dabei über die Relativgeschwindigkeiten am Kontaktpunkt vor dem Stoß und den Partikelmassen berechnet werden.

$$J_{x''} = -\left(v_{R_{x''}}\right)(1+\varepsilon_P)\frac{m_{P1}m_{P2}}{m_{P1}+m_{P2}}$$
(Gl. 3.23)

Dabei stellt ε die Stoßzahl dar, welche angibt, ob ein Stoß plastisch oder elastisch stattfindet. In den meisten Fällen muss dieser Parameter für das jeweilige Material experimentell bestimmt werden.

Der übertragene Impuls in y" und z" Richtung ist wiederum von der Stoßart abhängig. Es wird zwischen einem Haftstoß und einem Gleitstoß unterschieden. Die Abgrenzung erfolgt dabei über die folgende Beziehung:

$$\left| \sqrt{\left(v_{R_{y''}} \right)^2 + \left(v_{R_{z''}} \right)^2} \right| \le \frac{7}{2} (1 + \varepsilon) \, \mu \, \left| v_{R_{x''}} \right| \tag{Gl. 3.24}$$

Wenn diese Beziehung erfüllt ist handelt es sich dabei um einen Haftstoß. Der Impuls berechnet sich dabei abhängig von der Stoßart folgendermaßen:

Haftstoß:

Gleitstoß:

$$J_{y''} = -\frac{2}{7} \frac{m_{P1} m_{P2}}{m_{P1} + m_{P2}} v_{R_{y''}} \qquad (Gl. 3.25) \qquad J_{y''} = -\mu |J_{x''}| \frac{v_{R_{y''}}}{\sqrt{v_{R_{y''}}^2 + v_{R_{z''}}^2}} \qquad (Gl. 3.26)$$
$$J_{z''} = -\frac{2}{7} \frac{m_{P1} m_{P2}}{m_{P1} + m_{P2}} v_{R_{z''}} \qquad (Gl. 3.27) \qquad J_{z''} = -\mu |J_{x''}| \frac{v_{R_{y''}}}{\sqrt{v_{R_{y''}}^2 + v_{R_{z''}}^2}} \qquad (Gl. 3.28)$$

3.3.4.2 Überprüfung des Partikel-Partikel Kollisionsmodelles

Die von Fohanno und Oesterlé [15] gewählte Geometrie für den experimentellen Aufbau kann Abbildung 3.41 entnommen werden. Das Ziel des Aufbaus ist es, eine Strömung herzustellen, die signifikant von Partikel-Partikel Kollisionen beeinflusst wird. Die Partikeldosierung erfolgt im oberen Bereich mit Hilfe einer Stahlplatte, die mit definierten Löchern (4 mm Durchmesser) durchsetzt ist. Durch eine leichte Vibration der Platte werden die oberhalb gelagerten monodispersen kugelförmigen Glaspartikel (3 mm Durchmesser Dichte 2500 kg/m³) kontinuierlich freigesetzt und fallen infolge der Gravitationskraft in den unteren Bereich des Aufbaus. Dort stößt zunächst ein Teil der Kugeln infolge einer konvergenten Verengung mit einer glatten Glaswand. Durch den Stoß bekommen die Partikel eine horizontale Komponente in ihrer Bewegungsrichtung und treffen anschließend im Untersuchungsbereich auf die anderen, bisher frei fallenden Partikel. Die Auswertung der Partikelgeschwindigkeiten erfolgt über ein Kamerasystem und einer nachgeschalteten Bildanalyse, basierend auf der particle streak velocimetry (PSV). Ein aufgenommenes Bild kann ebenfalls Abbildung 3.41
(Mitte) entnommen werden. Für die Auswertung der Partikelbewegungen wurden drei axiale Positionen (z= -66, +9 und +85) festgelegt, die ebenfalls illustriert wurden.



Abbildung 3.41: Schematische Abbildung der aus der Literatur entnommenen experimentellen Anlage zur Untersuchung von Partikel-Partikel Kollisionen [15]

Bei den im Folgenden beschriebenen Simulationen wurden für die Berechnung der Partikelbahnen neben den grundlegenden Kräften (Gravitations- und Widerstandskraft) auch die im vorangegangenen Abschnitt vorgestellten Änderungen infolge von Partikel-Partikelstößen berücksichtigt. Zur adäquaten Abbildung des Kollisionsprozesses wurde der globale Zeitschritt der diskreten Phase an die Kollisionsfrequenz von 10000 pro Sekunden angepasst. Weiterhin wurde für die Partikel-Wandstöße eine hydraulisch glatte Wand angenommen. Die Unterseite des Kanals öffnet sich in die Luft der Umgebung, von der ein trapezförmiger Ausschnitt mitsimuliert wurde. Eine Übersicht der verwendeten Stoßzahlen, sowie aller weiteren relevanten Daten bezüglich der Modellannahmen und des Berechnungsgitters wird in der folgenden Tabelle aufgelistet.

Tabelle 3.18: Zusammenfassend	le Angaben zur C	FD-Simulation des	konvergenten Kanals

Allgemeine Modelle		Berechnungsgitter	
Anzahl Partikeltrajektorien	50.000	Gitterart	Hexagonal
Stoßzahl Partikel Wand	0,85	Anzahl Zellen	ca. 30.000
Stoßzahl Partikel-Partikel	0,96	Lokale Verfeinerungen	keine
Stationäre Strömung	ja	Turbulenzmodel	k-e

Der Einfluss des stochastischen Kollisionsmodelles auf die simulierten Partikelbahnen kann Abbildung 3.42 entnommen werden. Während das Zickzackmuster der mit den Wänden kollidierenden Partikel ohne eine Berücksichtigung von Kollisionen über den kompletten Versuchsaufbau deutlich erkennbar ist, zeichnet sich mit Berücksichtigung eine "Verwischung" der Partikeltrajektorien ab. Mit steigendem Partikelmassenstrom nimmt dieser Effekt durch die Erhöhung der Kollisionswahrscheinlichkeit zu, so dass bei einem hohen Massenstrom bereits nach den ersten Wandstößen auch Kollisionen zwischen den Glaskugeln erkennbar sind. Deutlich erkennbar ist der Einfluss auch am Austritt, da mit zunehmender Partikelbeladung eine deutlich homogenere Strömung mit immer geringer werdender Anzahl sich nach außen bewegender Trajektorien beobachtet werden kann.



Abbildung 3.42: Einfluss der Partikel-Partikel-Interaktionen auf die Partikelbahnen in Abhängigkeit von der Partikelbeladung

Die Auswertung der simulierten Partikelbahnen mit den experimentellen Daten erfolgt in Abbildung 3.43 für zwei unterschiedlichen Partikelmassenströme. Aufgetragen sind jeweils die Partikelanzahldichte, die Partikelgeschwindigkeit und die Abweichung der Geschwindigkeit in X und Z Richtung für die vertikalen Ebenen A und B. Tendenziell weisen die Ergebnisse auf eine qualitativ korrekte Vorhersage der Partikelbahnen hin. Sowohl die Homogenisierung der Strömung, als auch die Dämpfung der Schwankungsgrößen können in den Diagrammen beobachtet werden. Ferner gibt die Variation des Partikelmassenstroms die erwartete Verschiebung wieder. Trotzdem zeigt der Vergleich, dass an einigen Stellen Abweichungen zu den experimentellen Daten vorliegen. Der Vergleich der simulierten Werte mit den Daten von Hußmann [12], der in seiner Arbeit einen ähnlichen Ansatz verfolgt hat, zeigt dass die Abweichungen nicht durch einen Fehler in der Implementierung vorliegen, sondern auf generelle Ungenauigkeiten bei der Modellierung hindeuten. Ein ähnliches Verhalten wurde auch in der Arbeit von Pachler [13] diskutiert. Dabei wurden als mögliche Ursachen vor allem mögliche Fehlerquellen bereits bei den Partikel-Wand-Stößen sowie der nicht abgebildeten Partikelrotation genannt. Ferner wird an dieser Stelle auf mögliche Ungenauigkeiten des Messverfahrens hingewiesen, die der Autor selbst mit mindestens ±10 % für die Mittelwerte und ±15 % für die Standardabweichungen angibt.



Abbildung 3.43: Vergleich zwischen experimentellen und simulierten Ergebnissen [12,15]

3.3.4.3 Partikel-Tropfen Kollisionen

Als Basis für die Beschreibung der Partikel-Tropfen Interaktionen wird der im Vorfeld beschriebene stochastische Ansatz von Sommerfeld [10,11] verwendet. Dieser wurde so erweitert, dass nicht nur Partikel-Partikel Kollisionen, sondern auch Partikel-Tropfen Kollisionen berücksichtigt werden. Zwingend notwendig ist dabei eine strikte Trennung der beiden diskreten Phasen bei der Erstellung der fiktiven Kollisionspartner. Hinsichtlich Partikel-Tropfen Interaktionen wird bei diesem Ansatz davon ausgegangen, dass es sich bei dem fiktiven Partikel um ein festes Partikel handelt und die Kollisionswahrscheinlichkeit nur aus der Sicht eines Tropfens berechnet wird. Dieser Ansatz bietet den Vorteil, dass die notwendigen Informationen zur Beschreibung des fiktiven Teilchens analog zu den Partikel-Partikel Kollisionen erfolgen. Dementsprechend sind bei der Kombination aus Partikel-Partikel und Partikel-Tropfen Interaktionen lediglich die Informationen der festen Phase von Bedeutung. Die Kollisionswahrscheinlichkeit ergibt sich somit in Anlehnung an (Gl. 3.18) zu:

$$P_{coll} = 1 - \exp(-f_c \Delta t) = 1 - \exp\left(-\frac{\pi}{4} \cdot \left(d_{P_{1_L}} + d_{P_{2_S}}\right)^2 \cdot \left|\overline{v_{P_{1_L}}} - \overline{v_{P_{2_S}}}\right| \cdot n_{P_S} \Delta t\right) \quad (Gl. 3.29)$$

Für den Fall, dass es zu einer Kollision zwischen Partikel und Tropfen kommt, ergeben sich, anders als bei den Partikel-Partikel Stößen, eine Vielzahl an möglichen Resultaten, welche in Abbildung 3.44 illustriert werden. Diese sind im Wesentlichen von den Größenverhältnissen der zwei Teilchen und der Oberflächenbeschaffenheit des festen Partikels abhängig. Wenn zum Beispiel ein kleines Partikel und ein großer Tropfen kollidieren, ist es denkbar, dass das Partikel vom Tropfen absorbiert wird. Andererseits kann sich bei ähnlichen Größen der Tropfen ein dünner Film um das Partikel bilden. Für das untersuchte System scheint Variante b am wahrscheinlichsten, da das Größenverhältnis von Partikel zu Tropfen nahezu den Wert 2 annimmt. Zur Beschreibung der resultierenden Geschwindigkeitsänderung wird die Impulsübertragung für den Fall eines plastischen Stoßes analog zu Abschnitt 3.3.4.1 berechnet.



Abbildung 3.44: Schematische Abbildung der möglichen Partikel-Tropfen Kollisionen

Neben der Partikelbewegung können sich ferner Änderungen bei den Verdampfungsverhältnissen ergeben. Für ein nicht poröses Partikel kann es zu einer Filmbildung der Flüssigkeit kommen und die Verdampfung findet somit an der Oberfläche des Partikels statt. Dagegen ist es denkbar, dass bei einem porösen Partikel die Flüssigkeit, abhängig von den Oberflächenspannungsverhältnissen aller beteiligten Medien, in das Porensystem des Partikels aufgesaugt wird. In dieser Arbeit wird davon ausgegangen, dass die Quarzsandpartikel eine geschlossene Oberfläche aufweisen und die Verdampfung von der Oberfläche des Partikels stattfindet. Dies wird in der Simulation durch eine Anpassung des Verdampfungsmodelles berücksichtigt, das im Wesentlichen eine Anpassung der Oberfläche entsprechend des Partikeldurchmessers und der sich bildenden Filmdicke berücksichtigt.

Ein Beispiel für die Interaktion von Partikeln und Tropfen wird in Abbildung 3.45 (c) vorgestellt und veranschaulicht den Düsennahbereich in der Versuchsanlage. Für beide Zweiphasenströmungen (a und b) werden die Partikel- und Tropfenbahnen wie erwartet simuliert. Mit Berücksichtigung von Kollisionen zwischen den diskreten Phasen, ergibt sich ein verändertes Bewegungsmuster der Tropfen. Mehrere Tropfen kollidieren mit Partikeln, veranschaulicht durch eine Änderung der Farbe, und verändern ihre Flugbahn. Dies resultiert in einer höheren Tropfenkonzentration entlang der Mittellinien des Strömungsfeldes und das Spray wirkt insgesamt enger.





3.3.5 Simulation der Versuchsanlage

Als nächstes werden die Ergebnisse der Simulation vorgestellt und mit den experimentellen Daten verglichen. Auch die stationäre Simulation der Versuchsanlage wurde mit der kommerziellen CFD Software ANSYS FLUENT (Version 14.5) durchgeführt. Die kontinuierliche Phase wurde dabei als eine Mischung aus Stickstoff, Sauerstoff und Wasserdampf modelliert. Zur Abbildung der Gasphasenturbulenz wurde das k- ω SST Turbulenzmodel herangezogen. Die Messtrecke wurde dabei in ca. 700.000 hexagonale Kontrollvolumen aufgeteilt, wobei die Volumengröße im Düsennahbereich lokal verfeinert wurde. Beide diskreten Phasen wurden mit dem Discrete Phase Model (DPM) abgebildet, wobei der Einfluss der Gasphasenturbulenz durch das Discrete Random Walk (DRW) Modell berücksichtigt wurde. Die Sandpartikel werden als eine inerte Phase mit einer vorher bestimmten Größenverteilung abgebildet. Die Modellierung der Tropfen erfolgt nach den im Abschnitt 3.3.3 beschriebenen Ansätzen.

Abbildung 3.46 vergleicht die simulierten mit den experimentell bestimmten Temperaturverteilungen der Ein- und Zweiphasenströmung entlang der Mittellinie der Messstrecke. Für die Betriebseinstellungen V1 (Luft) und V2 (Luft + Partikel) wird eine nahezu gleichmäßige Verteilung mit einer sehr guten Übereinstimmung mit den experimentellen Daten simuliert, was auf eine adäquate Berücksichtigung der Wärmeübertragung hindeutet. Im Kontrast dazu zeigt der Vergleich der simulierten Gastemperatur (GT) und den experimentellen Daten für die Betriebseinstellung V3 (Luft + Tropfen) besonders im Düsennahbereich eine schlechte Übereinstimmung. Dies liegt wie bereits erwähnt daran, dass die Thermoelemente mit hoher Wahrscheinlichkeit benetzt sind und damit eher die Temperatur des verdampfenden Mediums widerspiegeln. Um dies zu kompensieren wurde in der Simulation eine virtuelle Thermoelementtemperatur definiert, welche nach (Gl. 3.30) von der lokalen Tropfenkonzentration in der Gasphase abhängt.

$$T_{VT} = T_{gas} * (1 - a) + \bar{T}_{Droplet} * a$$
 (Gl. 3.30)

mit:
$$a = \begin{cases} c_D * 50 & , c_D \le 0.02 \ kg/m^3 \\ 1 & , c_D > 0.02 \ kg/m^3 \end{cases}$$
 (Gl. 3.31)

Mit dieser "virtuellen" Thermoelement Temperatur (VT), welche die teilweise Benetzung der Thermoelemente berücksichtigt, nähern sich die Simulationsergebnisse deutlich der Messung.



Abbildung 3.46: Gemessene und simulierte Temperaturverteilung entlang der Mittelachse Ein ähnliches Bild zeigt sich in den Ergebnissen der vertikalen Konturplots, siehe Abbildung 3.47. Die gute Übereinstimmung bestätigt den hier verwendeten Ansatz des Verdampfungsmodells für den Fall der einfachen Verdampfung.





Abbildung 3.48 vergleicht die simulierten und experimentellen Verteilungen für die Dreiphasenströmung (V4) mit der normalen Verdampfung in warmer Luft (V3). Es wird sichtbar, dass für den Standardfall ohne Partikel-Tropfen-Interaktionen, die simulierten Temperaturen höher ausfallen als im Fall der normalen Verdampfung. Der Grund dafür ist die zusätzliche Wärmekapazität der warmen Partikel, die für eine lokale Aufheizung der Kontrollvolumen sorgen. Da allerdings das grundsätzliche Verdampfungsprofil davon unberücksichtigt bleibt, wird eine generell höhere Temperaturverteilung berechnet, die in dieser Form nicht in den Experimenten beobachtet werden konnte. Erst mit der Berücksichtigung der Partikel-Tropfen-Interaktionen wechselt die Temperaturverteilung entlang der Mittellinie zu tieferen Temperaturen und zeigt damit eine bessere Übereinstimmung mit der Messung.



Abbildung 3.48: Gemessene und simulierte Temperaturverteilung entlang der Mittelachse Die Auswirkungen der Kombination aus Partikel-Tropfen-Interaktionen und des modifizierten Verdampfungsverhaltens auf das Gesamtsystem werden in der folgenden Abbildung verdeutlicht. Vor allem die Veränderung der Flugbahn, siehe auch Abbildung 3.45, resultiert in einer höheren Tropfenkonzentration entlang der Mittellinie des Strömungsfelds und die kühleren Temperaturzonen wirken insgesamt enger.





3.4 Verbrennungsversuche am Fallrohrreaktor (LEAT/LUAT)

Um die wesentlichen Wechselwirkungen von Verbrennung, Calcinierung und NOx-Reduktion im Flugstrom zu untersuchen, wurden am LEAT in einem vorhandenen Fallrohrreaktor Versuche mit einem Gemisch aus Kohlenstaub und Ofenmehl durchgeführt. Die Ergebnisse sollen dazu dienen, die in den vorangegangenen Abschnitten beschriebenen Modelle anwendungsnah zu überprüfen. Der Regelbrennstoff Kohlenstaub wird hier als Referenzbrennstoff eingesetzt, da seine Eigenschaften gleichmäßiger und reproduzierbarer sind als die von Sekundärbrennstoffen. Die eingesetzten Medien (Braunkohle, Rohmehl und Reduktionsmittel) sind dabei identisch mit den im Zementwerk eingesetzten Stoffen, so dass von einer guten Übertragbarkeit auf das Calcinatorsystem ausgegangen werden kann.

3.4.1 Experimenteller Aufbau

Das Hauptelement des Fallrohrreaktors ist die vertikale Reaktionszone, mit einem Innendurchmesser von 150 mm und einer Länge von 2 m. Um einheitliche Arbeitstemperaturen entlang des keramischen Reaktorrohres zu gewährleisten, sind zur Beheizung entlang des Rohres 56 tangentiale Heizelemente aus Siliziumkarbid angeordnet. Diese sind in sechs verschiedenen Reglerzonen geschaltet, sodass eine lokal individuelle Wärmezufuhr ermöglicht wird. Die maximale Arbeitstemperatur des Reaktors beträgt 1300 bis 1400 °C, wodurch sich eine große Einsatzvielfalt ergibt. Der zugeführte Gasvolumenstrom bestimmt bei kleinen Partikeln die Verweilzeit der Partikel im Keramikrohr. Diese kann durch Erhöhung bzw. Verringerung des Luftvolumenstroms von 1 bis 6 Sekunden variiert werden. Für die Messungen der Konzentrationen, der Gastemperatur, aber auch zur Feststoffprobennahme, sind entlang des Reaktors 16 Messports angeordnet, die flexible Messungen bei entsprechenden Verweilzeiten ermöglichen. Ferner werden diese Ports je nach Prozessbedarf zum einen zur Brenn- oder Rohstoffstufung, zum anderen zur Eindüsung des Reduktionsmittels verwendet. Hierdurch ist der Ort der Zuführung durch entsprechende Messportauswahl einfach veränderbar. Der Aufbau des Fallrohrreaktors ist schematisch in Abbildung 3.50 dargestellt.



Abbildung 3.50: Schematische Abbildung des Fallrohrreaktors des LEAT

Da die Messports nicht vollkommen abzudichten sind und um die Messdaten nicht zu verfälschen, wird der Reaktor mit geringem Überdruck von bis zu 5 mbar betrieben, so dass keine Fremdgase in den Reaktor gezogen werden. Am Kopf des Keramikrohres wird der Brenner axial eingeführt. Er besteht aus einem senkrechten Rohr mit 30 mm Innendurchmesser sowie einem ringförmigen Flacheisen, das die Fixierung durch Schrauben möglich macht. Am senkrechten Rohr sind weitere Anschlüsse für die Rohmehlzuführung, Brennstoffzuführung und die Wasserkühlung angeschweißt. Die Zuführung der kohlebeladenen Verbrennungsluft wird durch einen Rohranschluss am Brennerkopf realisiert. Eine Dosierschnecke fördert die Kohlepartikel in den Luftstrom des Zuluftschlauches, so dass sich durch die Drehzahlregelung der Förderspirale genaue Brennstoffkonzentrationen einstellen lassen. Der Abgasstrom aus der Brennkammer wird durch eine Ausbrandstrecke geführt und nach der Entstaubung im Schlauchfilter über den Kamin in die Umgebung abgegeben. Mit einer druckluftgekühlten Gassonde werden Rauchgasproben aus dem Zentrum der Brennkammer abgezogen. Zur Messung der Rauchgaskomponenten (CO, CO₂, O₂, NO_X) kommen verschiedene Prozessgasanalysatoren zum Einsatz. Ebenso ermöglicht eine spezielle Sonde die Entnahme von Feststoffproben entlang des Reaktors. Die veränderbaren Betriebsparameter und verschiedenen Messmöglichkeiten machen den Fallrohrreaktor für die Simulation von Betriebszuständen aus den Großfeuerungen vielseitig einsetzbar. Ein großer Vorteil ist, dass Messungen in Verfahrensbereichen möglich sind, die in Großanlagen aus betriebstechnischen Gründen nicht erreichbar sind.

3.4.2 Durchgeführte Umbauten am Fallrohrreaktor

Der generelle Aufbau des Fallrohrreaktors wurde entsprechend den Anforderungen dieses Forschungsvorhabens geringfügig angepasst. Wichtigste Maßnahme hierfür war der Umbau des Brennerkopfes, der neben der Brennstoffzuleitung nun auch einen Anschluss für die Rohmehlzugabe vorsieht. Ferner wurde zur Unterstützung der Rohmehlförderung ein zweiter Anschluss im oberen Bereich des Brennerkopfes gefertigt, durch den ein sekundärer Luftstrom strömt, mit dem Ziel mögliche Verstopfungen der Rohmehlzuführung im Brennerkopf zu vermeiden. Der gesamte Umbau ist in Abbildung 3.51 dargestellt. Um die Rohmehlzuleitung möglichst einfach zu realisieren wird der Rohmehlmassenstrom durch eine Dosierschnecke direkt in den Brennerkopf gefördert.



Abbildung 3.51: Darstellung des umgebauten Brenners

Zur Dosierung des Reduktionsmittels wird ein Spritzendosiergerät der Firma Infors AG verwendet. Dieses ist in der Lage auch sehr geringe Volumenströme kontinuierlich zu dosieren. Die mit einer 25 % Ammoniakwasserlösung gefüllte Spritzenkanüle wird in das Gerät eingeklemmt und mittels eines Druckarms wird ein definierter Volumenstrom des Reduktionsmittels aus der Spritze gedrückt. Die Förderung des Reduktionsmittels in den Reaktor erfolgt mit Hilfe eines Stickstoffvolumenstroms. Stickstoff ist ein Inertgas und verfälscht daher die Versuchsergebnisse nicht durch Nebenreaktionen. Aufgrund der hohen Temperaturen wird zur Einspeisung in den Reaktor der Schlauch auf ein hitzebeständiges Keramikrohr geschoben. Dieses wird durch die Messports zentrisch in den Gasstrom eingeführt. Eine fotografische Darstellung des Aufbaus ist in Abbildung 3.52 zu sehen.



Abbildung 3.52: Aufbau der Reduktionsmitteleinspeisung am Fallrohrreaktor

3.4.3 Randbedingungen und Messprogramm

Ein Ausschnitt des durchgeführten Messprogramms, sowie die zugehörigen Randbedingungen wurden in Tabelle 3.19 zusammengefasst. Insgesamt werden an dieser Stelle die Erkenntnisse von 15 verschiedenen Versuchen diskutiert, wobei die unterschiedlichen Motivationen der Messreihen folgendermaßen aufgeteilt sind:

- V1-V5: Untersuchung der reinen Kohleverbrennung durch eine Variation der Wandtemperatur (WT) und der Luftzahl.
- V6-V8: Untersuchung der reinen Calcinierung des Rohmehls durch eine Variation der Wandtemperatur.
- V9-V10: Untersuchung der Wechselwirkung der Kohleverbrennung mit der Calcinierung durch eine Variation des Kohle-Rohmehl-Verhältnisses.
- V11-V14: Untersuchung der Stickoxidreduktion durch eine Variation des Reduktionsmittelmassenstromes.
- V15: Untersuchung des Gesamtsystems aus Verbrennung, Calcinierung und Reduktion.

	Wand-Tempe-	Luftzahl	Brennstoff	Rohmehl	Reduktionsmittel
	ratur [°C]	[-]	[kg/h]	[kg/h]	[ml/h]
V1	850	1,1	1,44	-	-
V2	1000	1,1	1,44	-	-
V3	1150	1,1	1,44	-	-
V4	1150	1,2	1,32	-	-
V5	1150	1,0	1,58	-	-
V6	850	-	-	1,44	-
V7	1000	-	-	1,44	-
V8	1150	-	-	1,44	-
V9	1000	1,1	1,44	1,44	-
V10	1000	1,1	1,44	2,88	-
V11	1000	1,1	1,44	-	16
V12	1000	1,1	1,44	-	32
V13	1000	1,1	1,44	_	64
V14	1000	1,1	1,44	-	128
V15	1000	1,1	1,44	1,44	64

Tabelle 3.19: Übersicht der durchgeführten Versuche und deren Randbedingungen

3.4.4 Vergleich der experimentellen und simulierten Ergebnisse

Die stationäre Simulation der Fallrohrversuche wurde mit der kommerziellen CFD-Software ANSYS FLUENT (Version 14.5) durchgeführt. Um eine adäquate Einströmung des Luft-Braunkohlestaub-Rohmehl-Gemisches in den Reaktionsraum zu gewährleisten wurde neben dem Reaktionsraum auch das Brennerrohr in das Berechnungsgebiet einbezogen. Die Geometrie wurde mit einem dreidimensionalen Gitternetz mit einer großen Anzahl räumlich diskreter Zellen aufgeteilt. Das Gitter besteht dabei aus 1,2 Mio. Kontrollvolumen, was nach einer Gitterstudie eine hinreichende Diskretisierung darstellt. Zur Abbildung der Gasphasenturbulenz wurde das k- ω SST Turbulenzmodel verwendet. Alle beteiligten diskreten Phasen (Braunkohle, Rohmehl und Ammoniakwasserlösung) wurden mit dem Discrete Phase Model (DPM) abgebildet, wobei der Einfluss der Gasphasenturbulenz durch das Discrete Random Walk (DRW) Modell berücksichtigt wurde.

Die Auswertung der experimentellen und numerischen Ergebnisse erfolgt durch Betrachtung der Ergebnisse entlang der vertikalen Reaktorachse. Verglichen werden jeweils die Gasphasenkonzentration von CO₂, CO, O₂, NO_X und die Gasphasentemperatur. Zu den Einheiten ist anzumerken, dass die Konzentration nicht, wie für die Zementbranche üblich, auf 10 % Sauerstoff normiert, sondern die wahre Zusammensetzung in Volumenprozent im trockenen Abgas wiedergegeben ist. Die Darstellung des Kohlenmonoxid erfolgt dabei in ppm.

Exemplarische Auswertung der Braunkohleverbrennung V2: WT = 1000 °C λ = 1,1

Die Abbildung 3.53 zeigt den Vergleich der experimentellen Daten (Port 1 bis 16 abgebildet durch Punkte) und der Simulationsergebnisse (durchgezogenen Linien) für die erste Betriebseinstellung (V2), bei der lediglich Braunkohlestaub dosiert wurde. Zu erkennen ist zunächst einmal der typische Abbrandverlauf in einer Kohlefeuerung. So steigt die gemessene Gastemperatur infolge der Gasphasenreaktion der Flüchtigen im oberen Bereich des Reaktionsraumes deutlich an, während der Sauerstoffgehalt fällt. Die gemessene Höchsttemperatur liegt bei ca. 1400 °C und ist damit deutlich über den eingestellten Wandtemperaturen von 1000°C. Dabei verweist insbesondere der Verlauf von Kohlenmonoxid auf eine Pyrolysezone im Bereich von Port 1 bist Port 5 hin. Ab Port 6 erfolgt eine langsamere Änderung der Gaszusammensetzung, die durch den Koksausbrand geprägt ist. Der Vergleich mit den numerischen Verläufen zeigt für die Abbildung der Sauerstoff- und Kohlendioxidkonzentrationen eine sehr gute Übereinstimmung, während für die Gastemperatur und die CO-Konzentration vor allem in der Pyrolysezone große Abweichungen vorliegen. Die Abweichungen in der Gastemperatur können auf das generelle Problem von Temperaturmessungen mittels Thermoelementen bei sehr hohen Temperaturen hindeuten. Zwar wurden die gemessenen Daten der Thermoelemente strahlungskorrigiert, die Ungenauigkeiten bei den getroffenen Annahmen dürfen allerdings nicht vernachlässigt werden. Dagegen kann das simulierte Bildungsniveau der Stickoxide als hinreichend genau bezeichnet werden.



Abbildung 3.53: Gemessene und simulierte Temperaturverteilung entlang der Mittelachse

Auswertung V1-V3: Variation der WT (850 – 1150 °C) bei λ = 1,1

Die Auswirkung von unterschiedlichen Wandtemperaturen auf die Kohleverbrennung wird in Abbildung 3.54 illustriert. Wie die Messwerte zeigen, verhält sich das Reaktionssystem erwartungsgemäß. Infolge der veränderten Wärmeübertragung auf die einströmenden Kohlepartikel kann eine Verschiebung der Hauptreaktionszone beobachtet werden. So wurde in Port 3 für eine WT von 850°C ein Sauerstoffgehalt von 14,6 % gemessen, während bei 1150°C nur noch 9,8 % gemessen wurden, was auf einen höheren Fortschritt der Reaktion schließen lässt. Ein ähnliches Bild zeigt sich bei den CO₂ und CO- Verteilungen. Insgesamt ergibt sich mit steigenden WT eine erwartete Erhöhung des Gesamttemperaturniveaus.



Abbildung 3.54: Gemessene und simulierte Temperaturverteilung entlang der Mittelachse

Auswertung V3-V5: Variation von λ (1,0 – 1,2) bei einer Wandtemperatur von 1150°C

Analog zu der vorangegangenen Betriebseinstellung werden in Abbildung 3.55 die Ergebnisse der variierten Luftzahl vorgestellt. Die Auswirkungen der Luftzahl können deutlich an den Endwerten der O₂- und CO₂-Verteilungen beobachtet werden. Im Gegensatz dazu, zeigen die Messungen der Temperatur nur geringfügige Unterschiede. In der Simulation werden sogar nahezu identische Temperaturverteilungen berechnet. Dies liegt vor allem daran, dass die modellierte Freisetzungsrate der Pyrolysegase nahezu unabhängig von dem Sauerstoffgehalt ist. Da für die weitere Gasphasenreaktion auch bei einer Luftzahl von 1,0 theoretisch noch genügend Sauerstoff vorhanden ist, werden deshalb vergleichbare Reaktionsverhältnisse simuliert. Weniger gut werden wiederum die CO-Verteilungen im Freisetzungsmodell wiedergegeben. Während in



den Experimenten eine deutliche Abhängigkeit zwischen der Luftzahl und dem CO-Niveau vorhanden ist, fällt die Beziehung in den Simulationen deutlich geringer aus.

Abbildung 3.55: Gemessene und simulierte Temperaturverteilung entlang der Mittelachse

Insgesamt zeigen die Ergebnisse zunächst einmal, dass der Fallrohrreaktor in der Lage ist, die Einflüsse von verschiedenen Betriebseinstellungen einer Kohlefeuerung hinreichend genau wiederzugeben. Neben der Lage und Breite der Hauptreaktionszonen kann auch die Dauer der Koksausbrandphase abgeschätzt werden. Der Vergleich der erzielten experimentellen mit den numerischen Ergebnissen zeigt ferner, dass die verwendeten Modelle das Reaktionssystem Kohle unter Calcinatortypischen Randbedingungen gut nachbilden. Lediglich die Abbildung der CO-Verteilung kann durch die Modellierung nur ungenau getroffen werden. Dies liegt vor allem an den vereinfachenden Annahmen der Gasphasenreaktion durch die Verwendung des Eddy-Dissipation Modelles. Ferner konnten einige Parameter, wie die CO/CO2 Verteilung nicht experimentell bestimmt werden und mussten mit Daten aus der Literatur abgeschätzt werden.

Auswertung der Calcinierungsversuche V6 - V8: WT = 850 - 1150°C

In der nächsten Versuchsreihe wurde das Rohmehl im Fallrohrreaktor unter verschiedenen Wandtemperaturen entsäuert. Da in diesem Fall dem System keine Braunkohle zugegeben wurde, ergeben sich die gemessenen CO₂-Konzentrationen allein aus der

Seite 86

Entsäuerung des Rohmehls, so dass diese indirekt auch zur Berechnung des Calcinierungsgrades herangezogen werden können. Die in Abbildung 3.56 veranschaulichten CO₂-Profile verweisen auf einen nahezu konstanten Anstieg infolge der Entsäuerungsreaktion, wobei auch am Ende der Reaktionszone noch kein Endwert erreicht wurde. Der qualitative Vergleich mit den simulierten Verteilungen zeigt dabei eine hinreichend genaue Übereinstimmung. Bezogen auf die Calcinierungsgrade zeigt die Gegenüberstellung im rechten Teil der Abbildung sogar eine sehr gute Übereinstimmung. Lediglich bei einer Wandtemperatur von 850°C ergibt sich eine größere Diskrepanz, die damit begründet werden kann, dass die Randbedingungen der für die Modellierung herangezogenen Laborversuche in der Regel oberhalb der sich hier einstellenden Gastemperatur liegen und somit die Ungenauigkeit in diesem Temperaturbereich (<850°C) größer ausfällt. Generell zeigt die Auswertung der Versuche allerdings, dass mit dem verwendeten Calcinierungsmodell auch unter industrienahen Randbedingungen gute Resultate erzielt werden können.



Abbildung 3.56: Gemessene und simulierte Temperaturverteilung entlang der Mittelachse

Auswertung der Calcinierungsversuche V9 – V10 (T= 1000°C, λ = 1,1)

In der nächsten Versuchsreiche wurde dem Reaktionsraum ein Gemisch aus Braunkohle und Rohmehl zudosiert. Das Rohmehl zu Braunkohle Massenverhältnis betrug dabei 1:1 sowie 1:2. Die gemessenen und simulierten CO₂-Verteilungen, in diesem Fall eine Kombination aus dem CO₂ der Verbrennungs- und Entsäuerungsreaktion, können Abbildung 3.57 entnommen werden. Wie erwartet, erhöht sich das Endniveau der CO₂-Konzentration mit zunehmendem Rohmehlmassenstrom. Die Auswertung der Konzentrationen ergibt einen Calcinierungsgrad von über 95% und liegt damit, infolge des zusätzlichen Wärmeeintrages der Kohleumsetzung, deutlich oberhalb der vorhergegangenen Versuchsreihe. Der Vergleich der experimentellen und simulierten Verläufe zeigt auch für die Kombination von Kohleumsetzung und Entsäuerungsreaktion eine hinreichende Übereinstimmung, so dass in Hinblick auf die in Abschnitt 3.6 vorgestellten Calcinatorsimulationen von einer guten Abbildung der Entsäuerungsreaktion ausgegangen werden kann.



Abbildung 3.57: Gemessene und simulierte Temperaturverteilung entlang der Mittelachse

Exemplarische Auswertung der Reduktionsversuche

Die Reduktion der Stickoxide erfolgte am Fallrohrreaktor durch eine zentrische Injektion einer 25 %-igen Ammoniakwasser-Lösung. Für die Position der Injektion wurde Port 8 gewählt, welcher ungefähr auf der Mitte der Reaktionsrohrlänge liegt und damit der nachgestellten Reduktionsreaktion eine hinreichende Verweilzeit im Messbereich ermöglicht. Die Auswertung der Reduktionsversuche erfolgt dabei anhand von Endpunktmessungen der Stickoxidbeladungen in Port 16 und wird in Abbildung 3.58 zusammengefasst. Aufgetragen sind jeweils die experimentellen und simulierten Reduktionsgrade für die Kohlefeuerung (V11-V14) und für die Kohlefeuerung samt Entsäuerungsreaktion (V15). Generell kann beobachtet werden, dass der experimentell bestimmte Reduktionsgrad auch für höhere Molenverhältnisse maximal 56,62 % beträgt und damit unterhalb der theoretisch erwarteten Reduktionsgraden liegt. Der wesentliche Grund für die geringe NO_X-Reduktion liegt sicherlich an den Randbedingungen an der Injektionsstelle, welche mit einer Gastemperatur von ca. 1200°C deutlich oberhalb des optimalen Temperaturfensters liegt. Entsprechend Abschnitt 3.2.3 kommt es bei dieser Temperatur nicht nur zu einer Reduktion, sondern auch vermehrt zu einer Bildung von NO_X aus dem NH₃. Tendenziell zeigt sich allerdings eine erwartete Steigerung des Reduktionsgrades mit steigendem Molenverhältnis, wobei die Steigerung in der Simulation ausgeprägter erscheint. Insgesamt zeigt der Vergleich, dass die verwendeten Modelle durchaus in der Lage sind die Größenordnung der Reduktion gut wiederzugeben. Auch die Abbildung der Kombination aus Kohlefeuerung und Entsäuerungsreaktion zeigt eine hinreichend genaue Übereinstimmung.



Abbildung 3.58: Gemessene und simulierte Reduktionsgrade

3.5 CFD-Simulation einer industriellen Calcinierungsanlage (LUAT)

Im Rahmen des Forschungsvorhabens wurden im September 2012 und Mai 2014 Ofenversuche an einem industriellen Calcinator durchgeführt. Gegenstand der Untersuchungen waren die Variation der Eindüseorte und -mengen von NH₃ im Calcinator. Des Weiteren sollte ermittelt werden, durch welche Maßnahmen und Einstellungen die NO_x -Emissionskonzentration von 200 mg/m³ i.N. unterschritten werden kann.

Die Aufgabe des LUAT war es, den Vorcalcinator des bestehenden Zementwerkes in eine 3D-CFD Simulation zu überführen. In Abbildung 3.59 ist der Vorcalcinator mit den entsprechenden Produkt und Luftströmen schematisch dargestellt. Auf Basis der entwickelten Reaktionsmodelle sollen durch die CFD-Berechnung das Strömungsfeld, die Temperaturverteilung im Calcinator und die Spezieskonzentration am Austritt (z.B. NO und NH₃) genauer betrachtet werden. Eine Überprüfung der Simulationsergebnisse erfolgt durch die Gegenüberstellung mit den ermittelten Messdaten aus Kapitel 3.1.



Abbildung 3.59: Calcinatorgeometrie mit den wesentlichen Stoffströmen

3.5.1 Simulationsphänomene

Bei der simulativen Abbildung der ausgewählten Vorcalcinieranlage sind zur realitätsnahen Berechnung der Stickoxidverteilung eine Vielzahl kinetischer sowie thermochemischer Abläufe zu berücksichtigen. Diese lassen sich zu zehn Simulationsphänomene zusammenfassen und sind in der folgenden Tabelle 3.20 aufgeführt. Jeder dieser berücksichtigten Abläufe erhöht die Komplexität der Simulation maßgeblich.

Kinetische Abläufe	Thermochemische Abläufe
1) Asymmetrische, komplexe Geometrie	6) Kohleverbrennung
2) Mischung turbulenter Strömungen	7) Verbrennung von Ersatzbrennstoffen
3) 10 Komponenten, teilweise in 2 Phasen	8) Rohmehlumsetzung
4) Eintrag fester Kohle-/EBS-/Rohmehl- partikel	9) Verdampfen der NH ₃ -H ₂ O-Tropfen
5) Eindüsung flüssiger NH ₃ -Lösung	10) NO _x -Bildung und -Reduzierung

Tabelle 3.20: Relevante Simulationsphänomene

Zur Durchführung der CFD-Simulationen war zunächst die Erstellung eines Netzes auf Grundlage der real vorliegenden Vorcalcinatorgeometrie notwendig. Sie weist, neben zahlreicher Umlenkungen und Querschnittsänderungen, in ihrem Betriebszustand einen asymmetrischen Verlauf (1) auf. Diese Phänomene wurden bei der Modellierung der Geometrie und der Netzerstellung mittels ANSYS ICEM CFD 14.5 berücksichtigt. Nähere Erläuterungen hierzu folgen in nächsten Abschnitt.

Die innerhalb der Geometrie vorherrschenden Strömungsverhältnisse resultieren in erster Linie aus der Mischung turbulenter Strömungen (1). Ein tangential zum Rauchgasstrom zugeführter Tertiärluftstrom, dessen Masse etwa äquivalent zum Rauchgasstrom ist, sorgt für eine zusätzliche Verwirbelung des ohnehin turbulenten Gasstromes. Es liegt somit eine Mischung turbulenter Strömungen (2) vor. Die Gasphase innerhalb des Vorcalcinators wird hierbei als Gemisch von zehn Einzelkomponenten (O₂, N₂, CO, CO₂, H₂, CH₄, H₂O, SO₂, NH₃, Flüchtige) modelliert. Der Eintrag von festen Kohle-, EBS- und Rohmehlpartikeln (4) sowie der flüssigen NH₃-Lösung (5) lässt einige dieser zehn Spezies darüber hinaus in zwei unterschiedlichen Phasen vorliegenden. Zur Modellierung der Feststoff- und Tröpfcheninjektionen wurde hierbei ein Euler-Lagrange-Ansatz genutzt, welcher für die flüssigen Tropfen bzw. feste Partikel repräsentative Trajektorien stochastisch berechnet und mittels Quelltermen den kontinuierlichen Fluidstrom in Form des Rauchgas-Luft-Gemisches beeinflusst. Die Modellierung der Phänomene (2) bis (5) wurde im Rahmen der im Simulationsprogramm ANSYS Fluent 14.0 enthaltenen Standardeinstellmöglichkeiten durchgeführt.

Die thermochemischen Abläufe umfassen speziell die Umsetzung der eingebrachten Partikel bzw. Tropfen sowie die Stickoxidbildung und -reduzierung. Der Ausbrand der Kohle- (6) und EBS-Partikel (7) in der oxidierenden Atmosphäre sowie das Verdampfen der vom heißen Gasstrom aufgeheizten Ammoniaklösung (9) wird hierbei ebenfalls durch in ANSYS Fluent 14.0 implementierten Standard-Reaktionsmodelle beschrieben. Die Calcinierung und Sulfatisierung des Rohmehls zu Zementklinker (8) wurde im Rahmen einer User Defined Function (UDF) als eigenes Modell umgesetzt. Das Modell ist in Abschnitt **Fehler! Verweisquelle konnte nicht gefunden werden.** etailliert beschrieben. Zur Berechnung der Stickoxid-Konzentration im modellierten Vorcalcinator findet ein eigens implementiertes Modell in Form einer UDF Anwendung. Durch eine Anhebung der Anzahl an chemischen Reaktionen zur Stickoxidbildung und –reduzierung von zwei auf sechs wird der Detaillierungsgrad weiter erhöht und die Stickoxidverteilung innerhalb des Vorcalcinators realistischer wiedergegeben. Details zum verwendeten Modell befinden sich in Abschnitt 3.2.3.

Durch die Anzahl und das Zusammenwirken der beschriebenen Simulationsphänomene erhöht sich die Komplexität der Berechnung signifikant. Dies äußert sich speziell in erhöhten Anforderungen an die numerische Stabilität. Diese kann neben der zielführenden Auswahl von Simulationsmodellen insbesondere durch eine hohe Gitterauflösung im erstellten Netz der Vorcalcinatorgeometrie sichergestellt werden. Dies hat jedoch ebenfalls sehr lange Rechenzeiten bis zu mehreren Wochen zur Folge.

3.5.2 Modellierungen der Vorcalcinatorgeometrie

Für die Berechnung einer CFD-Simulation ist eine Überführung der betrachteten Geometrie in ein diskretisiertes Gitter notwendig. Für die Vorcalcinierungsanlage wurde dies sowohl dreidimensional, als auch für einen vergleichbaren generischen Calcinator zweidimensional durchgeführt. Im Folgenden wird die jeweils genutzte Vorgehensweise beschrieben.

3.5.2.1 3-dimensional

Die 3-dimensionale Calcinatorgeometrie wurde in einem ersten Schritt auf Grundlage der Innendurchmesser der entsprechenden Konstruktionszeichnungen modelliert. Der Calcinator ist ca. 63 m hoch und beginnt in Gasströmungsrichtung mit einem rechteckigen Querschnitt von 1,47 x 1,75 m im Steigschacht. Mit dem Tertiärlufteintritt auf etwa 25 m Höhe geht dieser in einen kreisförmigen Querschnitt mit einem Durchmesser von etwa 5,7 m über. Der Schwanenhals am Calcinatorkopf lenkt die Gasströmung um. Der Durchmesser verjüngt sich in diesem Zuge auf ca. 3,6 m. Im Zuge der ersten Betriebsmessungen im Februar 2013 wurden Anbackungen innerhalb des Calcinators festgestellt, welche den Innendurchmesser signifikant verringern und somit deutlichen Einfluss auf die Strömungsverhältnisse nehmen. Daraufhin wurden die Anbackungen in vier Ebenen des Calcinators zwischen Tertiärlufteintritt und Schwanenhals an jeweils vier entlang des Umfangs angeordneten Punkten messtechnisch erfasst. Für die Berücksichtigung der massiven Anbackungen wurden bei der Gittermodellierung sechs in y-Richtung übereinander angeordnete Punkte in jeder der vier Ebenen interpoliert und zu Umfängen verbunden. Weiterhin wurde nach Absprache mit den Projektpartnern die Annahme getroffen, dass im Steigschacht sowie im Schwanenhals keine Anbackungen vorliegen. Somit ergeben sich aus der Ebene am Ende des Steigschachtes und am Beginn des Schwanenhalses sowie den vier Messebenen sechs einzelne Umfänge. Diese wurden an den jeweils sechs Punkten durch eine Funktion fünften Grades miteinander verbunden. Abbildung 3.60 stellt diese Vorgehensweise schematisch dar.



Abbildung 3.60: Modellierung der Anbackungen innerhalb des Calcinators

Anschließend wurde die real gemessene Calcinatorgeometrie diskretisiert und in Form eines unstrukturierten Gitternetzes mit etwa 2.550.000 Zellen umgesetzt. In das Gitternetz wurden neben dem Eintritt des Rauchgases aus dem Drehrohrofen auch die Eintritte für Tertiärluft, Rohmehl, Kohle und Ersatzbrennstoff eingebracht. Die Anordnung der Eintritte geben die Abbildung 3.59 und Abbildung 3.60 wieder.

Eine Ergebnisunabhängigkeit von der Zellanzahl wurde nicht explizit untersucht. Gitternetze mit niedrigeren Auflösungen wurden erstellt, wiesen allerdings im Berechnungsverlauf numerische Instabilitäten auf. Berechnungen mit feineren Auflösungen als die genutzten 2.550.000 Zellen konnten aufgrund des enorm hohen Rechenaufwandes im Projektzeitraum nicht durchgeführt werden.

3.5.2.2 2-dimensional

Die Berechnung der vorgestellten detaillierten 3D-Geometrie erfordert einen hohen Rechen- und Zeitaufwand. Zur Untersuchung genereller Zusammenhänge ist ein solcher Detaillierungsgrad oftmals nicht notwendig. Daher wurde eine generische 2D-Calcinatorgeometrie als weitere Simulationsgrundlage erstellt. Hierbei wurde der Calcinator als gestreckt angenommen und die Strömungsumlenkung im Schwanenhals vernachlässigt. Es ergibt sich hierbei eine 100 m lange rotationssymmetrische Geometrie. Durch Spiegelung entlang der Symmetrieachse ist bereits die Simulation des halben Calcinatorquerschnitts zielführend. Dieser Bereich wurde durch ca. 61.000 unstrukturierte Zellen diskretisiert und enthält ebenfalls Eintritte für Brennstoffe, Rohmehl und Tertiärluft. Abbildung 3.61 stellt dies schematisch dar. Für diese Geometrie resultieren signifikant niedrigere Rechenzeiten, sodass grundlegende Parameterstudien mit diesem Gitternetz durchgeführt wurden.



Abbildung 3.61: Generische Vorcalcinatorgeometrie (Schema)

3.5.3 Parameterstudie am generischen Calcinator (2-D Geometrie)

Zur Untersuchung grundlegender Zusammenhänge wurde eine generische Calcinatorgeometrie auf Basis des ausgewählten realen Calcinators erstellt. Die Berechnung der Abläufe in einer solchen zweidimensionalen Geometrie ist deutlich zeitsparender als eine detaillierte 3D-Simulation und somit zur prinzipiellen Untersuchung mittels Parametervariation nützlich.

Randbedingungen

Die Randbedingungen der 2D-Simulation orientieren sich jenen des ausgewählten realen Calcinators. In der folgenden Tabelle 3.21 sind zunächst die in den Calcinator eintretenden Brennstoff- sowie Luftmassenströme aufgeführt. Die Zusammensetzung des eintretenden Rauchgases wird in Tabelle 3.22 aufgezeigt.

	Massenstrom	Temperatur	Mittl. Durchmesser
Rauchgas	5,69 kg/s	927 °C	
Tertiärluft	8,05 kg/s	750 °C	
Kohle	1,00 kg/s	27 °C	90 µm
Rohmehl	9,111 kg/s (oben) 6,88 kg/s (unten)	827 °C	30 µm

 Tabelle 3.21: Eintrittsparameter im Vorcalcinator (2D)

		∂^{\pm} ()
Spezies	Rauchgas	Tertiärluft
Sauerstoff O ₂	0,0400 kg/kg	0,21 mol/mol
Kohlenstoffdioxid CO ₂	0,1546 kg/kg	-
Wasserdampf H ₂ O	0,0860 kg/kg	-
Schwefeldioxid SO ₂	0,0010 kg/kg	-
Kohlestoffmonoxid CO	0,0290 kg/kg	-
Stickstoff N ₂	Rest	Rest

Tabelle 3.22: Gaszusammensetzungen (2D)

Temperaturprofil

Das Temperaturprofil der generischen 2D-Geometrie ist in Abbildung 3.62 dargestellt. Es wird deutlich, dass das eingebrachte Ofengas zunächst durch den Rohmehleintrag abgekühlt wird, bevor es durch den Braunkohleeintrag eine deutliche Temperaturerhöhung erfährt. Dies ist durch die thermische Umsetzung der Braunkohle zu erklären. Weiterhin kühlt das Gasgemisch bis zum Tertiärlufteintrag ab. Dort wird dem System zusätzlicher Sauerstoff bereitgestellt, sodass die thermische Umsetzung des Brennstoffs wieder abläuft. Durch die Verbrennungsreaktion wird eine signifikante Wärmemenge frei und die Gastemperatur erhöht sich auf etwa 1000 °C. Diese Temperatur wird bis zum Calcinatoraustritt nur geringfügig durch Wärmeverluste und die Rohmehlumsetzung abgesenkt.



Abbildung 3.62: Temperaturverlauf im 2D-Calcinator

NH₃ Eindüsung

An der beschriebenen Geometrie wurden unterschiedliche Konzepte der Eindüsung hinsichtlich der Eindüsungsmenge und –position untersucht.

3.5.4 Simulation eines 3-D Vorcalcinators

3.5.4.1 Randbedingungen

Die Randbedingungen der detaillierten Simulation eines 3-D Vorcalcinators sind an die ersten Betriebsmessungen durch den VDZ angelehnt. Auf Grundlage dieser können durch Vergleich mit den experimentell aufgenommen Messwerten die Ergebnisse der CFD-Simulation validiert werden. In der Validierungsrechnung sind die Eingangsparameter des Rauchgases, der Calcinatorfeuerung sowie der Tertiärluft äquivalent zu der Messreihe V1 der ersten Betriebsmessungen. Die entsprechenden Randparameter sind in Tabelle 3.23 sowie in Tabelle 3.24 aufgeführt.

	Massenstrom	Temperatur	Mittl. Durchmesser
Rauchgas	11,38 kg/s	927 °C	
Tertiärluft	16,09 kg/s	750 °C	
Kohle	1,55 kg/s (je Brenner)	27 °C	90 µm
Rohmehl	18,22 kg/s (oben)	827 °C	30 µm
	27,5 kg/s (unten)		

 Tabelle 3.23: Eintrittsparameter im Vorcalcinator

|--|

Spezies	Rauchgas	Tertiärluft
Sauerstoff O ₂	0,0400 kg/kg	0,21 mol/mol
Kohlenstoffdioxid CO ₂	0,1546 kg/kg	-
Wasserdampf H ₂ O	0,0860 kg/kg	-
Schwefeldioxid SO ₂	0,0010 kg/kg	-
Kohlestoffmonoxid CO	0,0290 kg/kg	-
Stickstoff N ₂	Rest	Rest

Zur Berücksichtigung des Rohmehlumsatzes wurde speziell das in den Arbeitspaketen 1.5 bzw. 1.6 implementierten Calcinierungs-/Sulfatisierungsmodell an die vorliegenden Gitterstruktur und Randbedingungen angepasst und in das Simulationsprogramm ANSYS Fluent integriert. Nachfolgend werden die Ergebnisse der Strömungssimulation mit thermischer Umsetzung der Brennstoffe sowie des Rohmehls unter den angegebenen Randbedingungen vorgestellt und erläutert.

3.5.4.2 Strömungsprofil

Der Strömungsverlauf im untersuchten Vorcalcinator zeigt einen in Abhängigkeit der Geometrie ambivalenten Verlauf. Zur Beurteilung dieses Verlaufes sind in Abbildung 3.63 die Geschwindigkeitsstromlinien im Querschnitt des Vorcalcinators dargestellt. Drei markante Zonen sind speziell hervorgehoben: Die starke Turbulenz im unteren Bereich des Vorcalcinators sowie zwei Totzonen der Strömung in der Calcinatormitte bzw. nach dem Schwanenhals.



Abbildung 3.63: Strömungsprofil im Vorcalcinator

Im unteren Bereich des Calcinators, dem so genannten Steigschacht, liegt eine stark turbulente Strömung mit hohen Verwirbelungen und Absolutgeschwindigkeiten bis etwa 50 m/s vor. In diesen Bereich tritt ein großer Volumenstrom Rauchgas aus dem Drehrohrofen von unten ein. Durch die vorliegende Umlenkung wurde für den Eintritt des Rauchgases eine turbulente Intensität von 3 % angenommen. Das Rauchgas tritt somit bereits turbulent in den Calcinator ein. Weiterhin werden in dieser Zone die Brennstoffe sowie das Rohmehl eingebracht, sodass dort durch die thermische Umsetzung dieser Produkte ein signifikanter Temperatur- und Dichtegradient vorherrscht.

Durch den tangentialen Eintrag der Tertiärluft oberhalb des Steigschachtes legt sich die Gasströmung an die Außenwand (in Abbildung 3.63 rechts) des Calcinators an. Oberhalb des Tangentiallufteintrages liegt im Innenbereich des Calcinators eine Totzone vor, in dessen Bereich eine Rezirkulation mit geringer Geschwindigkeiten entsteht. Ein äquivalentes Verhalten zeigt sich in Folge der Strömungsumlenkung durch den Schwanenhals. Dort liegt auf der Innenseite eine Totzone mit niedrigen rezirkulierenden Geschwindigkeiten vor. Diese Totzonen sind insbesondere bei der Wahl der Eindüseposition zur NO_x-Reduktion mittels SNCR zu berücksichtigen. Abgesehen von diesen Zonen sind im mittleren bis hinteren Calcinatorbereich vorwiegend lineare Strömungen mit Geschwindigkeiten zwischen 10 und 30 m/s anzutreffen.

Weiterhin zeigte sich eine starke Beeinflussung des Strömungsprofils durch die simulative Berücksichtigung der vorliegenden Calcinatoranbackungen. Die Anbackungen sorgen für eine Verringerung des Innendurchmessers, sodass bei den gegebenen konstanten Volumenströmen eine höhere Strömungsgeschwindigkeit erzielt wird. Dies zeigt sich ebenfalls durch den Vergleich mit vorangehenden Calcinatorberechnungen ohne Anbackungen. So erhöhten sich die Strömungsgeschwindigkeiten durch die Berücksichtigung der Calcinatoranbackungen lokal zwischen 33 und 72 %. Dies wird aus der folgenden Tabelle 3.25 ersichtlich.

Ebene	Bühne 6	Bühne 7	Bühne 8	Bühne 9
Strömungsgeschwindigkeit mit Anbackungen	+ 39,6 %	+ 32,6 %	+ 71,7 %	+ 71,7 %

Tabelle 3.25: Einfluss der Anbackungen auf die Strömungsgeschwindigkeit

Die Bezeichnung der einzelnen Ebenen orientiert sich hierbei an den Bezeichnungen der real existierenden Bühnen, an welchen die Calcinatoranbackungen im Rahmen der ersten Betriebsmessungen von den Projektpartnern messtechnisch erfasst wurden. Sie sind in Abbildung 3.60 dargestellt.

Eine direkte Gegenüberstellung der Strömungsprofile mit und ohne Berücksichtigung der Anbackungen findet in Abbildung 3.64 statt. Es wird deutlich, dass sich ohne Berücksichtigung der Anbackungen oberhalb des Tertiärlufteintrittes sowie nach der Strömungsumlenkung im Schwanenhals Totzonen der Strömung ausbilden. Ein äquivalentes Verhalten zeigt sich ebenfalls unter Berücksichtigung der Anbackungen. Signifikante Differenzen treten in den Maximalbeträgen der Strömungsgeschwindigkeiten auf. Ohne Anbackungen liegen diese bei bis zu 35 m/s und liegen speziell an der Außenseite hinter dem Schwanenhals vor. Die Anbackungen sorgen hingegen wie beschrieben durch eine Querschnittsreduzierung für eine Erhöhung der Strömungsgeschwindigkeit. Dies äußert sich speziell im Bereich oberhalb des Tertiärlufteintritts. Darüber hinaus sorgen die Anbackungen für einen asymmetrischen Strömungsverlauf. Dieser äußert sich unter anderem in einer Vergrößerung der Turbulenzen innerhalb des Vorcalcinators, wodurch die Strömungsgeschwindigkeiten ebenfalls erhöht werden. Somit liegen die Maximalbeträge der Strömungsgeschwindigkeit mit Anbackungen bei bis zu 50 m/s.



Abbildung 3.64: Strömungsprofil im Vorcalcinator mit (rechts) und ohne (links) Berücksichtigung von Anbackungen

Nachfolgend werden bei den Simulationsbetrachtungen die Geometrien mit Anbackungen berücksichtigt.

3.5.4.3 Temperaturprofil

Die Temperaturverteilung innerhalb des untersuchten Vorcalcinators ist stark von den Randparametern der zugeführten Stoffströme sowie von der thermischen Umsetzung der Brennstoffe und des Rohmehls abhängig. Abbildung 3.65 zeigt das Temperaturprofil im Calcinatorquerschnitt abhängig von den Messebenen und Messpunkten.



Abbildung 3.65: Temperaturverlauf im Calcinator

Bei Betrachtung des Temperaturprofils im Vorcalcinator wird deutlich, dass das aus dem Drehrohrofen mit 927 °C eintretende Gasgemisch nach Eintritt in den Calcinator zunächst einen Temperaturanstieg erfährt. Die Temperatur des Gasgemisches im Vorcalcinator erhöht sich gegenüber der Drehrohrofentemperatur (927 °C) durch weitere Brennstoffeindosierung und die damit verbundenen Wärmefreisetzungen. Anschließend fällt im oberen Teil des Steigschachts die Temperatur auf etwa 730 °C ab, da eine endotherme Rohmehlumsetzung in diesem Bereich stattfindet. Mit dem Tertiärlufteintritt wird weiterer Sauerstoff in das System eingebracht, welcher im mittleren Bereich des Vorcalcinators die exotherme Umsetzung von Brennstoffpartikeln begünstigt und zu einem lokalen Anstieg der Temperatur führt. Im weiteren Verlauf ist speziell die Durchmischung der heißen Außenströmung (im Bild rechts) mit kühleren Zonen an der Innenseite für eine Reduktion der Temperaturmaxima verantwortlich. Wärmeverluste senken die Temperatur im mittleren und hinteren Bereich anschließend auf einen Austrittswert von etwa 830 °C ab.



Abbildung 3.66: Vergleich von Simulations- mit Messwerten (Temperatur)

In vier Ebenen des Vorcalcinators wurden im Rahmen der Betriebsmessungen mittlere Temperaturen messtechnisch erfasst. Der Vergleich der gemittelten Simulationsergebnisse in diesen Ebenen zeigt für die Ebene M1 im oberen Bereich des Steigschachtes sowie für Ebene M4 vor dem Calcinatoraustritt eine gute Übereinstimmung. Die Abweichung in diesen Ebenen beträgt 0,8 % bzw. 2,3 %. Signifikante Abweichungen ergeben sich hingegen für die Ebenen M2 und M3 in der Calcinatormitte. Während die Messergebnisse in diesem Bereich eine Temperaturreduktion anzeigen, liefert die Simulation als Ebenenmittelwerte einen Temperaturanstieg. Grundsätzlich ist durch die thermische Umsetzung der Brennstoffe nach dem Tertiärlufteintrag ein Temperaturanstieg zu erwarten. Eine Erklärung für diese ambivalente Tendenz ist die ausgeprägte Strähnenbildung in der Calcinatormitte, sodass bei den Betriebsmessungen ggf. kühlere Temperatursträhnen als der Ebenenmittelwert erfasst wurden. Der Messwert liegt jeweils zwischen dem simulativen Mittel- und Minimalwert der Ebenen, sodass die Simulationsergebnisse als plausibel angesehen werden können. Tabelle 3.26 führt die Messwerte und Simulationsergebnisse in den Messebenen zusammenfassend auf.

	Ebene M1	Ebene M2	Ebene M3	Ebene M4
Messung	1103 K	1024 K	963 K	1127 K
Simulation	1094 K	1250 K	1227 K	1101 K
Abweichung	- 9 K	+ 226 K	+ 287 K	- 26 K
rel. Abweichung	- 0,8 %	+ 22,1 %	+ 29,8 %	- 2,3 %

Tabelle 3.26: Vergleich von Mess- und Simulationswerten (Temperatur)

Im Hinblick auf die Implementierung einer Ammoniakwassereindüsung zur NO_x-Reduktion existiert ein optimales Temperaturfenster zwischen 870 und 970 °C (vgl. Abbildung 3.25). Unter Berücksichtigung des simulierten Temperaturprofils ist somit eine Eindüsung im hinteren Bereich des Calcinators vorzuziehen.

3.5.4.4 O2-Profil

Neben Strömungs- und Temperaturprofil im Vorcalcinator ist der Verlauf der Gaszusammensetzung innerhalb des Calcinators von Interesse. Im Folgenden wird der Sauerstoffgehalt behandelt. Abbildung 3.67 und Abbildung 3.68 zeigen den Verlauf des Sauerstoffgehaltes über den Calcinator sowie einen Vergleich mit Messwerten aus den Betriebsmessungen.



Abbildung 3.67: O₂-Verlauf im Calcinator

Dabei wird deutlich, dass der mit dem Rauchgas aus dem Ofen eintretende Sauerstoffanteil durch die thermische Umsetzung der Brennstoffe auf nahezu 0 Vol-% absinkt. Diese Sauerstoffmenge ist zur vollständigen Umsetzung der Brennstoffe nicht ausreichend. Mit der Tertiärluft gelangt zusätzlicher Sauerstoff in das System, sodass in der Calcinatormitte ein erhöhter Sauerstoffanteil vorliegt. In der Folge reduziert sich dieser Anteil durch die weiter ablaufende thermische Umsetzung der Brennstoffpartikel, bis diese komplett umgesetzt sind und ein Sauerstoffanteil von etwa 5,5 Vol-% am Calcinatoraustritt vorliegt. Der Vergleich mit den in den ersten Betriebsmessungen aufgenommenen Messwerten zeigt gute Übereinstimmung zwischen Berechnung und Messung, vor allem vor dem Hintergrund der schwierigen Messsitutation in Dichtstromfluiden.



Abbildung 3.68: O₂ - Gehalt Simulation und Messergebnisse

3.5.4.5 CO₂-Profil

Der Verlauf des Kohlenstoffdioxids innerhalb der Calcinatorgeometrie sowie die Werte in den Messebenen der ersten Betriebsmessungen sind in Abbildung 3.69 dargestellt.





Aus dem Verlauf wird ersichtlich, dass nach dem Brennstoffeintrag im unteren Bereich des Steigschachtes der CO₂-Gehalt des Gasgemisches auf Werte oberhalb von 40 Vol. % ansteigt. Mit dem Eintritt der Tertiärluft findet eine Vermischung des CO₂reichen Gasstromes mit der CO₂-armen Luft statt, sodass bei der Berechnung kurzfristig eine Reduktion der CO₂-Konzentration auftritt. Oberhalb des Tertiärlufteintrittes nimmt der CO₂-Anteil einen näherungsweise konstanten Anteil von 28 bis 29 Mol-% an und führt in der Ebene M4 zu einer guten Übereinstimmung zwischen Berechnung Seite 105 und Messung. In den Ebenen zuvor weisen die Werte der Simulation und der Betriebsmessungen allerdings signifikante Abweichungen auf. Während im Zuge der Betriebsmessung der CO₂-Molanteil kontinuierlich über den Calcinator steigt, wird in der Simulation der Verdünnungseffekt zwischen den Ebenen M1 und M2 deutlich. Insgesamt liegt das Ergebnis der Berechnung des CO₂-Gehaltes im Vorcalcinator in den Dimensionen der Betriebsmessungen und kann daher ebenfalls als plausibel angesehen werden.

3.5.4.6 NOx-Bildung und -Reduktion

Aus der thermischen Umsetzung der Brennstoffpartikel sowie den im Calcinator vorherrschenden Temperaturen und Gaszusammensetzung resultiert eine Bildung von Stickoxiden NO_x. Die Stickoxidbildung findet hierbei auf drei bekannte Reaktionswege statt: durch thermisches NO_x, promptes NO_x sowie Brennstoff-NO_x (vgl. 3.2.3.1). Die Simulationsergebnisse zeigen, dass die thermische und prompte NO_x-Bildung mit Reaktionsraten unterhalb von 10-8 mol/(m3 s) in vernachlässigbar geringen Maßen stattfinden. Die gebildeten Stickoxide stammen nahezu ausschließlich aus den Brennstoffen. Tabelle 3.27 listet die Dimensionen der berechneten Reaktionsraten im Vorcalcinator zusammenfassend auf.

Tabelle 3.27: NOX-Bildungsraten		
Thermisches NO _x	$< 1 \text{ x } 10^{-10} \text{ mol}/(\text{m}^3 \text{ s})$	
Prompt NO _x	$< 1 \text{ x } 10^{-8} \text{ mol}/(\text{m}^3 \text{ s})$	
Brennstoff NO _x	bis 1 x 10 ⁻⁴ mol/(m ³ s)	

Taballa 2 27. NOv Bildumgaratan

Diese Tendenzen decken sich ebenfalls mit den in Abbildung 3.24 aufgezeigten Zusammenhängen. Das Maximum der NO_x-Konzentration tritt hierbei in Höhe des Tertiärlufteintrittes auf, da an dieser Stelle die Sauerstoffzufuhr für eine verstärkte thermische Umsetzung der Brennstoffpartikel sorgt. Die Stickoxidbildung findet somit fast ausschließlich im unteren Drittel des Vorcalcinators statt. Die Simulationsberechnungen liefern anschließend eine Konzentration am Calcinatoraustritt von 561,6 mg NO_x/m³ im Normzustand. Ohne weitere Minderungsmaßnahmen wäre ein angestrebter Zielwert von 200 mg NO_x/m³ i. N. deutlich überschritten.

Aus diesem Grund wurde eine Untersuchung hinsichtlich der NO_x-Reduktion mittels SNCR durch eine Eindüsung von Ammoniakwasser durchgeführt. Sie umfasst zwei Varianten der Zugabe von handelsüblichem Ammoniakwasser in einer 25%-Lösung. Die Parameter der Eindüsung orientieren sich an denen der zweiten Betriebsmessun-
gen und umfassen zwei unterschiedliche Konfigurationen: eine Eindüsung ausschließlich nach dem Schwanenhals (SH) sowie eine geteilte Eindüsung hinter dem Schwanenhals und im oberen Bereich des Calcinators (SH+CO). Abbildung 3.70 stellt die Lage der Eindüseebenen dar, während Tabelle 3.28 die jeweiligen Ammoniakwasser-Massenströme wiedergibt.



Abbildung 3.70: Eindüseebenen Tabelle 3.28: Ammoniakwasser-Massenströme

	Eindüsung SH	Eindüsung SH+CO
Schwanenhals (SH)	62,50 g/s	31,25 g/s
Calcinator oben (CO)	-	23,00 g/s

Die Eindüsung erfolgt jeweils über zwei Lanzen, welche in der Eindüseebene um 90° versetzt angeordnet sind. Im Folgenden werden die Ergebnisse des Konzeptes der Ammoniakwasser-Zugabe ausschließlich hinter dem Schwanenhals vorgestellt. In Abbildung 3.71 sind die Querschnittsebenen innerhalb der x-z Ebene im näheren Umfeld der NH₃-Eindüsung dargestellt.



Abbildung 3.71: NH3-Konzentration und SNCR-Reaktionsraten (SH)

Der Abstand zwischen den Ebenen beträgt jeweils 0,5 m. Bei der Darstellung wird unterschieden zwischen der NH₃-Molkonzentration (links) und dem Ablauf der SNCR-Minderungsrate.-Das Strömungsbild des injizierten NH₃-Wassers zeigt ein kegelförmiges Erscheinungsbild. Das Maximum der NH₃-Konzentration im Gasgemisch liegt bei etwa 1,7 Volumenprozent in einem Abstand von 2 m zur Eindüseebene. Nach einem weiteren halben Meter (Δy =2,5m) zeigt sich die höchste NO_x-Minderungsrate. Angegeben sind hierbei jeweils die Reaktionsraten der Umsetzung in mol / (m³ s). Es wird deutlich, dass der Ablauf der NO_x-Reduktion in direktem Umfeld der Eindüsung stattfindet und deutlich vor dem Calcinatoraustritt abgeschlossen ist.

Abbildung 3.72 zeigt die Entwicklung der NO_x-Konzentrationen in Abhängigkeit der Messebenen. Bei Betrachtung des Stickoxidverlaufes über die vier Messebenen der Betriebsmessungen wird eine kontinuierliche Abnahme der NO_x-Konzentration ersichtlich. Die NO_x-Konzentration ist eine bezogene Größe mit Startkonzentration in der Messebene M1. Es wird deutlich, dass bereits zwischen Ebene M1 und Ebene M2 etwa 33 % der gebildeten Stickoxide reduziert wurden. Dies ist insbesondere auf das im Vorcalcinator angewendete Verfahren der gestuften Verbrennung mit dem Tertiärlufteintrag zwischen M1 und M2 zurückzuführen. Zwischen den Ebenen M2 und M3 lässt sich keine signifikante NO_x-Reduktion feststellen. Im Gegensatz hierzu findet im weiteren Verlauf (Schwanenhalsbereich: M3 bis M4) eine NO_x-Reduzierung von bis zur 48 Prozentpunkten statt. Bezogen auf die Ausgangskonzentration (M1) konnte eine NO_x-Reduzierung von insgesamt 81% erreicht werden. Dieser Verlauf deckt sich mit den in den Betriebsmessungen der Projektpartner messtechnisch erfassten Werten.



Abbildung 3.72: NO_x-Konzentration in den Messebenen

Zusammenfassend lässt sich festhalten, dass im ausgewählten Vorcalcinator ohne Einsatz von SNCR eine NO_x-Konzentration im Bereich von etwa 562 mg/m³ i.N. am Calcinatoraustritt vorliegt. Bei der Untersuchung einer Ammoniakwassereindüsung nach dem Schwanenhals mit den in Tabelle 3.23 angegebenen Randparametern konnte dieser Wert auf etwa 157 mg/m³ i.N. gesenkt werden. Dies entspricht einer Reduzierung der NO_x-Konzentrationen um etwa 72% durch das SNCR-Verfahren. Diese Werte sind zusammenfassend in Tabelle 3.29 gegenüberstellt.

· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·		
NH ₃ -Eindüsung	NO _x -Konzentration am Calcinatoraustritt	
keine	561,6 mg/m³ i.N.	
nach Schwanenhals	156,9 mg/m ³ i.N.	- 72,63 %

Гabelle 3.29: NO _x -Konzentrationen am Calcinatoraustr	itt
---	-----

Es zeigt sich, dass eine Senkung der NO_x-Konzentrationen unter einen Grenzwert von 200 mg/m³ im ausgewählten Vorcalcinator durch den Einsatz des SNCR-Verfahrens möglich ist und mit Hilfe mathematischer Simulationswerkzeuge zufrieden stellend beschrieben werden kann.

3.6 CFD-Simulation eines generischer Calcinator (LEAT)

Zur Auswertung der im Rahmen dieses Projektes ausgearbeiteten Modelle ist der industrielle Calcinator aufgrund seines komplexen Strömungsfeldes, mit einer Vielzahl an Rezirkulationszonen, Umlenkungen und Drallströmungen, nur bedingt geeignet. Deshalb wird im Folgenden ein generischer Calcinator, bei dem es sich um eine geometrisch vereinfachte Version des industriellen Calcinators handelt, vorgestellt. Dieser ermöglicht eine deutlich einfachere Interpretation der einzelnen Modellauswirkungen auf das Gesamtsystem, ohne auf die typischen Randbedingungen in einem Calcinator zu verzichten. Der geringere Detaillierungsgrad der Calcinatorgeometrie und die damit verbundene Verminderung der notwendigen Rechenzeiten ermöglicht weiterhin die Erstellung von Parameterstudien, welche in dem Ausmaß bei der Abbildung des industriellen Calcinators nicht durchzuführen wären.

3.6.1 Geometrie und Randbedingungen

Die in Abbildung 3.73 illustrierte Geometrie des generischen Calcinators verweist auf eine starke Ähnlichkeit zu dem in Abschnitt 3.5 vorgestellten industriellen Calcinator. Dabei wurde, für eine bessere Visualisierung der Simulationsgrenzen, die Darstellung des Calcinators in der Z-Richtung um den Faktor 0,4 gestaucht. Als wesentliche Änderung zum industriellen Calcinator ist zum einen der Verzicht auf die Umlenkungen, sowohl im Steigschacht als auch im oberen Bereich zu nennen. Dadurch erhöht sich zwar die Gesamthöhe des Calcinators, die Verweilzeit der Strömung wird allerdings nicht verändert. Des Weiteren wurde der Einlass der Tertiärluftleitung so verschoben, dass es zu keiner tangentialen Einströmung der heißen Frischluft kommt. Durch diese Vereinfachungen ergibt sich ein vergleichsweise einfaches, symmetrisches System ohne eine dominierende Drallströmung. Die rechteckige Struktur des Steigschachtes, sowie die Position der Einlässe (Braunkohle, Rohmehl und Ersatzbrennstoffe) im unteren Bereich, wurden dabei analog zum industriellen Calcinator gewählt. Dasselbe gilt auch für die Randbedingungen der einzelnen Stoffströme, wie zum Beispiel den Volumenstrom der Tertiärluft oder den Massenstrom des Rohmehls, so dass davon auszugehen ist, dass sich die grundlegende Struktur der Strömung (Reduktionszone im Steigschacht, Ausbrandzone im bauchigen Bereich des Calcinators) nicht wesentlich ändert.



Abbildung 3.73: Schematische Abbidlung des generischen Calcinators

3.6.2 Simulationsergebnisse

Bevor die Erkenntnisse aus den SNCR-Parameterstudien vorgestellt werden, sollen zunächst die resultierenden Geschwindigkeits-, Temperatur- und Konzentrationsverteilungen im Calcinator diskutiert werden. Diese bilden für die anschließende Interpretation der Reduktionsversuche die Basis, da die sensible SNCR-Chemie stark von den lokalen Verhältnissen abhängig ist, siehe dazu Abschnitt 3.2.3. Gleichwohl kann davon ausgegangen werden, dass es auch bei einer Variation der Injektionsstellen es infolge des verhältnismäßig sehr geringen Volumenstroms des Reduktionsmittels zu keiner großen Veränderung des Gesamtsystems kommt. Ausgenommen sind dabei natürliche alle an der SNCR-Chemie beteiligten Spezies.

Simulierte Strömungs-, Konzentrations-, und Temperaturprofile

Die simulierten Strömungsverhältnisse im Calcinator werden in Abbildung 3.74 veranschaulicht. Zu erkennen ist zunächst einmal die deutliche Geschwindigkeitsreduktion im "bauchigen" Teil des Calcinators. Diese wird durch die Querschnittsvergrößerung bewusst hervorgerufen, um die Verweilzeit im Calcinator zu erhöhen. Die geringe Strömungsgeschwindigkeit sorgt allerdings auch dafür, dass sich keine gleichmäßige Strömung einstellt und es zur Bildung von Rezirkulationszonen kommt. Verdeutlicht wird dies vor allem in der Abbildung der resultierenden Stromlinien. Gleichzeig ist zu erkennen, dass die Mischung der Frischluft aus der Tertiärgasleitung und dem aufsteigenden Rauchgas aus dem Steigschacht erst im oberen Teil der Calcinators Seite 111 abgeschlossen ist. Der hohe Impuls der beiden Ströme sorgt vor allem im unteren Teil dafür, dass sich die Tertiärluft um das einströmende Rauchgas legt und es so zu einer Strähnenbildung kommt.



Abbildung 3.74: Darstellung der Strömungsführung im generischen Calcinator (links: Gasgeschwindigkeit; mittig: Stromlinien Tertiärluft; rechts: Stromlinien Ofeneinlauf)

Die Verteilung der Gastemperatur, sowie der Sauerstoff- und Kohlendioxidkonzentrationen werden in Abbildung 3.75 illustriert. Deutlich zu erkennen ist der Einfluss der Entsäuerungsreaktion auf die Gasphasentemperatur. Durch die endotherme Reaktion ergibt sich im großen Teil des Simulationsvolumens eine Temperatur von ca. 850°C. Lediglich in den Bereichen der Brennstoffzufuhr und der Mischungsgrenze zwischen Rauchgas und Tertiärluft können höhere Temperaturen infolge des intensiven Energieeintrages bei der Umsetzung der Flüchtigen beobachtet werden. Die Sauerstoffverteilung verweist auf eine Unterteilung des Calcinators in eine sauerstoffarme Zone im Steigschacht sowie eine sauerstoffreiche Zone im Anschluss an die Tertiärluftleitung. Dies ist charakteristisch für die Anwendung der gestuften Verbrennung, welche als Primärmaßnahme für die Stickoxidreduktion angewandt wird. Damit können auch die höheren Temperaturen an den Mischungsgrenzen mit der Tertiärluft erklärt werden, da erst an diesen Stellen der notwendige Sauerstoff für die vollständige Umwandlung der Flüchtigen gegeben ist. Neben den Temperaturen zeichnet sich der Einfluss der Entsäuerungsreaktion auch in dem CO2-Profil ab. Besonders gut zu erkennen ist dies im Steigschacht, wo eine konstante Erhöhung des CO₂-Gehaltes auf einen Wert stattfindet, der mit 35 vol.-% im trockenen Zustand deutlich oberhalb der erwarteten Größenordnung einer reinen Verbrennungsreaktion liegt.



Abbildung 3.75: Darstellung der Temperatur und Konzentrationsverteilung im generischen Calcinator

Die ausgeprägten Unterschiede der Konzentrationsverteilungen, nicht nur entlang des Calcinators, sondern auch innerhalb der einzelnen horizontalen Ebenen, werden in Abbildung 3.76 verdeutlicht. Aufgetragen sind neben dem simulierten Mittelwert auch die minimal und maximal auftretenden Werte der untersuchten Größen. Wie zu erwarten, ergibt sich vor allem im Bereich der Zugabestellen eine große Spannweite an auftretender Gaszusammensetzung. Aber auch im oberen Bereich des Calcinators zeigt die Auswertung des Sauerstoffgehaltes, dass auf einer Höhe von 60 m, und damit ca. 35 m oberhalb der Tertiärluftleitung, die Gegebenheiten infolge der Strähnenbildung zwischen 3,5 und 5,5 vol.-% schwanken.

Der Verlauf der simulierten Stickoxide zeigt zunächst eine Erhöhung im Bereich der Brennstoffzufuhr. Diese resultiert vor allem aus der Freisetzung des im Brennstoff gebundenen Stickstoffs. Die anschließende Abnahme der Stickoxide ist wiederum auf die reduzierenden Bedingungen im Steigschacht (gestufte Verbrennung) zurückzuführen. Das resultierende Niveau entspricht dabei in etwa dem Ausgangsniveau der Ofengase, so dass die gestufte Verbrennungsführung einen Großteil des Brennstoff-NO_x der Calcinatorfeuerung kompensiert. Der Abfall im Bereich der Tertiärluftleitung lässt sich mit der Verdünnung des Abgases durch die Frischluft der Tertiärluftleistung begründen. Auch wenn ein Vergleich mit den experimentellen Messdaten des industriellen Calcinators nur bedingt aussagekräftig erscheint, zeigt dieser, dass der simulierte Endwert von ca. 750 mg/m³ in einer ähnlichen Größenordnung liegt (siehe Abbildung 3.4) und damit eine vergleichbare Ausgangslage für eine Untersuchung der Stickoxidreduktion vorliegt.



Abbildung 3.76: Darstellung der Temperatur und Konzentrationsverteilung im generischen Calcinator

Stickoxidreduktion durch SNCR

In Hinblick auf mögliche Optimierungsmaßnahmen der SNCR Technik in Calcinatoren stellt die Wahl der Eindüsestellen, infolge der gezeigten heterogenen Temperaturund Konzentrationsverteilung, sicherlich den größten Einflussfaktor dar. Deshalb soll an dieser Stelle durch eine Variation der Injektionsstellen das Optimierungspotenzial aufgezeigt werden. Dafür wurden insgesamt zehn Varianten simuliert, deren jeweilige Injektionsstelle Abbildung 3.77 entnommen werden kann. Während in Variante 1 bis 7 die Höhe der Injektionsstellen verändert wurde, kommt es in den folgenden Varianten sowohl zu einer Veränderung der horizontalen Position, als auch zu einer Aufteilung der Injektion auf zwei Stellen. Als Reduktionsmittel wurde analog zum industriellen Calcinator eine 25 % Ammoniakwasserlösung verwendet. Das Molenverhältnis zwischen der Ausgangsbeladung von NO_X im Ofeneinlauf und dem NH₃ der zerstäubten Lösung beträgt dabei 1.



Abbildung 3.77: Simulierte NO-Profile bei einer Variation der Injektionsstellen

Die Ergebnisse der simulierten Varianten können ebenfalls Abbildung 3.77 entnommen werden, wobei der resultierende Gesamtreduktionsgrad in Bezug auf die Simulation ohne Eindüsung des Reduktionsmittels in Abbildung 3.78 veranschaulicht wird. Zunächst einmal zeigt die Auswertung der Höhenvariation, dass es zu signifikanten Unterschieden im Gesamtreduktionsgrad kommen kann. Vor allem Variante 4 zeigt ein um den Faktor 2,5 schlechteren Reduktionsgrad als die vermeintlich beste Variante 7. Eine Erklärung hierfür ist, dass in Variante 4 das Reduktionsmittel in einer Zone zerstäubt wird, die vergleichsweise nur geringfügig mit NO beladen ist, so dass auch bei guten Bedingungen nur ein geringer Teil des Gesamt-NO abgebaut werden kann. Das restliche NH₃ wird anschließend über eine Rezirkulationszone oberhalb der Tertiärluftleitung in die sich bildende Flammenfront (Mischstelle Tertiärluft und Abgasstrom) befördert, wo es unter den lokalen Bedingungen auch nur zur einer geringfügigen Reduktion kommt. Auffällig sind weiterhin die durchgängig hohen Reduktionsgrade bei einer Injektion im Steigschacht. Diese lassen sich vor allem durch die extrem hohe Ausgangskonzentration, welche im Vergleich zum oberen Teil des Calcinators nahezu doppelt so hoch ist, begründen. Die im bauchigen Teil des Calcinators (V4-V6) simulierte Tendenz hin zu steigenden Reduktionsgraden im oberen Bereich wurde ebenfalls in den Messungen an der industriellen Anlage festgestellt, siehe Abschnitt 3.1.3. Eine Erklärung hierfür könnte die stark heterogenen Temperatur- und Konzentrationsverteilungen liefern, welche sich mit steigender Verweilzeit zunehmend homogenisieren. Vor allem in Hinblick auf instationäre Zustände (schwankende Strähnenbildung) ist in diesem Bereich mit stark schwankenden Bedingungen zu rechnen, welche dauerhaft gute Reduktionsgrade erschweren. Mit 78,4 % ist der Reduktionsgrad im obersten Bereich des Calcinators (V7) am besten. Wie bereits in Abbildung 3.76 veranschaulicht wurde, kombiniert diese Stelle ein gleichmäßiges Strömungsprofil mit einer homogenen Konzentrationsverteilung, so dass von einer guten und dauerhaften Reduktion der Stickoxide ausgegangen werden kann.



Abbildung 3.78: Vergleich der Reduktionsgrade der Stickoxide am Austritt des Calcinators Die Auswertung der Variation 8 bis 11 zeigt, dass es auch innerhalb einer Injektionsebene zu Unterschieden in der Reduktionsgüte kommt, wobei der Unterschied nicht so signifikant wie bei einer Variation der Höhe ausfällt. Eine Versetzung der Injektionslanze um 180° (V8 hin zu V9) führt so zu einer Erhöhung des Reduktionsgrades von 6,4 Prozentpunkten. Auch die Aufteilung des Reduktionsmittels führt in dieser Studie nur zu einer geringen Verschiebung der reduzierten NO_X-Menge. Hinsichtlich anderen Injektionshöhen sind, abhängig von dem Homogenisierungsgrad der Strömung, sowohl größere, als auch kleinere Unterschiede zu erwarten. Grundsätzlich kann allerdings davon ausgegangen werden, dass in Hinblick auf ein hocheffizientes SNCR-Verfahren, vor allem diese Prozentpunkte für die Einhaltung der strengeren Emissionsgrenzwerte ausschlaggebend sind und sich die Anlagenbetreiber nicht nur Gedanken um die Höhe der Injektionsstellen, sondern auch um die Verteilung der einzelnen Lanzen machen müssen.

3.7 Zusammenfassung

Das SNCR-Verfahren ist gegenwärtig die verbreitetste Sekundärmaßnahme zur Reduktion von Stickstoffoxiden in deutschen Zementwerken. Damit können zwar derzeitige Emissionsgrenzwerte in der Regel eingehalten werden, die ab 01.01.2019 geplante Verschärfung auf einen Maximalwert von 200 mg/m³ stellt die deutsche Zementindustrie jedoch vor eine große Herausforderung. Eine solche Minderung ist zwar theoretisch denkbar, die Betriebserfahrungen zeigen allerdings, dass unter gegenwärtigen Wirkungsgraden das Reduktionsmittel stark überstöchiometrisch eingesetzt werden müsste. Dies verursacht zum einen erhöhte Betriebsmittelkosten und zum anderen unerwünscht hohe Ammoniakemissionen (NH₃- Schlupf).

Das Thema des vorliegenden Forschungsvorhabens knüpft dabei an die genannte Problematik an, mit dem Ziel, die Anwendung der SNCR-Technik in Vorcalcinieranlagen mit Hilfe von CFD-Simulationen genauer zu beschreiben und mögliche Optimierungspotenziale aufzuzeigen. Zu diesem Zweck wurden zunächst Modelle für die wesentlichen Einzelvorgänge, wie zum Beispiel die Modellierung der SNCR-Chemie sowie die Abbildung der Reduktionsmittelverdampfung, erarbeitet und in eine kommerzielle CFD-Software (ANSYS-FLUENT) implementiert. Die Überprüfung der verwendeten Modelle erfolgte dabei an mehreren experimentellen Aufbauten. Ergänzt wurden die Untersuchungen durch eine Messkampagne an einer industriellen Anlage, durch welche die wesentlichen Randbedingungen bestimmt und ein vertieftes Verständnis des Gesamtprozesses erarbeitet werden konnte. Darauf aufbauend wurde eine CFD-Simulation des Calcinators durchgeführt, die Ergebnisse mit den Messwerten verglichen und Optimierungspunkte aufgezeigt. Die wesentlichen Erkenntnisse der einzelnen Projektabschnitte werden im Folgenden kurz zusammengefasst.

Zur Untersuchung der Interaktion von verdampfenden Tröpfchen und festen Partikeln in einer hochbeladenen Strömung wurde am LEAT ein neuer Prüfstand aufgebaut und betrieben. Die Auswertung der resultierenden Temperaturverteilung zeigt dabei, dass sich das Verdampfungsverhalten unter Zugabe einer festen Phase verändert. Die Partikel-Tropfen Interaktionen scheinen grundsätzlich die Verdampfung der flüssigen Phase zu fördern. Gleichzeitig lassen die Ergebnisse darauf schließen, dass es infolge von Partikel-Tropfen Kollisionen zu einer veränderten Flugbahn der Tropfen kommen kann, die wiederum in einer Verschiebung der lokalen Verdampfungspositionen resultiert. Die nummerische Abbildung des beobachteten Phänomens wurde durch eine Kombination eines stochastischen Kollisionsmodelles und eines angepassten Verdampfungsmodelles berücksichtigt. Die damit berechneten Temperaturverteilungen weisen, im Vergleich zum konventionellen Verdampfungsmodell, eine deutlich bessere Übereinstimmung mit den experimentellen Daten auf.

Der spezifischen Einflüsse des Rohmaterials auf die SNCR-Kinetik wurde am FIZ in einem Modellofen untersucht. Dazu wurden zunächst Referenzversuche mit einer definierten Gasmischung ohne Rohmaterial bei betriebsähnlichen Temperaturen durchgeführt. Die dabei gewonnen Erkenntnisse bestätigen die aus der Literatur bekannten, wesentlichen Einflussfaktoren auf die SNCR-Chemie. Die nachfolgenden Versuche mit Anwesenheit von Kalkstein haben gezeigt, dass die NO_X-Reduktion tendenziell bevorzugt wird. Diese Beobachtungen wurden sowohl bei den Variationen der NH₃-Konzentrationen als auch bei den Variationen der NO-Konzentrationen festgestellt

Zur generaueren Beschreibung der SNCR-Chemie wurde am LUAT ein erweitertes Reaktionsmodell verwendet, welches durch die Berücksichtigung von Radikalen (Zwischenprodukte der Reduktionsreaktion) die globalen Standardmodelle in kommerziellen CFD-Codes deutlich erweitert. Die durchgeführten Validierungsrechnungen an der Modelofenanlage zeigen dabei, dass das detaillierte Reaktionsmodell eine höhere Ergebnisgenauigkeit besitzt und sich demnach zur Abbildung der Reduktionsversuche im Calcinator besser eignet.

Die am Fallrohrreaktor des LEAT durchgeführte Versuchsreihe wurde für eine anwendungsnahe Überprüfung der erstellten Modelle herangezogen. Dabei wurden nicht nur die Einzelzustände, sondern auch die Wechselwirkungen von Verbrennung, Calcinierung und NO_X-Reduktion im Flugstrom untersucht und anschließend simuliert. Der Vergleich mit den experimentellen Daten zeigt dabei, dass die verwendeten Modelle in Anbetracht der Komplexität des Systems eine überraschend gute Übereinstimmung mit vielen wesentlichen Messwerten liefern. Vor allem in Hinblick auf die Beschreibung der Stickoxide wurde das resultierende Bildungs- und Reduktionsniveau hinreichend genau abgebildet.

Bei den Betriebsmessungen (FIZ) in einem repräsentativen Vorcalcinator wurden umfangreiche Messdaten erhoben, um einerseits die benötigten Randbedingungen für die Simulation der Anlage bereitzustellen und andererseits die Auswirkungen verschiedener Eindüsepositionen auf die NO_X- Reduktionsgrade aufzuzeigen. Dabei zeigte sich, dass die NO_x-Emissionen grundsätzlich in allen Versuchseinstellungen auf das Zielniveau von 200 mg/Nm³ abgesenkt werden konnten. Allerdings verdeutlichen die deutlichen Unterschiede in Hinblick auf die benötigte Reduktionsmittelmenge, dass die Reduktionsgrade stark von der Position der Eindüsung abhängig sind. Ein signifikanter Ammoniakschlupf konnte in allen Versuchseinstellungen nicht festgestellt werden. Bei allen durchgeführten Kurzzeitversuchen lag die NH₃-Emission im Reingas (im Verbundbetrieb) bei ca. 3 mg/Nm³.

Die am LUAT durchgeführte Simulation der industriellen Calcinierungsanlage konnte sowohl die Wechselwirkungen als auch die Praxistauglichkeit der entwickelten Modellansätze verdeutlichen. Eine Überprüfung der Simulationsergebnisse erfolgt dabei durch die Gegenüberstellung mit den aus der Betriebsmessungen gewonnen Messdaten. Es zeigt sich, dass die Bildung und Reduktion der Stickoxide mit Hilfe der mathematischer Simulationswerkzeuge zufrieden stellend beschrieben werden kann. Die Simulationswerkzeuge erlauben auch weitergehende Aussagen über Rauchgasspezies (wie CO, O_2 , CO_2) und die Beschreibung von Strömungsvorgänge mit Totzonenausbildungen, wobei letztere zur Optimierung von Eindüsezonen wichtige Aussagen liefern. Es zeigte sich allerdings auch, dass aufgrund der komplexen Raktionsmechanismen extreme Berechnungszeiten und teilweise ein numerisch instabiles Verhalten auftraten.

Weitere nummerische Untersuchungen wurden an einem generischer Calcinator, bei dem es sich um eine geometrisch vereinfachte Version des industriellen Calcinators handelt, durchgeführt. Dieser ermöglicht eine deutlich einfachere Interpretation der einzelnen Modellauswirkungen auf das Gesamtsystem, ohne auf die typischen Randbedingungen in einem Calcinator zu verzichten. Eine Parameterstudie der Injektionsorte des Reduktionsmittels, bei der sich teilweise signifikanten Unterschieden (Faktor 2,5) im Gesamtreduktionsgrad ergaben, veranschaulicht dabei die Einsatzmöglichkeiten der in diesem Forschungsvorhaben erstellten Werkzeuge und Methoden zur Optimierung des SNCR-Verfahrens in der Zementindustrie.

3.8 Literaturverzeichnis

- [1] Siebzehnte Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes (Verordnung über die Verbrennung und die Mitverbrennung von Abfällen - 17. BImSchV), 2013.
- [2] R.S. Vonderbank, R. Leithner, S. Schiewer, B. Hardow, Modellierung paralleler Kalzinierung und Sulfatierung bei der SO2-Einbindung durch das Trocken-Additiv-Verfahren, BWK. (1993).
- [3] Abschlußbericht AiF 13535, Prozessoptimierung für eine Vorcalcinieranlage der Zementindustrie, 2005.
- [4] M. Hillers, Modellierung der Turbulenzmodulation einer hochbeladenen reaktiven Zweiphasenströmung am Beispiel des Zementherstellungsprozesses, (2008).
- [5] J. Brouwer, M.P. Heap, D.W. Pershing, P.J. Smith, A model for prediction of selective noncatalytic reduction of nitrogen oxides by ammonia, urea, and cyanuric acid with mixing limitations in the presence of co, Symp. Combust. 26 (1996) 2117–2124. doi:10.1016/S0082-0784(96)80036-1.
- [6] J. Zelkowski, NOx-Bildung bei der Kohleverbrennung und NOx-Emissionen aus Schmelzfeuerungen - Bericht aus der Tätigkeit des VGB-Arbeitskreises "NOx Bildung in Kohlenfeuerungen," VGB-Kraftwerkstechnik. 66 (1984) 733– 738.
- [7] ANSYS Inc., ANSYS FLUENT 14.5 Theory Guide, Canonsburg, PA, 2012.
- [8] C. Zhu, G.L. Liu, X. Wang, L.-S. Fan, A parametric model for evaporating liquid jets in dilute gas-solid flows, Int. J. Multiph. Flow. 28 (2002) 1479–1495. doi:10.1016/S0301-9322(02)00038-1.
- [9] D.P. Schmidt, I. Nouar, P.K. Senecal, C.J. Rutland, J.K. Martin, R.D. Reitz, et al., Pressure-Swirl Atomization in the Near Field, Int. Congr. Expo. (1999).
- [10] M. Sommerfeld, Modellierung und numerische Berechnung von partikelbeladenen turbulenten Strömungen mit Hilfe des Euler/Lagrange-Verfahrens, Shaker Verlag, Aachen, 1996.
- [11] M. Sommerfeld, Validation of a stochastic Lagrangian modelling approach for inter-particle collisions in homogeneous isotropic turbulence, Int. J. Multiph. Flow. 27 (2001) 1829–1858. doi:10.1016/S0301-9322(01)00035-0.
- [12] B. Hußmann, Modellierung und numerische Simulation der zweiphasigen Strömungs- und Verbrennungsvorgänge in einem Staustrahltriebwerk mit Bor als Festtreibstoff, 2008.

- [13] K. Pachler, Parallele Berechnunng 3-dimensionaler, instationärer Gas-Partikel Strömungen unter Berücksichtigung von Kollisionen und Aggregatzustandsänderungen, 2004.
- [14] J. Lavieville, E. Deutsch, O. Simonin, Large eddy simulation of interactions between colliding particles and a homogeneous isotropic turbulence field, Gas-Particle Flows. Band 228 (1995) 359–369.
- [15] S. Fohanno, B. Oesterle, Analysis of the effect of collisions on the gravitational motion of large particles in a vertical duct, 26 (2000) 267–292.

4 Wirtschaftliche Bedeutung des Forschungsthemas für kleine und mittlere Unternehmen (KMU)

In Deutschland werden Zementwerke in großer Zahl von einer mittelständisch strukturierten Industrie betrieben. Im Zusammenhang mit dem Neubau, vor allem aber mit dem Betrieb und dem Umbau von Ofenanlagen ist darüber hinaus eine sehr große Zahl kleinerer Unternehmen als Zulieferer und Dienstleister, zunehmend auch im CFD-Bereich, involviert. Mit den erzielten Projektergebnissen wird die realitätsnahe Simulation von Vorcalcinatoren unter Berücksichtigung von NO_X-Bildung und -Reduktion durch das SNCR Verfahren ermöglicht und damit ein Beitrag zur notwendigen Optimierung des Verfahrens für die Einhaltung der geplanten Verschärfung der Emissionsgrenzwerte geschaffen. Damit einher geht ein wirtschaftlicher Nutzen für die Betreiber, da durch eine Optimierung auch weniger des teuren Reduktionsmittels benötig wird. Ferner können die bisher notwendigen und kostenintensiven Versuche an bestehenden Anlagen auf diese Weise durch Simulationen ergänzt und reduziert werden.

4.1 Darstellung des wissenschaftlich-technischen und wirtschaftlichen Nutzens der erzielten Forschungsergebnisse

Die erzielten Forschungsergebnisse veranschaulichen zunächst einmal die grundlegenden Einflussgrößen für ein hocheffizientes SNCR-Verfahren in den Zementwerken mit Vorcalciniertechnik und bieten dadurch eine grundlegende Hilfestellung zur Optimierung des Systems. Ferner können die im Rahmen des Forschungsvorhabens experimentellen ermittelten Daten zur Quantifizierung der jeweiligen Einflussgrößen herangezogen werden. Mit der Implementierung der daraus hervorgegangenen numerischen Ansätze für die Bildung- und Reduktion der Stickoxide, sowie der Verteilung des Reduktionsmittels in der dicht beladenen Strömung, wurden wichtige Submodelle für die CFD-Simulation der Gesamtanlage verfügbar gemacht. Die Möglichkeit, den Calcinator unter Einbeziehung einer adäquaten Stickoxidabbildung simulieren und optimieren zu können, reduziert die Notwendigkeit von empirischen Untersuchungen des laufenden Prozesses. Diese sind meist sehr kostenintensiv und die Betriebsspielräume der Experimente sehr eingeschränkt, da ein behindernder Eingriff in den Produktionsablauf der Anlagen grundsätzlich unerwünscht und die Zugänglichkeit des Reaktionsraumes meist nicht auf die Erfordernisse der einzusetzenden Messsysteme abgestimmt ist. Ferner können die experimentell erarbeiteten Grundlagen zur adäquaten Abbildung der Eindringtiefe des Reduktionsmittels in die dicht beladene Seite 122

Strömung von Düsenherstellern und Anlagenbauern zur Verbesserung ihrer Produkte herangezogen werden. Darüber hinaus liefern die gewonnenen Forschungsergebnisse wichtige Erkenntnisse für verschiedene Fachgebiete. So können die erhaltenen Informationen sowohl auf dem Sektor der Energie- und Verfahrenstechnik als auch im wichtigen Bereich der Mess-, Regel- und Automatisierungstechnik angewendet werden.

4.2 Innovativer Beitrag und industrielle Anwendungsmöglichkeiten der erzielten Forschungsergebnisse

Generell können die gewonnenen Erkenntnisse einen Beitrag für eine hoch-effiziente Nutzung der SNCR-Technologie in modernen Zementwerken leisten. Über die Einsparung des Reduktionsmittels hinaus können die Produktionskosten durch den optimierten Minderungsprozess sowie den Verzicht auf die teurere SCR-Technik entscheidend reduziert werden. An die Stelle der Erprobung im industriellen Maßstab treten nämlich verstärkt dreidimensionale numerische Simulationen, die aufgrund der heute verfügbaren Rechenkapazitäten und der Weiterentwicklung der Modellansätze eine sehr detaillierte Untersuchung ermöglichen. In der Simulation sind einfache Modifikationen sowohl der Betriebspunkte als auch der Geometrie vergleichsweise schnell und kostengünstig untersuchbar. Darauf aufbauend können Empfehlungen für die Nachrüstung bestehender Systeme ausgesprochen werden. Weitere Einsatzgebiete der numerischen Simulation sind die Fehlersuche, d.h. die Untersuchung von Schadensfällen, Konzeptstudien zur Auslegung, Optimierung und Neuentwicklung. Durch die im Rahmen des Projekts entwickelten Modelle wird es möglich, eine adäquate Simulation der NO_X-Bildung und -Reduktion auch in Vorcalcinatoren durchzuführen und damit den meist mittelständischen Anlagenbetreibern und -bauern die Möglichkeit gegeben, die Vorteile der CFD-Simulation zu nutzen. Dadurch, dass durch die Veröffentlichung der entwickelten Modelle diese auch den - zumeist mittelständischen - Ingenieurbüros zur Verfügung stehen, die erst mit den Modellen solche Simulationen durchführen können, ergibt sich ein Zusatznutzen.

5 Ergebnistransfer in die Wirtschaft

Die Ergebnisse des Forschungsprojekts werden über den Abschlussbericht, Veröffentlichungen in Fachzeitschriften und bei Fachtagungen den interessierten Unternehmen international und national zugänglich gemacht. Die Ergebnisse beinhalten sowohl die experimentell ermittelten Daten, als auch die Simulationsdaten der jeweiligen Versuchsanlagen sowie des industriellen Calcinators. So können Anlagenbetreiber bereits aus dem Abschlussbericht Rückschlüsse auf Optimierungspotenzial ihrer Anlagen gleicher Bauart ziehen. Darüber hinaus eröffnet der VDZ, der über das Forschungsinstitut der Zementindustrie (FIZ) als eine der Forschungsstellen am Projekt beteiligt ist, seinen Mitgliedern den Zugang zu den gewonnenen Forschungsergebnissen. Wesentliche Aspekte dieser Gemeinschaftsforschung sind die Praxisnähe und der schnelle Wissenstransfer. Weiterhin werden die Ergebnisse durch die intensive Zusammenarbeit mit den Betreibern und Erbauern von Vorcalcinatoren im Projektbegleitenden Ausschuss und die akademische Lehre in die Praxis getragen.

Eine Übersicht des Ergebnistransfers in die Wirtschaft kann Tabelle 5.1 entnommen werden.

Spezifische Maßnahmen	Inhalt und Art des Transfers
Information der Unternehmen des Projektbegleitenden Aus- schusses (PA)	Es fanden insgesamt 4 Sitzungen des PA statt. Die Ergebnisse wurden vorgestellt und diskutiert. Durch die anschließende Be- reitstellung der Protokolle und Präsentationen lag ein unmittel- barer und kontinuierlicher Transfer der Erkenntnisse in die Wirtschaft vor.
Berichterstattung und Diskus- sion im VDZ-Ausschuss Umwelt und Verfahrenstechnik	Es fand zweimal jährlich eine Sitzung des Ausschusses statt. Die Ergebnisse wurden vorgestellt und diskutiert. Interessierten Teil- nehmern wurde der aktuelle Stand der Ergebnisse (Zwischenbe- richte) zur Verfügung gestellt.
Vorstellung der Forschungser- gebnisse während der DVV Jah- restagung	Es fand einmal jährlich eine Sitzung statt. Die Ergebnisse wurden vorgestellt und diskutiert. Interessierten Teilnehmern wurde der aktuelle Stand der Ergebnisse (Zwischenberichte) zur Verfügung gestellt.
Vorstellung der Forschungser- gebnisse bei Fachtagungen	Die Teilergebnisse wurden bereits 2013 bei dem 26. Deutschen Flammentag vorgestellt. Durch die geplante Teilnahme an der 8th "International Conference on Coputational and Experimental Methods in Multiphase and Complex Flow" erfolgt eine interna- tional Präsentation der gewonnen Erkenntnisse (Geplant für Ap- ril 2015).

Tabelle 5.1: Übersicht des Ergeb	nistransfers in die Wirtschaft
----------------------------------	--------------------------------

Spezifische Maßnahmen	Inhalt und Art des Transfers
Veröffentlichung in Fachzeit- schriften	Nach Abschluss des Projektes ist eine Veröffentlichung in einer Fachzeitschrift mit industriellem Fokus, zum Beispiel ZKG Inter- national oder Cement International, geplant (Geplant für Herbst 2015).
Übernahme der Ergebnisse in die Lehre	Einbeziehung der Ergebnisse in die Lehrveranstaltungen: Ener- gietechnik und Ressourcenmanagement und Energieanlagen- technik an der RUB.
Übernahme der Ergebnisse in der Ausbildung und Weiterbil- dung	Im Anschluss an das Projekt erfolgt eine Integration der wichtigs- ten Erkenntnisse im Bereich der Ausbildung (Industriemeister Kalk / Zement und Produktionssteuerer Zement), der Schulun- gen wie zum Beispiel "Junge Betriebsingenieure" und bei inter- nationalen Seminaren der "European Cement Research Academy" durch den VDZ.
Betreuung studentischer Arbei- ten zur Thematik und Einbezie- hung studentischer Hilfskräfte	Während der Laufzeit wurden am LEAT zwei studentische Hilfs- kräfte kontinuierlich eingesetzt sowie über 20 Abschlussarbeiten (Bachelor- und Masterarbeiten) zu dem Themengebiet betreut. Neben dem fachlichen Wissen konnte auch die Herangehens- weise an eigenständiges wissenschaftliches Arbeiten vermittelt werden.
Dissertation	Die gewonnenen Erkenntnisse werden nach Beendigung des Pro- jektes in eine Dissertationsschrift eines wissenschaftlichen Mitar- beiters am LEAT einfließen (Geplant für Herbst 2015).
Publikation der Projektergeb- nisse im Internet	Verbreitung der wichtigsten Erkenntnisse durch die Veröffentli- chung einer Zusammenfassung auf der Homepage der For- schungsgemeinschaft und der Internetplattformen des VDZ.
Weitergabe von ausführlichen Forschungsberichten	Verbreitung der Ergebnisse an interessierte Unternehmen durch die Herausgabe des Abschlussberichtes bei einer individuellen Anfrage.
Weitergabe der Erkenntnisse durch industrielle Zusammenar- beit	Die breite Mitgliederbasis des VDZ ermöglicht einen guten Zu- gang zu den gewonnenen Erkenntnissen und ermöglicht eine Be- ratung bei Modernisierungs- und Umbaumaßnahmen.
Übernahme der Ergebnisse in CFD-Codes	Darstellung der Übertragbarkeit der mathematischen Modelle in einen kommerziellen CFD-Code

Die Maßnahmen zum Ergebnistransfer wurden im Wesentlichen wie geplant umgesetzt. Auch die nach Abschluss des Forschungsprojekts geplanten Maßnahmen werden als gut realisierbar eingeschätzt.

6 Nachweise über die Verwendung der Zuwendungen

6.1 Wiss.-techn. Personal (Einzelansatz A.1 des Finanzierungsplans)

6.1.1 LEAT

Ein wissenschaftlicher Mitarbeiter übernahm während der Projektlaufzeit die Koordination der experimentellen und numerischen Tätigkeiten. Gleichzeitig war der Mitarbeiter an der Bearbeitung aller Arbeitspakete des LEAT maßgeblich beteiligt. Der Mitarbeiter führte schließlich eine Interpretation und Zusammenfassung der erlangten Erkenntnisse durch. (36 PM)

Unterstützt wurde der Mitarbeiter durch weitere wissenschaftliche Mitarbeiter, welche sowohl bei der Auswertung experimenteller Daten, als auch bei der Erstellung und Validierung von nummerischen Modellen tätig waren. (12 PM)

6.1.2 LUAT

6.1.3 FIZ

Ein promovierter Verfahrenstechniker übernahm die Projektleitung und technische Bewertung. Dies beinhaltete die wissenschaftliche Interpretation der Mess- und Analysenergebnisse der Betriebsversuche. Der Forschungsingenieur führte alle notwendigen Planungs- und Organisationsarbeiten hinsichtlich der durchgeführten Betriebsversuche durch. Des Weiteren bewertete dieser die erarbeiteten Ergebnisse hinsichtlich der vorgegebenen Zielsetzung (17,45 PM).

Für die Vorbereitung, Durchführung und Auswertung der vier Messkampagnen war der Einsatz von zwei technischen Angestellten (2 x 2,5 PM) sowie eines Laboranten (2,5 PM). Die Aufgaben während der Messkampagnen bestanden unter Anderem aus Einrichtung, Überwachung und Betrieb der erforderlichen Messgeräte und der Durchführung der diskontinuierlichen Probenahme. Alle Mitarbeiter sorgten darüber hinaus für die Zusammenstellung, Wartung und Pflege der verwendeten Gerätschaften.

6.2 Geräte (Einzelansatz B des Finanzierungsplans)

Während des Projektes erfolgten keine Ausgaben

6.3 Leistungen Dritter (Einzelansatz C des Finanzierungsplans)

Während des Projektes erfolgten keine Ausgaben

7 Zusammenstellung aller Veröffentlichungen

Während des Projektzeitraumes:

- Berichterstattung und Diskussion im Projektbegleitenden Ausschuss (4 Sitzungen)
- Berichterstattung und Diskussion im Ausschuss Umwelt und Verfahrenstechnik des VDZ (zweimal jährlich)
- Vortrag DVV-Kolloquium (jährlich)
- S. Perumalsamy, Mathematical Modelling of SNCR DeNOx Processes,
 26. Deutscher Flammentag Verbrennung und Feuer, Duisburg, 2013

Im Anschluss an das Vorhaben:

- W. Arnold, Experimental and numerical investigation of liquid jets evaporating in a dilute gas-liquid-solid pipe flow, International Conference on Computational and Experimental Methods in Multiphase and Complex Flow, Valencia, geplant für April 2015
- Veröffentlichung in einer Fachzeitschrift, geplant für Herbst 2015
- Veröffentlichung im Internet: Kurzveröffentlichung auf der DVV-Homepage, geplant für Sommer 2015

8 Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Arbeit

Die geleistete Arbeit entspricht den im Projektantrag definierten Aufgabenstellungen der einzelnen Arbeitspakete und ist für den Umfang der Ergebnisse und neuen Erkenntnisse angemessen.

9 Förderhinweis

Das IGF-Vorhaben 17189 N der Forschungsvereinigung Deutsche Vereinigung für Verbrennungsforschung e. V. (DVV) wurde über die AiF im Rahmen des Programms zur Förderung der Industriellen Gemeinschaftsforschung (IGF) vom Bundesministerium für Wirtschaft und Energie aufgrund eines Beschlusses des Deutschen Bundestages gefördert.