

Characterization of continuous diffusion flames in supercritical water

Doctoral Thesis

Author(s):

Príkopský, Karol

Publication date:

2007

Permanent link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-005509478>

Rights / license:

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#)

DISS. ETH NO. 17374

CHARACTERIZATION OF CONTINUOUS DIFFUSION
FLAMES IN SUPERCRITICAL WATER

A dissertation submitted to
ETH ZURICH
for the degree of
Doctor of Technical Sciences

presented by
KAROL PRÍKOPSKÝ
Dipl.-Ing., Slovak University of Technology in Bratislava
born on April 25th, 1979
citizen of
Slovak Republic

accepted on the recommendation of
Prof. Dr. Ph. Rudolf von Rohr, examiner
Prof. Dr. K. Boulouchos, co-examiner
Dr. B. Wellig, co-examiner

2007

Summary

Flames in supercritical water, also known as hydrothermal flames, in the process of supercritical water oxidation (SCWO) were reported by several authors in the literature. The work of the Institute of Process Engineering at the ETH Zurich, focused on the possibility of the use of these flames to improve the SCWO process, as the flames would provide needed reaction temperatures in a defined zone of the reactor and allow the reactants enter the reactor in "cold", subcritical state. The presented work can be divided into four main parts, which are: (a) performance investigations of an existing transpiring-wall reactor (TWR) with a hydrothermal flame for the degradation of salt-containing artificial waste water streams (b) design and construction of a novel reactor with optical access to the entire combustion chamber (c) investigation of hydrothermal flames in the novel reactor at various operating conditions and (d) providing data for numerical simulations of hydrothermal flames.

The characteristic feature of the used TWR is the prevention of any wall contact with the reaction mixture by fluid dynamic means. A film formed by subcritical water on the inner walls of the transpiring wall elements inhibits any contact of the corrosive reaction mixture and precipitated salt particles with the reactor walls. The hydrothermal flame allows that the reactants reach reaction temperatures without any wall contact and enables low inlet temperatures. Various kinds of experiments with salt containing artificial wastewater (water-methanol-sodium sulfate or water-methanol-sodium chloride) were performed at operating pressures of 25 MPa, where oxygen was used as oxidizer. The concept using the hydrothermal flame with 16 and 22 wt.% methanol in the fuel stream and the transpiring-wall worked satisfactory, even with sodium sulfate

contents of 3 wt.% in the artificial wastewater stream. No plugging of the reactor was observed during the experiments. Elements of different porosity (17 and 21 %), different transpiration intensities (1-6 %) and transpiring water temperatures (75-200 °C) did not significantly affect the salt accumulation in the reactor.

The novel WCHB-3 reactor was designed and constructed to withstand operating temperatures up to 600 °C and pressures up to 29 MPa. The main feature of the reactor is the optical access to the whole length of the combustion chamber from four directions, satisfying the needs of different optical diagnostics.

Flame stability investigations in the WCHB-3 reactor were performed at various conditions. Ignition was achieved by heating-up the reactants to auto-ignition temperature (410–470 °C). Subcritical extinction temperatures were achieved with methanol mass fractions of 20 wt.%. Temperature profiles were measured by means of a thermocouple in the axis of the combustion chamber and allowed rough estimation of temperatures and positions of the flame along the reactor axis. Influence of the thermocouple on the flame behavior was observed. Chemiluminescence imaging was performed using an intensified CCD camera equipped with two types of bandpass filters (313 and 431nm). The bandpass filters were used to visualize OH and CH radicals in the flame and to gain information on the flame front position and shape. The line-of-sight nature of this technique allowed only rough estimates on the flame characteristics. In general, higher inlet temperatures and higher methanol contents lead to higher flame intensities. With lower inlet temperatures, the flame moved further away from the burner and became longer and broader. Variation of pressure (25–27.5 MPa) and of the oxygen excess (1.2–1.6) did not show any significant influence on the flame behavior. A setup for future laser-induced fluorescence (LIF) measurements was constructed.

The simulation part of the work was performed by the LAV at ETH Zurich. A rather good agreement between the simulated and measured data on the flame temperature profiles was achieved.

The present work will help in better understanding of combustion processes in the supercritical water environment. Besides SCWO, hydrothermal flames could be of interest also for other applications, such as spallation drilling.

Zusammenfassung

Über Flammen im überkritischen Wasser, auch bekannt als hydrothermale Flammen, im Prozess der überkritischen Nassoxydation (supercritical water oxidation, SCWO) haben einige Autoren in der Literatur berichtet. Die Forschung am Institut für Verfahrenstechnik der ETH Zürich hat versucht den SCWO Prozess gezielt durch den Einsatz solcher Flammen zu verbessern. Die Flammen liefern die gewünschte Reaktionstemperatur und ermöglichen einen kalten, unterkritischen Einlass der Reaktanden in den Reaktor. Die vorgelegte Arbeit kann in vier Hauptabschnitte unterteilt werden (a) Untersuchung der Leistungsfähigkeit des bestehenden Schwitzwandreaktors (transpiring-wall reactor, TWR) für den Abbau von salzhaltigen Modellabwässern (b) Auslegung und Konstruktion eines neuen Reaktors mit optischen Zugang zur gesamten Brennkammer (c) Untersuchung von hydrothermalen Flammen unter verschiedenen Betriebsbedingungen und (d) Unterstützung numerischer Simulation der hydrothermalen Flamme.

Das Hauptmerkmal des TWR ist die Verhinderung jeglichen Wandkontaktes mit dem Reaktionsgemisch. Unterkritisches Wasser strömt durch poröse Schwitzwandelemente und bildet einen Film an der inneren Rohrwand, was jeden Kontakt der Reaktorwand mit dem korrosiven Reaktionsgemisch sowie mit ausgefallenen Salzpartikeln verhindert. Die hydrothermale Flamme ermöglicht den Reaktanden die gewünschten Reaktionstemperaturen ohne jeglichen Wandkontakt zu erreichen. Verschiedene Experimente mit salzhaltigen Modellabwässern wurden bei einem Betriebsdruck von 25 MPa durchgeführt. Als Oxidator wurde Sauerstoff verwendet. Das Konzept mit der hydrothermalen Flamme (16

und 22 Massen-% Methanol) und der Schwitzwand hat auch bei Salzgehalten von 3 Massen-% im Abwasser gut funktioniert. Während der Experimente kam es zu keiner Verstopfung des Reaktors. Elemente verschiedener Porosität (17 und 21 %), Transpirationsintensität (1-6 %) und Schwitzwassertemperatur (75-200 °C) haben keinen signifikanten Einfluss auf die Salzzakkumulation im Reaktor gezeigt.

Der WCHB-3 Reaktor ist in der Lage, Betriebstemperaturen bis zu 600 °C und Drücken bis zu 29 MPa standzuhalten. Das Hauptmerkmal des Reaktors ist der optische Zugang zur Brennkammer, was den Einsatz von verschiedenen optischen Untersuchungsmethoden ermöglicht.

Die Flammenstabilität im WCHB-3 Reaktor wurde unter verschiedenen Betriebsbedingungen untersucht. Die Zündung der Flamme erfolgte durch Aufheizen der Reaktanden bis zur Selbstzündtemperatur (410–470 °C). Unterkritische Löschtemperaturen wurden bei Methanolgehalten von mindestens 20 Massen-% im Brennstoffstrom erreicht. Temperaturprofile in der Brennkammerachse wurden mittels eines Thermoelements gemessen. Dies ermöglichte eine ungefähre Abschätzung von Temperatur und Position der Flamme entlang der Reaktorachse. Ein Einfluss des Thermoelements auf das Flammenverhalten wurde beobachtet. Für Chemilumineszenz-Aufnahmen wurde eine lichtverstärkte CCD-Kamera, ausgestattet mit zwei Bandpassfiltern (313 and 431 nm), benutzt. Die Filter wurden bei Aufnahmen von OH- und CH-Radikalen in der Flamme und so zur Bestimmung von Position und Form der Flamme verwendet. Der "line-of-sight" Charakter dieser Abbildung ermöglicht nur eine ungefähre Bestimmung der Flammeneigenschaften. Im Allgemeinen führten höhere Einlasstemperaturen und höhere Methanolgehalte zu höheren Flammenintensitäten. Bei tieferen Einlasstemperaturen hat sich die Flamme weiter vom Brenner weg bewegt und wurde länger und breiter. Änderung des Druckes (25–27.5 MPa) und des Sauerstoffüberschusses (1.2–1.6) haben keinen wesentlichen Einfluss auf das Flammenverhalten gezeigt. Ein Aufbau für die Messmethode mittels Laser-Induzierter Fluoreszenz (LIF) wurde aufgestellt.

Simulationen wurden von der LAV-Gruppe der ETH Zürich durchgeführt. Der Vergleich simulierter und gemessener Temperaturprofile zeigte eine gute Übereinstimmung.

Die vorgelegte Arbeit soll zu einem besseren Verständnis von Verbrennungsprozessen im überkritischen Wasser verhelfen. Neben SCWO,

könnten hydrothermale Flammen auch für andere Applikationen, wie "spallation drilling", von Interesse sein.