

Diss. ETH Nr. 12383

**Messen des Verweilzeitspektrums in der
Nachbrennkammer von Holzfeuerungen zur
Modellierung der Kohlenmonoxid-Oxidation**

ABHANDLUNG

Zur Erlangung des Titels

DOKTOR DER TECHNISCHEN WISSENSCHAFTEN

der

EIDGENÖSSISCHEN TECHNISCHEN HOCHSCHULE

ZÜRICH

vorgelegt von

Serge Michel Albert Biollaz

Dipl. Masch.-Ing. ETH

geboren am 18. Februar 1967

von Basel und Chamoson (VS)

Angenommen auf Antrag von

Prof. Dr. P. Suter, Referent

Prof. Dr. M. Morbidelli, Korreferent

1997

Abstract

The level of carbon monoxide emissions is a good indicator of the quality of a combustion process. To build combustion chambers for wood furnaces with a complete combustion or low-CO emissions, respectively, an improved understanding of the physicochemical aspects of the oxidation of CO is needed. The present study is a contribution toward the improvement of that understanding. Its case study aspects should allow the transfer of the methods developed and of the knowledge gained to research on the combustion processes of other fuels such as waste or coal, or on other emissions such as nitric oxides from wood (NO_x).

Various physicochemical models are to be developed, to be validated with measurement data in order to obtain model-based guidelines for the construction of low-CO combustion chambers. The measuring system to be developed must yield data on various process parameters such as temperature, excess air, degree of mixing, and mean residence time. With certain model assumptions for the reactor dynamics, the degree of mixing and the mean residence time is calculated from the measured residence time distribution (RTD).

The measurement system is then successfully applied during systematic experiments on the oxidation process of CO within diverse secondary combustion chambers. While it does yield a rough description of the process, the determination of the efficiency of the mixing on a molecular level remains difficult. Nevertheless, the new approach permits a distinction to be made between macro and micro mixing (i.e., mixing by turbulence or mixing by molecular diffusion, respectively), as well as an interpretation of these phenomena. The novelty of this approach consists of the introduction of the well-known Bode diagram, interconnected with the Kolmogorov frequency, to this application.

The strong effect of the mixing performance on the CO reduction calculated has been clearly shown. However, the models developed can not completely explain the CO oxidation measured due to the lack of satisfactory data on various aspects, such as the mixing time of the reactants, the earliness of mixing, and the mixing on a molecular level (degree of segregation). These uncertainties represent major obstacles on the way toward the development of meaningful model-based guidelines. Nevertheless, the results of the experiments and the simulation allow important conclusions concerning the design of secondary combustion chambers.

One of the conclusions is that if the temperature is sufficiently high ($T > 800\text{ }^\circ\text{C}$), the early and complete mixing of the reactants on the molecular level is of preeminent importance. Even higher temperatures and longer mean residence times (> 1 second) are justified only in the presence of partial mixed reactants.

Kurzfassung

Für die Beurteilung der Abgasqualität ist die Kohlenmonoxidkonzentration eine Leitgröße. Um Nachbrennkammern von Holzfeuerungen bauen zu können, die einen sehr guten Ausbrand bzw. noch geringere CO-Emissionen haben, braucht es ein verbessertes physikalisch-chemisches Verständnis der CO-Oxidation. Für dieses Prozessverständnis leistet die vorliegende Arbeit einen Beitrag. Die eingesetzten Methoden und gewonnenen Erkenntnisse können jedoch auch auf andere Brennstoffe wie Müll und Kohle, oder auf weitere Emissionskomponenten wie z.B. Brennstoffstickoxide (NO_x) übertragen und angewendet werden. In dieser Hinsicht ist die vorliegende Arbeit auch als Fallbeispiel zu verstehen.

Um modellgestützte Auslegungsrichtlinien für emissionsarme Nachbrennkammern formulieren zu können, sollen verschiedene physikalisch-chemische Modelle entwickelt und mit eigenen Messdaten validiert werden. Zur Erhebung dieser Messdaten muss ein Messsystem entwickelt werden, mit welchem die Prozessparameter Temperatur, Konzentration, Vermischung und mittlere Verweilzeit bestimmt werden können. Die Bestimmung von Vermischung und mittlerer Verweilzeit erfolgt hier aus dem Verweilzeitspektrum und setzt dabei bestimmte Annahmen für die Modellstruktur des Verweilzeitverhaltens voraus.

Dieses Messsystem wird erfolgreich für systematische Experimente zur Untersuchung der CO-Oxidation an deutlich unterschiedlichen Nachbrennkammern eingesetzt. Die gewonnenen Messdaten erlauben eine grobe Prozessbeschreibung. Dabei bereitet die Bestimmung der Vermischungsqualität im molekularen Bereich nach wie vor messtechnische Schwierigkeiten. Mit einem neuen Ansatz steht jedoch ein Werkzeug zur Verfügung, mit dem die Qualität der Makromischung (Mischung durch Turbulenz) von derjenigen der Mikromischung (Mischung durch molekulare Diffusion) unterschieden und beurteilt werden kann. Dies erfolgt durch eine in diesem Bereich neu eingeführte Darstellung (Bodediagramm) und ihrer Verknüpfung mit der Kolmogorovfrequenz.

Der starke Einfluss der Vermischungsqualität auf den berechneten CO-Restgehalt wird eindeutig nachgewiesen. Ohne die hinreichend genaue Bestimmung der Mischzeit der Reaktanden, des Vermischungszeitpunktes, sowie der molekularen Vermischungsqualität (Segregation), kann mit den entwickelten Modellen die gemessene CO-Oxidation jedoch nur unvollständig erklärt werden. Ausgehend von dieser Unsicherheit ist es schwierig, modellgestützte Auslegungsrichtlinien zu formulieren. Trotzdem sind aus den Resultaten der Experimente und der Simulation wichtige Tendenzen für die Gestaltung von Nachbrennkammern erkennbar. Bei ausreichender Temperatur ($T > 800 \text{ °C}$) hat eine frühe und bis in den molekularen Bereich erfolgende Vermischung der Reaktanden absolute Priorität. Nur bei unvollständiger Vermischung der Reaktanden sind noch höhere Temperaturen und längere mittlere Verweilzeiten ($> 1 \text{ Sekunde}$) sinnvoll.