

Zur Abscheidung saurer Schadgase in Schlauchfilteranlagen

Zur Erlangung des akademischen Grades eines

Dr.-Ing.

vom Fachbereich Bio- und Chemieingenieurwesen der Universität Dortmund
genehmigte Dissertation

vorgelegt von

Dipl.-Ing. Jörg Vietmeier

aus

Greven

Tag der mündlichen Prüfung: 20. Mai 2005

1. Gutachter: Prof. em. Dr.-Ing. U. Werner

2. Gutachter: Prof. Dr.-Ing. H. Fahlenkamp

Dortmund 2005

Vorwort

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Angestellter am Lehrstuhl für Mechanische Verfahrenstechnik der Universität Dortmund.

Ich danke Herrn Prof. em. Dr.-Ing. U. Werner für die wissenschaftliche Betreuung, sein Vertrauen, seine Unterstützung sowie für das den Untersuchungen entgegengebrachte Interesse.

Mein Dank gilt auch Herrn Prof. Dr.-Ing. H. Fahlenkamp für die Übernahme des Koreferats. Herrn Prof. Dr.-Ing. A. Górak danke ich für die Mitwirkung in der Prüfungskommission.

Weiterhin möchte ich mich bei Herrn Prof. Dr. techn. P. Walzel bedanken, dass ich nach seiner Übernahme der Lehrstuhlleitung meine Arbeit abschließen konnte und er sich meinem Thema stets aufgeschlossen gegenüber gezeigt hat.

Hervorzuheben ist die langjährige gute Zusammenarbeit mit Herrn Dr.-Ing. G. Langer. Die zahlreichen fachlichen Diskussionen haben wesentlich zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen.

Ein großes Dankeschön gilt allen Mitarbeitern des Lehrstuhls und der Abteilungswerkstätten, ohne deren tatkräftige Unterstützung die Durchführung der Untersuchungen in dieser Form nicht möglich gewesen wäre. Auch keiner der Ehemaligen soll an dieser Stelle vergessen werden.

Ich danke den Seminar-, Studien- und Diplomarbeitern sowie den studentischen Hilfskräften und Vertiefungspraktikanten für ihre Ausdauer und Mithilfe.

Ein herzlicher Dank geht an meine Familienangehörigen und die Freunde außerhalb der Arbeit. Insbesondere danke ich Corina, auf deren Hilfe und Rückhalt ich immer zählen konnte.

Braunschweig, im Juli 2005

Jörg Vietmeier

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung und Aufgabenstellung	1
2	Theoretische Grundlagen	5
2.1	Filternde Abscheider	6
2.1.1	Abscheidemechanismen am Filtermedium und -kuchen.....	7
2.1.2	Druckverlust durchströmter Filterschichten.....	8
2.1.3	Abreinigung von Oberflächenfiltern	13
2.1.4	Bekannte Einflüsse auf das Durchströmungsverhalten von anfiltrierten Kalkhydratschichten.....	17
2.2	Schadgasabscheidung.....	17
2.2.1	Relative Feuchte	19
2.2.2	Temperatur	20
2.2.3	Stofftransport und Reaktionszeit.....	20
2.3	Verweilzeit in Reaktoren.....	21
2.3.1	Verweilzeitverteilung.....	21
2.3.2	Methoden zur experimentellen Bestimmung der Verweilzeit.....	22
2.3.3	Bestimmung der Verweilzeit anhand nicht idealer Sprungfunktionen ...	23
2.4	Modellierung der Schadgasabscheidung an festen Additivpartikeln	26
3	Modellierung des Druckverlustes und der SO ₂ -Abscheidung in Schlauchfiltern..	30
3.1	Druckverlust in durch Druckstoß abgereinigten Schlauchfilteranlagen	30
3.2	Schadgasabscheidung in Filteranlagen	32
3.2.1	Schadgasabscheidung am Einzelkorn	32
3.2.2	Abscheidung in der Flugstromphase	39
3.2.3	Schadgasabscheidung in Festbettreaktoren.....	42
3.2.4	Schadgasabscheidung in anwachsenden Filterschichten	49
4	Experimentelle Grundlagen	54
4.1	Aufbau und Funktionsweise der Versuchsanlage	54
4.1.1	Schadgasdosierung.....	55
4.1.2	Verdampfer.....	55
4.1.3	Reaktionsrohr	55

4.1.4	Staubdosierung	56
4.1.5	Filterkammer	57
4.1.6	Ventilator	59
4.1.7	Begleitheizung	59
4.2	Messtechnik und Regelungseinrichtungen	60
4.2.1	Steuerung und Regelung	60
4.2.2	Gasanalyse	61
5	Verweilzeituntersuchungen	62
5.1	Versuchsaufbau	63
5.2	Ergebnisse der Verweilzeitmessungen	64
5.3	Ergebnisse der Strömungssimulation	67
6	Ergebnisse der Druckverlustuntersuchungen	71
6.1	Einfluss der Feuchte und der Temperatur	72
6.2	Einfluss von HCl	73
7	Ergebnisse der SO ₂ -Abscheidung	76
7.1	Hinweise zur Auswertung	76
7.2	Einfluss von Temperatur und Feuchte	77
7.3	Einfluss des stöchiometrischen Verhältnisses von Calciumhydroxid zu Schwefeldioxid	79
7.4	Einfluss der relativen Feuchte	80
7.5	Einfluss von HCl	81
7.6	Einfluss des Ortes der Additivzugabe	84
8	Berechnung der SO ₂ -Abscheidung in Schlauchfilteranlagen	85
8.1	Direkt bestimmbare Modellparameter	85
8.2	Bestimmung der Anpassungsparameter anhand von Durchbruchkurven	86
8.3	Berechnungsergebnisse zur Schadgasabscheidung in durch Druckstoß abgereinigten Schlauchfilteranlagen	90
8.3.1	Berechnung der lokalen Filtrations- und Kuchenwachstumsgeschwindigkeiten	91
8.3.2	Berechnung der Schadgasabscheidung	94

9	Zusammenfassung.....	101
10	Literaturverzeichnis	105
11	Symbolverzeichnis.....	112
12	Abbildungsverzeichnis.....	116
13	Anhang.....	119

1 Einleitung und Aufgabenstellung

In zahlreichen industriellen Prozessen entstehen Prozess- bzw. Rauchgase, aus denen sowohl partikelförmige als auch gasförmige Verunreinigungen zu entfernen sind. Diese Aufgabe stellt sich z.B. bei Anlagen zur thermischen Verwertung von Abfallstoffen, wie der Haus- und Sondermüllverbrennung, oder dem Betrieb von kleineren und mittleren Kraftwerken. Weitere Beispiele finden sich in der keramischen, metallurgischen (z.B. NE-Metallrecycling), chemischen und der Glas verarbeitenden Industrie. Zu den gasförmigen Schadstoffen, die in Rauchgasen je nach Zusammensetzung des Brennstoffes und Führung des Feuerungsprozesses in mehr oder weniger großen Konzentrationen enthalten sein können, gehören als saure Komponenten vor allem SO_2/SO_3 , HCl und HF . Außerdem finden sich häufig noch Spuren anderer, äußerst toxischer Substanzen. Hierzu zählen u.a. die Schwermetalle wie Hg oder As und organische Komponenten wie Dioxine und Furane.

Zur Rauchgasreinigung wurden in der Vergangenheit je nach zu reinigendem Volumenstrom verschiedene Verfahren entwickelt, bei denen die sauren Schadgaskomponenten durch Absorption bzw. Adsorption gebunden werden. Diese können in nasse, quasi-trockene und trockene Verfahren unterteilt werden.

Bei den **nassen Verfahren** wird das Rauchgas meist durch Eindüsung von Wasser zunächst abgekühlt und dann in einem Wäscher mit Kalkmilch als basischer Waschflüssigkeit in Kontakt gebracht. Hierbei fällt Gips in fester Form an und kann als REA-Gips verwertet werden. Die Abkürzung REA steht für „Rauchgasentschwefelungsanlagen“. Die nassen Verfahren haben sich vor allem für größere Kraftwerke durchgesetzt, da sich die vorgegebenen Grenzwerte gut einhalten lassen und gleichzeitig das eingesetzte Additiv annähernd stöchiometrisch umgesetzt wird. Es ist nicht gelungen, dieses Konzept wirtschaftlich auf kleinere Verbrennungsanlagen zu übertragen, da zur Aufbereitung der anfallenden Abwässer und Wiederaufheizung der nach dem Wäscher auf Taupunkttemperatur abgekühlten Abgase ein relativ hoher apparativer Aufwand betrieben werden muss [1].

Für kleinere Rauchgasströme, wie sie z.B. bei der Müllverbrennung entstehen, wurden abwasserfreie Verfahren entwickelt. Bei der **quasi-trockenen Rauchgasreinigung** wird das Reaktionsmittel in einem Sprühtrockner als Suspension in dem heißen Rauchgas versprüht und die Flüssigkeit verdampft. Das Reaktionsprodukt kann als Staub in einem nachgeschalteten Abscheider abgetrennt werden. Ähnlich wie bei den nassen Verfahren kommt es hier zunächst zur Absorption und einer Reaktion der sauren Schadgase in der

flüssigen Phase. Die Staubabscheidung erfolgt vorzugsweise in filternden Abscheidern, da es in dem sich bildenden Filterkuchen durch noch nicht umgesetztes Reaktionsmittel zu einer Nachabscheidung der Schadgase kommt. Durch Rezirkulation des Filterstaubes kann die Ausnutzung des Additivs zwar gesteigert werden, das Additiv muss aber dennoch mit einem stöchiometrischen Überschussfaktor von 1,5 bis 4 eingesetzt werden, um die geforderten Emissionsgrenzwerte einzuhalten [1].

Die **trockenen Verfahren** sind Gegenstand der vorliegenden Arbeit und zeichnen sich insbesondere durch ihren einfachen Aufbau und ihre kompakte Bauweise aus und werden seit über 30 Jahren industriell eingesetzt. Bei diesen Verfahren werden die Schadgase durch die Zugabe von reaktiv und/oder adsorptiv wirkenden Additiven unter trockenen Bedingungen gebunden [2]. Technisch werden verschiedene Additive genutzt, die sich durch ihre physikalischen und chemischen Eigenschaften unterscheiden. Kohlenstoffhaltige Additive, wie Aktivkohle oder Aktivkoks, werden zur Abscheidung unpolarer, organischer Komponenten eingesetzt. Für spezielle Anwendungen, bei denen z.B. bestimmte Moleküle selektiv abgetrennt werden sollen, eignen sich Zeolithe. Unter den anorganischen Additiven werden preisgünstige und leicht verfügbare Calciumverbindungen am häufigsten eingesetzt, insbesondere Kalkhydrate, die handelsüblich eine spezifische Oberfläche bis etwa $20 \text{ m}^2 / \text{g}$ aufweisen. Wegen der großen Verbreitung dieser Additive wurde ein derartiges Produkt auch im Rahmen dieser Arbeit eingesetzt. So genannte aktivierte Kalkhydrate erreichen spezifische Oberflächen, die oberhalb von $40 \text{ m}^2 / \text{g}$ liegen können. Durch basische Calciumverbindungen werden vor allem saure Schadgase wie SO_2 , SO_3 , HCl und HF gebunden. [3]

Das Reaktionsmittel wird als trockener Staub dem Rauchgas zugeführt und nach Durchlaufen eines Flugstromreaktors in einem Gewebefilter wieder abgeschieden.

Bei hohen Staubkonzentrationen im Rohgas erfolgt eine Vorabscheidung der Staubpartikel, bevor das Rauchgas bezüglich der Temperatur und des Wasserdampfgehaltes konditioniert und das Additiv zudosiert wird [4, 5] (s. Abbildung 1.1). Gebräuchlich sind darüber hinaus sowohl Mischeinrichtungen als auch zyklon- oder venturiartige Reaktoren vor dem Filter, mit dem Ziel, eine intensive Vermischung von Additiv und Rauchgas und eine ausreichend hohe Reaktionszeit zu gewährleisten [4, 6, 7, 8]. Durch Zerkleinerung des überwiegend an der Partikeloberfläche umgesetzten Additivs soll reaktives Material wieder freigelegt und durch Rückführung des Additivs eine Steigerung des Umsatzes erreicht werden. Beispielhaft sei hier das „Kugelrotor-Umlaufverfahren“ erwähnt [9].

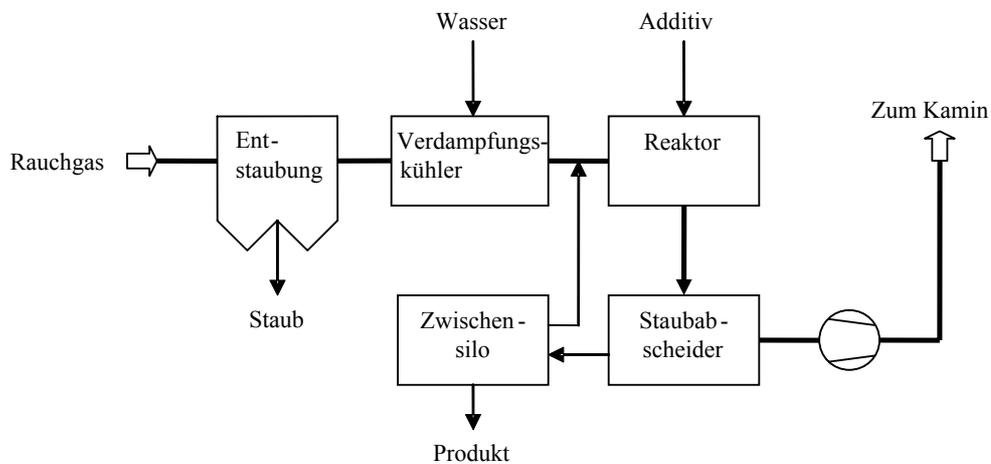


Abbildung 1.1: Verfahrensbeispiel eines trockenen Rauchgasreinigungsverfahrens [1]

Die Abscheidung der teilweise beladenen bzw. umgesetzten Additive zusammen mit dem Inertstaub erfolgt vorzugsweise in Oberflächenfiltern. Der gebildete Filterkuchen übernimmt hier die Funktion eines „Festbettreaktors“ zur weiteren Schadgasabscheidung. Da die sorptive wie partikuläre Abscheidung in einer einzigen Stufe erfolgen kann, sind Anlagen, die nach dem Prinzip der Trockensorption arbeiten, kompakt und einfach aufgebaut. Hinzukommt, dass bei geeigneter Wahl des Additivs in diesen Anlagen eine große Bandbreite an Schadstoffen gebunden und entfernt werden kann. Im Gegensatz zu den nassen und quasi-trockenen Verfahren kommt es hier zur Adsorption und einer Reaktion der Schadgase vor allem an der Oberfläche des festen Additivs. Die Effektivität, d.h. die Ausnutzung der basischen Edukte, ist daher geringer als bei den nassen Verfahren. Das Additiv muss mit höherem Überschuss eingesetzt werden. Durch den erhöhten Verbrauch an Additiv muss eine entsprechend größere Menge an Reaktionsprodukt entsorgt werden, so dass den günstigeren Investitionskosten höhere Betriebskosten gegenüberstehen.

Die Weiterentwicklung trocken und quasi-trocken betriebener Filterschichtadsorber ist daher eine lohnenswerte Aufgabe mit dem Ziel, vor allem kleinere und mittlere Feuerungsanlagen mit einer leistungsfähigen, einfachen und kostengünstigen Rauchgasreinigung auszustatten.

Diese Verfahren sind bezüglich der vorliegenden Strömungs- und Reaktionsbedingungen in wesentlichen Punkten noch nicht ausreichend untersucht und demzufolge die Möglichkeiten der Effizienzsteigerung noch nicht voll ausgeschöpft. Im Rahmen früherer Arbeiten, insbesondere am Lehrstuhl für Mechanische Verfahrenstechnik der Universität Dortmund, wurden Grundlagenuntersuchungen zur Durchströmung von Kalkhydratfilterschichten mit feuchter Luft sowie zur Abscheidung von SO_2 unter Laborbedingungen durchgeführt und die prinzipielle Verbesserung des Abscheidegrades unter bestimmten Bedingungen aufgezeigt. Diese Untersuchungen beschränkten sich auf Vorgänge im Staubkuchen einer Laboranlage [10, 11].

Wesentliche Ergebnisse dieser Arbeiten sind die Verbesserung des SO_2 -Abscheideverhaltens und des Umsatzes an eingesetztem Reaktionsmittel durch Verwendung eines Additivs mit möglichst großer spezifischer Oberfläche, Konditionierung der Rauchgase mit Wasserdampf und Absenkung der Abgastemperatur bis in die Nähe des Taupunktes.

Das Ziel dieser Arbeit besteht darin, die Abhängigkeit der Abscheidung saurer Schadgase von der Verweilzeit der dem Rohgasstrom zudosierten Kalkpartikel, dem Strömungszustand, der dosierten Menge an Chlorwasserstoff, der Temperatur und der Rauchgasfeuchte in einer technisch betriebenen Schlauchfilteranlage zu untersuchen. Ein weiterer Schwerpunkt ist die Überprüfung der Übertragbarkeit der umfangreichen Voruntersuchungen an einer Laboranlage in den technischen Maßstab. Die hierzu verwendete Technikumsanlage unterscheidet sich von der Laboranlage vor allem durch die veränderte Strömungs- und Verweilzeitverhältnisse.

2 Theoretische Grundlagen

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde ein Trockensorptionsverfahren zur Rauchgasreinigung untersucht. Bei diesem Verfahren werden mit Hilfe fester Additive gasförmige Schadstoffkomponenten durch Adsorption oder Chemisorption gebunden und abgeschieden. Prinzipielle Vorgänge und Zusammenhänge, die sowohl reaktionstechnischer als auch strömungsmechanischer Natur sind, werden anhand der Abscheidung von Schwefeldioxid mit Hilfe von Calciumhydroxid als Modellsystem diskutiert.

Die Untersuchungen erfolgten an einer Pilotanlage im Technikumsmaßstab, um die verschiedenen Einflüsse auf den Prozess unter möglichst betriebsnahen Bedingungen zu erfassen.

Die Effektivität und damit die Wirtschaftlichkeit dieser Verfahren wird in erster Linie anhand der erzielten Abscheidegrade und des Umsatzes bzw. der Schadstoffbeladung der eingesetzten Additive beurteilt. Mit dem Abscheidegrad ist das Mengen- bzw. Massenverhältnis der pro Zeiteinheit abgeschiedenen Schadstoffmenge zur Schadstofffracht im Rohgas gemeint. Der Abscheidegrad η

$$\eta = \frac{c_0 - c_{Rein}}{c_0} \quad (2.1)$$

kann über die Schadgaskonzentrationen im Rohgas c_0 und im Reingas c_{Rein} ausgedrückt werden.

Auch der Strömungswiderstand bzw. der Druckverlust der Filterschicht und das langfristige Betriebsverhalten der Filter sind bei der Beurteilung dieser Anlagen von Interesse. Hier spielen die Eigenschaften der auf dem Filtermittel aufgebauten Staubschicht und das Verhalten des Staubes bei der Abreinigung der Filterelemente eine wesentliche Rolle.

Parameter, die auf die Effektivität der Trockensorption Einfluss nehmen, sind vor allem die Temperatur und Zusammensetzung des Rohgases und die Eigenschaften des Additivs. Die Vorgänge bei der Abscheidung gasförmiger Komponenten durch trockene Additive wurden durch verschiedene Forschergruppen im Labormaßstab untersucht. Bei diesen Arbeiten [11, 12, 13, 14, 15] wird in einem Laborreaktor ein Festbett, bestehend aus dem Additiv und eventuell einer inerten Komponente, vorgelegt und mit dem simulierten Abgas durchströmt, das die abzuscheidende Komponente enthält. Anhand

von Durchbruchkurven, also des Verlaufs der Schadstoffkonzentration im Abgas des Laborreaktors, kann auf die Vorgänge im Festbett geschlossen werden. Nach diesem Verfahren lassen sich kinetische Parameter bestimmen.

Weitere Einflussgrößen sind die Strömungsführung in der Filterkammer und der Modus der Abreinigung der Filterelemente.

Im Folgenden werden zunächst Grundlagen zur Entstaubung durch filternde Abscheider und zur Gas-Feststoff-Reaktion der Schadgase mit festen Additiven dargestellt.

2.1 Filternde Abscheider

Bei der Staubabscheidung aus Gasen besitzen filternde Abscheider eine große Bedeutung. Nach *E. Schmidt* [16] ist das gemeinsame Merkmal aller filternden Abscheider das Vorhandensein eines Filtermediums, welches entweder aus diskreten, miteinander verbundenen Kollektoren (z.B. Fasern oder Körnern) oder einer kontinuierlichen Phase mit durchgehenden Hohlräumen (z.B. Lochfolie) aufgebaut ist. Das zu reinigende Gas wird durch dieses Medium geleitet, wobei es aufgrund verschiedener Mechanismen zur Abscheidung der gasgetragenen Partikeln kommen kann. Nach Ort und Mechanismus der Partikelabscheidung können filternde Abscheider in Tiefenfilter und Oberflächenfilter unterschieden werden.

Bei Tiefen- oder Speicherfiltern erfolgt die Abscheidung innerhalb des durchströmten Filtermediums z.B. durch die Haftung der Partikel an der Oberfläche einzelner Fasern. Sie dienen vor allem zur Entfernung von Verunreinigungen in Form von Tröpfchen oder festen Partikeln aus der Luft bei geringen Konzentrationen von wenigen mg/m^3 . Mögliche Aufgabenfelder dieser Filter bestehen überall da, wo hohe Ansprüche an die Reinheit der Luft gestellt werden, wie z.B. in Operationssälen oder in der Fertigung von empfindlichen elektronischen Bauteilen [17].

Bei Oberflächenfiltern bildet der abgeschiedene Feststoff auf dem Filtermedium eine geschlossene Schicht. Diese Staubschicht stellt das eigentliche hocheffiziente Filtermedium dar. Die anwachsende Schicht führt während des Filtrationsprozesses zu einem steigenden Druckverlust und muss daher in Intervallen vom Filtermedium entfernt werden. Filter, die nach diesem Prinzip arbeiten, werden aus diesem Grund auch als Abreinigungsfilter bezeichnet. Abreinigungsfilter eignen sich vor allem bei hohen Staubkonzentrationen von bis zu mehreren $100 \text{ g}/\text{m}^3$ [18]. Als Filtermedium kommen neben gewebten heute überwiegend nichtgewebte Stoffe, so genannte Filze und Vliese,

zum Einsatz [17]. Mit der Einführung der trockenen und quasi-trockenen Rauchgasentschwefelung und der Entwicklung von chemisch und thermisch beständigen Kunstfasern fanden Oberflächenfilter in Form von Schlauchfiltern im Kraftwerksbereich weite Verbreitung [19]. Die grundlegenden Abscheidemechanismen und das Betriebsverhalten dieser Filter werden in den folgenden Abschnitten behandelt.

2.1.1 Abscheidemechanismen am Filtermedium und -kuchen

Die Staubabscheidung geschieht bei dieser Art von Filtern allgemein während des Passierens des staubbeladenen Gasstromes durch ein poröses Medium. Bei regenerierbaren Oberflächenfiltern kommt es aufgrund unterschiedlicher Mechanismen zur Abscheidung der gasgetragenen Partikel durch das Filtermedium. In einer ersten Filtrationsphase findet dieser Prozess, wie bei den Tiefenfiltern, vorwiegend im Inneren des Gewebes statt. Die Abscheidung kann nur erfolgen, wenn die Partikel zum Filtermedium getragen werden und es zum Kontakt zwischen dem Filterschichtmaterial (z.B. Faser oder Korn) und Partikeln kommt. Es wird dabei im Wesentlichen von den in Abbildung 2.1 dargestellten Abscheidemechanismen ausgegangen [19, 20].

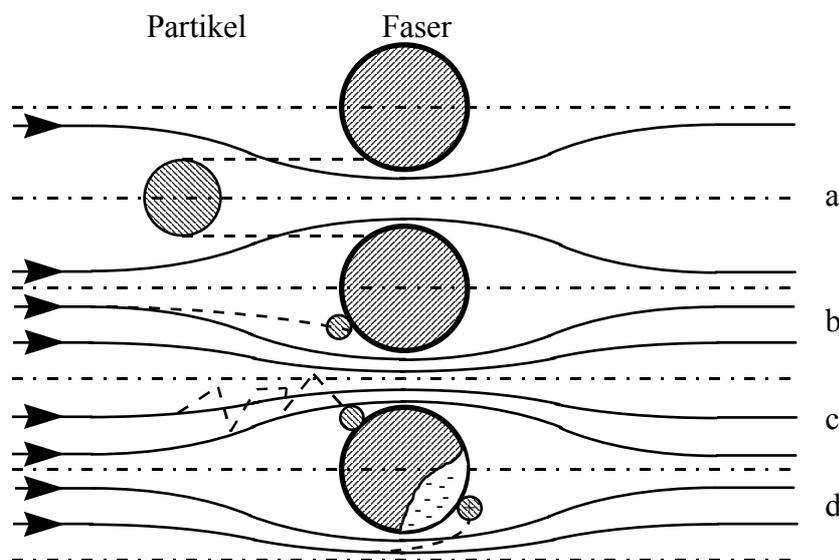


Abbildung 2.1: Abscheidemechanismen an Einzelfasern: a Sieb- oder Sperreffekt, b Trägheitseffekt, c Diffusionseffekt, d elektrostatischer Effekt [19]

Während der ersten Filtrationsphase spielt der Sperreffekt eine untergeordnete Rolle, da in der Regel die Abstände zwischen den Fasern im Verhältnis zu den Partikeldurchmessern groß sind. Stark vereinfachend kann davon ausgegangen werden, dass Partikel kleiner als $0,1\mu\text{m}$ vor allem durch Diffusion, Partikel größer als $1\mu\text{m}$ durch Trägheit

und Partikel mittlerer Größe durch Elektrostatik zur Faser transportiert und dort abgeschieden werden [16].

Nach kurzer Zeit verstopfen die Räume zwischen den Fasern und es bildet sich eine zusammenhängende Staubschicht (Staubkuchen) an der Oberfläche des Mediums aus. Dieser Staubkuchen übernimmt dann die eigentliche Partikelabscheidung, das Filtermedium dient in dieser Phase lediglich als Träger. Infolge der Bedeckung der Filteroberfläche verbessert sich die Partikelabscheidung. Gleichzeitig steigt der Druckverlust an. In der Phase des Kuchenaufbaus tritt der Siebeffekt, d.h. die geometrische Sperrwirkung des Staubkuchens, gegenüber den anderen Abscheidemechanismen in den Vordergrund. Die Abscheideleistung von Oberflächenfiltern hängt im wesentlichen von der Anströmgeschwindigkeit, der Partikelgrößenverteilung des Staubes, der Rohgaskonzentration, der Betriebstemperatur, der Art der Regeneration des Filtermediums, den Eigenschaften der Partikeln, des Gases und des Filtermediums ab [16].

2.1.2 Druckverlust durchströmter Filterschichten

Die heute geforderten Grenzwerte bezüglich der Staubemission (z.B. 20 mg/Nm³ [21]) lassen sich mit Hilfe von Schlauchfiltern in der Regel gut einhalten. Der Druckverlust in der Filteranlage ist meist von weiterem Interesse, da er durch die erhöhte Leistungsaufnahme des Saugzuges die Betriebskosten direkt beeinflusst. Daher werden zunächst Einflüsse auf den Druckverlust bei der Staubabscheidung in filternden Abscheidern betrachtet.

Grundsätzlich erfolgt beim Durchströmen eines porösen Mediums ein Druckabfall. Es wird davon ausgegangen, dass sich der Druckverlust Δp_{ges} bei der Staubfiltration aus den Anteilen im Filterkuchen Δp_K und im Filtermedium mit eingelagerten Staubpartikeln Δp_M zusammensetzt (s. Abbildung 2.2) [17, 19].

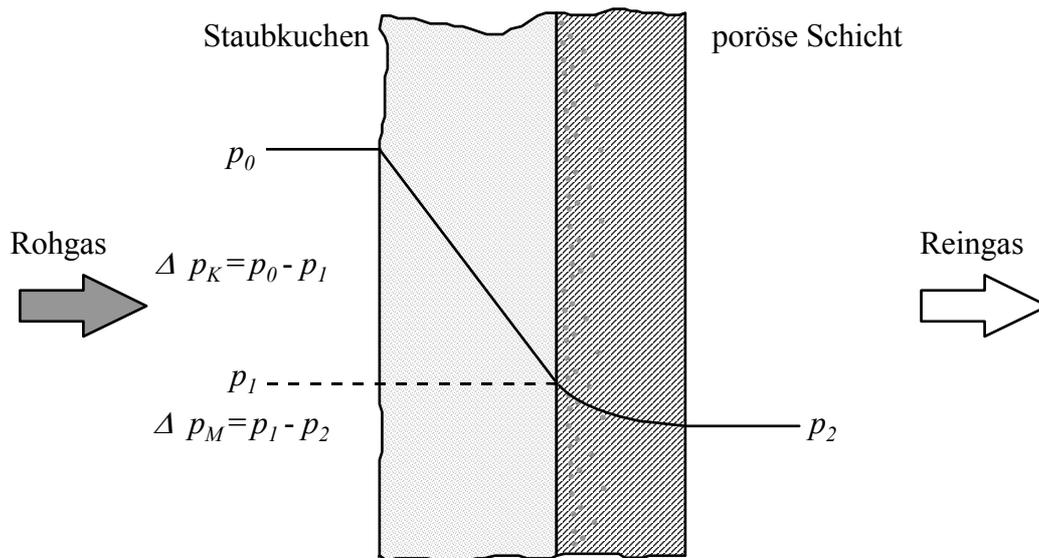


Abbildung 2.2: Angenommener Druckverlauf bei der Durchströmung staubbelegter Filtermedien [19]

Die bestehenden Widerstandsgesetze zur Beschreibung des Druckverlaufs gründen sich auf zumeist stark vereinfachende Annahmen und enthalten empirisch zu bestimmende Parameter. Da die Durchströmung des Filterkuchens bei kleinen Reynoldszahlen ($Re < 1$) erfolgt, kann für die Berechnung der einzelnen Druckverlustanteile das Durchströmungsgesetz nach *Darcy*

$$\Delta p_{ges} = \Delta p_K + \Delta p_M = \frac{1}{B_K} \eta L_K u_0 + \frac{1}{B_M} \eta L_M u_0 \quad (2.2)$$

verwendet werden;

- B_K Permeabilität des Filterkuchens,
- B_M Permeabilität des Filtermediums mit eingelagerten Staubpartikeln,
- η dynamische Viskosität des Gases,
- L_K Dicke des Filterkuchens,
- L_M Dicke des Filtermediums,
- u_0 Filtrationsgeschwindigkeit.

Bei diesem Ansatz wird von einem linearen Zusammenhang zwischen dem Druckverlust und der Filtrationsgeschwindigkeit u_0 ausgegangen. Mit der Filtrationsgeschwindigkeit wird ein auf die Filterfläche bezogener Volumenstrom angegeben. Sie kann daher auch als Anström- oder Leerrohrgeschwindigkeit bezeichnet werden.

Die Dicke des Filterkuchens in Gleichung (2.2) kann durch eine flächenspezifische Staubmasse des Kuchens, der so genannten Flächenmasse W , ausgedrückt werden. Hierzu wird die Staubmasse bilanziert. Diese Bilanz gilt nur unter der vereinfachenden Annahme, dass alle gasgetragenen Partikel durch den Kuchen abgeschieden werden, womit

$$W(t) = \frac{m_S(t)}{A_F} = \int_{t_0}^t c_S(t') u(t') dt' + W(t_0) \quad (2.3)$$

gilt;

W	Flächenmasse,
m_S	Kuchenmasse,
A_F	Filterfläche,
c_S	Staubkonzentration,
t'	Integrationsvariable,
t	Filtrationszeit.

Die Porosität des Kuchens läßt sich durch

$$\varepsilon = \frac{V_K - V_P}{V_K} = 1 - \frac{W}{L_K \rho_P} \quad (2.4)$$

ausdrücken;

V_K	Kuchenvolumen,
V_P	Feststoffvolumen,
ε	Porosität des Kuchens,
ρ_P	Feststoffdichte der Staubpartikel.

Mit dieser Beziehung zwischen der Flächenmasse und Dicke des Filterkuchens erhält man die Gleichung (2.2) in der Schreibweise

$$\Delta p_{ges} = \frac{1}{B_K} \eta \frac{W}{\rho_P (1 - \varepsilon)} u_0 + \frac{1}{B_M} \eta L_M u_0 \quad (2.5)$$

Gleichung (2.5) lässt sich vereinfachen, indem die Größen, die den Filterkuchen beschreiben, zu K_K und diejenigen, die sich auf das Filtermedium beziehen, zu K_M in der Form

$$\Delta p_{ges} = K_K \eta W u_0 + K_M \eta u_0 \quad (2.6)$$

zusammengefasst werden. Somit resultieren die Beziehungen

$$K_K = \frac{1}{B_K} \frac{1}{\rho_p (1 - \varepsilon)} \quad \text{und} \quad K_M = \frac{1}{B_M} L_M$$

mit

- K_K spezifischer Widerstand des Filterkuchens,
- K_M Restwiderstand des Filtermediums mit den eingelagerten Staubpartikeln nach der Abreinigung.

Die Parameter K_M und K_K sind Faktoren, die von einer Vielzahl verschiedener Größen abhängen. Der Restwiderstand K_M wird im Wesentlichen durch die Eigenschaften des verwendeten Filtermittels, des eingelagerten Staubes und der Abreinigungsintensität beeinflusst. K_K hängt von der Kuchenstruktur, der Porosität, der Partikelgrößenverteilung und den Filtrationsbedingungen ab. Für beide Parameter spielt die Filtrationsgeschwindigkeit eine wesentliche Rolle. Bei höheren Geschwindigkeiten kann eine größere Anzahl an Partikeln tiefer in das Filtermedium eindringen. Hierdurch wird der Restdruckverlust ansteigen. Zusätzlich wird bei höheren Geschwindigkeiten der sich aufbauende Kuchen stärker komprimierend beansprucht, so dass sich die Porosität verringert und entsprechend der Kuchenwiderstand ansteigt.

Die Konstanten K_K und K_M können entweder experimentell bestimmt oder anhand verschiedener in der Literatur beschriebener Ansätze für ein bestimmtes System berechnet werden [17, 22].

Eine der ältesten Modellvorstellungen zur Berechnung des Druckverlustes in einem Haufwerk bzw. Staubkuchen stammt von *Kozeny* und *Carman* [23]. Hierbei wird das Lückenvolumen der porösen Schicht auf eine große Anzahl von Kanälen verteilt, die alle einen einheitlichen Durchmesser haben. Gemäß dieser Vorstellung kann der spezifische Widerstand des Kuchens als Funktion der Porosität und der volumenbezogenen Oberfläche durch

$$K_K = k_{CK} S_V^2 \frac{(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3} \quad (2.7)$$

angegeben werden;

k_{CK} Carman-Kozeny-Konstante,
 S_V volumenbezogene Oberfläche.

Die Carman-Kozeny-Konstante nimmt wiederum für verschiedene Porositäten unterschiedliche Werte an.

Überträgt man dieses Modell auf reale Filterschichten, so ist die beschriebene Berechnung des Druckverlustes eher kritisch zu bewerten, da einige stark vereinfachte Annahmen zugrunde liegen. Das reale Porennetzwerk einer porösen Schicht wird bei dem geometrischen Modell von *Carman* und *Kozeny* vereinfachend durch eine große Anzahl kleiner Kapillaren beschrieben [17]. Ein weiteres Problem ergibt sich aus der Annahme, dass die Porosität des Filterkuchens unabhängig von der Kuchendicke ist. *Schmidt* konnte jedoch nachweisen, dass Staubkuchen unter Umständen kompressibel sind und sich daher die Porosität in Abhängigkeit von der Kuchenhöhe ändern kann [24, 25]. Trotz dieser Einschränkungen können anhand der theoretischen Betrachtungen die für den Druckverlust eines Oberflächenfilters maßgeblichen Abhängigkeiten festgestellt werden. Es ergeben sich die Relationen

$$\begin{aligned} \Delta p_K &\sim W, \\ \Delta p_K &\sim L_K, \\ \Delta p_K &\sim \eta, \\ \Delta p_K &\sim u_0, \\ \Delta p_K &\sim S_V^2, \\ \Delta p_K &\sim f(\varepsilon). \end{aligned}$$

Der Druckverlust über eine Filterschicht ist zur Flächenmasse W bzw. Höhe der Filterschicht L_K und der Viskosität des Gases η proportional. Auf die Flächenmasse kann bei regenerierbaren Oberflächenfiltern durch das Abreinigungsintervall Einfluss genommen werden. Die Viskosität des Gases lässt sich durch Konditionierung, d.h. Vermischung des Rohgases mit einer weiteren Gaskomponente oder durch optimale Temperaturwahl innerhalb bestimmter Grenzen verändern. Ein wesentlicher Parameter zur Auslegung

von Oberflächenfiltern ist die Filtrationsgeschwindigkeit u_0 . Sie geht bei konstanter Staubschichtdicke linear in den Druckverlust ein.

Die volumenspezifische Oberfläche S_V bzw. die Porosität des Filterkuchens ε haben ebenfalls einen starken Einfluss auf den Druckverlust. Die Struktur des Filterkuchens hängt von der Kohäsivität der Partikel, also den Haftkräften der Partikel untereinander ab [18, 26]. Die Haftkräfte können durch die Dosierung von festen, flüssigen und gasförmigen Additiven verstärkt oder abgeschwächt werden. Eine Verstärkung der Haftkräfte, z.B. durch die Ausbildung von Flüssigkeitsbrücken, führt im Allgemeinen zu einer Stabilisierung der Kuchenstruktur, wodurch die Komprimierbarkeit verringert wird. Die Porosität des Kuchens bleibt dann auch bei größeren Schichtdicken nahezu konstant.

2.1.3 Abreinigung von Oberflächenfiltern

Wie in Kapitel 2.1.2 bereits dargestellt, steigt durch den sich ausbildenden Filterkuchen der Druckverlust in der Filterkammer an. Daher muss nach Erreichen eines vorgegebenen Druckverlustes oder in periodischen Abständen der Kuchen vom Filtermedium entfernt werden, so dass sich ein periodischer Verlauf des Druckverlustes über die Zeit ergibt.

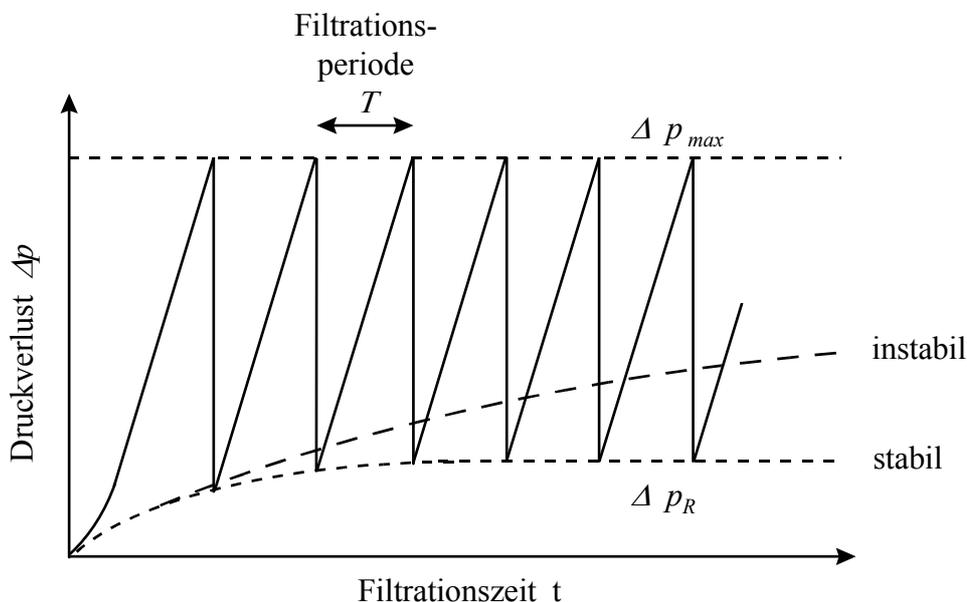


Abbildung 2.3: Verlauf des Druckverlustes bei konstanter Filtrationsgeschwindigkeit [17]

Während der Staubeinlagerungsphase zu Beginn der Filtration mit frischem Filtermedium steigt der Druckverlust zunächst nicht linear an. Mit Ausbildung eines Kuchens auf der Filteroberfläche erfolgt der weitere Anstieg linear. Durch die Abreinigung der gesamten Filterfläche fällt der Druckverlust von seinem Maximalwert Δp_{max} steil ab. Der Restdruckverlust Δp_R ist jedoch stets höher als der Druckverlust des frischen Filters. Dies liegt daran, dass nach der Abreinigung Staubpartikel vor allem im Inneren des Filtermediums zurückbleiben. Nach mehreren Filtrationsperioden sollte sich ein konstanter Restdruckverlust und dadurch bedingt ein stabiler Betrieb des Filters einstellen. Die Dauer einer Filtrationsperiode wird auch als Zykluszeit bezeichnet.

Aufgrund verschiedener Ursachen kann es u. U. zu einer Verstopfung des Filtermediums und damit zu einem instabilen Betrieb kommen. In diesem Fall sind häufig die Wechselwirkungskräfte zwischen dem Filtermedium und dem Kuchen bzw. den Staubpartikeln im Kuchen untereinander so groß, dass die Abreinigung nur noch unzureichend erfolgen kann. Der Ursprung dieser Wechselwirkungskräfte kann sowohl physikalischer als auch chemischer Natur sein. So kann es zum Beispiel durch Kapillarkondensation oder durch Unterschreitung der Taupunkttemperatur zur Ausbildung von Flüssigkeitsbrücken zwischen einzelnen Partikeln kommen. Durch chemische Reaktion und Kristallwachstum im Staubkuchen können ebenfalls stabile Verbindungen im Kuchen aufgebaut werden. In diesem Fall steigt der Restdruckverlust stetig an. Bislang ist es noch nicht gelungen, das Verhalten des Systems Staubkuchen/Filtermedium während der Abreinigung anhand theoretischer Ansätze befriedigend und umfassend vorherzusagen, so dass hierbei auf Erfahrungen aus Experimenten nicht verzichtet werden kann [26].

Die Abreinigung geschieht heute fast ausschließlich mit Hilfe von pneumatischen Verfahren, bei denen das Filter mit Spülluft rückgespült oder durch einen Luftstoß entgegen der Strömungsrichtung während der Filtration abgereinigt wird. Bei der Druckstoßabreinigung strömt das Regenerationsgas durch schnelles Öffnen eines Ventils durch ein Blasrohr zu den einzelnen Düsen, die jeweils über den Filterschläuchen angeordnet sind. Das aus der Düse austretende Gas löst im Filterelement eine Druckwelle aus, die entweder durch rasches Aufblähen bzw. durch Abblasen zum Abwurf der Staubschicht führt [27]. Durch Regelung des Vordruckes des Regenerationsgases kann die Intensität des Abreinigungsstoßes beeinflusst werden. Hierdurch ist es möglich, die Beanspruchung des Filtermediums durch den Druckstoß auf ein Minimum zu reduzieren [28].

Die Abreinigung eines Filterschlauchs nach dem Puls-Jet-Verfahren ist in Abbildung 2.4 dargestellt.

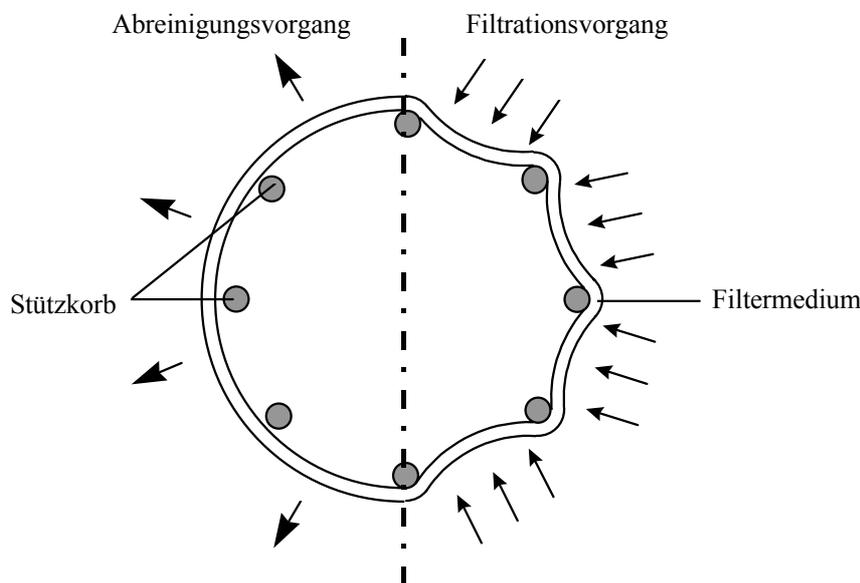


Abbildung 2.4: Abreinigungs- und Filtrierstellung eines druckluftabgereinigten Filterschlauchs [29]

Der Druckstoß zur Abreinigung des Filters wird durch eine Düse in den Reingasbereich der Schläuche geleitet. Der zur Filtrierströmung entgegengesetzte Spülluftstrom unterbricht kurzzeitig den Filtrationsvorgang. Bei der Abreinigung wirken mehrere Mechanismen. Der Schlauch wird zum einen ruckartig gedehnt, so dass infolge der radialen Beschleunigung sowie der schlagartigen Flächenänderung die Haftkräfte zwischen Kuchen und Filtermedium überwunden werden und der Staub vom Filtermedium abfällt. Zum anderen übt der Spülluftstrom zusätzlich eine Kraft auf den Kuchen und die eingelagerten Partikel entgegen der Filtrationsrichtung aus.

Die mechanischen Abreinigungsverfahren mittels Klopfung oder Vibration werden nur noch in kleineren Filtereinheiten angewandt [19].

Die Abreinigung der Filter kann grundsätzlich in die *online*-Abreinigung ohne Unterbrechung des Filtrationsvorganges und in die *offline*-Abreinigung, bei der der Filtervolumenstrom abgeschaltet oder umgeleitet werden muss, unterteilt werden. Eine Voraussetzung für die kostengünstigere und apparatetechnisch einfachere *online*-Abreinigung ist, dass der abgereinigte Staubkuchen Agglomerate von ausreichender Größe bildet, die sich innerhalb der Filterkammer in einem Staubbunker absetzen können.

Gerade bei der Entstaubung von Rauchgasen bei hohen Temperaturen kommt es hier häufig zu Problemen. Der Filterstaub wird dann zwar kurzzeitig vom Filtermedium abgehoben, jedoch verbleibt keine ausreichende Zeit zum Absedimentieren in den Staubbunker, da innerhalb von wenigen Zehntelsekunde die Filtrationsströmung wieder einsetzt, so dass sich immer wieder bereits abgeschiedene Partikel an das Filtermedium anlagern [19]. Dieser Vorgang führt zu einer so genannten Quasiverstopfung des Filters.

Unabhängig vom gewählten Abreinigungsverfahren (*online/offline, Druckstoß/mechanische Abreinigung*) wird bei technischen Filtern, anders als in Abbildung 2.3 dargestellt, in der Regel nicht die gesamte Filterfläche zeitgleich abgereinigt. Diese Vorgehensweise würde, bedingt durch den starken Differenzdruckabfall nach der Regeneration, zu Druck- und u. U. auch zu Volumenstromschwankungen in vor- und nachgeschalteten Anlagenteilen führen.

Um einen gleichmäßigeren Betrieb dieser Anlagen zu gewährleisten, wird daher bei Filtern im technischen Maßstab im Gegensatz zu Laborfiltern stets nur ein Teil der gesamten Filterfläche regeneriert. Filter mit *offline*-Abreinigung werden daher häufig in mehrere parallel geschaltete Kammern unterteilt (Mehrkammerfilter), die einzeln von der Rohgasleitung getrennt werden können. Bei Anlagen, die mit einer *online*-Abreinigung arbeiten, werden nicht alle Filterelemente gleichzeitig mit einem Druckstoß beaufschlagt. Es können einzelne Filterelemente oder Filterelementgruppen angesteuert werden.

Bei Anlagen, die nicht nach festen Zeitintervallen, sondern differenzdruckgesteuert abreinigen, wird ein maximaler Druckverlust über das gesamte Filterpaket Δp_{max} vorgegeben, bei dem die Regeneration der ersten Kammer bzw. Filterelemente automatisch durchgeführt wird. Der Differenzdruck, der sich nach der Abreinigung einstellt, wird mit einem ebenfalls vorgegebenen minimalen Differenzdruck Δp_{min} verglichen. Falls Δp_{min} durch den vorherigen Abreinigungsvorgang noch nicht erreicht wurde, wird die nächste Gruppe von Filterelementen regeneriert usw. Fällt der Differenzdruck unter den vorgegebenen Wert, werden die weiteren Filterelemente erst beim nächsten Erreichen des maximalen Differenzdruckes abgereinigt.

Wie in den nächsten Kapiteln noch gezeigt werden wird, führt dieses Vorgehen -wie gewünscht- zu einer geringeren Schwankungsbreite des Differenzdruckes zwischen Roh- und Reingasseite der Filteranlage. Hierdurch werden jedoch bezüglich der lokalen Filtrationsgeschwindigkeit und Flächenmasse starke Inhomogenitäten in Kauf genommen.

2.1.4 Bekannte Einflüsse auf das Durchströmungsverhalten von anfiltrierten Kalkhydratschichten

In vorangegangenen Arbeiten wurde insbesondere von *Rzepka* und *Naffin* der Einfluss der relativen Feuchte, Temperatur, Kohlendioxid-, Schwefeldioxid- und Chlorwasserstoffkonzentration auf den Druckverlust bei der Durchströmung von Kalkhydratschichten untersucht [10, 11]. Sie wiesen nach, dass der Druckverlust mit steigender Feuchte sinkt. Dieser Effekt kann zum Teil auf die geringere Gasviskosität bei hohen Wasserdampfkonzentrationen zurückgeführt werden. Zusätzlich kommt es in der Flugstromphase der Kalkhydratpartikel zunehmend zur Agglomeration der Partikel und dadurch zu einer höheren Porosität des Filterkuchens. Bei sehr hohen Werten der relativen Feuchte steigt der Druckverlust wieder an. Dies beruht auf einer Verengung der Strömungskanäle durch die einsetzende Kapillarkondensation. Bei gleichzeitiger Anwesenheit von Wasserdampf und Schadgas wird der Anstieg des Druckverlustes bei hohen Feuchten nicht mehr beobachtet. Es kommt sogar zu einer weiteren Reduzierung des Druckverlustes. Dieser Effekt wird durch eine Veränderung der Struktur des Filterkuchens durch die Reaktion von Calciumhydroxid mit den sauren Schadgasen erklärt. Die Berührungsstellen der Partikel im Filterkuchen werden vermutlich durch Wasserdampfsorptionsschichten und die Produkte der SO₂-Abscheidereaktion stabilisiert.

2.2 Schadgasabscheidung

Wie bereits zu Beginn des Kapitels 2 erwähnt, wurden die Untersuchungen zur Abscheidung gasförmiger Schadgase in einer technischen Filteranlage mit dem Modellsystem SO₂/HCl und Calciumhydroxid durchgeführt. Daher wird zunächst der Reaktionsmechanismus der Gas-Feststoff-Reaktion betrachtet, bevor die Einflüsse verschiedener Parameter auf die Schadgasabscheidung diskutiert werden. Dieser Mechanismus ist aufgrund der Vielzahl der verschiedenen Reaktionswege und -produkte sehr komplex und konnte bislang noch nicht vollständig aufgeklärt werden.

Die Hauptreaktionen der SO₂-Abscheidung lassen sich durch die nachfolgend angegebenen Reaktionsgleichungen beschreiben.

Ausgehend von der Reaktion



kann in Gegenwart von Sauerstoff gemäß Gleichung (2.9)



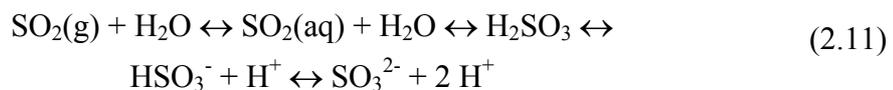
das Sulfit zum Sulfat oxidieren.

Es wird heute allgemein angenommen, dass diese Reaktionen in erster Linie als Ionenreaktionen ablaufen. Dieser Mechanismus wird daher durch die Anwesenheit einer wässrigen Phase begünstigt. Sie kann sich in Form von wenigen Molekülschichten auf den Kalkhydratpartikeln bereits bei geringen relativen Feuchten durch die Adsorption von Wasserdampf ausbilden.

Das Gleichgewicht zwischen den festen Partikeln und der flüssigen Phase bildet sich in der Form



aus. SO_2 wird in der wässrigen Phase absorbiert und reagiert darin nach dem Schema



bis zum Hydrogensulfitanion und Sulfitanion. Durch die Anwesenheit von Sauerstoff kann das Hydrogensulfitanion entsprechend Gleichung (2.12)



zum Sulfatanion oxidieren. Die Sulfit- und Sulfationen

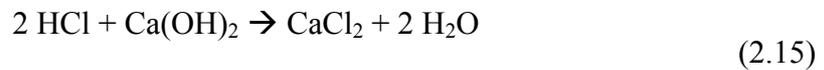


reagieren dann mit den Calciumionen zu Calciumsulfit und –sulfat.

Da diese Reaktionsprodukte nur bis zu einer bestimmten Konzentration löslich sind, fallen sie in fester Form aus und lagern sich an den Kalkhydratpartikeln an. Diese feste

Produktschicht stellt ein Hemmnis für das weitere Lösen von Calciumhydroxid dar, wodurch die Reaktionsgeschwindigkeit stark abnimmt.

HCl reagiert mit Calciumhydroxid nach Gleichung (2.15)



zu Calciumchlorid. Calciumchlorid ist stark hygroskopisch, d.h. bei relativen Feuchten von ca. 20 % wird bereits so viel Wasser aufgenommen, dass sich die Calciumchloridkeime vollständig verflüssigen.

2.2.1 Relative Feuchte

Mit steigender relativer Feuchte können sich durch Adsorption von Wasserdampf stärkere Flüssigkeitsschichten auf der Partikeloberfläche ausbilden. Anhand des dargestellten Reaktionsmechanismus wird deutlich, dass diese Schichten die Ionenreaktionen begünstigen. Zusätzlich sind die Produktschichten durch die Anwesenheit von Wassermolekülen weniger stabil aufgebaut und ermöglichen daher größere Produktschichtdicken, bevor die Reaktion durch eine allzu träge Diffusion der Edukte in der

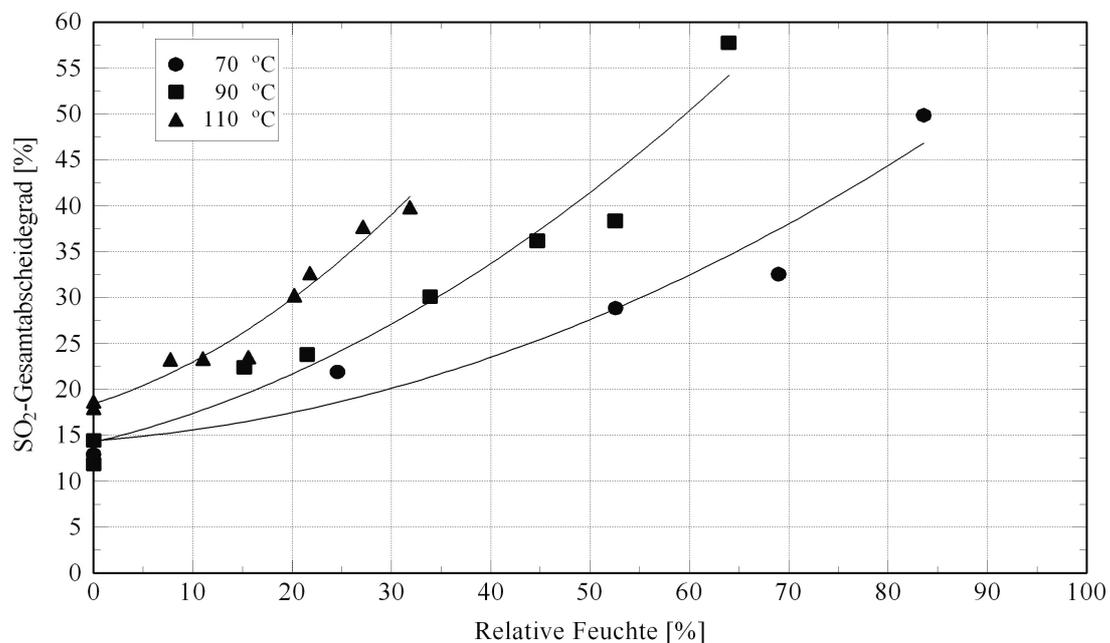


Abbildung 2.5: Einfluss der Temperatur und der relativen Feuchte auf den SO₂-Abscheidegrad [30]

Produktschicht zum Erliegen kommt [11]. Bei höheren relativen Feuchten lassen sich also größere SO_2 -Abscheidegrade erzielen (s. Abbildung 2.5).

2.2.2 Temperatur

Mit steigender Temperatur nimmt die Diffusionsgeschwindigkeit der Schadgasmoleküle zu, wodurch der Stoffübergang aus der Gasphase zur Partikeloberfläche verbessert wird. Außerdem konnte *Klingspor* zeigen, dass sich bei Temperaturen zwischen 40 °C und 80 °C die Temperaturabhängigkeit der Geschwindigkeitskonstante der Reaktion von Schwefeldioxid mit Calciumhydroxid durch den Arrhenius-Ansatz beschreiben lässt, d. h. mit zunehmender Temperatur steigt die Reaktionsgeschwindigkeit exponentiell [31].

Wie *Naffin* [11] und *Klingspor* [31] gezeigt haben, gelten diese Betrachtungen nur für konstant gehaltene relative Feuchten. Bei der Temperaturabsenkung eines wasserdampfhaltigen Rauchgases steigt jedoch die relative Feuchte an. Der Einfluss der relativen Feuchte ist dann entscheidend und die SO_2 -Abscheidung nimmt bei niedrigen Temperaturen zu.

2.2.3 Stofftransport und Reaktionszeit

Bei Gas/Feststoffreaktionen sind allgemein mehrere Transportvorgänge der beteiligten Komponenten zu berücksichtigen [32]. Im Falle der Reaktion von SO_2 mit porösen Kalkhydratpartikeln sind dies vor allem die folgenden Schritte:

- konvektiver und diffusiver Transport der Schadgase aus der Hauptströmung (Bulk) an die Strömungsgrenzschicht um die Feststoffpartikel,
- Diffusion durch die Grenzschicht an die äußere Oberfläche der Partikel,
- Diffusion durch die Produktschicht und die Poren des Feststoffes zur inneren reaktiven Oberfläche der Partikel.

Die Diffusion in der Grenzschicht bzw. die Dicke der Grenzschicht kann durch die Umströmung der Partikel beeinflusst werden. Durch einen hohen Turbulenzgrad und große Relativgeschwindigkeiten zwischen den Partikeln und der Gasströmung werden dünne Grenzschichten und damit auch kurze Diffusionswege geschaffen.

Mit steigendem Umsatz an Calciumhydroxid nehmen die Produktschichten stetig zu. Da das Volumen der Reaktionsprodukte größer als das von $\text{Ca}(\text{OH})_2$ ist, werden die Poren in den Partikeln mit fortschreitender Reaktion enger. Die Diffusion im Feststoff und in den Poren ist nach der Ausbildung einer vollständigen Oberflächenbedeckung der Teilchen der geschwindigkeitsbestimmende Schritt. In dieser Phase der Reaktion kann eine Verlängerung der Verweilzeit zu einer Umsatzsteigerung führen [33].

In den Anlagen zur trockenen Rauchgasreinigung wird das Additiv im Rauchgaskanal oder in einem dafür vorgesehen Reaktor dem Rohgasstrom aufgegeben. Da die Partikel hier von der Strömung getragen werden, spricht man auch von einem Flugstromreaktor. Hier herrscht in der Regel eine turbulente Strömung, in der zum einen Partikel und Gas gut gemischt vorliegen. Zum anderen sind die mittleren Abstände zwischen den einzelnen Partikeln relativ groß. In der nachgeschalteten Filterkammer stellen sich durch Strömungsberuhigung bzw. -umbildung Strömungsverhältnisse mit einer nach Richtung und Stärke sehr komplexen Geschwindigkeitsverteilung ein.

Auf dem Gewebefilter werden die Partikel als hochporöser Filterkuchen abgeschieden. Dieser Kuchen wird laminar durchströmt. Durch die engen Haufwerkskanäle sind die Diffusionswege der gasförmigen Schadstoffe zur Feststoffoberfläche jedoch sehr kurz. Obwohl die Verweilzeit des Rauchgases in dieser Schicht nur wenige Zehntelsekunden beträgt, kann es hier zu einer bedeutenden Nachreaktion kommen.

2.3 Verweilzeit in Reaktoren

Zur Charakterisierung chemischer Reaktoren ist die Kenntnis der Verweilzeit der Reaktionspartner in dem betrachteten System erforderlich. In diesem Abschnitt werden daher Begriffe und Methoden erläutert, die bei der Beurteilung und Messung von Verweilzeiten Verwendung finden.

2.3.1 Verweilzeitverteilung

Verweilzeit ist als die Zeitspanne zwischen Ein- und Austritt eines Volumenelementes in ein betrachtetes System definiert. Zur Charakterisierung des Verweilzeitverhaltens wird die Altersverteilung am Reaktorausgang $E(t)$ genutzt. Die Funktion $E(t)$ gibt an, mit welcher Wahrscheinlichkeit ein Teil der zum Zeitpunkt $t=0$ in den Reaktor gelangten Stoffmenge n_0 den Reaktor zum Zeitpunkt t am Ausgang wieder verlässt. Wird der Reaktor mit dem Volumenstrom \dot{V} durchströmt und gibt $c(t)$ die Konzen-

tration der Teilchen am Ausgang an, die zum Zeitpunkt $t=0$ in den Reaktor gelangt sind, dann kann die Funktion $E(t)$ durch

$$E(t) = \frac{\dot{n}}{n_0} = \frac{\dot{V} c(t)}{\int_0^{\infty} \dot{V} c(t) dt} \quad (2.16)$$

ausgedrückt werden.

Gemäß Gleichung (2.16) ist $E(t)$ eine normierte Funktion, d.h. das Integral

$$\int_0^{\infty} E(t) dt = 1 \quad (2.17)$$

nimmt den Wert eins an.

Um die Verweilzeitverteilungen verschiedener Reaktoren oder eines Reaktors bei verschiedenen Durchsätzen einfach und übersichtlich beschreiben zu können, wurden verschiedene Kenngrößen eingeführt.

Die Lage der Verteilung wird im Allgemeinen durch ihren arithmetischen Mittelwert

$$\bar{t} = \mu_1 = \int_0^{\infty} t E(t) dt \quad (2.18)$$

angegeben, welcher dem ersten Moment μ_1 der Funktion $E(t)$ entspricht. Der arithmetische Mittelwert gibt die mittlere Verweilzeit \bar{t} an.

Die Breite der Verteilung wird durch die mittlere quadrierte Abweichung um den Mittelwert charakterisiert und als Varianz der Verteilung

$$\sigma^2 = \int_0^{\infty} (t - \bar{t})^2 E(t) dt \quad (2.19)$$

bezeichnet.

2.3.2 Methoden zur experimentellen Bestimmung der Verweilzeit

Um die Verweilzeitverteilung des Fluids messen zu können, wird meist die Strömung am Reaktoreingang markiert. Bei der so genannten Fremdmarkierungsmethode wird ein leicht nachzuweisender Stoff (Indikator, Tracer, Spurstoff) mit einer definierten zeitlichen Funktion der Konzentration am Eingang zudosiert und der zeitliche Konzentrationsverlauf am Ausgang des Reaktors verfolgt [34]. Der Tracer sollte folgende Bedingungen erfüllen:

- seine physikalischen Eigenschaften, wie Viskosität und Dichte, müssen denen der markierten Phase möglichst ähnlich sein, da das Strömungsverhalten der markierten Phase nicht beeinflusst werden darf,
- der Tracer muss auch in geringen Konzentrationen leicht nachweisbar sein,
- im Stoffstrom muss sich der Indikator gut lösen bzw. mit ihm gut vermischbar sein,
- der Indikator darf keine Reaktionen mit anderen Komponenten des Fluids eingehen und nicht an Teilen des Reaktors adsorbiert werden.

Die zeitliche Funktion der Konzentration am Reaktoreingang wird in Anlehnung an die Systemidentifikation in der Regelungstechnik auch Eingangssignal $x(t)$ und der Verlauf der Konzentration am Reaktorausgang Antwortsignal des Systems $y(t)$ genannt. Die Eingangssignale sind entweder periodisch (z.B. Sinusfunktion) oder aperiodisch (z.B. Sprungfunktion, Pulsfunktion). Obwohl die idealisierte Sprung- und Pulsfunktionen als Eingangssignale nicht realisierbar sind, werden sie häufig in angenäherter Form zur Verweilzeitmessung eingesetzt.

2.3.3 Bestimmung der Verweilzeit anhand nicht idealer Sprungfunktionen

Falls die Abweichungen von der idealen Form der Signale zu groß werden, können die bekannten einfachen Beziehungen zwischen dem Antwortsignal und den Kenngrößen der Verweilzeitverteilung nicht mehr zur Auswertung herangezogen werden [32]. Im Folgenden wird die im Rahmen dieser Arbeit verwendete Methode zur Bestimmung der Verweilzeit eines Fluids mit Hilfe nicht idealer Sprungfunktionen erläutert.

Bei beliebigen Eingangsfunktionen $x(t)$ und der Altersverteilung am Reaktorausgang $E(t)$ geht die Antwortfunktion $y(t)$ aus der Faltung von $x(t)$ mit $E(t)$ hervor [32]. Unter der Faltung wird die Integralkombination

$$y(t) = \int_0^t x(t') E(t-t') dt' \quad (2.20)$$

verstanden. In verkürzter Schreibweise wird sie durch

$$y = x \otimes E \quad (2.21)$$

ausgedrückt.

Zur Veranschaulichung der Faltung kann das beliebige Eingangssignal in einzelne Pulsfunktionen zerlegt werden (siehe Abbildung 2.6). Das Antwortsignal jedes einzelnen Elementes kann dann bei bekannter oder angenommener Verweilzeitverteilung des Systems berechnet werden. Aus der Überlagerung der einzelnen Antwortsignale ergibt sich die Antwort des Systems auf das Eingangssignal.

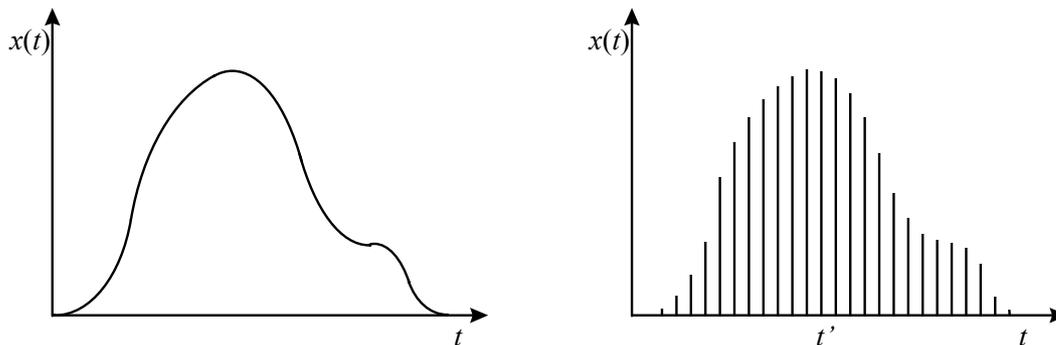


Abbildung 2.6: Schema für die Zerlegung einer beliebigen Eingangsfunktion in einzelne Pulsfunktionen

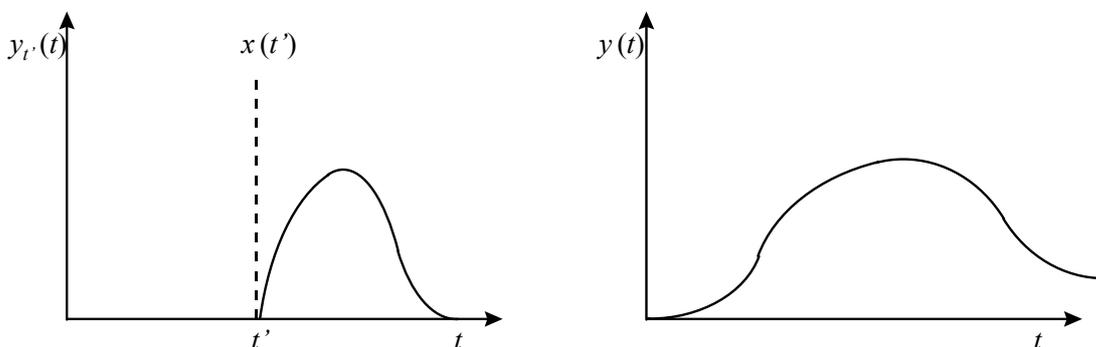


Abbildung 2.7: Berechnung der Antwort auf eine einzelne Pulsfunktion und Überlagerung der Pulsantworten des Systems als Antwort auf ein beliebiges Eingangssignal

Das Faltungsintegral (s. Gleichung (2.20)) kann gelöst werden, wenn die Funktion $E(t)$ bekannt ist.

Erfüllt das Eingangssignal bestimmte Kriterien, die im Folgenden erläutert werden, so können auch bei experimentell bedingten starken Abweichungen von der idealen

Sprungfunktion (z.B. bei einem starken Überspringen, s. Abbildung 2.8) die wesentlichen Kenngrößen zur Charakterisierung des Verweilzeitverhaltens bestimmt werden.

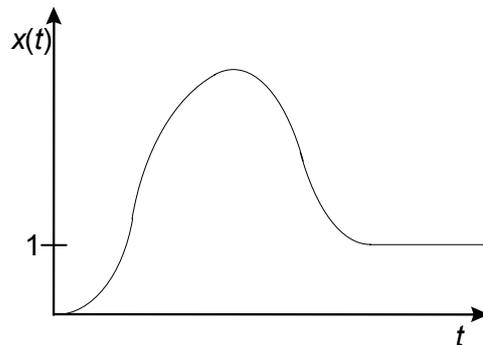


Abbildung 2.8: Beispiel einer nicht idealen Sprungfunktion als Eingangssignal

Das Eingangs- und Antwortsignal nehme vor und zum Zeitpunkt $t=0$ den Wert Null an. Außerdem seien $x(t)$ und $y(t)$ normiert, so dass sie nach unendlich langer Zeit ($t \rightarrow \infty$) gegen den Wert 1 streben. Diese Bedingungen werden durch

$$x(t \leq 0) = 0 \quad , \quad (2.22)$$

$$y(t \leq 0) = 0 \quad , \quad (2.23)$$

$$\lim_{t \rightarrow \infty} x(t) = 1 \quad (2.24)$$

und

$$\lim_{t \rightarrow \infty} y(t) = 1 \quad (2.25)$$

ausgedrückt und können experimentell in guter Näherung realisiert werden.

Außerdem wird vorausgesetzt, dass die uneigentlichen Integrale

$$A_x = \int_0^{\infty} 1 - x(t) dt \quad (2.26)$$

und

$$A_y = \int_0^{\infty} 1 - y(t) dt \quad (2.27)$$

konvergieren und mit ihnen die Flächeninhalte A_x und A_y berechnet werden können, die für $t > 0$ von dem jeweiligen Signal und der Geraden $x = 1$ bzw. $y = 1$ eingeschlossen werden. Hierbei werden Flächen, die unterhalb der Geraden liegen, positiv und Flächen oberhalb der Geraden negativ berücksichtigt.

Erfüllen Eingangs- und Antwortsignal die genannten Kriterien, kann die mittlere Verweilzeit des Fluids \bar{t} mit Hilfe des Zusammenhangs

$$\begin{aligned}\bar{t} = A_y - A_x &= \int_0^{\infty} 1 - y(t) dt - \int_0^{\infty} 1 - x(t) dt \\ &= \int_0^{\infty} x(t) - y(t) dt \\ &\approx \sum_i [(x_i - y_i) \cdot \Delta t_i]\end{aligned}\quad (2.28)$$

ermittelt werden. Dieser einfache Zusammenhang gemäß Gleichung (2.28) wurde in Anlehnung an die Ausführungen in [32] und [34] abgeleitet. Die mathematischen Grundlagen hierzu befinden sich im Anhang. Gleichung (2.28) wird im Rahmen dieser Arbeit zur Auswertung gemessener Eingangs- und Antwortsignale genutzt.

2.4 Modellierung der Schadgasabscheidung an festen Additivpartikeln

Gemäß des im Kapitel 2.2 erläuterten Reaktionsmechanismus wird die Abscheidung gasförmiger Schadstoffe an festen Additivpartikeln als nicht-katalytische, heterogene Reaktion an der Grenzfläche zwischen einer fluiden und einer festen Phase betrachtet. Bei diesem Reaktionstyp findet die Umsetzung eines in der fluiden Phase verteilten Reaktionspartners mit einem Feststoff statt. Der Feststoff ist selbst Reaktionspartner und kann während der Reaktion Form bzw. Größe und sein Porengefüge ändern. Entsteht darüber hinaus ein festes Reaktionsprodukt, wird die Zusammensetzung der festen Komponente geändert [32]. Der sehr starke Einfluss der relativen Feuchte wird bei der Ableitung der Stoffbilanzen zunächst nicht berücksichtigt.

Die Abscheidung von gasförmigem Schwefeldioxid an festen Kalkhydratpartikeln verläuft nach folgender Reaktionsgleichung:



Derartige Reaktionen erfolgen in mehreren Teilschritten:

1. Stoffübergang des gasförmigen Reaktionspartners (A) von der Hauptströmung durch eine das Partikel umgebende Grenzschicht,
2. Transport der gasförmigen Komponente (A) durch Diffusionsvorgänge in dem Porensystem des porösen Feststoffes,

3. Adsorption des gasförmigen Reaktionspartners (A) an der gesamten Oberfläche des Feststoffes,
4. Diffusion des adsorbierten Eduktes (A) durch die feste Produktschicht (C) bis zum reaktiven Feststoffkern (B),
5. chemische Reaktion der Edukte und Bildung des festen Reaktionsproduktes (C).

Zur Erklärung der Vorgänge am Einzelkorn wurden in der Literatur verschiedene Modelle entwickelt, die sich vor allem in der Beschreibung der Feststoffgeometrie unterscheiden. Ausgehend von einfachen Kugel-, Platten- oder Einzelporenmodellen wurden diese weiter verfeinert und kombiniert, um komplexe Partikelformen und Porensysteme zu erfassen [35, 36, 37, 38, 39, 40, 41, 42, 43, 44]. Mit zunehmendem Detaillierungsgrad steigt im Allgemeinen die Anzahl der Parameter, die experimentell nicht direkt bestimmt werden können. Einfache Modelle, die grundlegende und geschwindigkeitsbestimmende Teilschritte berücksichtigen, liefern häufig ausreichend genaue Beschreibungen der experimentellen Befunde.

Eines der am häufigsten eingesetzten und einfachsten Modelle zur Beschreibung nicht-katalysierter Gas-Feststoff-Reaktionen ist das Schwindkernmodell [32, 45]. Mit diesem Modell können die oben beschriebenen Teilschritte erfasst werden.

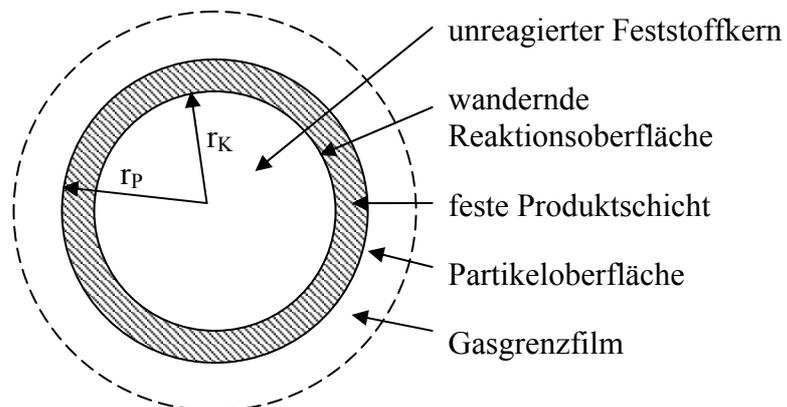


Abbildung 2.9: Schematische Darstellung eines Partikels gemäß des Modells mit schrumpfendem Feststoffkern

Es wird davon ausgegangen, dass die Reaktion zuerst nur an der äußeren Schicht des Partikels stattfindet und mit zunehmendem Umsatzgrad die Reaktionsoberfläche in das Partikel hineinwandert, bis der reaktionsfähige Produktkern umgesetzt ist.

Es zeigt sich jedoch bei verschiedenen Autoren [11, 45], dass entgegen der vereinfachten Modellvorstellung auch bei sehr langen Kontaktzeiten der Reaktionspartner kein vollständiger Umsatz erzielt wird. Es wurden verschiedene Ansätze formuliert, mit deren Hilfe die Limitierung des Umsatzes erklärt werden kann. Ein wesentlicher Punkt in diesem Zusammenhang ist die Volumenzunahme des Feststoffes bei der Reaktion von Calciumhydroxid mit Schwefeldioxid. Je nachdem, welches Produkt gebildet wird ($\text{CaSO}_3/\text{CaSO}_4$) und wie viel Kristallwasser eingelagert wird, steigt das molare Volumen des Feststoffes um den Faktor 1,5 bis 2,25. *Naffin* nennt eine Aufstellung der verschiedenen Reaktionsprodukte und deren molare Volumina [11]. Diese Volumenzunahme führt vor allem zu einer Veränderung der inneren Geometrie, d.h. zum teilweisen Porenverschluss und damit zu einer erschwerten Diffusion des Schadgases in das poröse Partikel hinein [44]. Die äußere Geometrie und die Partikelgröße bleiben weitgehend unverändert. Basierend auf dieser Vorstellung kann der Diffusionskoeffizient

$$D_S = D_{S_0} \cdot \varepsilon^2 \quad (2.30)$$

mit der Partikelporosität gekoppelt werden [35, 46];

D_S	Feststoffdiffusionskoeffizient,
D_{S_0}	Anfangsfeststoffdiffusionskoeffizient,
ε	Partikelporosität.

Die Partikelporosität hängt außerdem vom Umsatz des Feststoffes ab.

Gäng nimmt eine exponentielle Abhängigkeit zwischen dem Feststoffdiffusionskoeffizienten

$$D_S = D_{S_0} \cdot e^{-K \cdot U} \quad (2.31)$$

und dem Calciumhydroxidumsatz an [41, 45];

K	Hemmungsfaktor der Feststoffdiffusion,
U	Feststoffumsatz.

Der Parameter K kann nicht auf direktem Wege bestimmt werden. Er wird durch Anpassung von berechneten Umsatz-Zeit-Kurven an gemessene Durchbruchskurven ermittelt.

Darüber hinaus wurden detaillierte Ansätze entwickelt, bei denen die Produktschichtbildung als Kristallisation aufgefasst wird und mit Hilfe einer Keimbildungs- und Kornwachstumskinetik beschrieben wird [47, 48, 49]. Auch das Auftreten mechanischer Spannungen infolge der Volumenzunahme, die die Wanderung der Reaktionsfront ins Innere des Partikels behindern, kann berücksichtigt werden [50, 51]. Stoffdaten, die für diese Ansätze erforderlich sind, sind für das betrachtete Stoffsystem nicht bekannt.

Naffin geht davon aus, dass als Folge des Wachstums der Produktschicht an der Reaktionsfront zwischen Produktschicht und Eduktschicht mit zunehmendem Umsatz Spannungen auftreten, die die Bildung neuer Produktkeime erschweren. Dieser Vorgang wird als „kinetische Limitierung“ der Oberflächenreaktion bezeichnet [11]. Er lässt sich durch eine vom Umsatz abhängige Geschwindigkeitskonstante der Oberflächenreaktion

$$k_r = k_{r0} \cdot e^{-P \cdot U} \quad (2.32)$$

beschrieben;

k_r	Geschwindigkeitskonstante der Oberflächenreaktion,
k_{r0}	Geschwindigkeitskonstante ohne kinetische Limitierung,
P	Hemmungsfaktor der Oberflächenreaktion.

3 Modellierung des Druckverlustes und der SO₂-Abscheidung in Schlauchfiltern

Bei der Übertragung von mit Laborreaktoren gewonnenen Daten auf filternde Abscheider, wie sie industriell zum Einsatz kommen, sind einige wesentliche Punkte von Bedeutung.

Laborreaktoren werden in der Regel aus Gründen der Reproduzierbarkeit mit einer konstanten Gasgeschwindigkeit durchströmt und die Länge des Festbetts bleibt unverändert. Dies ist in technischen Filteranlagen mit differenzdruckgesteuerten Abreinigungen, wie im Kapitel 2.1.3 erläutert, nicht der Fall. Hier unterliegt nicht nur die lokale Gasgeschwindigkeit sondern auch die Dicke des Filterkuchens, der als Festbettreaktor dient, einer stetigen Veränderung.

3.1 Druckverlust in durch Druckstoß abgereinigten Schlauchfilteranlagen

Grundsätzlich wird bei der Berechnung des zeitlichen Verlaufs des Druckverlustes von der im Kapitel 2.1.2 vorgestellten Gleichung (2.6) ausgegangen. In dieser Gleichung werden die Permeabilität und die Dicke des Filtermittels zum Restwiderstand K_M zusammengefasst. Der durch den Staubkuchen erzeugte Druckverlust

$$\Delta p = K_M \eta u_0 + K_K \eta W u_0$$

wird mit Hilfe des spezifischen Kuchenwiderstandes K_K und der Flächenmasse W des Staubkuchens beschrieben.

Für nicht kompressible Filterkuchen, die mit einer konstanten Filtrationsgeschwindigkeit anfiltriert werden, ist die oben dargestellte Gleichung direkt auswertbar. Δp steigt linear mit der Flächenmasse des Staubkuchens an. Sind die Gasviskosität und die Filtrationsgeschwindigkeit bekannt, kann aus dem Druckverlust und der entsprechenden Flächenmasse auf den Filterwiderstand K_M und den Kuchenwiderstand K_K geschlossen werden. Diese vereinfachende Betrachtungsweise trifft in dieser Form für viele Filteranlagen im industriellen Einsatz aus den im Kapitel 2.1.3 genannten Gründen nicht zu. Bei stets nur teilweise erfolgreicher Abreinigung der Filterfläche stellen sich an den gerade abgereinigten Filterelementen lokal größere Filtrationsgeschwindigkeiten ein als an den Elementen, die noch mit einem Staubkuchen belegt sind.

Im Rahmen dieser Arbeit werden daher mit Hilfe eines einfachen mathematischen Modells die Vorgänge nach einer teilweisen Abreinigung der Filterfläche abgebildet. Hierzu werden die Filterelemente, die einzeln abgereinigt werden können, getrennt voneinander als parallel betriebene Oberflächenfilter betrachtet. Dem Modell liegen die folgenden Annahmen zugrunde:

- Jedes Filterelement beeinflusst während der Filtration und Abreinigung nicht die übrigen Elemente,
- der Differenzdruck ist über alle Filterelemente gleich,
- die Staubkonzentration ist im gesamten Rohgasraum konstant,
- der Restwiderstand des Filtermittels K_M und der spezifische Kuchenwiderstand K_K sind für die gesamte Filterfläche und während des gesamten Filtrationsversuches konstant (inkompressibler Staubkuchen).

Für die Filterelemente, die zu einer Gruppe zusammengefasst sind und stets zeitgleich abgereinigt werden, wird die Flächenmasse $W_i(t)$ gemäß Gleichung (2.3) berechnet. Da sich unterschiedliche Flächenmassen auf den einzelnen Filterelementgruppen befinden können, ergeben sich auch verschiedene Strömungswiderstände. Es liegt jedoch über der gesamten Filterfläche und damit über jedem einzelnen Filterelement der Differenzdruck Δp an. Daher müssen sich für die einzelnen Elementgruppen unterschiedliche Filtrationsgeschwindigkeiten $u_i(t)$ einstellen. Dieses Modell wird mathematisch durch die Ansätze

$$\begin{aligned} \Delta p = \Delta p_1 = \Delta p_2 = \dots = \Delta p_i &= (K_M + K_K W_1) \eta u_{0,1} \\ &= (K_M + K_K W_2) \eta u_{0,2} \\ &\quad \vdots \\ &= (K_M + K_K W_i) \eta u_{0,i} \end{aligned} \quad (3.1)$$

formuliert.

Die Massenbilanzen des Staubes (s. Gleichung (2.3)) können jeweils in der differentiellen Form

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} W_1 &= c_S u_{0,1} \quad , \\ \frac{d}{dt} W_2 &= c_S u_{0,2} \quad , \\ &\quad \vdots \\ \frac{d}{dt} W_i &= c_S u_{0,i} \end{aligned} \quad (3.2)$$

geschrieben werden.

Zusätzlich gilt die Bilanz des Gasvolumenstroms. Der Rohgasstrom \dot{V}_{ges} teilt sich nach folgender Beziehung

$$\dot{V}_{ges} = \sum A_i u_{0,i} \quad (3.3)$$

auf die einzelnen Elementgruppen mit der jeweiligen Filterfläche A_i auf.

Als Anfangsbedingung wird angenommen, dass zu Beginn der Filtration alle Filterelemente noch unbeladen sind ($W_i(t=0) = 0$). Erreicht der berechnete Differenzdruck Δp den vorgegebenen maximalen Wert Δp_{max} , wird ein Filterelement bzw. eine Gruppe von Filterelementen abgereinigt und die Flächenmasse dieser Filterelementgruppe zu Null gesetzt. Gemäß des industriell üblichen Abreinigungsmodus wird beim nächsten Erreichen des maximalen Differenzdruckes die nächste Gruppe abgereinigt und die Flächenmasse dieser Gruppe zu Null usw. Dieses Differentialgleichungssystem wird mit Hilfe der Software gPROMS [63] numerisch gelöst.

3.2 Schadgasabscheidung in Filteranlagen

Ausgehend von der Schadgasabscheidung am Einzelkorn wird nachfolgend ein Modell abgeleitet, welches sowohl die Vorgänge im anfiltrierten Festbett einer Laboranlage als auch in einem vorgeschalteten Reaktor und im wachsenden Staubkuchen einer technischen Schlauchfilteranlage (s. Abbildung 1.1) beschreibt.

3.2.1 Schadgasabscheidung am Einzelkorn

Das im Kapitel 2.2.3 beschriebene Verhalten der Additivpartikeln, d.h. die starke Abnahme der Reaktivität mit zunehmendem Feststoffumsatz, kann durch ein zweistufiges Einzelkornmodell beschrieben werden. Hierzu wird angenommen, dass bei frischen Partikeln der Transport der gasförmigen Komponenten an die Partikeloberfläche und deren Adsorption der geschwindigkeitsbestimmende Schritt ist. Mit zunehmendem Additivumsatz und der damit verbundenen Ausbildung einer geschlossenen Produktschicht wirkt sich die Diffusion von SO₂ durch die Produktschicht stärker limitierend aus.

Die Vorgänge bei der Schadgasabscheidung am Einzelkorn werden daher in zwei Schritte unterteilt: Im ersten Schritt wird der Stoffübergang der gasförmigen Komponente von der Hauptströmung durch die Grenzschicht, der diffusive Transport durch das Porensystem des Feststoffs und die Adsorption des Schadgases an der

Oberfläche zusammengefasst. Der zweite Teilschritt umfasst die Diffusion des Schadstoffes durch die Produktschicht und die chemische Reaktion der Edukte.

Im Folgenden werden die verwendeten Bilanzgleichungen erläutert.

Bei der Berechnung des Stoffüberganges durch die das Partikel umgebende Grenzschicht wird je nach Umströmungszustand (gasgetragenes Partikel/durchströmte Schüttung) unterschieden. Alle übrigen Stoffübergänge und Reaktionen im Innern des Partikels sind von der äußeren Strömung unabhängig.

Bei der Beschreibung des Stofftransportes von der Hauptströmung mit der Schadgaskonzentration c_G zum Partikel, in dessen unmittelbarer Nähe die Schadgaskonzentration c_{OP} beträgt, wird von einer umströmten Einzelkugel ausgegangen. Es gilt:

$$\dot{n}_{GS} = \beta \pi d^2 (c_G - c_{OP}) \quad . \quad (3.4)$$

Hierbei ist n_{GS} die Stoffmenge, die durch die Grenzschicht zum Partikel mit dem Durchmesser d gelangt. Der Stoffübergangskoeffizient β bzw. die Sherwood-Zahl Sh

$$Sh = \frac{\beta d}{D} \quad (3.5)$$

kann anhand der Reynolds-Zahl Re

$$Re = \frac{w_\infty d}{\nu} \quad (3.6)$$

und der Schmidt-Zahl Sc

$$Sc = \frac{\nu}{D} \quad (3.7)$$

mit Hilfe empirischer Gleichungen für verschiedene Formen der Partikelumströmung berechnet werden [54].

In diese Kennzahlen gehen als Stoffdaten die kinematische Viskosität des Gasgemisches ν und der molekulare Diffusionskoeffizienten D der Schadgaskomponente ein.

Die kinematische Viskosität des Gasgemisches kann gemäß des VDI-Wärmeatlasses [55] berechnet werden. Als Komponenten des Gasgemisches werden hier Luft und

Wasserdampf berücksichtigt. Die Schadgase (SO₂ und HCl) liegen in deutlich geringeren Konzentrationen vor und gehen daher nicht in die Berechnung ein.

In Abbildung 3.1 ist die kinematische Viskosität über der Gasfeuchte für verschiedene Temperaturen aufgetragen. Mit steigender Feuchte und sinkender Temperatur nimmt die Viskosität des Gasgemisches ab.

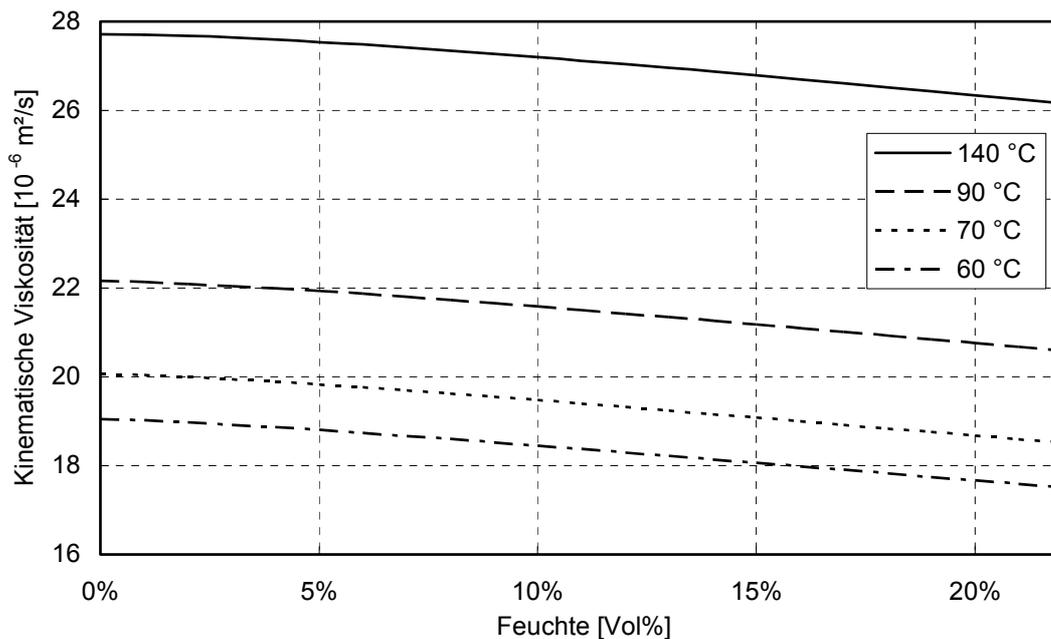


Abbildung 3.1: Einfluss der Feuchte und Temperatur auf die kinematische Viskosität des Gasgemisches bestehend aus Luft und Wasserdampf bei einem Gasdruck von 101325 Pa

Die Berechnung des molekularen Gasdiffusionskoeffizienten von Schwefeldioxid in einer Mischung bestehend aus Luft und Wasserdampf wird nach der Methode von *Hirschfelder* [32] durchgeführt. Über den relevanten Temperatur- und Feuchtebereich nimmt mit zunehmender Feuchte und sinkender Temperatur der Diffusionskoeffizient deutlich ab. Bei einer Temperatur von 140 °C beträgt der Diffusionskoeffizient von SO₂ in trockener Luft ca. $58 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$. Durch die Erhöhung der Feuchte auf ca. 20 Vol.-% und eine Reduzierung der Temperatur auf 60 °C wird der Diffusionskoeffizient annähernd halbiert (s. Abbildung 3.2).

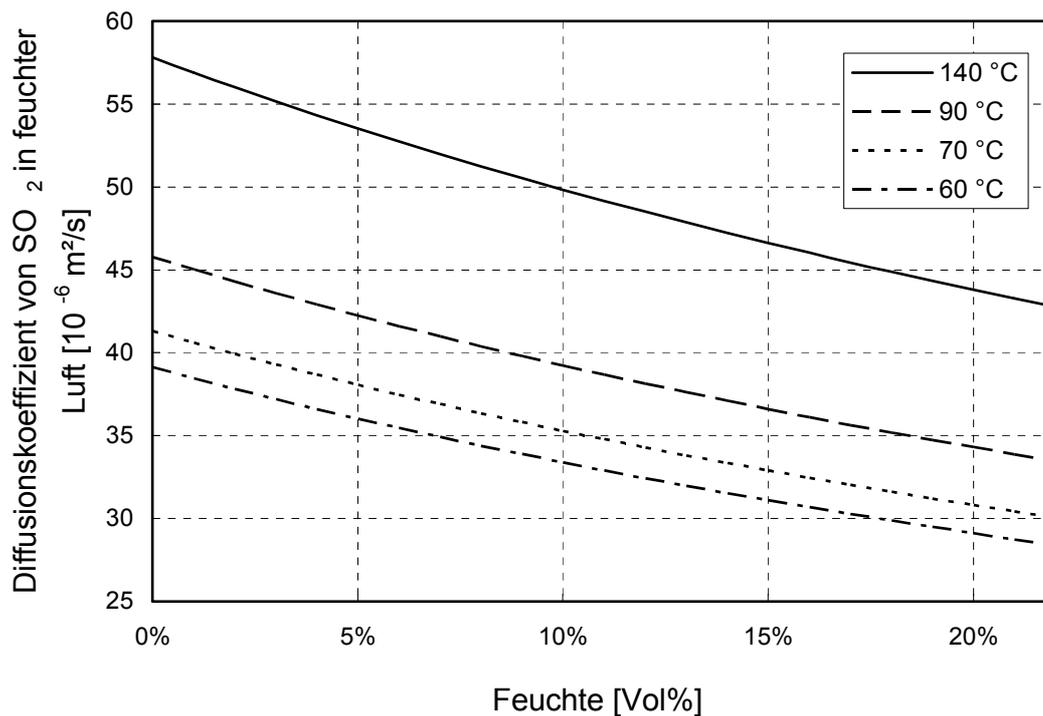


Abbildung 3.2: Abhängigkeit des molekularen Gaskoeffizienten von SO₂ in feuchter Luft von der Temperatur und der absoluten Feuchte bei einem Gasdruck von 101325 Pa

Mit diesen Stoffdaten (Diffusionskoeffizient und kinematische Viskosität) und der Relativgeschwindigkeit w_∞ zwischen Gasströmung und Partikel kann der Stoffübergangskoeffizient β für kugelförmige Partikel mit dem Durchmesser d berechnet werden.

Gemäß Kapitel 2.3 stellt der oben beschriebene Stoffübergang des Schadgases aus der Hauptströmung durch die das Partikel umgebende Grenzschicht den ersten von insgesamt fünf Teilschritten dar.

Zur Beschreibung des Stofftransportes im Porensystem (Schritt 2) und der Adsorptionskinetik (Schritt 3) werden häufig so genannte Diffusionsmodelle herangezogen [52]. Bei dieser Modellvorstellung werden ausgehend vom 2. Fickschen Gesetz Bilanzgleichungen für das Porensystem aufgestellt. Der numerische Aufwand zur Lösung dieser Differentialgleichungen ist relativ groß. Darüber hinaus müssen bezüglich der Struktur des Porensystems (Porenlänge, Verzweigungen, Porenform) Annahmen getroffen werden, die nur zum Teil durch Experimente zugänglich sind.

Verglichen mit den Diffusionsmodellen stellen die so genannten kinetischen Modelle eine Vereinfachung dar. Die Diffusion der gasförmigen Komponente durch das Porensystem (Schritt 2) und die Adsorption auf der Partikeloberfläche (Schritt 3) wird hier zusammenfassend beschrieben [52]. Als treibendes Potential für die zeitliche Änderung der mittleren Beladung \bar{X} eines Partikels mit dem Volumen V_P , der Dichte ρ_P und der inneren Oberfläche A_P wird die Differenz zwischen der zum Zeitpunkt t vorliegenden mittleren Beladung und der Beladung X^* , die mit der gegebenen Gaskonzentration in der unmittelbaren Nähe des Partikels im Gleichgewicht steht, angenommen. Der Stoffdurchgangskoeffizient k_{ad} erfasst sowohl die inneren Transportvorgänge im Porennetzwerk als auch die Adsorptionskinetik [52]. Der Ansatz

$$V_P \rho_P \frac{\partial \bar{X}}{\partial t} = A_P k_{ad} \rho_P (X^* - \bar{X}) \quad (3.8)$$

verknüpft die vorgenannten Größen.

Der Zusammenhang zwischen der Beladung des Partikels und der Konzentration in der Gasphase bzw. Gleichgewicht zwischen der Gasphase und der Sorbatphase kann für kleine Dampfdrücke des zu adsorbierenden Gases mit einer jeweils linearen Beziehung nach *Henry*

$$\bar{X} = H c_P \quad (3.9)$$

$$X^* = H c_{OP} \quad (3.10)$$

beschrieben werden.

Mit Hilfe der Gleichungen (3.8), (3.9) und (3.10) kann der Massenstrom bzw. durch Berücksichtigung der Molmasse von Schwefeldioxid M_{SO_2} , der Stoffstrom \dot{n}_{ad} , der zum Zeitpunkt t an einem Partikel adsorbiert wird, anhand Gleichung (3.11)

$$\dot{n}_{ad} = \frac{A_P k_{ad} \rho_P H}{M_{SO_2}} (c_{OP} - c_P) \quad (3.11)$$

berechnet werden.

Unter quasi-stationären Bedingungen entsprechen die Stoffströme, die nach Gleichung (3.4) durch die Grenzschicht treten \dot{n}_{GS} und nach Gleichung (3.11) adsorbiert werden

\dot{n}_{ad} , einander. Daraus ergibt sich zwischen der Schadgaskonzentration in der Gasphase und der adsorbierten Stoffmenge der Zusammenhang:

$$\dot{n}_{ad} = \frac{\beta \pi d^2 \cdot \frac{A_P k_{ad} \rho_P H}{M_{SO_2}}}{\beta \pi d^2 + \frac{A_P k_{ad} \rho_P H}{M_{SO_2}}} \cdot (c_G - c_P) \quad (3.12)$$

Gleichung (3.12) erfasst den Stofftransport des Schadgases aus der Gasphase einschließlich der Adsorption (s. Kap. 2.3 Schritt 1 bis 3). Bei der Reaktion der Edukte entsteht eine feste Produktschicht, durch die im nächsten Schritt (Schritt 4) die zuvor gasförmige Komponente bis zum reaktiven Kern des Feststoffes durch Diffusion transportiert werden muss und dort umgesetzt wird (Schritt 5).

In Abbildung 2.9 ist schematisch ein kugelförmiges Partikel mit reaktivem Feststoffkern und der umhüllenden Produktschicht dargestellt. Zur Beschreibung der Diffusion im Feststoff und der chemischen Reaktion an der reaktiven Oberfläche des inneren Partikelkerns wird wiederum von einem quasi-stationären Zustand ausgegangen.

Der Stoffstrom \dot{n}_{PS} , der durch die Produktschicht tritt, kann mit Hilfe des Diffusionskoeffizienten D_S und des Konzentrationsgradienten im Produkt ausgedrückt werden. In der Gleichung

$$\dot{n}_{PS} = -4 \pi r_K^2 D_S \left(\frac{\partial c}{\partial r} \right)_{r_K} \quad (3.13)$$

wird der Konzentrationsgradient an der Stelle des Kerndurchmessers gebildet.

Unter quasi-stationären Bedingungen kann aus der Stoffmengenbilanz an einer Kugelschale mit der Dicke dr und mit den Randbedingungen

$$c(r_K) = c_K \quad , \quad (3.14)$$

$$c(r_P) = c_P \quad (3.15)$$

der Konzentrationsverlauf und damit auch der Konzentrationsgradient an der Stelle r_K durch Integration bestimmt werden. Für den Diffusionsstrom in der Produktschicht ergibt sich damit der Zusammenhang:

$$\dot{n}_{PS} = -4 \pi r_K^2 D_S \frac{c_P - c_K}{r_K \left(1 - \frac{r_K}{r_P}\right)} \quad (3.16)$$

In Anlehnung an das Partikelmodell zur Schadgasabscheidung an Kalkhydratpartikeln von *Naffin* [11] wird die Kinetik der chemischen Reaktion bzw. der in einem Partikel umgesetzte Stoffstrom \dot{n}_r als Reaktion erster Ordnung

$$\dot{n}_r = -4 \pi r_K^2 k_r c_K \quad (3.17)$$

mit k_r als Geschwindigkeitskonstante formuliert.

Beide Schritte, Produktschichtdiffusion (Schritt 4) und Oberflächenreaktion (Schritt 5), können gleichgesetzt werden. Für den reagierenden Schadgasstrom ergibt sich

$$\dot{n}_r = -4 \pi r_K^2 \frac{k_r D_S}{k_r r_K \left(1 - \frac{r_K}{r_P}\right) + D_S} c_P \quad (3.18)$$

Neben r_K geht in diese Gleichung die Dicke der Produktschicht ($r_P - r_K$) ein. Für die Kugelgeometrie kann zwischen diesen zeitlich veränderlichen Radien, dem Umsatzgrad U und einem Anfangspartikeldurchmesser d ein eindeutiger Zusammenhang aufgestellt werden. Für den Radius des schrumpfenden reaktiven Feststoffkerns gilt:

$$r_K = \frac{d}{2} \sqrt[3]{1 - U} \quad (3.19)$$

Bei der Berechnung des äußeren Radius der Produktschicht muss, wie im Kapitel 2.3 erwähnt, die Zunahme des molaren Volumens infolge der chemischen Reaktion berücksichtigt werden. Mit dem Koeffizienten α

$$\alpha = \frac{\nu_P V_{MP} (1 - \varepsilon_P)}{\nu_E V_{ME} (1 - \varepsilon_E)} \quad (3.20)$$

wird nach *Specht* [53] das Verhältnis der molaren Volumina des Produktes und Eduktes beschrieben. ν_P und ν_E sind die stöchiometrischen Koeffizienten vom Produkt und Edukt. Bei einer Änderung der Feststoffporosität wird diese durch ε_P und ε_E berücksichtigt. Bei der hier betrachteten Reaktion handelt es sich um eine äquimolare Umsetzung. Gemäß der von *Naffin* getroffenen Annahmen werden Produktschicht und

Eduktkern als massive Feststoffe beschrieben. Für dieses Stoffsystem wurde mit einem Volumenverhältnis von 1,75 gerechnet [11].

Der äußere Radius der Produktschicht

$$r_p = \frac{d}{2} \left(\sqrt[3]{1-U} + \sqrt[3]{\alpha U} \right) \quad (3.21)$$

wird als abhängig vom Umsatz ausgedrückt.

Damit kann der reagierende Stoffstrom

$$\dot{n}_r = -\pi d^2 (1-U)^{\frac{2}{3}} \frac{k_r D_s}{k_r \frac{d}{2} (1-U)^{\frac{1}{3}} \left(1 - \frac{1}{1 + \left(\frac{\alpha U}{1-U} \right)^{\frac{1}{3}}} \right) + D_s} c_p \quad (3.22)$$

als Funktion des Umsatzes geschrieben werden.

Während Gleichung (3.12) den äußeren Stoffübergang und den Adsorptionsschritt erfasst, wird durch Gleichung (3.22) die Diffusion im Feststoff und die Oberflächenreaktion beschrieben. Bei frischen Additivpartikeln ist noch keine Produktschicht vorhanden, so dass zunächst äußerer Stoffübergang und Adsorption geschwindigkeitsbestimmend sind. Mit zunehmendem Umsatz und einer ausgeprägten Feststoffschicht gewinnen die Vorgänge, die durch Gleichung (3.22) wiedergegeben werden, an Bedeutung. Der Feststoffumsatz geht nicht nur über die Produktschichtdicke in Gleichung (3.22) ein, zu berücksichtigen ist ebenfalls sein Einfluss auf den Feststoffdiffusionskoeffizienten D_s . Dieser von *Gäng* [45] und *Naffin* [11] benutzte Zusammenhang zwischen dem Diffusionskoeffizienten und dem Umsatz wurde auch in dieser Arbeit verwendet, s. Gleichung (2.31).

3.2.2 Abscheidung in der Flugstromphase

Wie im vorherigen Abschnitt beschrieben, wird bei der Berechnung des äußeren Stoffübergangskoeffizienten von einer umströmten Einzelkugel ausgegangen. Die Partikel-Reynolds-Zahl wird für den Fall der Schadgasabscheidung in der Flugstromphase mit der Sinkgeschwindigkeit des Partikels gebildet. Der mittlere

Partikeldurchmesser beträgt ca. 4 μm. Für das betrachtete Stoffsystem (Kalkhydrat - Rauchgas) ergeben sich stets Reynoldszahlen kleiner als 0,25, so dass von einer schleichenden Umströmung des Partikels ausgegangen werden kann. Der Stoffübergangskoeffizient während der Flugstromphase β_{FSP} bzw. die entsprechende Sherwood-Zahl Sh wird näherungsweise durch die empirische Gleichung

$$Sh = 2 + \frac{0,333(Re Sc)^{0,840}}{1 + 0,331(Re Sc)^{0,507}} \quad (3.23)$$

wiedergegeben [54].

Mit den im vorherigen Abschnitt vorgestellten Beziehungen für den zunächst adsorbierten und anschließend umgesetzten Stoffstrom (\dot{n}_{ad} und \dot{n}_r) am Einzelpartikel und dem äußeren Stoffübergangskoeffizienten β_{FSP} können die Bilanzgleichungen für die Flugstromphase formuliert und gelöst werden. Die Flugstromphase sei ferner dadurch gekennzeichnet, dass die Gasphase und die Feststoffphase ideal vermischt vorliegen (quasi-homogen) und sich mit gleicher Geschwindigkeit durch den Reaktor bewegen. Gas und Partikel haben die gleiche Verweilzeit im Reaktionssystem. Zunächst wird die Verweilzeitverteilung durch ein ideales Strömungsrohr beschrieben s. Abbildung 3.3. Diese Annahme ist sicherlich für den Rohgaskanal einer trocken arbeitenden Rauchgasreinigungsanlage hinreichend genau. Wie noch gezeigt wird, trifft diese Annahme auf das komplexe Strömungsfeld im Rohgasraum einer Filteranlage nur mit starken Einschränkungen zu.

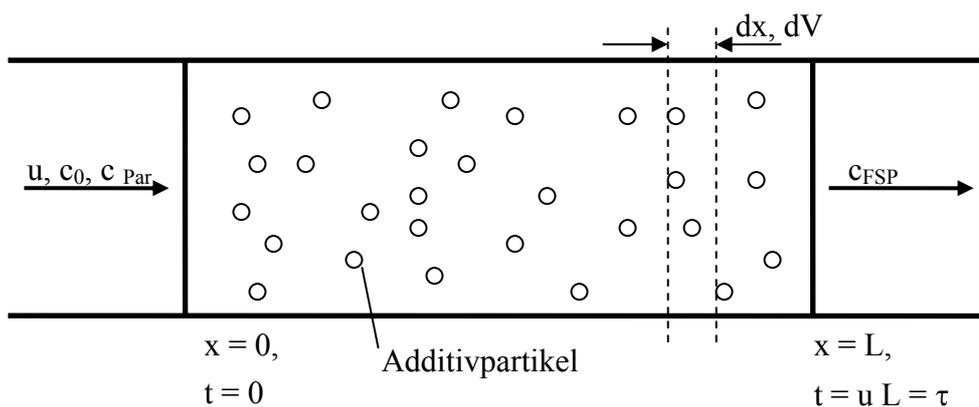


Abbildung 3.3: Schematische Darstellung eines Flugstromreaktors/Rohgaskanals zur Veranschaulichung der Bilanzgleichung für die Flugstromphase

Rohgas und Additivpartikel sind in jeder Querschnittsfläche entlang der Ortskoordinate x des idealen Strömungsrohres ideal vermischt und bewegen sich mit der gemeinsamen Geschwindigkeit u vom Reaktoreingang ($x = 0$) zum Reaktorausgang ($x = L$). Die Schadgaskonzentration des einströmenden Rohgases beträgt c_0 und wird durch Adsorption und Reaktion an den Additivpartikeln bis auf die Konzentration c_{FSP} am Ende des Rohrreaktors verringert. Die Anzahlkonzentration der Additivpartikel c_{Par} bleibt im gesamten Reaktor konstant. Sie wird mit Gleichung (3.24)

$$c_{Par} = \frac{\dot{m}_{Add}}{\dot{V}_{ges} m_{Par}} = \frac{\dot{m}_{Add}}{\dot{V}_{ges} \frac{\pi}{6} d^3 \rho_P (1 - \varepsilon_{Par})} \quad (3.24)$$

anhand des eintretenden Rohgasvolumenstroms \dot{V}_{ges} , des Additivmassenstroms \dot{m}_{Add} und der Masse eines Partikels berechnet. Die Masse eines kugelförmigen Partikels wird mit dem Durchmesser d , der Feststoffdichte ρ_P und der Porosität ε_{Par} bestimmt.

Zur Berechnung der Schadgaskonzentration am Reaktoraustritt bzw. des Konzentrationsprofils entlang der Ortskoordinate wird die Stoffbilanz für das differentielle Volumenelement dV

$$dV = A dx \quad (3.25)$$

mit der Dicke dx und der Querschnittsfläche A formuliert.

Aus der Bilanz der gasförmigen Schadgaskomponente

$$\frac{\partial}{\partial t} (c_G \cdot dV) = -u \cdot A dx \frac{\partial c_G}{\partial z} - c_{Par} \dot{n}_{ad} dV \quad (3.26)$$

folgt für den stationären Fall

$$0 = u \frac{\partial c_G}{\partial x} + c_{Par} \dot{n}_{ad} \quad (3.27)$$

Mit \dot{n}_{ad} ist hier gemäß Gleichung (3.12) der Molenstrom an Schadgas gemeint, der an einem einzelnen Partikel adsorbiert wird. n_{ad} ist die Stoffmenge, die an einem Partikel adsorbiert vorliegt. Die Bilanz für die adsorbierte Komponente ergibt sich zu

$$\frac{\partial n_{ad}}{\partial t} = -u \frac{\partial n_{ad}}{\partial x} + \dot{n}_{ad} - \dot{n}_r = 0 \quad (3.28)$$

Der Teil des Schadgases n_r , der mit dem Feststoff reagiert, kann nach der Beziehung

$$\frac{\partial n_r}{\partial t} = -u \frac{\partial n_r}{\partial x} + \dot{n}_r = 0 \quad (3.29)$$

bilanziert werden.

Die Gleichungen (3.27), (3.28) und (3.29) können mit den Anfangsbedingungen

$$(c_G)_{x=0} = c_0 \quad , \quad (3.30)$$

$$(n_{ad})_{x=0} = 0 \quad \text{und} \quad (3.31)$$

$$(n_r)_{x=0} = 0 \quad (3.32)$$

integriert werden. Damit ist der Konzentrationsverlauf, die adsorbierte und umgesetzte Stoffmenge im Rohrreaktor und am Ende des idealisierten Flugstromreaktors berechenbar.

3.2.3 Schadgasabscheidung in Festbettreaktoren

Bei der Schadgasabscheidung in Filterschichten wird der Filterkuchen als Festbettreaktor aufgefasst, in dem die ruhende Feststoffphase von der Gasphase durchströmt wird. *Naffin* [11] hat die Schadgasabscheidung in einer Kalkhydratschicht experimentell und modelltheoretisch untersucht. Die von ihm zusammengestellten Beziehungen für den äußeren Stoffübergang und die axiale Dispersion in durchströmten Schüttungen werden in dieser Arbeit weitgehend übernommen und auf die Verhältnisse in Schlauchfiltern übertragen.

Die Berechnung des Stoffüberganges wird in Analogie zu den Berechnungsmethoden des VDI-Wärmeatlas [55] für den Wärmeübergang in Schüttungen durchgeführt.

Für die mittlere Sherwood-Zahl einer Einzelkugel im durchströmten Haufwerk wurde folgender empirischer Zusammenhang formuliert:

$$Sh_{\text{Einzelkugel}} = 2 + \sqrt{Sh_{\text{lam}}^2 + Sh_{\text{turb}}^2} \quad , \text{ mit} \quad (3.33)$$

$$Sh_{lam} = 0,664 \sqrt{Re_\varepsilon} \cdot \sqrt[3]{Sc} \quad \text{und} \quad (3.34)$$

$$Sh_{turb} = \frac{0,037 Re_\varepsilon^{0,8} Sc}{1 + 2,443 Re_\varepsilon^{-0,1} (Sc^{\frac{2}{3}} - 1)} \quad (3.35)$$

In diese Beziehungen geht die auf die Schüttgutporosität bezogene Reynolds-Zahl Re_ε

$$Re_\varepsilon = \frac{u_0 d}{\nu \varepsilon_S} \quad (3.36)$$

ein, die mit der Leerrohrgeschwindigkeit der fluiden Phase u_0 und der Porosität der Schüttung ε_S gebildet wird.

Die effektive Sherwood-Zahl der Schüttung

$$Sh = f_a Sh_{Einzelkugel} \quad \text{mit} \quad (3.37)$$

$$f_a = 1 + 1,5(1 - \varepsilon_S) \quad (3.38)$$

wird aus der Sherwoodzahl einer Einzelkugel mit Hilfe eines Formfaktors f_a der Schüttung berechnet.

Zur Beschreibung der Festbettdurchströmung bzw. der Verweilzeitverteilung des Gases im Festbett wird das Dispersionsmodell genutzt. Bei dieser Modellvorstellung wird davon ausgegangen, dass die reale Durchströmung der Schüttung als Überlagerung einer idealen Kolbenströmung mit einer diffusionsartigen axialen Vermischung betrachtet werden kann [56]. Ein Maß für die Vermischung in axialer Richtung ist der axiale Vermischungskoeffizient D_{ax} . Dieser wird als axialer Dispersionskoeffizient bezeichnet.

Für die Vermischung in axialer Richtung sind ursächlich eine ungleiche Verteilung der Strömungsgeschwindigkeit über den freien Strömungsquerschnitt und die molekulare Diffusion verantwortlich. Abweichungen von der idealen Kolbenströmung können z.B. durch Wirbelbildung und Turbulenz hervorgerufen werden. In ruhenden Schüttungen gilt für die Partikeloberfläche die Haftbedingung, d.h. in unmittelbarer Nähe der Partikel wird die Gasgeschwindigkeit zu Null. In durchströmbaren Hohlräumen müssen daher Geschwindigkeiten erreicht werden, die deutlich über der mittleren Strömungsgeschwindigkeit des Gases liegen. *Tsotsas* und *Schlünder* [57] haben sich mit der axialen

Dispersion in Festbetten beschäftigt. In der vorliegenden Arbeit wie auch der Arbeit von *Naffin* [11] wird auf die Ergebnisse und empirischen Berechnungsgleichungen von *Tsotsas* und *Schlünder* zurückgegriffen.

Zur detaillierten Ableitung der axialen Dispersion in feindispersen Schüttungen sei an dieser Stelle auf die Originalliteratur verwiesen [57]. Die wesentlichen Zusammenhänge sollen im Folgenden nur kurz skizziert werden.

Die axiale Dispersion in der Schüttung wird auf die Dispersion in einzelnen Kapillaren zurückgeführt. Das Strömungsprofil in einer Kapillare mit dem Durchmesser D_C wird durch eine Kernzone (Radius r_l) mit einer hohen Geschwindigkeit u_1 und eine Randzone mit einer niedrigeren Strömungsgeschwindigkeit u_2 angenähert. Unter der Annahme einer stagnierenden Randzone ($u_2 = 0$) leiten *Tsotsas* und *Schlünder* folgenden Ansatz

$$\frac{1}{Pe_{ax}} = \frac{1}{\tau} \left(\frac{1}{Pe_{z,1}} + \frac{1}{Pe} (1 - \xi_C^2) \right) + \frac{1}{32} \left(\frac{D_C}{d} \right)^2 (Pe_{r,1} \cdot \xi_C^2 \cdot f_1(\xi_C) + Pe \cdot f_2(\xi_C)) \quad (3.39)$$

für die axiale Peclet-Zahl Pe_{ax} ab.

Die Peclet-Zahl

$$Pe = \frac{\bar{u} d}{D_{AB}}, \quad (3.40)$$

und die axiale Peclet-Zahl Pe_{ax}

$$Pe_{ax} = \frac{\bar{u} d}{D_{ax}} \quad (3.41)$$

werden mit \bar{u} als mittlerer Geschwindigkeit in der Schüttung und d als Partikeldurchmesser gebildet. D_{AB} ist der molekulare Diffusionskoeffizient und D_{ax} entspricht dem axialen Dispersionskoeffizient.

Die Größe ξ_C gibt das Durchmesser Verhältnis der Kernzone zur Kapillare an. Das Verhältnis der Geschwindigkeit in der Kernzone u_1 zur mittleren Geschwindigkeit \bar{u} kann daher durch

$$\frac{u_1}{\bar{u}} = \frac{1}{\xi_C^2} \quad (3.42)$$

ausgedrückt werden.

Aus experimentellen Untersuchungen haben *Tsotsas* und *Schlünder* eine empirische Beziehung zwischen der mit dem Partikeldurchmesser und der Leerrohrgeschwindigkeit gebildeten Reynolds-Zahl

$$Re_0 = \frac{u_0 d}{\nu} \quad (3.43)$$

und dem Durchmesser Verhältnis formuliert. Für kleine Reynolds-Zahlen ($Re_0 < 0,1$), wie sie in der Filterschicht vorliegen, gilt

$$\xi_C = 0,2 + 0,21 \cdot e^{2,81y} \quad (3.44)$$

mit

$$y = \log(Re_0) + 1 \quad (3.45)$$

In dem oben vorgestellten Ansatz zur Berechnung der axialen Peclet-Zahl, Gleichung (3.39), wird mit $Pe_{z,l}$ die effektive Peclet-Zahl in axialer Richtung der Kernströmung und mit $Pe_{r,l}$ die effektive Peclet-Zahl in radialer Richtung bezeichnet. Für diese Größen gilt

$$\frac{1}{Pe_{z,l}} = \frac{1}{Pe_1} + \frac{1}{K_z \left(1 + \frac{C_Z}{Pe_1} \right)} \quad (3.46)$$

und

$$\frac{1}{Pe_{r,l}} = \frac{1}{Pe_1} + \frac{1}{K_r} \quad (3.47)$$

mit

$$Pe_1 = \frac{u_1 d}{D_{AB}} \quad (3.48)$$

und den Konstanten

$$\begin{aligned} K_r &= 8 \quad , \\ C_Z &= 10 \quad , \\ K_Z &= 1,52 \quad , \end{aligned}$$

die aus Grenzfallbetrachtungen bestimmt wurden.

Für den Kapillardurchmesser D_C wird der hydraulische Durchmesser d_h der Schüttung

$$D_C = d_h = d \frac{2}{3} \frac{\varepsilon_s}{(1 - \varepsilon_s)} \quad (3.49)$$

als Funktion der Porosität des Haufwerks ε_s eingesetzt.

Die Funktionen f_1 und f_2 lauten:

$$f_1(\xi_C) = (1 - \xi_C^2)^2 \quad (3.50)$$

und

$$f_2(\xi_C) = 4\xi_C^2 - 3 - 4 \ln \xi_C - \xi_C^4 \quad (3.51)$$

Der Tortuositätsfaktor τ

$$\tau = \frac{\varepsilon_s}{1 - \sqrt{1 - \varepsilon_s}} \quad (3.52)$$

wird aus der Schüttgutporosität bestimmt.

Mit diesen empirischen Berechnungsmethoden für den äußeren Stoffübergang und für die axiale Dispersion in durchströmten Schüttungen können nun die Bilanzgleichungen für den Filterkuchen formuliert werden.

In Abbildung 3.4 ist die Filterschicht schematisch als durchströmter Festbettreaktor dargestellt. Der Filterkuchen mit der Dicke H und das Filtermittel werden von dem Gas durchströmt. Der Gasstrom enthält je nach den Bedingungen in der vorgeschalteten Flugstromphase eine mehr oder weniger hohe Konzentration c_{FSP} an Schadgas, mit der er in die Filterschicht eindringt. In der Filterschicht reagiert das Schadgas mit dem Additiv, d.h. die Schadgaskonzentration nimmt entlang der z -Koordinate ab und das Gas verlässt das Festbett mit der Konzentration c_{FB} .

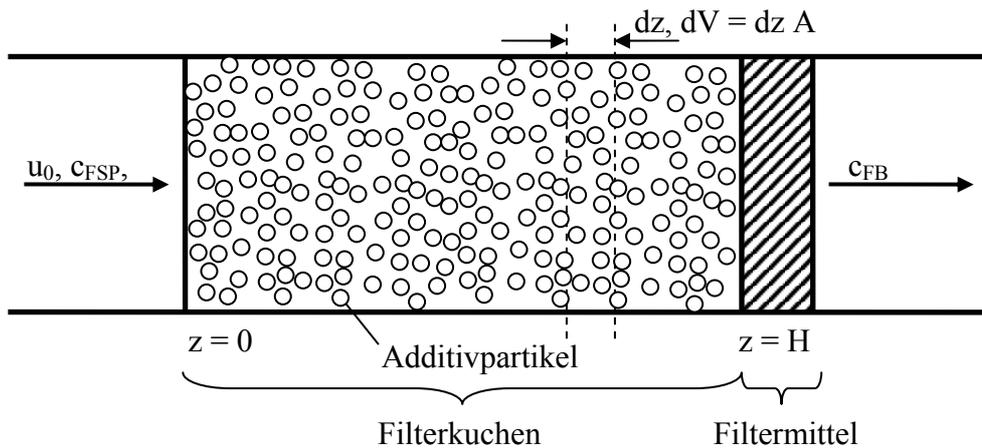


Abbildung 3.4: Filterkuchen als durchströmter Festbettreaktor

Die Bilanzgleichung für die gasförmige Schadgaskomponente mit der Konzentration c_G in dem Hohlräumvolumen ($\varepsilon_S dV$) wird für ein differentielles Volumenelement dV formuliert.

$$\frac{\partial}{\partial t}(c_G \cdot \varepsilon_S \cdot dV) = (\dot{n}_{G,Ein} - \dot{n}_{G,Aus})_{Konvektion} + (\dot{n}_{G,Ein} - \dot{n}_{G,Aus})_{Dispersion} - c_{Par} \dot{n}_{ad} \cdot dV \quad (3.53)$$

Die durch die Querschnittsflächen ein- und austretenden, konvektiven Stoffströme lassen sich mit der Leerrohrgeschwindigkeit u_0 aus der Gleichung

$$(\dot{n}_{G,Ein} - \dot{n}_{G,Aus})_{Konvektion} = -u_0 A dz \frac{\partial}{\partial z} c_G \quad (3.54)$$

berechnen.

Für den Stofftransport über die Bilanzgrenzen infolge axialer Dispersion gilt

$$(\dot{n}_{G,Ein} - \dot{n}_{G,Aus})_{Dispersion} = D_{ax} \varepsilon_S A dz \frac{\partial^2}{\partial z^2} c_G \quad (3.55)$$

Der Stoffstrom, der in dem Volumenelement dV durch Adsorption entfernt wird, kann mit Hilfe der Gleichung (3.12) für die Abscheidung an einem Einzelpartikel \dot{n}_{ad} und der Anzahlkonzentration der Partikeln c_{Par} berechnet werden. Die Anzahlkonzentration in der Filterschicht

$$c_{Par} = \frac{1 - \varepsilon_S}{\frac{\pi}{6} d^3} \quad (3.56)$$

wird durch die Porosität der Schüttung ε_S und den Partikeldurchmesser d ausgedrückt.

Zusammengefasst kann obige Bilanzgleichung für die gasförmige Schadgaskomponente im instationären Fall somit auf die Form

$$\varepsilon_S \frac{\partial c_G}{\partial t} = -u_0 \frac{\partial c_G}{\partial z} + D_{ax} \varepsilon_S \frac{\partial^2 c_G}{\partial z^2} - c_{Par} \dot{n}_{ad} \quad (3.57)$$

gebracht werden.

Die Bilanz für die adsorbierte Schadstoffkomponente lautet

$$\frac{\partial}{\partial t} n_{ad} = \dot{n}_{ad} - \dot{n}_r \quad (3.58)$$

und für die umgesetzte Stoffmenge

$$\frac{\partial}{\partial t} n_r = \dot{n}_r \quad (3.59)$$

Die Randbedingungen, mit denen diese Differentialgleichungen gelöst werden, richten sich nach den Versuchsbedingungen, die durch die Modellrechnung abgebildet werden sollen. Für den Fall einer Filterschicht, die schadgasfrei anfiltriert wird und anschließend ab dem Zeitpunkt $t = 0$ mit einem schadgashaltigen Gas durchströmt wird, gelten die folgenden Randbedingungen.

Zum Zeitpunkt $t = 0$ ist

$$c_G(t = 0; z) = 0 \quad (3.60)$$

d.h. der Filterkuchen besteht aus frischen unbeladenen Additivpartikeln, so dass

$$n_{ad}(t = 0; z) = 0 \text{ und } n_r(t = 0; z) = 0 \quad (3.61)$$

gilt.

Ab dem Zeitpunkt $t = 0$ herrscht die Rohgaskonzentration mit dem Wert

$$c_G(t > 0; z = 0) = c_{FSP} \quad (3.62)$$

Ferner wird angenommen, dass über die Begrenzungsflächen des Festbettes ($z = 0$ und $z = H$) keine Dispersion der gasförmigen Komponente erfolgt, was durch die Bedingung

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} c_G \right)_{z=0} = \left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} c_G \right)_{z=H} = 0 \quad (3.63)$$

erfüllt wird.

Die unter diesen Bedingungen als Funktion der Zeit berechneten Reingaskonzentrationen werden als Durchbruchkurven bezeichnet. Die Reingaskonzentration nimmt zum Zeitpunkt $t = 0$ den Wert Null an und nähert sich im weiteren Verlauf asymptotisch dem Maximalwert c_{FSP} .

3.2.4 Schadgasabscheidung in anwachsenden Filterschichten

Wie im Kapitel 3.1 erläutert, unterliegen Filterschichten in Schlauchfilteranlagen ständig wechselnden Bedingungen. Zum einen wird der Staubkuchen bis zur Regeneration des Filtermittels kontinuierlich aufgebaut. Zum anderen werden bei der Regeneration nur einzelne Filterelemente von dem Staubkuchen befreit. Eine frisch regenerierte Filterfläche weist im Vergleich zu der übrigen Fläche einen deutlich geringeren Strömungswiderstand auf, wodurch die Filtrationsgeschwindigkeit lokal stark erhöht wird. Im Unterschied zum vorherigen Kapitel muss daher insbesondere die zeitliche Änderung der Schichtdicke H bei der Schadgasabscheidung in Schlauchfilteranlagen berücksichtigt werden.

Für diesen Fall wird nachfolgend ein neuer Modellansatz eingeführt. Die Differentialgleichungen zur Berechnung des zeitlich veränderlichen Konzentrationsprofils in anwachsenden Filterschichten und damit auch der Reingaskonzentration hinter Schlauchfilteranlagen werden wie im vorherigen Kapitel 3.2.3 aus der Bilanz für ein differentielles Volumenelement abgeleitet. Der gesamte Filterkuchen sei in einzelne Volumenelemente unterteilt. Die Volumenelemente sollen folgende Kriterien erfüllen:

- Alle Volumenelemente habe die gleiche Dicke dz ,
- die Anzahl der Volumenelemente zwischen $z = 0$ und $z = H$ bleibt konstant. Es kommen während des Kuchenaufbaus keine weiteren hinzu.

Diese Forderungen werden erfüllt, wenn eine Verschiebung der Bilanzgrenzen entlang der Filterschicht zugelassen wird. Die beweglichen Bilanzgrenzen haben bei der

Bilanzierung eines Volumenelementes dV zusätzliche konvektive Stoffströme zur Folge. Um diese angeben zu können, muss die Geschwindigkeit, mit der sich die Bilanzgrenzen relativ zum Feststoff bewegen, bekannt sein. Zur Veranschaulichung ist in Abbildung 3.5 die Filterschicht zu zwei verschiedenen Zeitpunkten (t und $t+dt$) dargestellt.

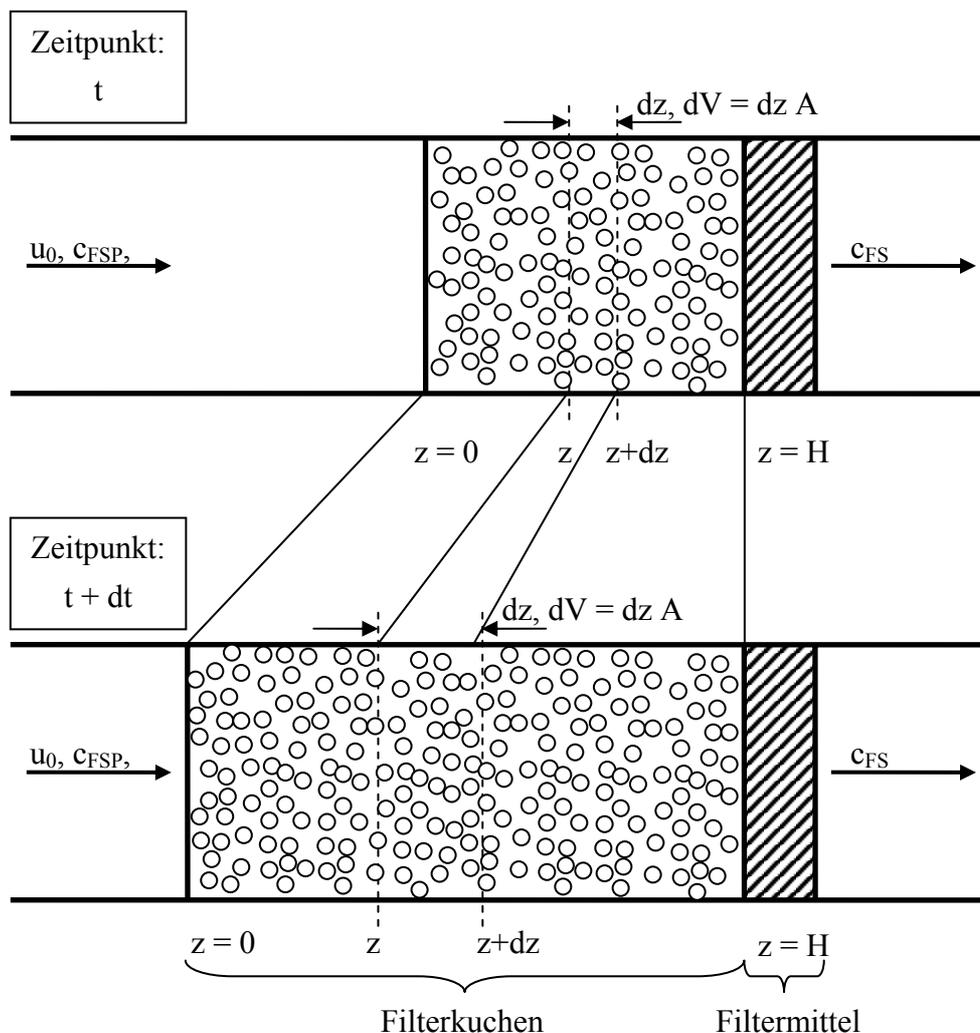


Abbildung 3.5: Schematische Darstellung des anwachsenden Filterkuchens zum Zeitpunkt t und zu einem späteren Zeitpunkt $t + dt$

Anhand dieser Abbildung kann die Geschwindigkeit u_G der örtlichen Verlagerung der Bilanzgrenze angegeben werden. An der Stelle $z = 0$ entspricht u_G gerade der Wachstumsgeschwindigkeit des Filterkuchens (dH/dt). An der Kontaktgrenze von Filterkuchen und Filtermittel ($z = H$) bewegt sich die rechte Bilanzgrenze nicht, an dieser Stelle gilt $u_G = 0$. Da alle Volumenelemente stets die gleiche Dicke dz aufweisen,

ergibt sich für u_G zwischen den Punkten $z = 0$ und $z = H$ ein linearer Verlauf, der durch den Ausdruck

$$u_G = \left(1 - \frac{z}{H}\right) \frac{\partial H}{\partial t} \quad (3.64)$$

erfasst wird.

Nachfolgend wird die allgemeine Bilanz der gasförmigen Schadstoffkomponente, bestehend aus dem Speicherterm, den Termen für den Stofftransport infolge von Konvektion und axialer Dispersion und dem Term zur Berücksichtigung der Schadgasabscheidung in dem Volumenelement dV , hergeleitet.

Für den Speicherterm gilt

$$\frac{\partial}{\partial t}(c_G \cdot \varepsilon_S \cdot dV) = \varepsilon_S A \frac{\partial}{\partial t}(c_G \cdot dz) = \varepsilon_S A \left(dz \frac{\partial}{\partial t}(c_G) + c_G \frac{\partial}{\partial t}(dz) \right) \quad (3.65)$$

und mit der zeitlichen Änderung der Dicke eines Volumenelementes

$$\frac{\partial}{\partial t}(dz) = \frac{dz}{H} \frac{\partial}{\partial t}(H) \quad (3.66)$$

ergibt sich Gleichung (3.65) zu

$$\frac{\partial}{\partial t}(c_G \cdot \varepsilon_S \cdot dV) = \varepsilon_S dV \frac{\partial}{\partial t}(c_G) + \varepsilon_S c_G dV \frac{1}{H} \frac{\partial}{\partial t}(H) \quad (3.67)$$

Die Bilanz der konvektiven Stoffströme lautet unter Berücksichtigung der Relativgeschwindigkeit der Bilanzgrenzen u_G nach Gleichung (3.64):

$$\left(\dot{n}_{G, Ein} - \dot{n}_{G, Aus} \right)_{Konvek.} = \left(u_0 A + u_G|_z \cdot \varepsilon_S A \right) c_G|_z - \left(u_0 A + u_G|_{z+dz} \cdot \varepsilon_S A \right) c_G|_{z+dz} \quad (3.68)$$

Nach *Taylor* wird hieraus:

$$\begin{aligned} (\dot{n}_{G, \text{Ein}} - \dot{n}_{G, \text{Aus}})_{\text{Konvektion}} &= (u_0 A + u_G|_z \cdot \varepsilon_S A) c_G|_z \\ &\quad - \left(u_0 A + \left(u_G|_z + dz \frac{\partial}{\partial z} u_G|_z \right) \cdot \varepsilon_S A \right) \cdot \left(c_G|_z + dz \frac{\partial}{\partial z} c_G|_z \right), \end{aligned} \quad (3.69)$$

durch Ausmultiplizieren und Streichen des Terms zweiter Ordnung vereinfacht sich dieser Ausdruck zu

$$(\dot{n}_{G, \text{Ein}} - \dot{n}_{G, \text{Aus}})_{\text{Konvektion}} = -\varepsilon_S c_G dV \frac{\partial}{\partial z} u_G + (u_0 + \varepsilon_S u_G) dV \frac{\partial}{\partial z} c_G. \quad (3.70)$$

Mit Gleichung (3.71)

$$\frac{\partial}{\partial z} u_G = -\frac{1}{H} \frac{\partial}{\partial t} (H) \quad (3.71)$$

folgt somit für den konvektiven Stofftransport

$$(\dot{n}_{G, \text{Ein}} - \dot{n}_{G, \text{Aus}})_{\text{Konvektion}} = \varepsilon_S c_G dV \frac{1}{H} \frac{\partial}{\partial t} (H) + (u_0 + \varepsilon_S u_G) dV \frac{\partial}{\partial z} c_G. \quad (3.72)$$

Die Bilanz des Stofftransportes durch axiale Dispersion und der Term zur Berechnung der Schadgasabscheidung im Volumenelement bleiben gegenüber den Betrachtungen zur Schadgasabscheidung in Filterkuchen mit konstanter Schichtdicke (Festbettreaktor) unverändert. Die Gesamtbilanz der gasförmigen Schadgaskomponente ergibt sich letztendlich zu

$$\varepsilon_S \frac{\partial c_G}{\partial t} = -u_0 \frac{\partial c_G}{\partial z} - \varepsilon_S u_G \frac{\partial c_G}{\partial z} + D_{ax} \varepsilon_S \frac{\partial^2 c_G}{\partial z^2} - c_{Par} \dot{n}_{ad}. \quad (3.73)$$

Diese Gleichung unterscheidet sich von Gleichung (3.57), die sich auf den Festbettreaktor bezieht, lediglich durch einen weiteren konvektiven Term, der die Relativgeschwindigkeit u_G zwischen den differentiellen Bilanzgrenzen und der Feststoffschicht berücksichtigt. Die hier formulierten Differentialgleichungen werden numerisch gelöst. Hierbei gehen die differentiellen Volumenelemente in diskrete Volumina über. Das numerische Gitter wird entsprechend der Schichtdickenzunahme gestreckt. Dadurch kommt es zu einer Verschiebung der Gitterpunkte über der Schicht. Deshalb soll der zusätzliche konvektive Term nachfolgend als „Gitterkonvektion“ bezeichnet werden.

Die Gitterkonvektion findet auch Berücksichtigung in der Bilanz der adsorbierten Stoffmenge

$$\frac{\partial}{\partial t} n_{ad} = -u_G \frac{\partial}{\partial z} n_{ad} + \dot{n}_{ad} - \dot{n}_r \quad (3.74)$$

und der umgesetzten Stoffmenge

$$\frac{\partial}{\partial t} n_r = -u_G \frac{\partial}{\partial z} n_r + \dot{n}_r \quad (3.75)$$

Zur Lösung dieser Differentialgleichungen müssen die Anfangs- und Randbedingungen festgelegt werden. Diese richten sich wiederum nach der Fahrweise der Filteranlage, die durch die Modellrechnung abgebildet werden soll. Für den Fall, dass der anwachsenden Filterschicht (FS) eine Flugstromphase (FSP) vorgeschaltet ist, in der bereits ein Teil des Schadgases auf den Adsorbenspartikeln gebunden wird, gelten folgende Randbedingungen bezüglich der Konzentration bzw. der auf einem Partikel gebundenen Stoffmenge:

$$(c_G(x = L))_{FSP} = (c_G(z = 0))_{FS} \quad (3.76)$$

$$(n_{ad}(x = L))_{FSP} = (n_{ad}(z = 0))_{FS} \quad (3.77)$$

$$(n_r(x = L))_{FSP} = (n_r(z = 0))_{FS} \quad (3.78)$$

Zum Zeitpunkt des Anfahrens des Filters ($t = 0$) nimmt die Höhe H des Filterkuchens den Wert Null an. Diese Anfangsbedingungen bereitet jedoch bei der Lösung des Differentialgleichungssystems numerische Probleme, da in Gleichung (3.64) durch H dividiert wird und für $H = 0$ die Relativgeschwindigkeit u_G zwischen den Bilanzgrenzen und dem Feststoff nicht berechnet werden kann. Aus diesem Grund wurde für $t = 0$ bereits eine sehr dünne Kuchenschicht H entsprechend 10^{-5} Partikeldurchmessern angenommen.

4 Experimentelle Grundlagen

In diesem Kapitel werden zunächst der Aufbau und die Funktionsweise der Technikumfilteranlage dargestellt, an der die Rauchgasreinigungsversuche durchgeführt wurden.

4.1 Aufbau und Funktionsweise der Versuchsanlage

Der Aufbau der Anlage ist schematisch in Abbildung 4.1 dargestellt. Die wesentlichen Komponenten der Anlage sind das Reaktionsrohr und das Filter. Zur Peripherie gehören verschiedene Mess- und Regelsysteme sowie Förder- und Dosierorgane.

Bevor der Luftstrom in das Reaktionsrohr bzw. in die Filterkammer gelangt, wird er im Lufterhitzer auf die gewünschte Temperatur erwärmt und auf einer etwa vier Meter langen Rohrstrecke mit SO_2 , HCl und Wasserdampf vermischt. In das so erhaltene Modellrauchgas kann das Additiv an verschiedenen Stellen im Reaktionsrohr zudosiert werden.

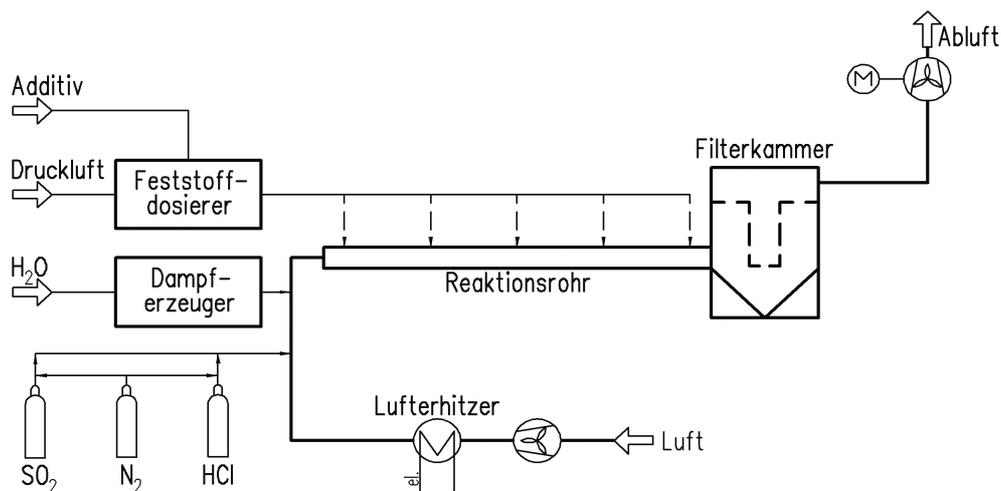


Abbildung 4.1: Aufbau der Pilotanlage

Das Rohgas tritt unterhalb der Schläuche tangential in die zylindrische Filterkammer ein und durchströmt die in den Filterboden eingehängten Schläuche von außen nach innen. Durch die sich während der Filtration aufbauende Adsorbenschicht steigt der Strömungswiderstand und damit der Differenzdruck über die Filterschläuche an. Die Abreinigung der Filterschläuche erfolgt differenzdruckgesteuert durch Druckstoßabreinigung. Der Druckluftstoß wird ausgelöst, ohne die Filtration zu unterbrechen („*online*“-Abreinigung). Das gereinigte Modellrauchgas wird über einen Ventilator

abgesaugt und ins Freie geleitet. Die Steuerung und Regelung wesentlicher Parameter der Versuchsanlage übernimmt weitgehend eine speicherprogrammierbare Steuerung (SPS). Im Folgenden wird die Funktionsweise einzelner Elemente genauer erläutert.

4.1.1 Schadgasdosierung

Die Schadgase SO_2 und HCl werden direkt nach dem Lufterhitzer in den Luftstrom eingeleitet (siehe Abbildung 4.4). Die Gasflaschen können sowohl manuell durch Absperrventile als auch durch Magnetventile geöffnet und geschlossen werden, die programmgesteuert über die SPS und bei Störungen automatisch angesteuert werden. Unmittelbar vor der eigentlichen Dosierstelle befinden sich die Massendurchflussregler [58]. Sämtliche Schadgasarmaturen und Leitungen können mit Stickstoff gespült werden.

4.1.2 Verdampfer

Vollentsalztes Wasser wird durch eine Kreiselpumpe in den Kessel gepumpt, in dem sich elektrische Heizelemente befinden, die mit einer Leistung von insgesamt 64 kW das Wasser erwärmen und verdampfen. Aus dem Verdampfer können über ein Dampfventil bis zu 86 kg/h Sattdampf mit ca. 5 bar Überdruck entnommen werden.

4.1.3 Reaktionsrohr

Mit den zuvor beschriebenen Anlagenteilen kann ein Modellrauchgasstrom mit einer Temperatur von bis zu 140 °C und unterschiedlichen Konzentrationen an SO_2 , HCl und Wasserdampf erzeugt werden. Das Additiv (Calciumhydroxid) wird im Reaktionsrohr in den Gasstrom dispergiert, so dass an dieser Stelle im Flugstrom die Reaktion mit den Schadgasen einsetzt. Das Rohr liegt waagrecht und ist insgesamt 14,4 m lang. Der Innendurchmesser beträgt 109,1 mm. Da insbesondere HCl in Verbindung mit hohen relativen Feuchten einfache Stähle stark angreift, wurde als Rohrmaterial ein nicht rostender Stahl mit einem Massenanteil Chrom von mehr als 10,5% (Werkstoffnummer: 1.4539) ausgewählt. Dieser Stahl zeichnet sich durch seine besondere Beständigkeit gegen Säuren aus [59].

Das Rohr setzt sich aus einzelnen Abschnitten zusammen, zwischen denen jeweils Zwischenstücke mit verschiedenen Mess- und Dosiervorrichtungen eingespannt werden können. Diese Zwischenstücke können an insgesamt fünf verschiedenen Stellen im Reaktionsrohr installiert werden. In einem der Zwischenstücke ist ein Dosierrohr

untergebracht, durch das die Staubpartikel in koaxialer Richtung in das Reaktionsrohr eingeblasen werden können. Andere sind mit Messstutzen zur Temperatur- und Druckmessung bzw. zur Gasprobenahme versehen. Mit Hilfe eines weiteren Zwischenstückes kann ein Staurohr zur Messung der Strömungsgeschwindigkeiten in das Reaktionsrohr eingeführt werden.

4.1.4 Staubdosierung

Der Staubdosierer besteht aus dem Vorratsbehälter mit Rührwerk, der Trägerplatte für den Behälter, dem Transportband und dem Ejektor (siehe Abbildung 4.2).

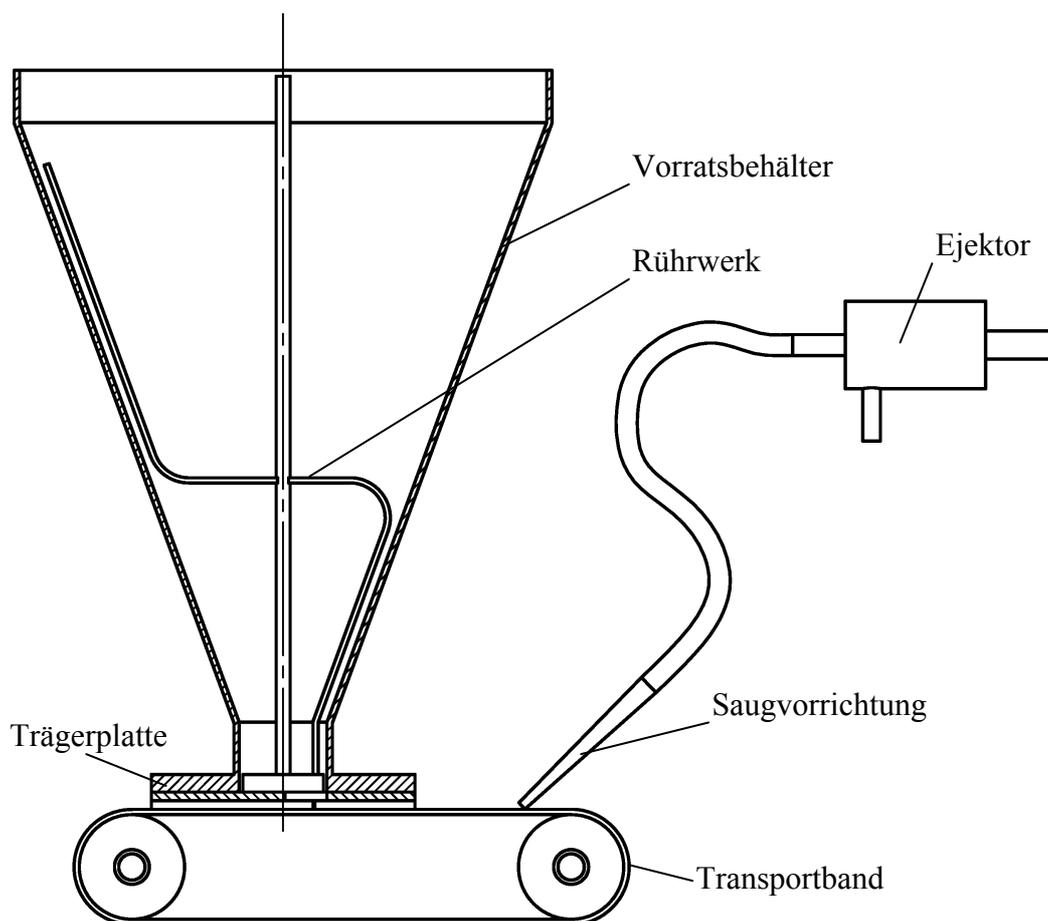


Abbildung 4.2: Prinzip des Feststoffdosierers

Der Vorratsbehälter fasst ein Volumen von 7 l, so dass ca. 2,8 kg Kalkhydrat vorgelegt werden können. Um Brückenbildung des Haufwerks im Vorratsbehälter zu vermeiden und einen gleichmäßigen Feststoffaustrag zu gewährleisten, ist der Behälter mit einem Rührwerk ausgerüstet. Am unteren Ende der Rührerachse sind sechs Blätter angebracht.

Die Rührerblätter befinden sich vor der Austrittsöffnung der Trägerplatte, durch die der Feststoff auf das Transportband gelangt.

Auf der Unterseite der Platte befindet sich parallel zur Transportrichtung des Bandes eine Nut, deren Höhe und Breite die Abmessungen der mit dem Transportband geförderten Feststoffschüttung bestimmt. Die pro Zeiteinheit dosierte Feststoffmenge hängt außerdem von der Transportgeschwindigkeit des Bandes ab. Um eine möglichst große Spannweite an einstellbaren Massenströmen abzudecken, wurden verschiedene Trägerplatten angefertigt, die sich in den Abmaßen der Austrittsöffnung und der Nut unterscheiden.

Die Masse der Trägerplatte mit Vorratsbehälter wird kontinuierlich über einen Kraftaufnehmer gemessen. Mit Hilfe der Steuerelektronik des Staubdosierers wird aus der zeitlichen Gewichtsabnahme der ausgetragene Massenstrom berechnet. Zur Regelung des Feststoffmassenstroms wird die Geschwindigkeit des Transportbandes gesteuert und so ein konstanter Feststoffmassenstrom gewährleistet.

Der Feststoff wird durch die Saugvorrichtung vom Transportband wieder abgesaugt. Der hierzu erforderliche Unterdruck wird durch einen mit Druckluft betriebenen Ejektor erzeugt. Die Partikel sind in dem Ejektor starken Scherkräften ausgesetzt, so dass vorhandene Agglomerate weitgehend aufgebrochen werden.

Die Versuchsdauer betrug zum Teil über 30 h. In dieser Zeit wurde die Versuchsanlage zumindest nachts ohne Personal betrieben. Für diese Langzeitversuche ist die im Staubdosierer bevorratete Additivmenge zu gering. Aus diesem Grund wurde der Vorratsbehälter durch eine mit Hilfe der SPS gesteuerte Dosierschnecke diskontinuierlich befüllt.

4.1.5 Filterkammer

Wie bereits in Kapitel 4.1 erwähnt, handelt es sich bei der Filterkammer um ein handelsübliches Schlauchfilter der Firma INTENSIV-FILTER. Das zuvor beschriebene Reaktionsrohr ist ohne Krümmer und Umlenkungen an den Rohgasstutzen angeschlossen. Das Modellrauchgas gelangt zunächst in den so genannten Staubgasraum, der aus dem zylindrischen Filtergehäuse und dem Staubtrichter besteht (siehe Abbildung 4.3). Der Staubgasraum wird nach oben durch den Filterboden abgeschlossen, in dem die Filterschläuche eingehängt und fixiert sind. Insgesamt befinden sich in dem Filter neun einzelne Schläuche, die im Filterboden im Quadrat

angeordnet sind. Das Gas durchströmt die Schläuche von außen nach innen. Auf der Innenseite werden diese durch jeweils einen Drahtkorb gestützt. Ohne diesen Drahtkorb würden sich die Schläuche während des Filtrationsbetriebes durch den äußeren Überdruck flach zusammenlegen. Die gesamte Filterfläche beträgt $10,4 \text{ m}^2$. Der Raum oberhalb des Filterbodens wird als Reingasraum bezeichnet. Das gereinigte Modellrauchgas wird durch den Reingasstutzen abgesaugt. Zur Revision des Reingasraumes befindet sich im Deckel der Filterkammer ein Handloch.

Das staubbeladene Rohgas durchströmt den Staubgasraum von unten nach oben, wobei die Partikel durch die im Kapitel 2.1.1 beschriebenen Mechanismen am Filtertuch abgeschieden werden. Größere Partikel können der aufsteigenden Gasströmung nicht folgen und sedimentieren im Staubtrichter und im Staubsammelbehälter ab. Der auf den Schläuchen abgeschiedene Staub wird durch Druckstöße, die durch oberhalb der

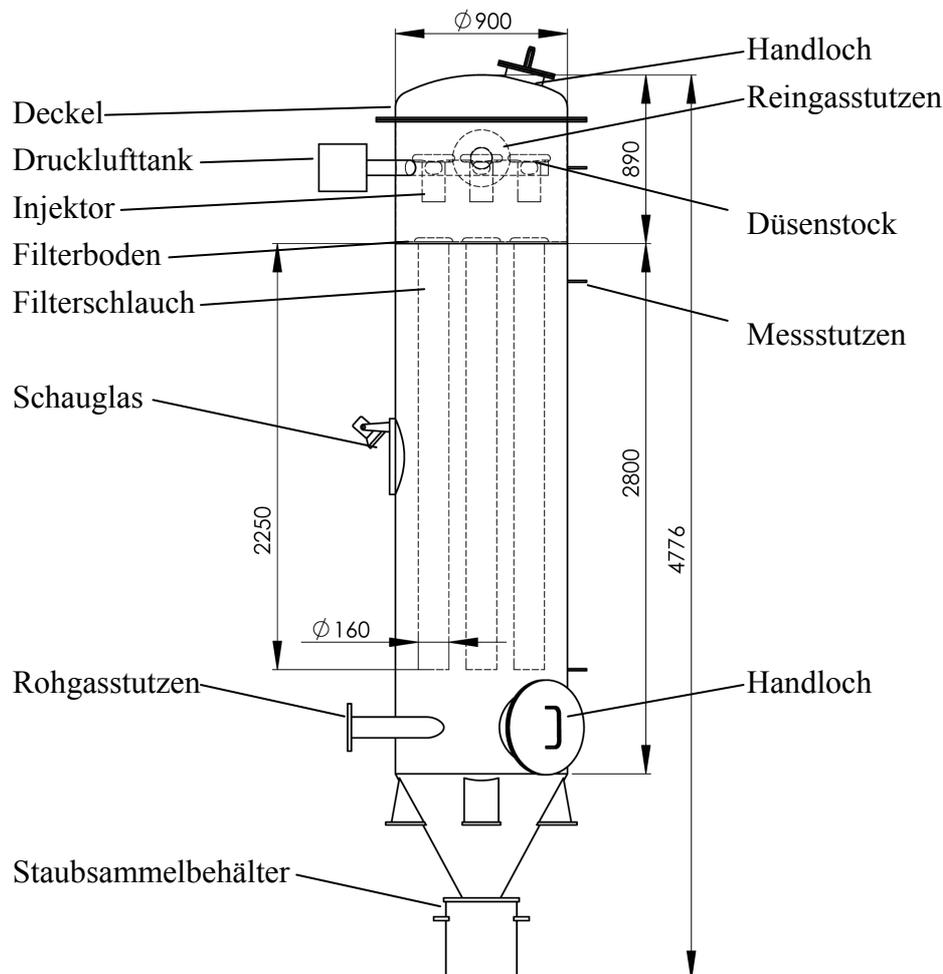


Abbildung 4.3: Aufbau des Schlauchfilters mit Druckluftabreinigung

Schläuche angeordnete Druckluftinjektoren ausgelöst werden, abgereinigt und sedimentiert entgegen der Strömungsrichtung im Rohgasraum bis in den Staubtrichter ab.

Zur Abreinigung muss der Filtrationsvorgang nicht unterbrochen werden, d.h. es wird *online* abgereinigt (siehe Kapitel 2.1.3). Die Abreinigung wird durch ein Steuergerät wahlweise in definierten Zeitabständen oder nach Erreichen eines vorgegebenen Differenzdruckes über die Filterschläuche eingeleitet. Hierzu werden am Drucktank des Abreinigungssystems Membranventile geöffnet, die für kurze Zeit (0,1 bis 0,2 Sekunden) den maximal möglichen Querschnitt in den Zuleitungen zu den Injektoren freigeben. Diese Zuleitung wird auch als Düsenstock bezeichnet. Insgesamt sind drei Düsenstöcke an den Drucktank angeschlossen. An jedem Düsenstock befinden sich wiederum drei Injektoren, so dass mit Öffnen eines Membranventils drei Schläuche gleichzeitig abgereinigt werden.

Die in der Industrie übliche Bauform des Filters wurde um einige Details erweitert, um den Filtrationsvorgang und das Betriebsverhalten besser beobachten zu können. In der Wandung des Filters sind Messstutzen eingeschweißt, durch die Drücke und Temperaturen gemessen oder Gasproben entnommen werden können. Durch ein Schauglas können die Schläuche während des Filtrations- und Abreinigungsvorganges beobachtet werden. Zur Kontrolle von Ablagerungen im Reaktionsrohr befindet sich in der direkten Verlängerung des Reaktionsrohres eine zusätzliche Revisionsöffnung, durch die bei Bedarf auch Reinigungsarbeiten durchgeführt werden können.

4.1.6 Ventilator

Das Modellrauchgas wird von einem drehzahlgeregelten Radialventilator durch die Anlage gefördert. Das Reingas wird vom Ventilator durch die Reingasleitung aus der Filterkammer angesaugt. Nach dem Ventilator gelangt das Gas durch einen Abluftkanal ins Freie. Da sich der Ventilator hinter der Filterkammer befindet, herrscht in der gesamten Anlage während des Betriebes stets ein geringer Unterdruck. Hierdurch wird gewährleistet, dass bei Leckagen in der Anlage kein Schadgas ausströmt.

4.1.7 Begleitheizung

Zum Ausgleich von Wärmeverlusten wird die gesamte Pilotanlage elektrisch beheizt. Die Heizung ist in drei einzelne Heizkreise unterteilt, die unabhängig geregelt werden. Je ein Heizkreis beheizt das Reaktionsrohr, die Filterkammer und die Reingasleitung bis

zum Ventilator. Die Temperatur der auf der Außenseite der Rohre und der Filterkammer angebrachten Heizkabel wird kontinuierlich über Proportionalregler geregelt. Alle beheizten Flächen sind mit einer 8 cm dicken Schicht aus Steinwolle isoliert.

4.2 Messtechnik und Regelungseinrichtungen

4.2.1 Steuerung und Regelung

Zur Steuerung und Regelung der Anlage wird eine in der Industrie gebräuchliche Speicherprogrammierbare Steuerung (SPS) der Firma Siemens eingesetzt (Typ S7-300). Die SPS übernimmt die wesentlichen anlagenspezifischen Prozeduren wie Anfahren und Abfahren (auch bei Störungen). Während des Versuchsbetriebes werden durch die SPS die Messwerte erfasst sowie die Versuchsparameter eingestellt und geregelt. In Abbildung 4.4 sind die zum Betrieb der Anlage erforderlichen Messstellen dargestellt.

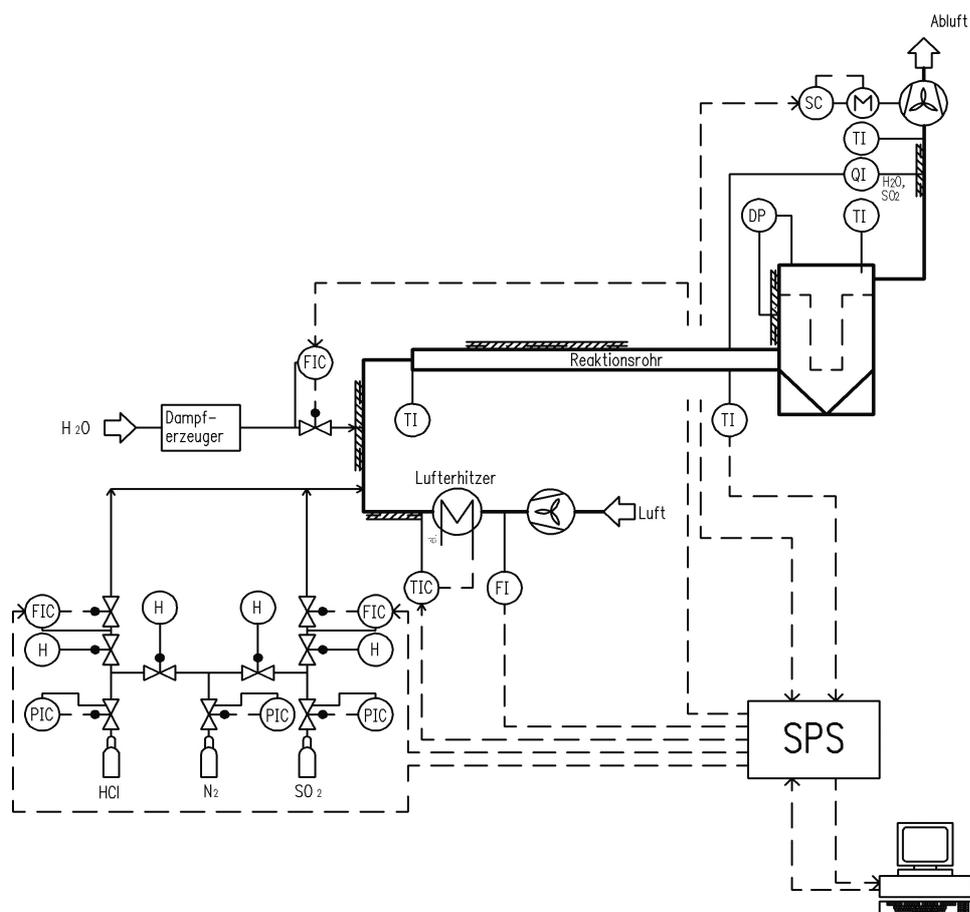


Abbildung 4.4: R&I Fließbild der Versuchsanlage

Zur Regelung des Rauchgasvolumenstroms wird der Gasdurchsatz vor dem Lufterhitzer gemessen (FI, Abbildung 4.4). Durch Vergleich des vorgegebenen Sollwertes für den Durchsatz mit dem Messwert wird durch die SPS die Drehzahl des Ventilators auf der Reingasseite der Anlage nachgeregelt. Hierdurch wird gewährleistet, dass auch bei variierendem Druckverlust infolge der periodischen Abreinigung der Filterschläuche stets ein konstanter Volumenstrom durch die Anlage geführt wird. Die Regelung der Modellgastemperatur im Reaktionsrohr und in der Filterkammer erfolgt ebenfalls mit Hilfe der SPS. Um diese Temperatur unabhängig vom Gasdurchsatz und dem Wasserdampfmassenstrom auf einem bestimmten Niveau zu halten, wird durch die SPS ein Temperatursollwert für den Regelkreis des Lufterhitzers ermittelt und die Leistung des Erhitzers entsprechend geregelt.

Die Abreinigung der Filterschläuche wird - wie zuvor beschrieben - durch ein von den übrigen Komponenten unabhängig arbeitendes Steuergerät mit Differenzdruckgeber eingeleitet.

Die zur Auswertung der Versuche erforderlichen Messwerte, wie z.B. die SO_2 -Konzentration oder der Differenzdruck über die Filterschicht, können mit Hilfe eines PCs aus der SPS gelesen und weiter verarbeitet werden.

4.2.2 Gasanalyse

Die SO_2 - und H_2O -Konzentrationen werden von einem Gasanalysesystem kontinuierlich gemessen und von der SPS aufgezeichnet. Der Gasanalysator arbeitet nach dem Prinzip der nicht-dispersiven Absorptionsspektroskopie [60]. Dieses Gerät wird intern auf $150\text{ }^\circ\text{C}$ beheizt. Daher kann auch bei hohen Feuchten kein Wasserdampf auskondensieren. Die Messgasleitungen werden auf $120\text{ }^\circ\text{C}$ und der Kopf der eingesetzten Messgaspumpe auf $200\text{ }^\circ\text{C}$ beheizt.

Die Entnahme des Messgases aus der Versuchsanlage erfolgt wahlweise auf der Reingasseite der Filterkammer und direkt nach dem Reaktionsrohr noch vor dem Filter. Die Messung vor der Filterkammer wird nur dann durchgeführt, wenn kein Staub in die Anlage dosiert wird, da sonst die Messgasleitung durch Kalkablagerungen verstopfen würde.

5 Verweilzeituntersuchungen

Das Ziel dieser Untersuchungen besteht darin, eine Aussage über die Verweilzeit des Gases und der Partikel zwischen der Dosierstelle und den Filterschläuchen zu treffen. Zur Messung der Verweilzeit des Modellgases im Reaktionsrohr und in der Filterkammer wird die Strömung mit Kohlendioxid (CO_2) markiert. Durch schnelles Öffnen eines Magnetventils in der CO_2 -Zuleitung wird dem Gasstrom annähernd ein Sprung der CO_2 -Konzentration als Eingangssignal aufgeprägt. Die Messung des Antwortsignals bzw. der zeitlichen Veränderung der CO_2 -Konzentration erfolgt kontinuierlich mit Hilfe eines Gasanalysators. Da der Tracer nur in geringen Konzentrationen dosiert wird (< 2 Vol.-%), können Veränderungen der physikalischen Eigenschaften des Fluids durch den Spurstoff vernachlässigt werden. Chemische Reaktionen oder Entmischungsvorgänge des Tracers können ebenfalls ausgeschlossen werden.

Anhand der Verweilzeitmessungen sollen Aussagen über die Kontaktzeit des Feststoffs mit den Schadgasen gewonnen werden. Daher wird das CO_2 an den Stellen in die Anlage eingeleitet, die für die Dosierung des Feststoffes in das Reaktionsrohr vorgesehen sind. Zur Aufnahme der Verweilzeitcharakteristik des Reaktionsrohres werden die Antwortfunktionen am Ausgang des Rohres bzw. unmittelbar vor dem Rohgasstutzen der Filterkammer gemessen. Die Auswertungen ergeben, dass das Verweilzeitverhalten im Rohr für die untersuchten Gasdurchsätze sehr gut mit dem Modell des idealen Strömungsrohres beschrieben werden kann. Die Verweilzeit des Gases in der Rohrstrecke beträgt für typische Durchsätze ein bis zwei Sekunden. Die mit dem Rohrdurchmesser gebildete Reynolds-Zahl liegt bei diesen Versuchen zwischen 70.000 und 115.000, so dass aufgrund der turbulenten Rohrströmung eine axiale Vermischung vernachlässigt werden kann.

Die reaktionstechnische Beschreibung der Filterkammer stellt sich im Vergleich zum Reaktionsrohr sehr viel komplexer dar. Zwar ist der Anfang der Reaktionsstrecke - Eintritt der Schadgase und der Adsorbenspartikel - durch den Rohgasstutzen festgelegt, das Ende der Gas-Feststoff-Reaktionsstrecke wird jedoch durch die jeweilige örtliche Abscheidung des Adsorbens auf dem Filtermittel definiert. Zu berücksichtigen ist daher nicht das Verhalten an einem ausgesuchten Ort, sondern exakterweise die Verweilzeitverteilung auf der gesamten Filterfläche. Folglich besteht der Anspruch darin, einen Zusammenhang zu finden, durch den die Verweilzeit des abgeschiedenen Feststoffs in der Flugstromphase innerhalb der Filterkammer an jedem Punkt der Filterfläche angeben

werden kann. Aufgrund der punktuellen Messmethode beschränken sich die Verweilzeitanalysen in dieser Untersuchung auf einige charakteristische Punkte.

5.1 Versuchsaufbau

Zur Messung der Verweilzeit im Schlauchfilter wird der Tracer vor dem Rohgasstutzen des Filters zugeben (s. Abbildung 5.1). Die Antwortsignale werden in zwei Ebenen im Rohgasraum und in den Filterschläuchen aufgenommen. Die obere Messebene befindet sich 20 cm unterhalb des Filterbodens. An dieser Stelle wird durch einen Messstutzen in der Wand der Filterkammer Messgas aus dem Rohgasraum abgesaugt und einem Gasanalysator zugeführt. Ein weiterer Stutzen befindet sich in der unteren Messebene, deren Lage mit dem unteren Ende der Filterschläuche übereinstimmt. In diesen Messebenen werden ebenfalls die Antwortsignale innerhalb der Filterschläuche aufgenommen. Hierzu wird, wie in Abbildung 5.1 dargestellt, auf der Reingasseite in den Schläuchen eine Messsonde bis zu der jeweiligen Ebene herabgelassen und fixiert.

Durch Vergleich der zeitlichen Konzentrationsänderung in diesen beiden Ebenen außerhalb und innerhalb der Filterschläuche lassen sich Erkenntnisse über die Vermischungsverhältnisse in axialer wie auch in radialer Richtung der Filterkammer gewinnen.

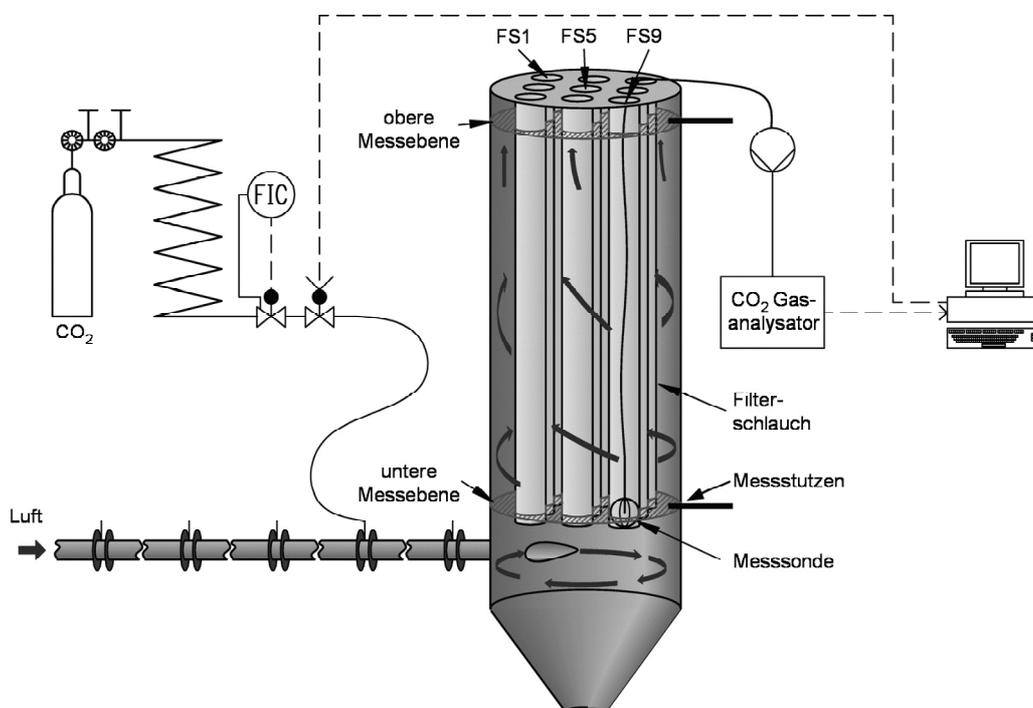


Abbildung 5.1: Versuchsaufbau zur Verweilzeitmessung

5.2 Ergebnisse der Verweilzeitmessungen

In Abbildung 5.2 sind die Antwortsignale (je zwei Wiederholungsmessungen) über der Versuchszeit aufgetragen, die innerhalb der Filterschläuche FS1, FS5 und FS9 (s. Abbildung 5.1) in der unteren Messebene aufgenommen wurden. Diese Messungen wurden bei einer Gastemperatur von 70 °C und einer mittleren Filtrationsgeschwindigkeit von 60 m³/(m² h) durchgeführt. Bei einer Filterfläche von 10,4 m² entspricht dies einem Gasvolumenstrom von 624 m³/h. Zum Vergleich mit den Antwortsignalen ist das am Rohgasstutzen gemessene Eingangssignal ebenfalls dargestellt. Dieses zeigt innerhalb der ersten Sekunden ein deutliches Überschwingen, das durch das Regelverhalten des Durchflussreglers hervorgerufen wird.

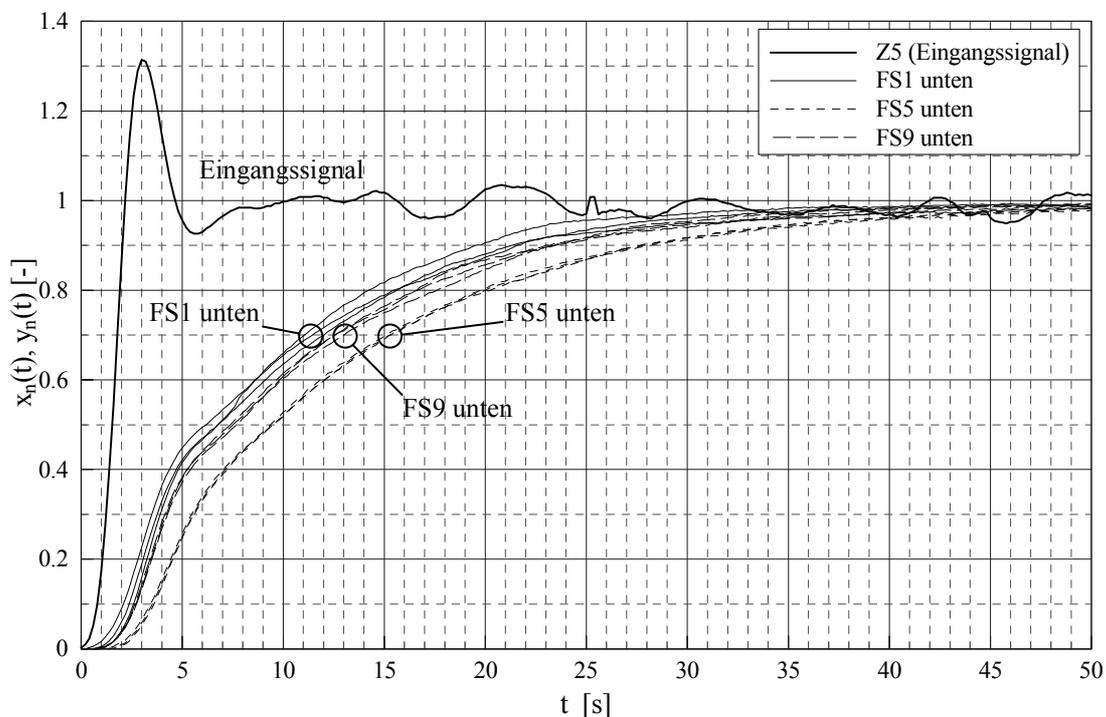


Abbildung 5.2: Eingangssignal $x_n(t)$ und Antwortsignale $y_n(t)$ innerhalb der Filterschläuche auf der unteren Messebene, mittlere Filterflächenbelastung 60 m³ / (m² h), Temperatur 70 °C

Die Abweichung des Eingangssignals vom idealen Sprungsignal wird bei der Auswertung der Messschriebe nach der im Kapitel 2.3.3 erläuterten Methode berücksichtigt. Hierzu werden die realen Eingangs- und Antwortsignale auf den stationären Endwert bezogen. Auf diese Weise werden normierte Signale $x_n(t)$ und $y_n(t)$ erhalten, die den im Kapitel 2.3.3 erläuterten Bedingungen genügen. Die mittlere

Verweilzeit kann so trotz des starken Überschwingens des Eingangssignals gemäß Gleichung (2.28)

$$\bar{t} \approx \sum_i [(x_i - y_i) \cdot \Delta t_i]$$

berechnet werden.

Die gemessenen Konzentrationsverläufe steigen im Vergleich zum Eingangssignal um eine Totzeit versetzt deutlich an. Nach dieser Zeit erfolgt der Anstieg der CO₂-Konzentration sehr viel langsamer als im Rohgasstutzen. Die in den beiden am weitesten voneinander entfernten Messstellen (FS1 und FS9) gemessenen Signale zeigen einen ähnlichen Verlauf. Die mittleren Verweilzeiten entsprechen mit $\bar{t}_{FS1} = 8,4$ s und $\bar{t}_{FS9} = 9,1$ s annähernd einander. Die Unterschiede liegen im Rahmen der Schwankungsbreite der Wiederholungsmessungen. Bei der Messung im mittleren Schlauch fällt jedoch die mit $\bar{t}_{FS5} = 11,3$ s um etwa 25 % größere Verweilzeit des Rohgases zwischen Rohgasstutzen und der Messstelle auf.

Für die Unterschiede in der Verweilzeit des Tracers bis zum Erreichen der Messstellen innerhalb einer Ebene ist die ungleiche Anströmung der äußeren und inneren Schläuche verantwortlich. Der Rohgasstutzen der Filterkammer ist tangential versetzt angebracht (s. Abbildung 5.1), so dass das Gas unterhalb der Schläuche in eine Umlaufströmung um die Filterachse gezwungen wird und somit die äußeren Schläuche etwa gleichzeitig aber deutlich früher als der innere angeströmt werden.

In Abbildung 5.3 sind Messungen dargestellt, die zum einen im mittleren Filterschlauch (FS5) und zum anderen durch Probenahme an den Messstutzen im Rohgasraum durchgeführt wurden. Die Messungen erfolgten jeweils auf der oberen und unteren Messebene.

Der Anstieg der CO₂-Konzentration wird zum frühesten Zeitpunkt an der unteren Messstelle im Rohgasraum festgestellt. Für diese Messstelle beträgt die mittlere Verweilzeit 6,2 s. An der oberen Messstelle im Rohgasraum erfolgt der Anstieg ähnlich steil, jedoch um eine angenähert konstante Totzeit von 2,7 s verzögert, so dass hier die mittlere Verweilzeit 8,9 s beträgt.

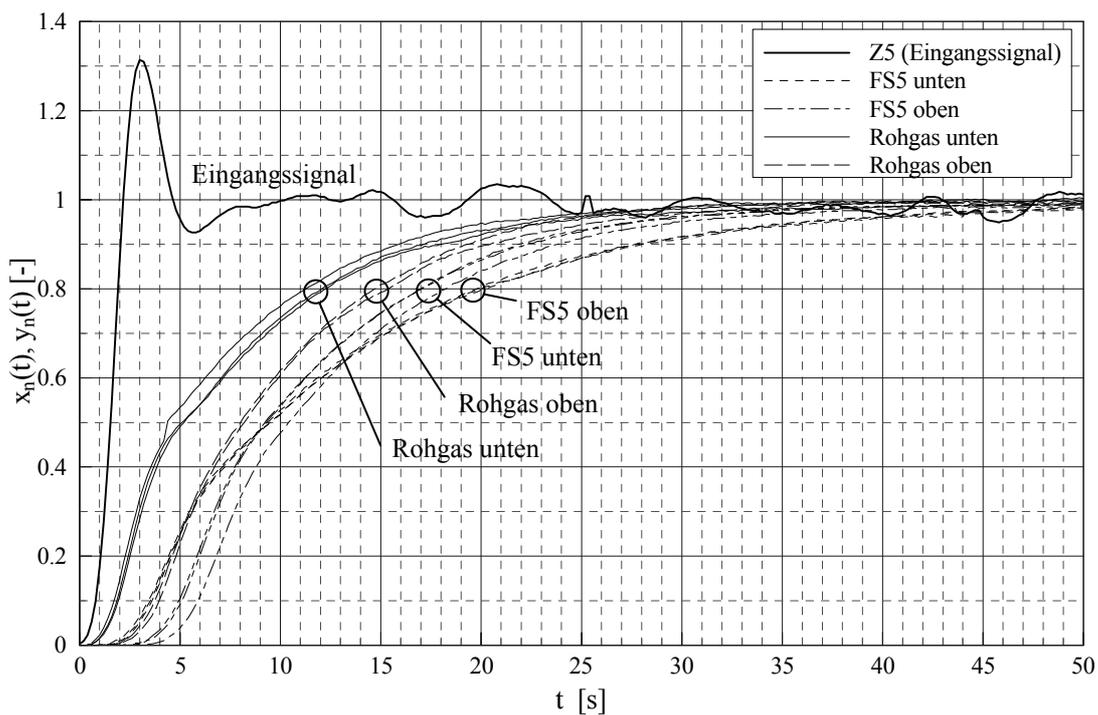


Abbildung 5.3: Eingangssignal $x_n(t)$ und Antwortsignale $y_n(t)$ innerhalb des zentralen Filterschlauchs und im Rohgasraum der Filterkammer auf der unteren und oberen Messebene

Die Konzentrationsverläufe an den beiden Messstellen in den Schläuchen unterscheiden sich nicht nur durch die Totzeit, sondern vor allem durch die unterschiedlichen Kurvensteigungen. Im unteren Teil des Schlauchs (FS5) wird die erste Konzentrationsänderung früher als im oberen Bereich festgestellt. Der Anstieg erfolgt an der unteren Messstelle insgesamt jedoch deutlich langsamer. Bei etwa der halben Konzentration des Endwertes schneiden sich sogar die Signale, so dass an der oberen Messstelle in den Schläuchen der Endwert der Konzentration früher erreicht wird. Die Verweilzeit des Gases, die zwischen Rohgasstutzen und der oberen Messstelle im Filterschlauch FS5 gemessen wird, ist mit 10,9 s nur um 1,8 s größer als am unteren Ende des Schlauches.

Die beiden im Rohgasraum gemessenen Signalverläufe können durch Verschiebung entlang der Zeitachse nahezu zur Deckung gebracht werden. Dieses deutet auf eine geringe Axialvermischung in diesem Bereich der Filterkammer hin. Die Verzögerung des oberen Signals kommt im Wesentlichen durch den konvektiven Transport in Richtung Filterboden zu Stande.

Durch den konvektiven Transport in axialer Richtung müssen auch die Signale innerhalb der Schläuche am unteren Ende früher ansteigen als in der oberen Messebene. Der deutlich flachere Verlauf des Signals in der unteren Messebene kann zum Teil durch Mischvorgänge innerhalb des Schlauchs auf der Reingasseite hervorgerufen werden. Die Absaugsonde befindet sich hierbei etwa 5 cm oberhalb des geschlossenen Blechbodens der Stützkörbe. Die Geschwindigkeit des Reingases, das an dieser Stelle an der Absaugsonde vorbeiströmt, ist verglichen zum oberen Ende der Schläuche noch sehr gering.

Auch wenn die experimentellen Verweilzeituntersuchungen nur punktuell durchgeführt werden konnten und daher nur eingeschränkte Aussagen zulassen, können die gewonnen Erkenntnisse wie folgt zusammenfasst werden:

- Das Verweilzeitverhalten im Reaktionsrohr kann gut mit dem Modell eines idealen Strömungsrohres beschrieben werden.
- Im unteren Bereich des Rohgasraumes, in dem die Strömung durch den tangential versetzten Einlauf in eine Umlaufströmung umgelenkt wird, liegen sehr unterschiedliche Geschwindigkeitskomponenten in radialer und tangentialer Richtung vor. Entsprechend ist der konvektive Transport in tangentialer Richtung durch höhere Geschwindigkeiten beschleunigt, in radialer Richtung dagegen deutlich verlangsamt.
- In der untersuchten Randzone des oberen Bereichs der Filterkammer unterliegt das Rohgas in axialer Richtung einer nur geringen Rückvermischung.

5.3 Ergebnisse der Strömungssimulation

Zur Veranschaulichung und zum qualitativen Vergleich mit den experimentell gewonnen Erkenntnissen bezüglich des Strömungsfeldes in der Filterkammer wurden Strömungssimulationen mit der Software FloWorks [61] durchgeführt. Diese Software vernetzt das dreidimensionale Strömungsmodell mit Hexaeder-Elementen. Bei diesen Rechnungen wurde ausgehend von einem relativ groben Gitter mit nur 35.000 Zellen das Netz weiter verfeinert, bis ein Einfluss der Anzahl der Zellen auf das Ergebnis nicht mehr festgestellt werden konnte. Die in Abbildung 5.4 dargestellten Schnittansichten wurden mit 293.000 Zellen berechnet.

Bei diesen Berechnungen wurden die Filterschläuche als starre Hohlzylinder mit einem porösen Zylindermantel definiert. Die untere Kreisfläche der Schläuche ist für das Gas

undurchlässig. Bei den realen Schläuchen befindet sich an dieser Stelle auf den Stützkörben eine geschlossene Blechscheibe.

In Abbildung 5.4 sind Berechnungsergebnisse für eine mittlere Filtrationsgeschwindigkeit von $60 \text{ m}^3/(\text{m}^2 \text{ h})$ in verschiedenen Schnittebenen dargestellt. Der linke Teil der Abbildung zeigt einen Schnitt durch die Filterkammer und die Filterschläuche entlang

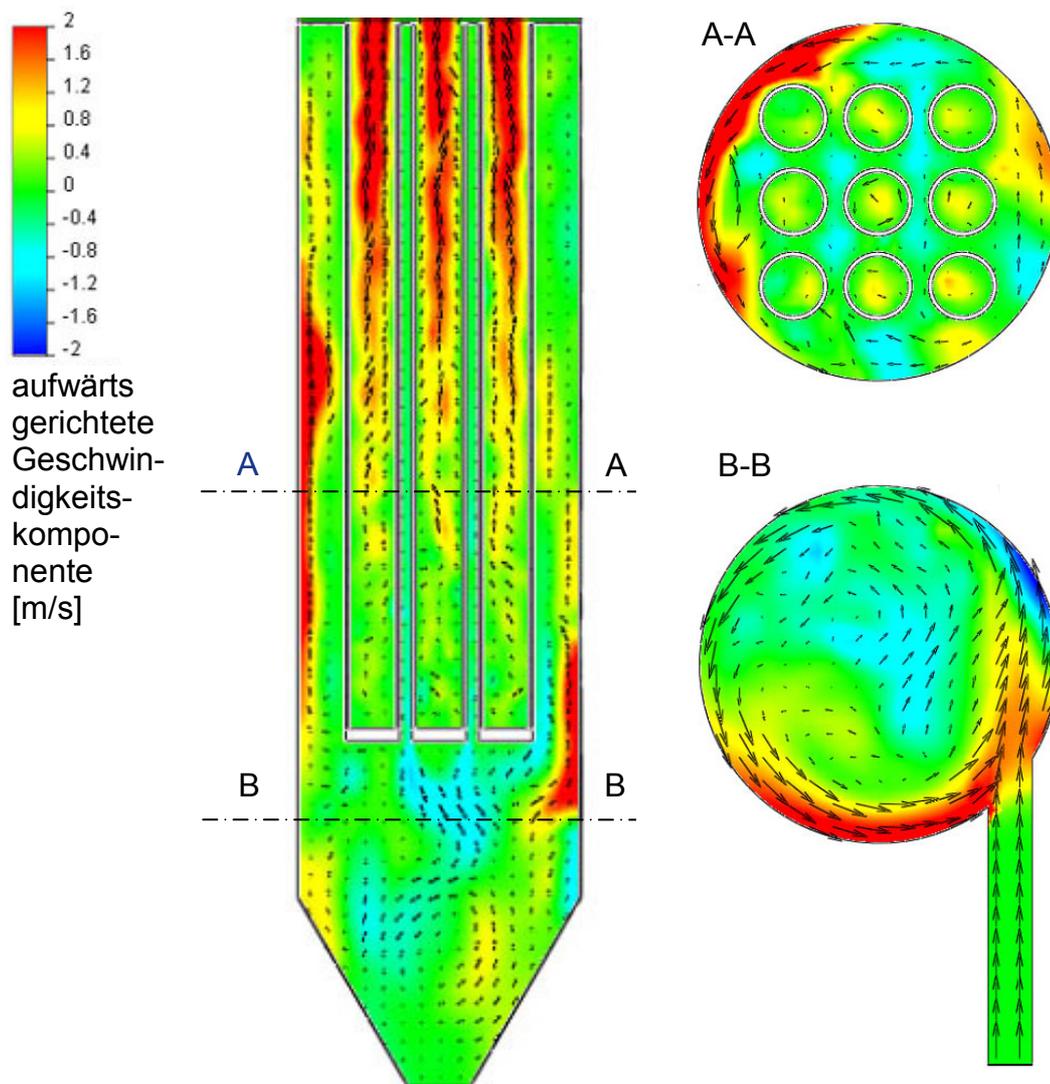


Abbildung 5.4: Schnittansichten der Filterkammer mit Geschwindigkeitsvektoren, die Färbung gibt die Größe der aufwärts gerichteten Komponente an: *links*: senkrechter Schnitt durch die Filterkammer, der Rohgasstutzen steht normal zur Papierebene; *rechts oben*: horizontaler Schnitt durch den Rohgasraum und die Filterschläuche; *rechts unten*: horizontaler Schnitt durch den Rohgasraum und Rohgasstutzen

der senkrechten Hauptachse. Der Rohgasstutzen bzw. der Gaseintritt steht senkrecht auf der Zeichenebene. Die beiden Abbildungen auf der rechten Seite zeigen waagerechte Schnitte durch die Filterkammer. In der Abbildung rechts oben (Schnitt A-A) sind die neun Filterschläuche als Kreise zu erkennen. Die untere Abbildung (Schnitt B-B) zeigt einen Schnitt durch den Rohgasraum auf der Höhe des Rohgasstutzens.

Die dargestellten Pfeile sind als in die Zeichenebene projizierte Geschwindigkeitsvektoren zu verstehen. Ihre Länge gibt daher keine Information über den Betrag der Absolutgeschwindigkeit des Gases, sondern nur über die Geschwindigkeitskomponenten, die in der Zeichenebene liegen. Durch die Färbung der Schnittflächen wird die Größe der aufwärts gerichteten, also zum Filterboden nach oben weisenden Geschwindigkeitskomponente angegeben. In rot gefärbten Gebieten strömt das Gas mit hoher Geschwindigkeit (> 2 m/s) axial nach oben. In den blau gefärbten Zonen weist die senkrechte Komponente in die entgegengesetzte Richtung nach unten.

Im Schnitt B-B ist deutlich die umlaufende Strömung infolge der tangential versetzten Gaszuführung zu erkennen. Gerade im äußeren Bereich der zylindrischen Filterkammer treten hohe Geschwindigkeiten auf. Dieser Drall setzt sich, wenn auch in abgeschwächter Form, nach oben fort (s. Schnitt A-A). In einer schraubenförmigen Zone außerhalb des Filterpakets strömt ein Großteil des Gases vom Rohgasstutzen nach oben in Richtung Filterboden. Im Innern des Schlauchpaketes in der Nähe des zentralen Filterschlauchs herrschen deutlich geringere Geschwindigkeiten. Im unteren Bereich des Schlauchpaketes sind sogar Zonen erkennbar, in denen die vertikale Geschwindigkeitskomponente des Rohgases nach unten weist. Es kommt also innerhalb des Schlauchpaketes zu einer Umkehrung der axialen Strömungsrichtung des Rohgases.

Sowohl die numerische Simulation des Strömungsfeldes als auch die zuvor dargestellten Verweilzeitmessungen weisen auf eine stark ungleichmäßige Anströmung und Umströmung der einzelnen Filterschläuche hin. In der Randzone der Filterkammer außerhalb des Schlauchpaketes herrscht eine aufwärts gerichtete Anströmung mit zum Teil hohen Geschwindigkeitsgradienten in der Nähe der Filterschläuche. Im Inneren des Paketes zwischen den Schläuchen liegen deutlich geringere Geschwindigkeiten vor. Die axiale Geschwindigkeitskomponente weist hier gerade im unteren Bereich sogar nach unten.

Auf die Umkehrung der axialen Strömungsrichtung im Innern des Schlauchpaketes wurde anhand der Verweilzeitmessungen nicht geschlossen. Dennoch ist dies eine plausible Erklärung für die deutlich größere Verweilzeit des Fluids zwischen dem

Rohgasstutzen und der Messung innerhalb des zentralen Filterschlauchs gegenüber den Messstellen in den äußeren Schläuchen. Das Tracergas wird zunächst im Randbereich der Filterkammer nach oben getragen, dringt in den Raum zwischen den Schläuchen ein und wird von dort wieder durch die Rückströmung nach unten transportiert, bevor es schließlich im unteren Ende des mittleren Filterschlauchs detektiert wird.

Die hier vorgestellte Strömungssimulation der Rohgasströmung in der Versuchsanlage stellt nicht den Schwerpunkt dieser Arbeit dar und wurde daher bewusst mit stark vereinfachenden Annahmen durchgeführt. Verschiedene Einflüsse auf das Strömungsfeld, die insbesondere den Partikeltransport und den Kuchenaufbau betreffen, werden nicht berücksichtigt. Die Rechnungen erfolgten nur einphasig, d.h. ohne Beeinflussung der Strömung durch gasgetragene Partikeln. Auch bereits abgeschiedene Partikeln werden sicherlich die Strömung im Rohgasraum beeinflussen. Inhomogene Anströmung der gesamten Filterfläche und zum Teil hohe Geschwindigkeitsgradienten in der Nähe des Filtermittels lassen einen ungleichmäßigen Kuchenaufbau vermuten. Derartige Aspekte sind Gegenstand weiterführender Untersuchungen, die am Lehrstuhl für Mechanische Verfahrenstechnik der Universität Dortmund durchgeführt werden sollen.

6 Ergebnisse der Druckverlustuntersuchungen

Wie im Kapitel 2.1.4 erläutert, wurden in vorangegangenen Arbeiten von *Naffin* und *Rzepka* die Einflüsse der Feuchte, der Temperatur, der CO_2 -, SO_2 - und der HCl-Konzentration auf den Druckverlust in durchströmten Kalkhydratschichten detailliert an einer Laboranlage untersucht. Für die CO_2 -Konzentration konnte kein signifikanter und für die SO_2 -Konzentration ein geringer Einfluss nachgewiesen werden. Eine deutlich stärkere Abhängigkeit ergab sich für die Feuchte und vor allem für die HCl-Konzentration bei verschiedenen Temperaturen. Im Folgenden werden die Ergebnisse der Druckverlustuntersuchungen an der technischen Schlauchfilteranlage vorgestellt und mit den an einer Laboranlage gewonnenen Erkenntnissen verglichen.

Anhand der folgenden Abbildung soll der typische Verlauf des Differenzdruckes zwischen Roh- und Reingasraum während eines Filtrationsversuches erläutert werden.

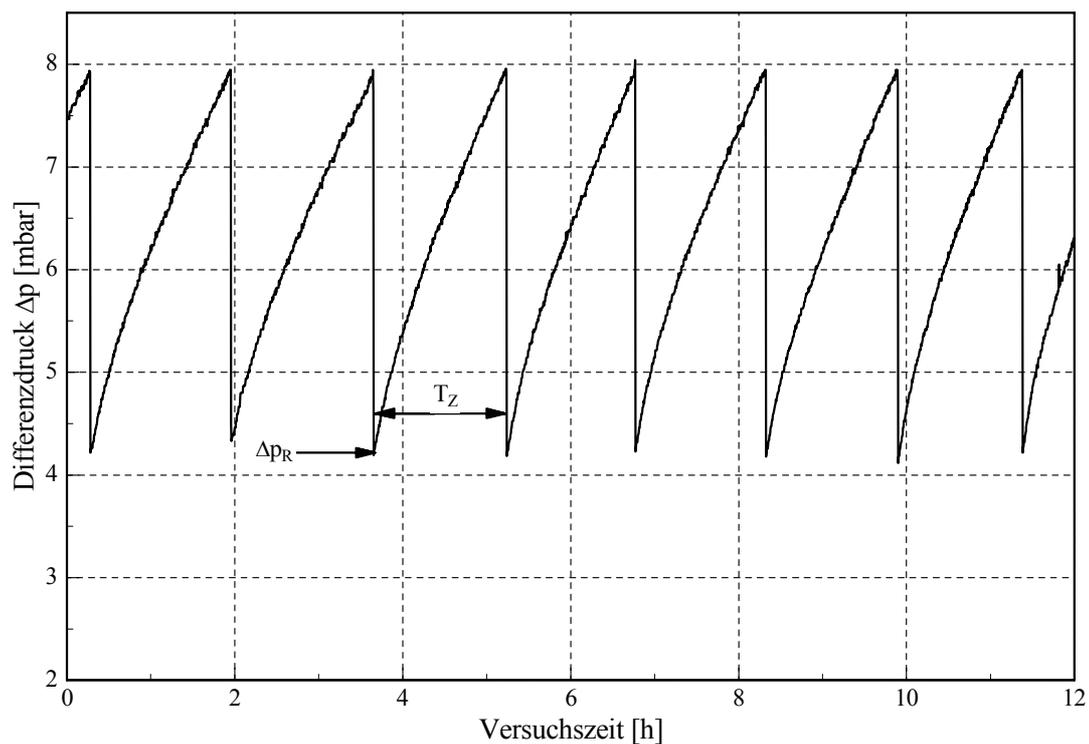


Abbildung 6.1 Beispiel für den gemessenen Verlauf des Differenzdrucks in der Schlauchfilteranlage

Während einer Filtrationsperiode steigt der Druckverlust nicht linear an. Direkt nach der Abreinigung einer Schlauchreihe nimmt der Druckverlust zunächst schnell wieder zu und flacht gegen Ende einer Periode ab. Als maximaler Differenzdruck wurde bei

diesem Versuch 8 mbar an der Abreinigungssteuerung eingestellt. Nach der Abreinigung der ersten Schlauchreihe fällt der Druckverlust sprunghaft auf ca. 4,5 mbar ab. Die charakteristischen Parameter eines solchen Druckverlaufs sind zum einen der Restdruckverlust Δp_R , der sich direkt nach einer Abreinigung einstellt und zum anderen die Zeitdauer einer Filtrationsperiode. Diese wird auch als Zykluszeit T_Z bezeichnet.

An der Technikumsanlage mit einem handelsüblichen Schlauchfilter konnte bei Temperaturen zwischen 60 °C und 140 °C und Feuchten bis ca. 20 Vol.-% kein signifikanter Einfluss der Schwefeldioxidkonzentration auf die Zykluszeit und den Restdruckverlust und damit auf den Druckverlust festgestellt werden. In der von *Naffin* und *Rzepka* verwendeten Laboranlage konnten deutlich höhere Feuchten (bis zu 45 Vol.-%) und Schwefeldioxidkonzentrationen (bis zu 750 ppm) eingestellt werden. Unter diesen extremen Bedingungen wurde eine Verringerung des spezifischen Kuchenwiderstandes um bis zu 60 % bei niedrigen Temperaturen und hohen Wasserdampf- und Schwefeldioxidkonzentrationen beobachtet [10, 11].

6.1 Einfluss der Feuchte und der Temperatur

Der Restdruckverlust Δp_R wird durch die Feuchte bei den verschiedenen Temperaturen nur gering beeinflusst. Für Feuchten oberhalb von 15 Vol.-% nimmt bei 70 °C der Restdruckverlust von 5 mbar auf ca. 4 mbar ab. Bei den Messreihen für 60 °C, 90 °C und 140 °C ist für die untersuchten Feuchten keine eindeutige Abhängigkeit erkennbar. Auf eine grafische Darstellung der einzelnen Messwerte wird daher hier verzichtet.

In Abbildung 6.2 ist die Zykluszeit in Abhängigkeit von der Feuchte bei verschiedenen Temperaturen (60 °C, 70 °C, 90 °C, 140 °C) aufgetragen.

Trotz der großen Streuung der einzelnen Werte für die Zykluszeit ist ein starker Einfluss der absoluten Feuchte insbesondere bei niedrigen Temperaturen erkennbar. Die durchgezogenen Linien zeigen die prinzipiellen Tendenzen. Für 60 °C, 70 °C und 90 °C durchlaufen die Kurven bei Feuchten von ca. 10 Vol.-% bis 15 Vol.-% ein schwach ausgeprägtes Minimum. Mit einer weiteren Erhöhung der Wasserdampfkonzentration werden die Zykluszeiten deutlich verlängert. Bei der Temperatur von 60 °C führt eine Erhöhung der Feuchte von 10 Vol.-% auf 15 Vol.-% zu einer um ca. 30 % längeren Zykluszeit. Bei 70 °C konnte sogar bei einer Feuchte von 20 Vol.-%, bezogen auf das Minimum, eine Verdopplung der Zykluszeit beobachtet werden. Bei 140 °C ist der Einfluss der absoluten Feuchte nur noch gering ausgeprägt.

Naffin und *Rzepka* stellten im Rahmen ihrer Untersuchungen eine Verringerung des Druckverlustes mit zunehmender Feuchte fest, insbesondere bei niedrigen Tempera-

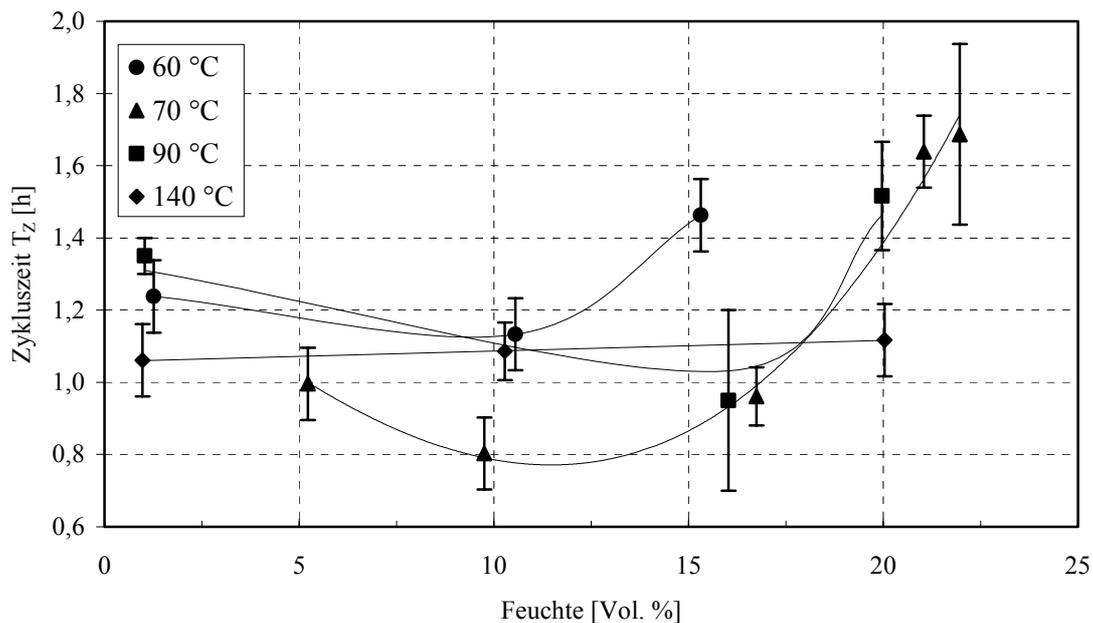


Abbildung 6.2: Abhängigkeit der Zykluszeit von der absoluten Gasfeuchte, Temperaturen 60 °C, 70 °C, 90 °C und 140 °C, SO₂-Rohgaskonzentration 250 ppm

turen. Eine Abnahme des Druckverlustes bzw. des spezifischen Kuchenwiderstandes führt in der Schlauchfilteranlage zu längeren Zykluszeiten. Die Beobachtungen zum Einfluss von Temperatur und Feuchte auf den Druckverlust in der Laboranlage bzw. auf die Zykluszeit in der technischen Schlauchfilteranlage stimmen zumindest tendenziell überein. Eine Zunahme des Druckverlustes für Feuchten zwischen 10 Vol.-% und 15 Vol.-%, durch die eine Verkürzung der Zykluszeiten in diesem Feuchtebereich erklärt werden könnte, wurde an der Laboranlage nicht festgestellt.

6.2 Einfluss von HCl

In Abbildung 6.3 ist als Beispiel der gemessene Druckverlustverlauf eines Experimentes dargestellt, bei dem die Temperatur (90 °C), die Feuchte (13 Vol.-%), der Staubmassenstrom, die SO₂-Rohgaskonzentration und die Filterflächenbelastung unverändert bleiben. Während der ersten Hälfte dieses Versuches wurden simultan SO₂ und HCl als Schadgase dosiert. Die Rohgaskonzentration betrug jeweils 250 ppm. Nach den ersten beiden Filtrationszyklen wurde lediglich die Dosierung von HCl gestoppt, was zu einer deutlichen Verkürzung der Filtrationszyklen führt. Da die Gasviskosität durch die Beimischung der Schadgaskomponenten HCl und SO₂ nur unwesentlich

beeinflusst wird, muss die Streckung der Zykluszeit in Folge der HCl-Dosierung auf eine Lockerung des Kuchengefüges zurückgeführt werden.

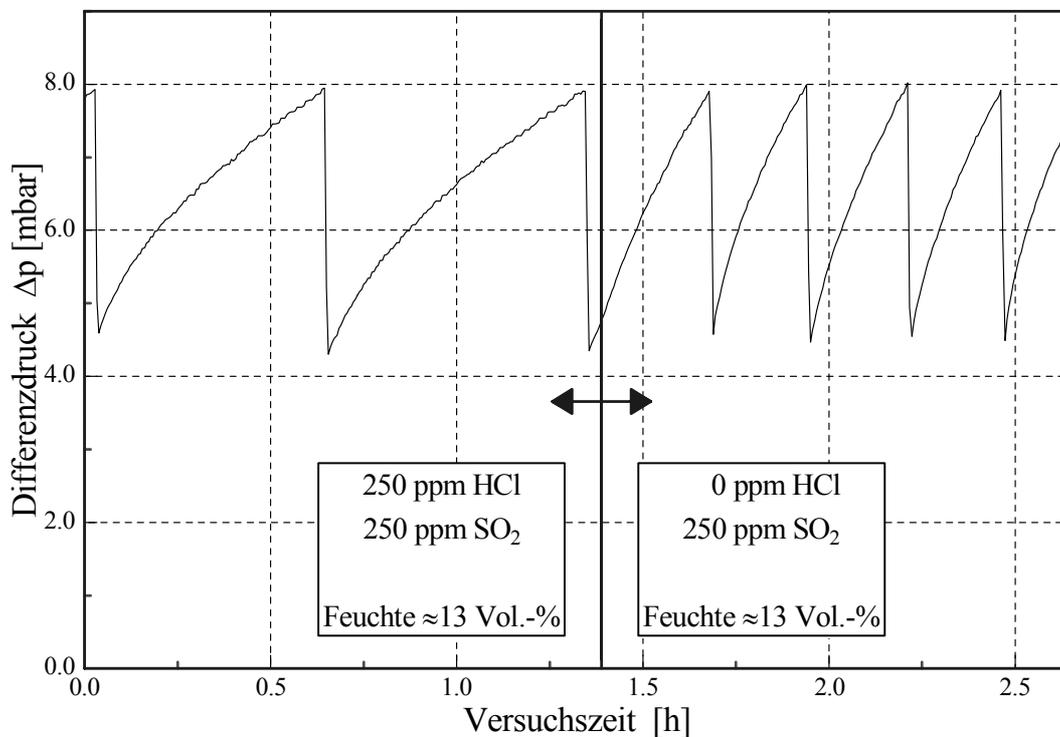


Abbildung 6.3: Beispiel eines Differenzdruckmessschriebes zur Verdeutlichung des Einflusses von HCl auf den Differenzdruckverlauf bei einer Temperatur von 90 °C

Weitere vergleichende Experimente wurden bei Temperaturen von 70°C und 90°C durchgeführt, da, wie in Kapitel 7.2 noch gezeigt wird, sich dieses Temperaturfenster bezüglich der Schadgasabscheidung als besonders effektiv und bei nicht zu hohen Feuchten als betriebssicher erwies. Die Versuche konnten auch bei Zumischung von HCl ab einer Temperatur von 70 °C ohne Betriebsstörung durch Anbackungen im Reaktionsrohr durchgeführt werden. Die Feuchte wurde bis auf 18 Vol.-% gesteigert. Die gemessenen Zykluszeiten dieser Versuchsreihen können der nachfolgenden Abbildung entnommen werden.

Die nicht ausgefüllten Symbole geben die Zykluszeiten wieder, die ohne die Gegenwart von HCl im Rohgas gemessen wurden. Wie bereits ausgeführt, kann bei konstanter Temperatur durch Anhebung der absoluten Feuchte eine Verlängerung der Zykluszeit erreicht werden. Deutlich oberhalb der Messpunkte für die HCl-freien Versuche liegen die Zykluszeiten der vergleichenden Experimente mit einer Konzentration von 250 ppm

HCl im Rohgas. Hier wird durch HCl der Einfluss der Feuchte deutlich verstärkt und die Zykluszeiten mehr als verdoppelt.

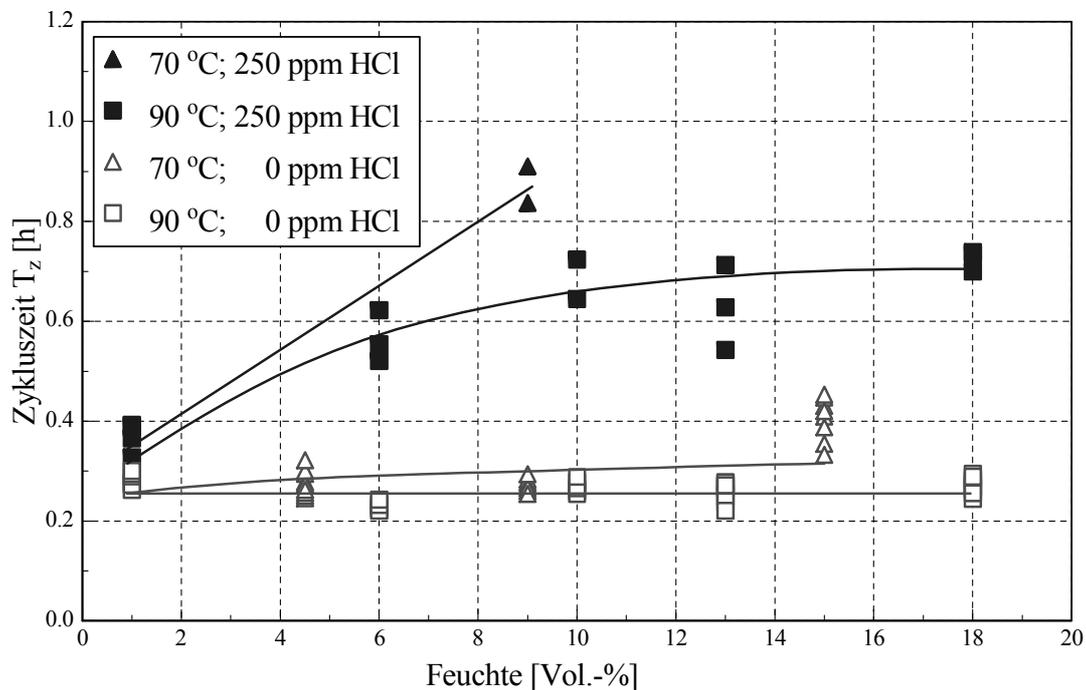


Abbildung 6.4: Abhängigkeit der Zykluszeit von Temperatur, Feuchte und HCl-Konzentration

Bei der Temperatur von 70 °C wird die Dauer einer Filtrationsperiode im Vergleich zum Experiment ohne HCl bei einer Feuchte von ca. 8 Vol.-% sogar verdreifacht. Bei dieser Temperatur führte jedoch die weitere Erhöhung der Feuchte über 10 Vol.-% zu rasch anwachsenden Anbackungen im Reaktionsrohr bzw. im Rohgaskanal, so dass ein stabiler Betrieb der Versuchsanlage nicht möglich war.

Naffin führte Untersuchungen zum Einfluss von HCl auf den Druckverlust in der von ihm verwendeten Laboranlage bei 70 °C durch. Unter Laborbedingungen konnten bei der relativ niedrigen Temperatur und in Anwesenheit von HCl Versuche bei Feuchten von bis zu ca. 18 Vol.-% durchgeführt werden. Auch die Messungen an der Laboranlage zeigten, dass HCl im Rauchgas in Gegenwart von Wasserdampf zu einer sehr starken Abnahme des Druckverlustes führt. Durch begleitende Porositätsbestimmungen konnte *Naffin* zeigen, dass die niedrigen Druckverluste mit hohen Kuchenporositäten einhergehen. Diese hochporösen und trotzdem stabilen Kuchenstrukturen werden durch die Verstärkung der Partikelwechselwirkungen bzw. durch eine Festigung der Kontaktpunkte zwischen den Partikeln durch feste Reaktionsprodukte erklärt [11].

7 Ergebnisse der SO₂-Abscheidung

7.1 Hinweise zur Auswertung

Zur Beurteilung der SO₂-Abscheidung dient der SO₂-Abscheidegrad η_{SO_2} . Er ist als das Verhältnis der SO₂-Konzentrationsdifferenz zwischen Roh- und Reingas bezogen auf die SO₂-Rohgaskonzentration

$$\eta_{SO_2} = \frac{c_{SO_2, Rohgas} - c_{SO_2, Reingas}}{c_{SO_2, Rohgas}} \quad (7.1)$$

definiert.

Die kontinuierliche Messung der Schadgaskonzentration erfolgt mit Hilfe eines Gasanalysators. Über eine flexible Messgasleitung kann an verschiedenen Stellen der Versuchsanlage ein Gasstrom abgesaugt und dem Analysator zugeführt werden. Um die Rohgaskonzentration zu messen, wird die Adsorbensdosierung unterbrochen und Messgas aus dem Reaktionsrohr zum Gasanalysator geleitet. Die Reingaskonzentration wird im Reingaskanal zwischen Filterkammer und Ventilator bestimmt. Die dort gemessene Gaszusammensetzung bleibt während des gesamten Versuches nicht konstant. In

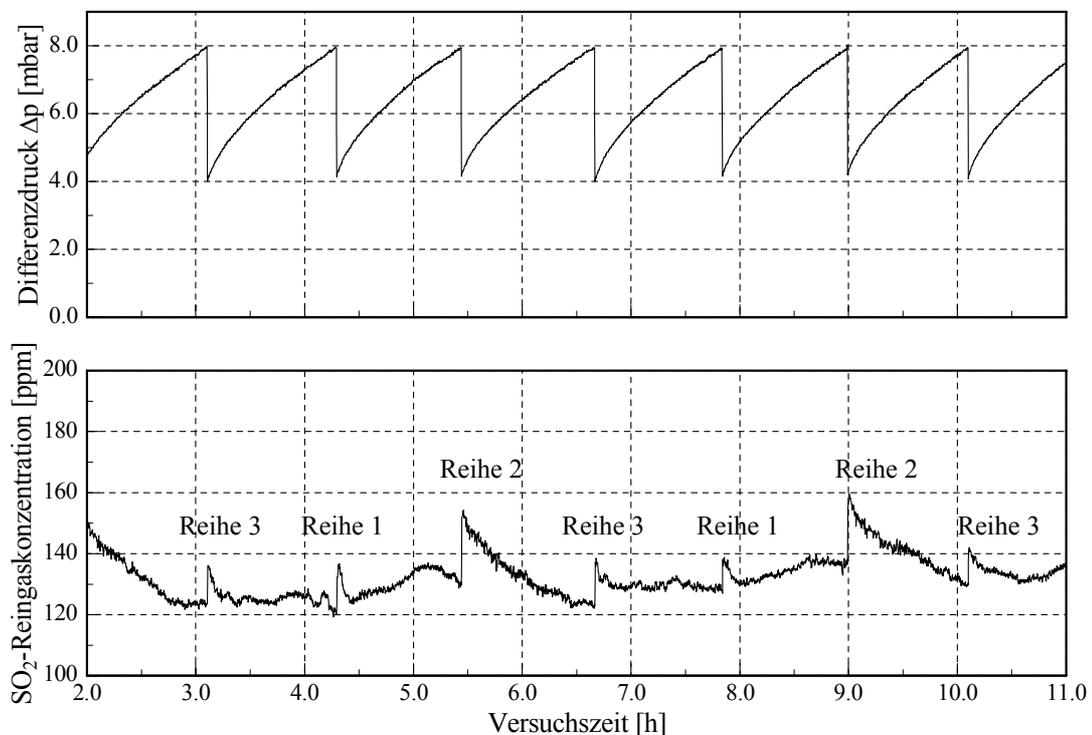


Abbildung 7.1: Veränderung des Druckverlaufs und der Schadgaskonzentration im Reingas während der Abreinigung ($c_{SO_2, Rohgas} = 250$ ppm)

Abbildung 7.1 ist der zeitliche Verlauf des Differenzdruckes und der SO₂-Reingaskonzentration während eines Versuches als Beispiel dargestellt.

Es ist deutlich zu erkennen, dass zeitgleich mit jedem Abreinigungsstoß ein sprunghafter Anstieg der Schadgaskonzentration erfolgt. Dies wird durch die Abreinigung des teilweise noch reaktionsfähigen Filterkuchens von den Schläuchen verursacht. Auf einer gerade abgereinigten Schlauchreihe wird der Kuchen erst allmählich wieder aufgebaut. Wie noch in den folgenden Kapiteln detailliert gezeigt wird, kommt als weitere Ursache für den sprunghaften Anstieg der Reingaskonzentration hinzu, dass der noch dünne Staubkuchen aufgrund des geringen Strömungswiderstandes mit einer relativ hohen Geschwindigkeit durchströmt wird. Im Verlauf der Filtrationsperiode nimmt die Schadgaskonzentration wieder ab oder stellt sich auf ein konstantes Niveau ein. Die Höhe des Anstiegs und der charakteristische Verlauf der SO₂-Konzentration während einer Filtrationsperiode wiederholen sich nach jeder dritten Abreinigung.

In dem dargestellten Messschrieb weist die SO₂-Konzentration stets nach der Abreinigung der zweiten Schlauchreihe einen besonders hohen Anstieg auf. Die zweite Schlauchreihe entspricht der mittleren Gruppe von Filterschläuchen in dem Schlauchpaket der Versuchsanlage. Im Verlauf der übrigen Filtrationsperioden bzw. bei der Abreinigung der beiden äußeren Schlauchreihen (Reihe 1 und Reihe 3) ist die Schwankung der Reingaszusammensetzung deutlich geringer. Bereits in den Kapiteln 5.2 und 5.3 wurde auf die inhomogene Umströmung des zentralen Filterschlauchs und der äußeren Filterschläuche hingewiesen, die für den charakteristischen Verlauf der Schadgaskonzentration verantwortlich gemacht werden muss.

Zur Berechnung des Abscheidegrades wird der Mittelwert der SO₂-Reingaskonzentration über mehrere Filtrationsperioden bestimmt.

7.2 Einfluss von Temperatur und Feuchte

Die Messungen wurden mit einer SO₂-Rohgaskonzentration von 250 ppm durchgeführt. Das Ca/S-Verhältnis beträgt zwei. Bei den vier eingestellten Temperaturen werden bei den Versuchen ohne Dampfzugabe annähernd ähnliche SO₂-Abscheidegrade von ca. 10 % bis 20 % erreicht. Bei diesen Experimenten entspricht der Wasserdampfgehalt des Modellrauchgases der Feuchtigkeit der angesaugten Umgebungsluft. Erst mit zunehmender Feuchte werden die Unterschiede zwischen den einzelnen Temperaturen größer. Die Abscheidung wird insbesondere bei hohen absoluten Feuchten und niedriger Rohgastemperatur verbessert. Bei einer Temperatur von 60 °C und einer Feuchte von ca. 15 Vol.-% wurde ein SO₂-Abscheidegrad von 87 % erreicht. Die relative Feuchte

beträgt unter diesen Bedingungen etwa 77 % und die Versuchstemperatur liegt nur 5 °C über der Taupunkttemperatur von 55 °C. Unter diesen Bedingungen bilden sich jedoch bereits erste Anbackungen im Reaktionsrohr, so dass ein stabiler Betrieb über eine längere Zeit nicht gewährleistet ist. Auch unter diesen extremen Bedingungen traten keinerlei Probleme bezüglich der Regeneration der Filterschläuche auf.

Durch Erhöhung der Temperatur konnten die Versuche ohne Beeinträchtigung des Prozesses durch Staubablagerungen im Reaktionsrohr oder in anderen Anlagenteilen durchgeführt werden. Bei 70 °C und Feuchten von etwa 20 Vol.-% wurden Abscheidegrade zwischen 60 % und 70 % erreicht. Hier lag die Temperatur etwa 10 °C über dem Taupunkt. Mit zunehmender Temperatur nimmt der Einfluss der Feuchte auf die Abscheideleistung ab, so dass bei 140 °C auch mit hohen Wasserdampfkonzentrationen nur Abscheidegrade von ca. 20 % erzielt werden.

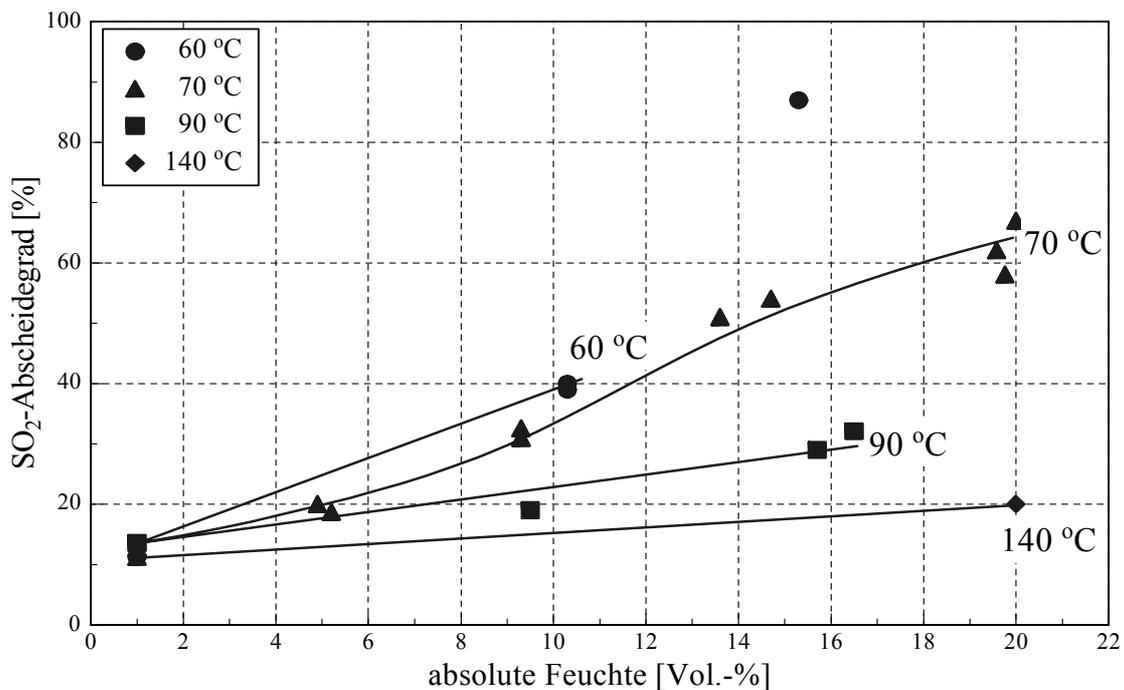


Abbildung 7.2: SO₂-Abscheidegrad in Abhängigkeit von der absoluten Feuchte und der Gastemperatur, SO₂-Rohgaskonzentration 250 ppm, Ca/S-Verhältnis ≈ 2 , mittlere Filtrationsgeschwindigkeit 60 m³ / (m² h)

Naffin hat ebenfalls in diesem Temperatur- und Feuchtebereich Versuche zur SO₂-Abscheidung in einer Laboranlage durchgeführt. Prinzipiell wurden ähnliche Abhängigkeiten festgestellt. Ein direkter Vergleich der Messdaten ist aufgrund der vollkommen

unterschiedlichen Vorgänge bei der Schadgasabscheidung im Kuchen, wie sie in den Kapiteln 3.2.3 (Schadgasabscheidung in Festbettreaktoren) und 3.2.4 (Schadgasabscheidung in anwachsenden Filterschichten) erläutert wurden, auf direktem Wege nicht möglich. Die von Naffin gefundenen kinetischen Parameter gehen jedoch in dieser Arbeit in das Modell zur Schadgasabscheidung in Schlauchfilteranlagen ein. Die Ergebnisse der Simulation werden im Kapitel 8 vorgestellt.

7.3 Einfluss des stöchiometrischen Verhältnisses von Calciumhydroxid zu Schwefeldioxid

Eine andere Möglichkeit zur Steigerung der Abscheidung ist die überstöchiometrische Dosierung des Additivs. Hierdurch wird für die Abscheidereaktion eine größere Oberfläche des reaktionsfähigen Feststoffs zur Verfügung gestellt, was zu deutlich höheren Abscheidegraden führt. Wie Abbildung 7.3 zeigt, kann insbesondere unter für die SO₂-Abscheidung sehr ungünstigen Bedingungen (s. Abbildung 7.2, geringe Feuchte und hohe Temperatur) durch die Steigerung des stöchiometrischen Verhältnisses von zwei auf vier annähernd eine Verdopplung des Abscheidegrades erreicht werden. Unter günstigeren Bedingungen, die ohnehin höhere Abscheidegrade erlauben, steigt die Abscheideleistung nur noch unterproportional mit dem stöchiometrischen Verhältnis an.

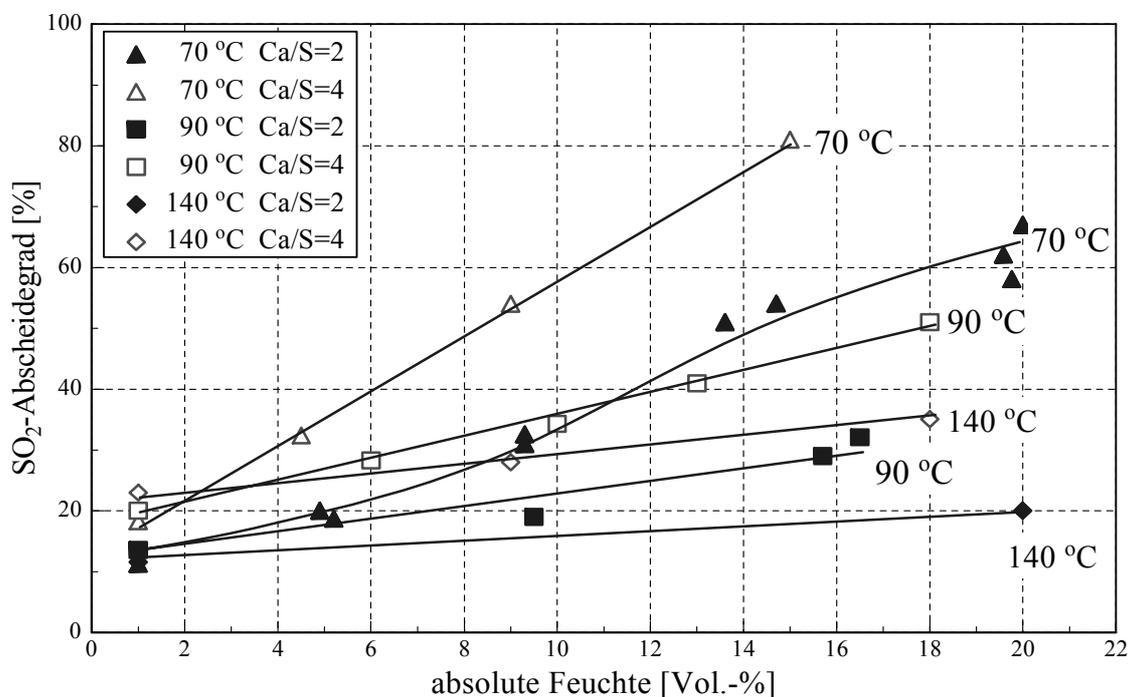


Abbildung 7.3: Abhängigkeit des SO₂-Abscheidegrades von der Feuchte und der Temperatur bei verschiedenen stöchiometrischen Verhältnissen von Ca/S = 2 und Ca/S = 4

Bei idealem Umsatz der beiden Reaktionspartner, Calciumhydroxid und Schwefeldioxid, müsste bei einem stöchiometrischen Verhältnis von eins eine vollständige Abscheidung des Schadgases möglich sein. Aufgrund von Stofftransporthemmungen in der Produktschicht, die sich während der Reaktion auf der reaktiven Oberfläche der Additivpartikel ausbildet, erfolgt kein vollständiger Umsatz. Durch die Anwesenheit von Wasserdampf im Reaktionssystem kommt es infolge der Wasserdampfsorption auf den Kalkhydratpartikeln zu einer deutlichen Verbesserung der Umsetzung.

Durch die überstöchiometrische Fahrweise von Trockensorptionsanlagen können in der Regel die geforderten Abgasgrenzwerte für SO₂ von z.B. 350 mg/Nm³(trocken) [21] eingehalten werden. Da zusammen mit dem Reaktionsprodukt eine erhöhte Menge an nicht reagiertem Additiv aus dem Prozess ausgeschleust wird, entstehen jedoch durch den Einsatz und vor allem durch Entsorgung des nur teilweise umgesetzten Additivs zusätzliche Betriebskosten. Dieses ist daher ein möglicher aber relativ teurer Weg, die geforderten Grenzwerte einzuhalten.

7.4 Einfluss der relativen Feuchte

In den vorangegangenen Abschnitten wurde gezeigt, dass insbesondere bei niedrigen Temperaturen und hohen absoluten Feuchten, also bei hohen relativen Feuchten, verbesserte Abscheideleistungen erzielt werden können. Dieses deutet darauf hin, dass die auf dem Additiv adsorbierte Wassermenge eine wesentliche Rolle spielt, die sich aber mit der Temperatur bei konstanter absoluter Feuchte verändert. Deshalb ist es nahe liegend, die Daten über der relativen Feuchte aufzutragen, da die adsorbierte Wassermenge im Wesentlichen vom Verhältnis des Wasserdampfpartialdruckes zum Sättigungsdampfdruck abhängt und daher bei konstanter relativer Feuchte unverändert bleibt. In Abbildung 7.4 ist dieser Zusammenhang dargestellt.

Mit wachsender relativer Feuchte erfolgt erwartungsgemäß bei den untersuchten Temperaturen und stöchiometrischen Verhältnissen ein starker Anstieg des Abscheidegrades. Interessant ist, dass bei dieser Art der Auftragung höhere Temperaturen zu einer gesteigerten SO₂-Abscheidung führen. Bei konstanter relativer Feuchte nimmt die Abscheideleistung mit der Temperatur zu. Dies ist darauf zurückzuführen, dass der diffusive Stofftransport durch die Produktschicht und die Reaktion bei höheren Temperaturen deutlich schneller erfolgen.

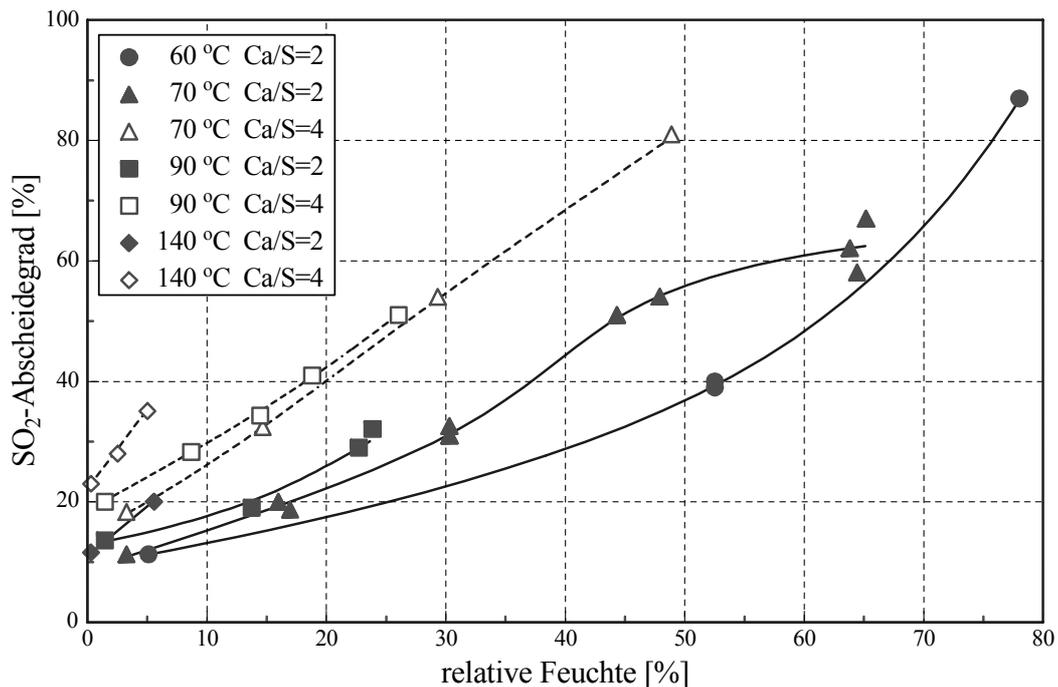


Abbildung 7.4: SO₂-Abscheidegrad in Abhängigkeit von der relativen Feuchte, der Rauchgastemperatur und dem stöchiometrischen Verhältnis

7.5 Einfluss von HCl

Als weiteres wurde der Einfluss von HCl auf die SO₂-Abscheidung untersucht, der sich bei den Voruntersuchungen von *Naffin* als gravierend herausgestellt hat. Hierbei wurde bei einer konstanten SO₂-Rohgaskonzentration von 250 ppm zunächst zusätzlich HCl mit einem Anteil von ebenfalls 250 ppm in den Modellgasstrom dosiert. Das stöchiometrische Verhältnis von Kalkhydrat zu den Schadgaskomponenten betrug ca. zwei.

In Abbildung 7.5 sind beispielhaft die aufgezeichneten Verläufe der SO₂-Reingaskonzentration der Versuche bei 90 °C mit absoluten Feuchten von ca. 1 Vol.-% und 13 Vol.-% gegenübergestellt. Um den Einfluss von HCl deutlich zu machen, wurde die Dosierung von HCl gestoppt, nachdem sich konstante Verhältnisse bezüglich der gemessenen Reingaskonzentrationen eingestellt hatten. Auf diese Weise konnten je nach Temperatur und Feuchte des Rauchgases unterschiedliche Effekte festgestellt werden.

Bei dem Versuch, dem der linke Messschrieb in Abbildung 7.5 zugeordnet ist, wurde ohne zusätzlich Zugabe von Wasserdampf durch den Dampferzeuger für etwa 1,4 h HCl zum Rauchgas gegeben. Unter diesen Bedingungen wird zunächst eine SO₂-Konzentration von ca. 175 ppm im Reingas gemessen. Nachdem die Dosierung von HCl gestoppt wird, nimmt die SO₂-Reingaskonzentration sprunghaft ab, was einer Erhöhung

des SO₂-Abscheidegrades entspricht. Bei der höheren absoluten Feuchte von 13 Vol.-%, aber unveränderter Rauchgastemperatur (rechter Messschrieb in Abbildung 7.5), wird der entgegengesetzte Effekt festgestellt. Hier führt das Fehlen von HCl als zusätzlicher Schadgaskomponente zu einem drastischen Anstieg der Reingaskwerte bzw. zu einer Verschlechterung der Abscheideleistung.

Die Ursache für diese gegenläufigen Effekte bei hohen bzw. geringen Wasserdampfkonzentrationen muss in der Hygroskopizität von Calciumchlorid, das Produkt der Abscheidereaktion von Kalkhydrat mit HCl (s. Kapitel 2.2), gesucht werden. Bei geringen Feuchten treten die Schadgase HCl und SO₂ bei der Oberflächenreaktion an den Additivpartikeln in Konkurrenz. Da HCl deutlich besser und schneller abgeschieden wird, wird Schwefeldioxid folglich verdrängt; der größere Teil der Partikeloberfläche reagiert mit HCl zu Calciumchlorid. Die SO₂-Abscheidung ist hierdurch behindert und somit die SO₂-Reingaskonzentration höher als in Abwesenheit von HCl. In Anwesenheit von größeren Mengen an Wasserdampf bindet Calciumchlorid Feuchtigkeit auf der Partikeloberfläche. Dies geschieht auch dann, wenn der Taupunkt noch nicht unterschritten ist. Diese flüssige Phase auf den Partikeln wirkt sich außerordentlich positiv auf die Reaktion von Kalkhydrat mit Schwefeldioxid aus, wodurch die SO₂-Reingaskonzentration drastisch absinkt.

In Abbildung 7.6 sind die Ergebnisse der oben beschriebenen Experimente zusammenfassend dargestellt. Die vergleichenden Untersuchungen wurden für Rohgastemperaturen von 70 °C, 90 °C und 140 °C durchgeführt. Bei den Experimenten mit und ohne HCl wird wiederum bei hohen Feuchten und niedrigen Temperaturen die effektivste

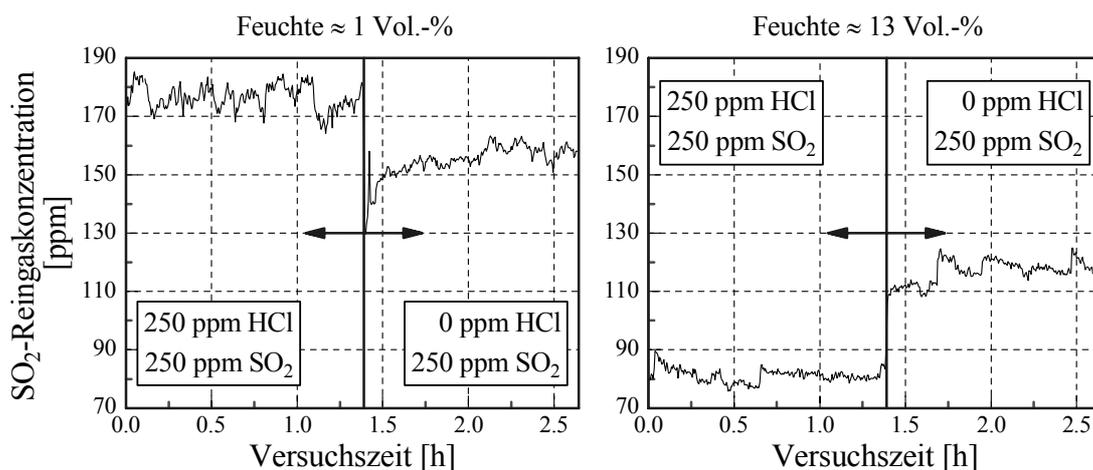


Abbildung 7.5: Einfluss von HCl als zusätzlicher Rohgaskomponente auf den SO₂-Abscheidegrad, Vergleich der Effekte bei verschiedenen Rauchgasfeuchten und einer Temperatur von 90 °C

Abscheidung festgestellt. Bei den untersuchten Temperaturen wird unter „trockenen“ Bedingungen (≤ 1 Vol.-%) - wie oben erläutert - zunächst eine Verschlechterung des SO₂-Abscheidungsgrades durch die zusätzliche Dosierung von HCl bewirkt. Mit zunehmender Feuchte im Modellrauchgas werden jedoch insbesondere die SO₂-Abscheidegrade der Versuche mit HCl deutlich verbessert. Der positive Einfluss der Feuchte wird durch die Anwesenheit von HCl, insbesondere bei niedrigen Rauchgastemperaturen, deutlich verstärkt. Bei 70 °C reichen bereits etwa 3 Vol.-% Wasserdampf aus, um den Abscheidegrad durch die zusätzliche Schadgaskomponente zu verbessern. Bei hohen Temperaturen von 140 °C geschieht dies erst ab einer Feuchte von ca. 18 Vol.-%.

Der hier dargestellte Einfluss von HCl im Rauchgas auf den SO₂-Abscheidungsgrad wurde prinzipiell auch im Rahmen der Voruntersuchungen von *Naffin* festgestellt. Ein direkter Vergleich der Messdaten ist aufgrund der verschiedenen Vorgänge bei der Schadgasabscheidung im Kuchen und beim Kuchenaufbau, wie sie in den Kapiteln 3.2.3 (Schadgasabscheidung in Festbettreaktoren) und 3.2.4 (Schadgasabscheidung in anwachsenden Filterschichten) erläutert wurden, nicht möglich.

In Gegenwart von HCl kann bei einer Temperatur von 70 °C die Feuchte nicht über ca. 10 Vol.-% gesteigert werden. Obwohl rechnerisch die relative Feuchte hier nur etwa 33 % beträgt und die Versuchstemperatur 25 °C über der Taupunkttemperatur von

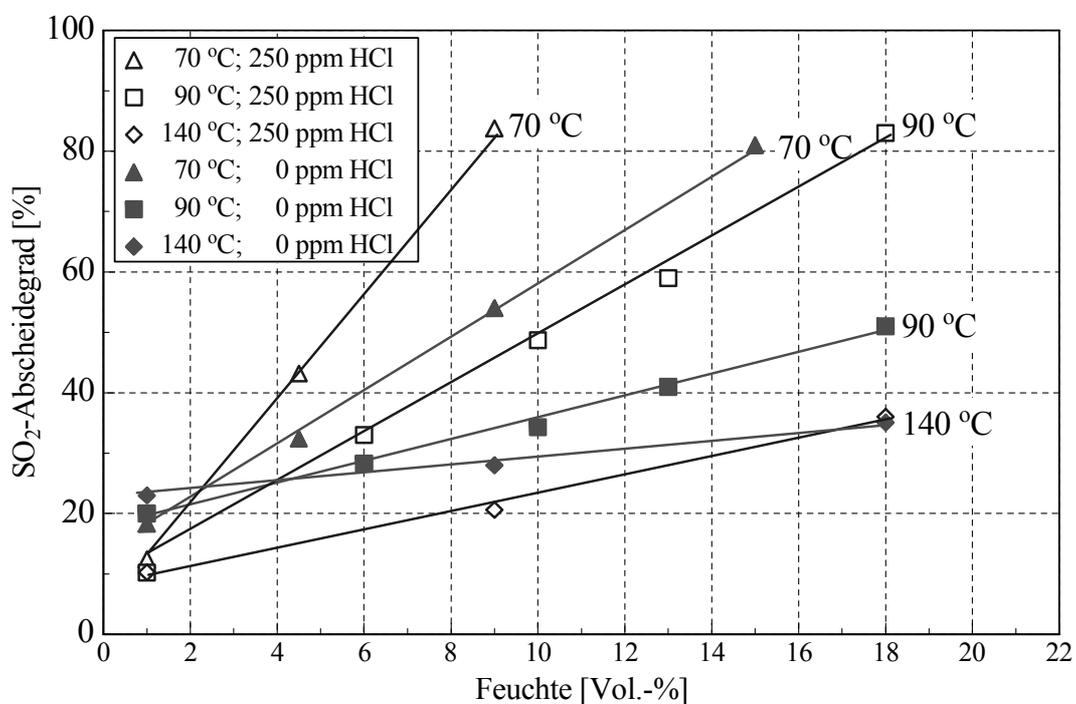


Abbildung 7.6: Einfluss von HCl als zusätzlicher Schadgaskomponente auf die SO₂-Abscheidung

45 °C liegt, bildeten sich bei höheren Feuchten innerhalb kurzer Zeit feste Ablagerungen im Reaktionsrohr. Die Filterschläuche konnten jedoch auch bei höheren Feuchten problemlos regeneriert werden. Der hygroskopische Staub ließ sich unter den untersuchten Bedingungen gut abreinigen.

7.6 Einfluss des Ortes der Additivzugabe

An der Pilotanlage wurde das Additiv an verschiedenen Orten in die Anlage dosiert, um den Einfluss der Additivzugabe und damit der Verweilzeit in der Flugstromphase auf die Schadgasabscheidung zu untersuchen. Die Kenntnis der Schadgasabscheidung in einem vorgeschalteten Reaktor und die Auswirkung dieser Vorabscheidung auf die Effektivität einer Anlage ist bei der Planung von Neuanlagen und der Modernisierung bestehender Rauchgasreinigungen von Interesse.

Bei der Versuchsanlage kann das Additiv über verschiedene Dosieröffnungen im Reaktionsrohr in das Modellrauchgas eingeblasen werden. Die Verlagerung der Staubeindüsung um 14 m von der ersten Dosieröffnung bis zur letzten Öffnung direkt vor der Filterkammer entspricht einer Veränderung der Verweilzeit des Additivs in der Flugstromphase um ca. 2 Sekunden.

Um die Anteile der Schadgasabscheidung im Reaktionsrohr und in der nachgeschalteten Filterkammer genauer zu differenzieren, wurde bei einzelnen orientierenden Untersuchungen das Messgas kontinuierlich aus dem Reaktionsrohr über ein mit Quarzwolle gefülltes Edelstahlrohr abgesaugt. Die Quarzwolle hat hierbei die Funktion eines Tiefenfilters, mit dem die Partikel abgeschieden werden, ohne einen Staubkuchen zu bilden. Das Stahlrohr wird auf ca. 300 °C erhitzt, so dass eine SO₂-Abscheidereaktion im Inneren des Tiefenfilters ausgeschlossen bzw. vernachlässigt werden kann. Die Quarzwolle musste bereits nach etwa 30 min ausgewechselt werden, um einen Durchbruch der Partikel durch das Filter zu vermeiden. Die Ergebnisse dieser orientierenden Untersuchungen zeigen, dass bis zu ca. 30 % der gesamten SO₂-Abscheidung bereits im Reaktionsrohr nach einer Verweilzeit von ca. 2 Sekunden erfolgt.

Auswirkungen auf die SO₂-Abscheidung in der gesamten Anlage durch die Verlagerung der Staubeindüsung um 14 m von der ersten Dosieröffnung bis zur letzten Öffnung direkt vor der Filterkammer konnten nicht festgestellt werden. Durch die inhomogene Anströmung der Filterfläche bzw. die breite Verweilzeitverteilung des Gases und der Partikel in der Filterkammer kann der Einfluss der Vorabscheidung im Reaktionsrohr auf der Reingasseite der Versuchsanlage offenbar nicht mehr festgestellt werden.

8 Berechnung der SO₂-Abscheidung in Schlauchfilteranlagen

In den folgenden Abschnitten wird auf die Bestimmung bzw. Festlegung der Modellparameter eingegangen. Weiterhin werden die Berechnungsergebnisse zur Schadgasabscheidung in einer Schlauchfilteranlage vorgestellt.

Die im Kapitel 3 hergeleiteten Gleichungen zur Berechnung des Differenzdruckverlaufs in Schlauchfilteranlagen, der Schadgasabscheidung am Einzelkorn, in der Flugstromphase, im Festbett und in der anwachsenden Filterschicht beinhalten verschiedene physikalische und chemische Parameter. Einige, wie z.B. die Rohgaskonzentration, werden vorgegeben oder sind durch Messungen direkt zugänglich, für andere können in der Literatur entsprechende Ansätze gefunden werden (z.B. für die axiale Dispersion der Schadgaskomponente im Additivkuchen). Insbesondere für die Parameter zur Beschreibung der Abscheidung am Einzelkorn müssen zum Teil mit Hilfe einer Parameteranpassung Werte festgelegt werden.

8.1 Direkt bestimmbare Modellparameter

Die verschiedenen Parameter, die zur Berechnung der Schadgasabscheidung am Einzelkorn und im Festbettreaktor benötigt werden, wurden der vorangegangenen Arbeit von *Naffin* [11], in der die Schadgasabscheidung in einer Laboranlage untersucht und modelliert wurde, entnommen und auf die Verhältnisse in Schlauchfilteranlagen übertragen. Dies betrifft die Kuchenporosität ε_S , die Partikelporosität ε_{Par} und das Verhältnis von Produkt- zu Eduktvolumen α (s. Kapitel 3.2.1).

Die Partikelgrößenverteilung wurde mit Hilfe eines optischen Partikelzählers (Palas, Partikelzähler und -größenanalysator PCS-2000) im Rohgas der Schlauchfilteranlage gemessen [62]. Dieser Partikelzähler wurde zuvor mit Latex-Partikeln kalibriert. Die gemessene Verteilung bezieht sich daher auf einen Latex-Äquivalentdurchmesser. Die Anzahlverteilung wurde in eine Massenverteilung umgerechnet und deren mittlerer Durchmesser $d_{50,3}$ als Durchmesser des modellierten Einzelkorns d zugrunde gelegt.

Nachstehend sind die betreffenden Modellparameter aufgelistet:

Partikeldurchmesser d	4,1 μm ,
Kuchenporosität ε_S	0,889,
Partikelporosität ε_{Par}	0,21,
Volumenzunahme α	1,75.

8.2 Bestimmung der Anpassungsparameter anhand von Durchbruchkurven

Modellparameter, die durch Messungen nicht direkt zugänglich sind, werden durch Anpassung von modellierten Durchbruchkurven an gemessenen SO₂-Reingaskonzentrationsverläufe bestimmt. Dies sind der Stoffdurchgangskoeffizient k_{ad} , der Henry-Koeffizient H , der Feststoffdiffusionskoeffizient D_s und die Geschwindigkeitskonstante der Oberflächenreaktion k_r (s. Kapitel 3.2.1).

Da die beiden Parameter Stoffdurchgangskoeffizient k_{ad} und Henry-Koeffizient H stets als Produkt ($k_{ad} \cdot H$) in das Rechenmodell eingehen, ist die getrennte Bestimmung nicht erforderlich bzw. möglich.

Die verwendeten Durchbruchkurven wurden im Rahmen der Voruntersuchungen von *Naffin* [11] aufgenommen. Sie sind in Abbildung 8.1 zusammen mit berechneten Konzentrationsverläufen dargestellt. Die gemessenen Daten weisen eine geringe Schwankungsbreite auf, im Gegensatz zu den berechneten Kurven, die in Abbildung 8.1 an dem

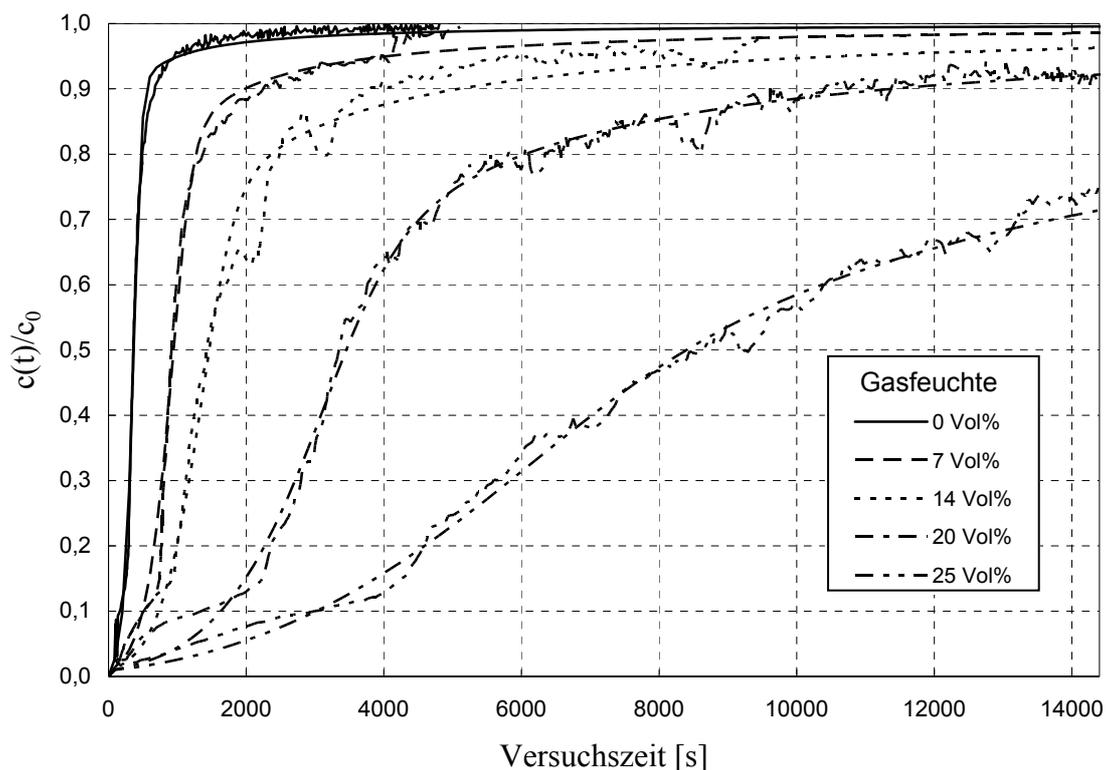


Abbildung 8.1: Vergleich von gemessenen [11] und in dieser Arbeit berechneten SO₂-Durchbruchkurven für verschiedene Gasfeuchten, Temperatur 70 °C, Rohgaskonzentration 750 ppm, Filtrationsgeschwindigkeit 80 m³ / (m² h)

glatten Verlauf zu erkennen sind.

Die Kurven wurden von *Naffin* unter folgenden Bedingungen gemessen [11]: Zunächst wurde in der benutzten Laboranlage schadgasfrei ein Staubkuchen anfiltriert und anschließend ab dem Zeitpunkt $t = 0$ mit SO₂-haltigem Gas durchströmt. In Abbildung 8.1 ist die Reingaskonzentration auf die Rohgaskonzentration c_0 bezogen. Das Verhältnis c/c_0 kann Werte zwischen 0 (vollständige Abscheidung) und 1 (keine Abscheidung) annehmen. Diese Versuche wurden bei einer Temperatur von 70 °C für verschiedene Modellgasfeuchten zwischen 0 Vol.-% und 25 Vol.-% durchgeführt. Die mittlere Flächenmasse des Kuchens, auf die die Durchbruchkurven bezogen werden, beträgt 80 mg/cm². Als Additiv wurde in diesen Versuchen und in der Schlauchfilteranlage Kalkhydrate mit einer identischen Spezifikation eingesetzt. Die Festbettversuche wurden mit einer Rohgaskonzentration von 750 ppm und einer Filtrationsgeschwindigkeit von 80 m³/(m² h) durchgeführt.

Zum Zeitpunkt $t = 0$ wird der vorangestaubte Filterkuchen mit dem SO₂-haltigen Rohgasstrom beaufschlagt und die Messgasleitung des Gasanalysators von der Probenahme im Rohgas auf Reingas umgeschaltet. Für eine bestimmte Zeitdauer wird das Schadgas nahezu vollständig abgeschieden. In Abhängigkeit von der Feuchte des Modellgases erfolgt ein flacher Anstieg der Reingaskonzentration, der ab einem c/c_0 -Verhältnis von ca. 0,1 in einen steilen Durchbruchverlauf übergeht.

Zur Berechnung der ebenfalls dargestellten Simulationsergebnisse wurden die im Kapitel 3.2.3 vorgestellten Differentialgleichungen mit Hilfe des Softwarepaketes gPROMS [63, 64] gelöst. Diese Software enthält zusätzlich einen Optimierungsalgorithmus (gOPT), mit dem Modellparameter an gegebene Messergebnisse angepasst werden können. Durch folgende Werte können die Messungen gut wiedergegeben werden:

Geschwindigkeitskonstante k_{S0}	$3,6 \cdot 10^{-5}$ m/s
Feststoffdiffusionskoeffizient D_{S0}	$4 \cdot 10^{-11}$ m ² /s

Der Einfluss der Feuchte auf die Schadgasabscheidung wird beim Adsorptionsschritt durch das Produkt der Parameter des Geschwindigkeitskoeffizienten und des Henry-Koeffizienten berücksichtigt ($k_{ad} \cdot H$). Beim Diffusions-/Reaktionsschritt geht der Einfluss der Feuchte über die Parameter K und P in die Gleichungen (2.31) und (2.32) ein. Für den Einfluss des Umsatzes auf den Diffusionskoeffizienten und auf die Ge-

schwindigkeitskonstante kann die gleiche Abhängigkeit gewählt werden ($K=P$) [11]. In Abbildung 8.2 und Abbildung 8.4 sind die entsprechenden Werte über der absoluten Feuchte des Modellgases aufgetragen.

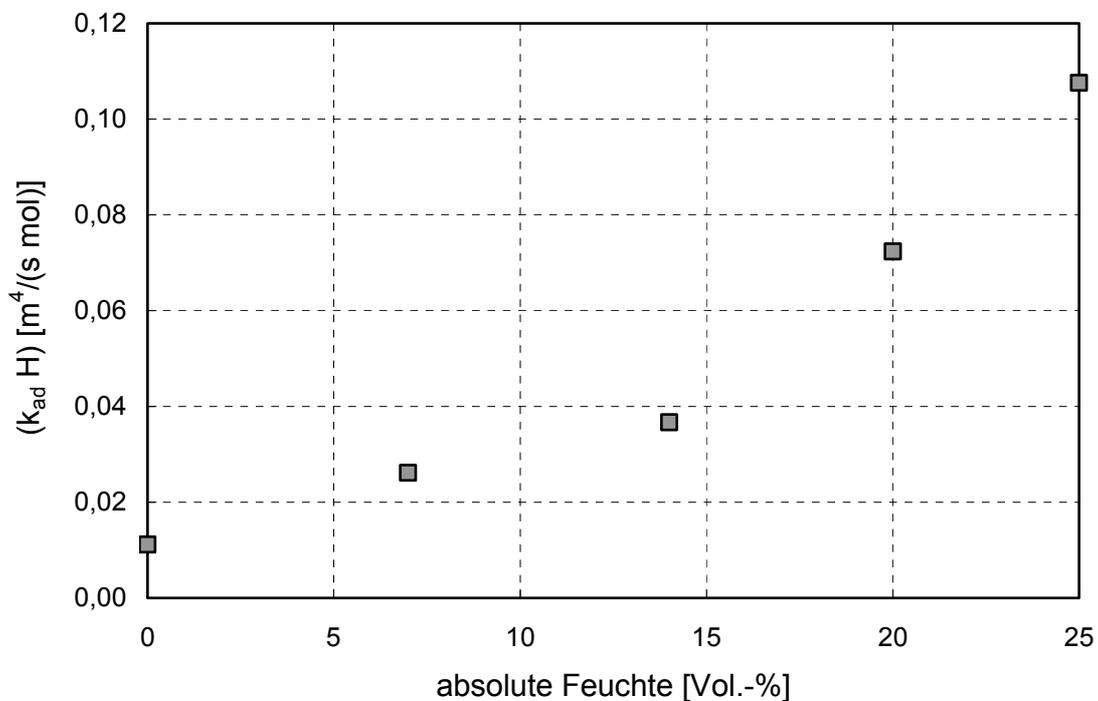


Abbildung 8.2: Auftragung des Ausdrucks $(k_{ad} \cdot H)$ über der absoluten Feuchte, Ergebnis der Parameteranpassung für verschiedene Modellgasfeuchten

Der Trend, der in Abbildung 8.2 deutlich wird, legt nahe, dass der Adsorptionsschritt mit zunehmender Feuchte entweder schneller und/oder mit größeren Gleichgewichtsbelastungen auf der Partikeloberfläche erfolgt.

In Adsorptionsschichten aus Wasserdampf, die schon bei normaler Raumluftfeuchtigkeit entstehen, wird SO₂ sehr gut gebunden. Mit zunehmender Feuchte nimmt die adsorbierte Wassermasse auf der Partikeloberfläche zu. *Klingspor* führte Untersuchungen zur Adsorption von Wasser auf verschiedenen calciumhaltigen Sorbentien (Calciumcarbonat, Calciumhydroxid) durch und trug die Ergebnisse anderer Forscher zusammen [65]. In der folgenden Abbildung sind die Wasserdampfsorptionsisothermen, d.h. der Zusammenhang zwischen der relativen Feuchte und der adsorbierten Wassermasse, bei einer Temperatur von 70 °C dargestellt. Zusätzlich sind die Werte des Anpassungsparameters $(k_{ad} \cdot H)$ über der relativen Feuchte aufgetragen.

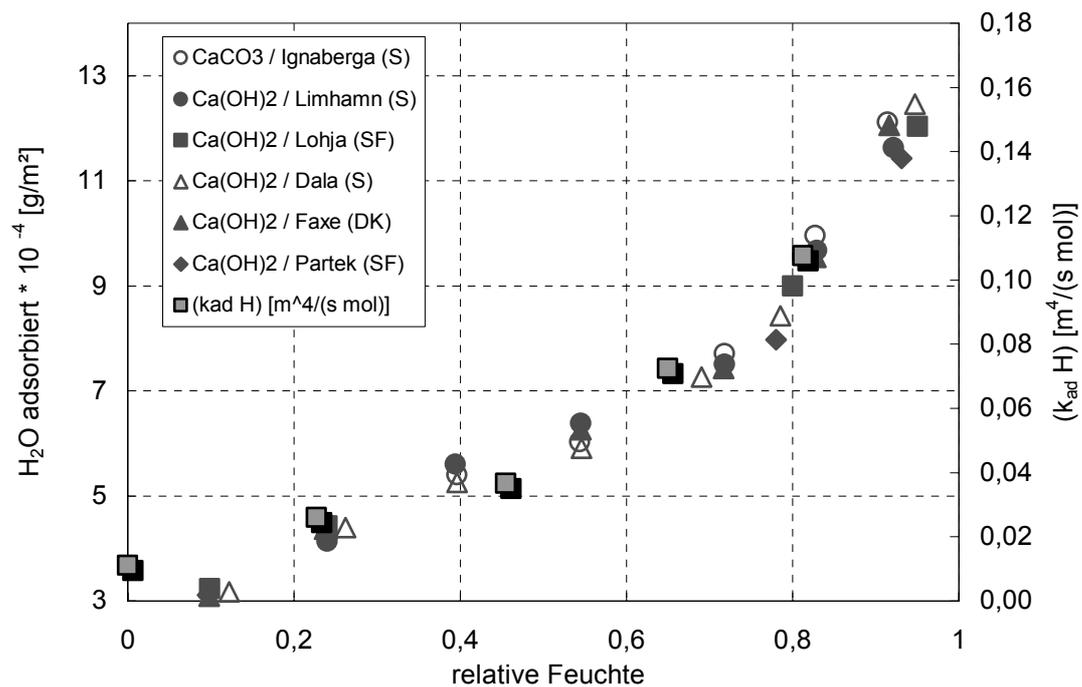


Abbildung 8.3: Wasserdampfsorptionsisotherme von calciumhaltigen Sorbentien, Temperatur 70 °C [65]. Zusätzlich ist das Ergebnis der Parameteranpassung von $(k_{ad} \cdot H)$ aufgetragen.

In Abbildung 8.3 wird eine prinzipiell ähnliche Abhängigkeit des Anpassungsparameters $(k_{ad} \cdot H)$ bzw. der adsorbierten Wassermasse von der relativen Feuchte deutlich.

Diese höheren SO₂-Beladungen bei unveränderter SO₂-Konzentration in der Gasphase werden in dem in Kapitel 3.2.1 vorgestellten Modell durch einen größeren Wert des Produktes aus Henry-Koeffizient H und dem Stoffdurchgangskoeffizienten k_{ad} ausgedrückt.

Bei der Berechnung des durch die Produktschicht diffundierenden Stoffstroms wurde unabhängig von der Feuchte ein konstanter Anfangsdiffusionskoeffizient D_{S0} angenommen. In Abbildung 8.4 ist der Parameter K aus Gleichung (2.31) über der absoluten Feuchte des Modellrauchgases aufgetragen. Die Verbesserung der SO₂-Abscheidung bei hohen Feuchten führt bezüglich des Diffusions-/Reaktionsschritts zu kleineren Werten des Parameters K .

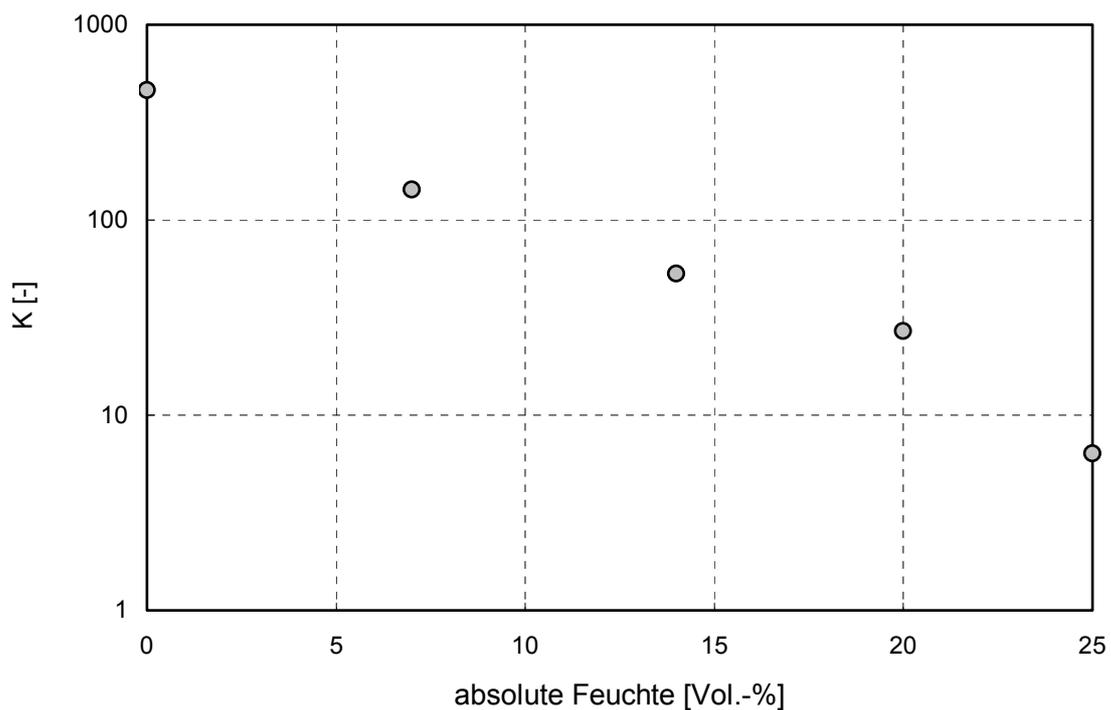


Abbildung 8.4: Auftragung des Parameters K über der absoluten Feuchte, Ergebnis der Parameteranpassung für verschiedene Modellgasfeuchten

Mit Hilfe der beiden in diesem Abschnitt erläuterten Anpassungsparametern ($k_{ad} \cdot H$) und K kann in der folgenden Modellierung der Schadgasabscheidung in der Schlauchfilteranlage der Einfluss der Feuchte berücksichtigt werden.

8.3 Berechnungsergebnisse zur Schadgasabscheidung in durch Druckstoß abgereinigten Schlauchfilteranlagen

Mit dem in den vorherigen Kapiteln erläuterten Parametersatz für die Abscheidung am Einzelkorn und im Festbettreaktor wird nun das entwickelte Modell zur Berechnung der

Schadgasabscheidung auf die Verhältnisse in der verwendeten Technikumsanlage übertragen und mit experimentellen Ergebnissen verglichen.

Bei der Berechnung der Schadgasabscheidung in der Schlauchfilteranlage werden das Reaktionsrohr und der Rohgasraum zusammen als Flugstromreaktor berücksichtigt (s. Abbildung 8.5). In diesem Flugstromreaktor tritt der Volumenstrom \dot{V}_{Gas} mit der SO₂-Eingangskonzentration c_0 ein und der Austrittskonzentration an c_{FSP} aus. Unmittelbar auf die Flugstromphase folgt die SO₂-Abscheidung in der Filterschicht. Die drei Schlauchreihen der Versuchsanlage, die stets einzeln abgereinigt werden, werden im Modell durch drei Festbettreaktoren mit anwachsender Schichtdicke H_i berücksichtigt (s. Kapitel 3.2.4), für die jeweils die Filtrationsgeschwindigkeit $u_{0,i}$, die Wachstumsgeschwindigkeit des Staubkuchens dH_i/dt und die Kuchendicke H_i berechnet wird (s. Kapitel 3.1). Darüber hinaus wird für die drei Festbettreaktoren das SO₂-Konzentrationsprofil, die lokale Beladung bzw. der Additivumsatz bestimmt. Aus den drei einzelnen Volumenströmen \dot{V}_i und den jeweiligen Reingaskonzentrationen c_i kann dann die Reingaskonzentration c_{Rein} bzw. der Abscheidegrad der gesamten Anlage berechnet werden.

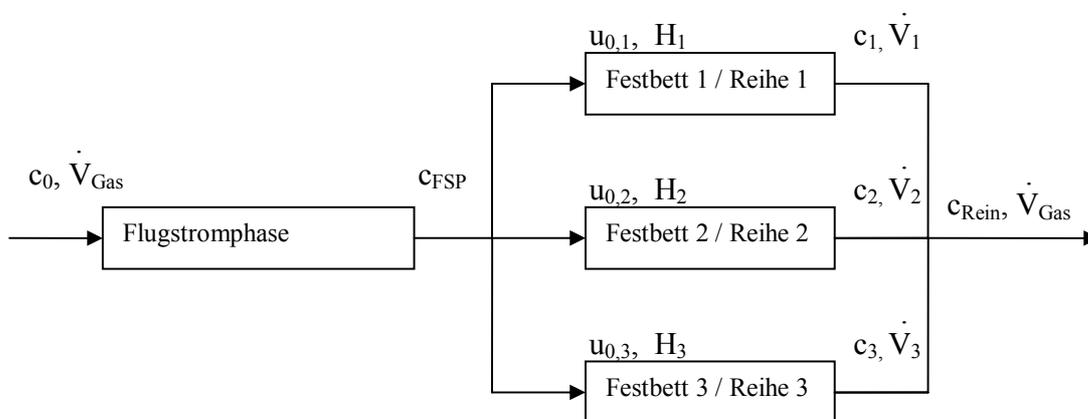


Abbildung 8.5: Verschaltung von Flugstrom- und Festbettreaktoren zur Modellierung der Schadgasabscheidung in Schlauchfilteranlagen

8.3.1 Berechnung der lokalen Filtrations- und Kuchenwachstumsgeschwindigkeiten

Zur Modellierung der Schadgasabscheidung in der Versuchsanlage müssen die lokalen Filtrationsgeschwindigkeiten für die drei voneinander unabhängigen Schlauchreihen

und die jeweiligen Kuchendicken bekannt sein. Diese sich kontinuierlich verändernden Größen werden mit Hilfe der in Kapitel 3.1 vorgestellten Beziehungen berechnet. Anhand eines Beispiels wird im Folgenden die Simulation des Druckverlustverlaufs, der lokalen Filtrationsgeschwindigkeit und der jeweiligen Kuchendicke erläutert.

In Abbildung 8.6 sind zusätzlich zum berechneten Differenzdruckverlauf über mehrere Abreinigungszyklen die theoretisch erwartete Flächenmasse $W_1(t)$ und die Filtrationsgeschwindigkeit $u_{0,1}(t)$ für eine einzelne Schlauchreihe 1 aufgetragen. Da als Anfangsbedingung angenommen wurde, dass die gesamte Filterfläche abgereinigt vorliegt ($W_1(0) = W_2(0) = W_3(0) = 0$), unterscheiden sich während der ersten Filtrationsperiode die Strömungswiderstände der Reihen nicht. Die gesamte Fläche wird zunächst gleichmäßig mit der mittleren Filtrationsgeschwindigkeit von 60 m/h durchströmt. Während dieser Zeit nehmen die Flächenmassen auf allen Schläuchen und der Differenzdruck linear zu.

Die in Abbildung 8.6 dargestellte Schlauchreihe 1 wird nach Erreichen des maximalen Differenzdruckes von 8 mbar als erste abgereinigt bzw. deren Flächenmasse zu Null gesetzt. Durch die Abreinigung der Schlauchreihe fällt der Differenzdruck über das

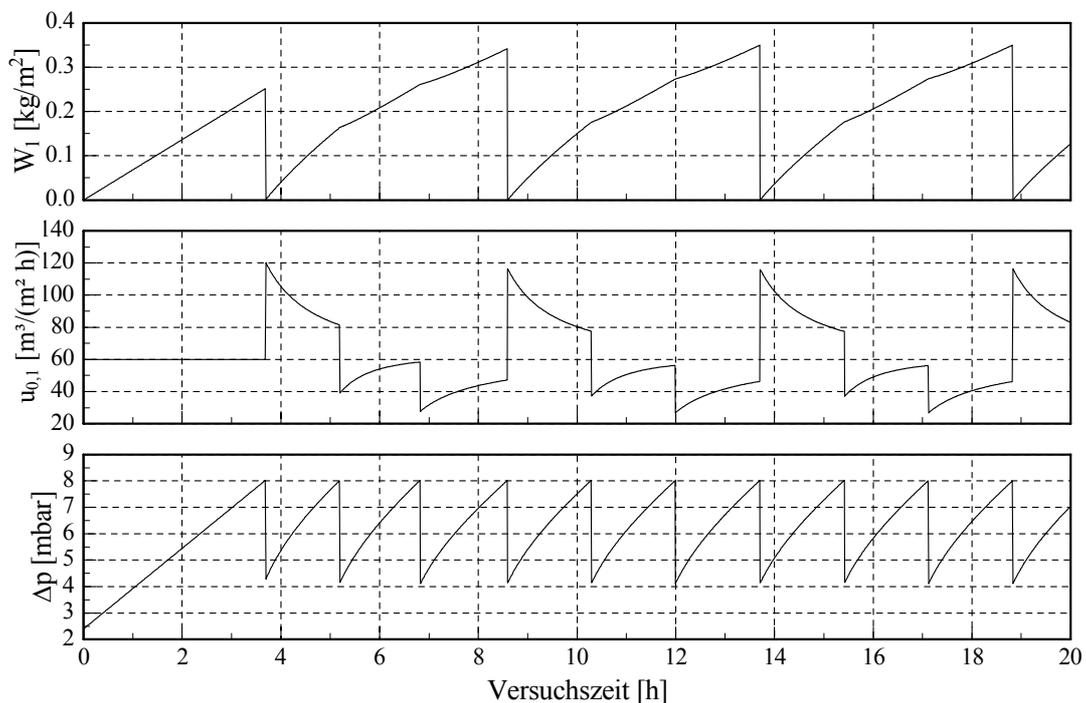


Abbildung 8.6: Beispiel für eine idealisierte Berechnung der zeitlichen Verläufe der Flächenmasse $W_1(t)$, der Filtrationsgeschwindigkeit $u_{0,1}(t)$ und des Differenzdruckes $\Delta p(t)$ für die Schlauchreihe 1

gesamte Schlauchpaket ab. Da die betrachtete Reihe nun im Vergleich zur übrigen Filterfläche einen deutlich geringeren Strömungswiderstand aufweist, nimmt die Filtrationsgeschwindigkeit hier schlagartig bis auf ca. 120 m/h zu. Dies führt wiederum dazu, dass bei konstanter Staubkonzentration im Rohgas in kürzerer Zeit mehr Staub zur gerade abgereinigten Schlauchreihe transportiert und abgeschieden wird. Die Flächenmasse steigt also schnell wieder an.

Mit dem zweiten Abreinigungsstoß wird die Flächenmasse der Reihe 2 zu Null. Die hier betrachtete Schlauchreihe 1 weist daher im Vergleich zur gerade abgereinigten einen höheren Widerstand auf, weshalb die Filtrationsgeschwindigkeit bis auf etwa 40 m/h abfällt. Im Verlauf der zweiten Periode nähert sich die lokale Filtrationsgeschwindigkeit der Schlauchreihe 1 wieder der mittleren Filtrationsgeschwindigkeit von 60 m/h an. Der Staubkuchen W_1 wird deutlich langsamer aufgebaut als im vorherigen Zyklus.

Unmittelbar nach der Abreinigung der dritten Schlauchreihe erreicht die lokale Filtrationsgeschwindigkeit der Reihe 1 ihr Minimum bei etwa 30 m/h. Nach einem Anstieg auf etwa 45 m/h wird beim nächsten Druckstoß die betrachtete Schlauchreihe erneut abgereinigt und deren Flächenmasse wiederum zu Null. Nach diesem Druckstoß erreicht die Filterflächenbelastung dieser Schlauchreihe erneut ein Maximum.

Das dargestellte Beispiel verdeutlicht, dass sich die lokale Filtrationsgeschwindigkeit je Filterschlauch innerhalb der Pilotanlage und auch innerhalb industriell betriebener Filteranlagen allein aufgrund der Abreinigungsart um ein Vielfaches unterscheiden kann.

In der folgenden Abbildung wird ein mit diesem Modell berechneter Druckverlustverlauf nach mehreren Filtrationszyklen mit einem an der Versuchsanlage gemessenen verglichen. In die Berechnungen gehen die Filterfläche, der maximale Druckverlust, die Staubkonzentration, die Gasviskosität und der Volumenstrom des Rohgases ein. Die Anpassung des simulierten Differenzdruckverlaufs an die Messkurve läßt sich durch Variation des Restwiderstandes des Filtermittels K_M und des spezifischen Kuchenwiderstandes K_K unter Minimierung der Abweichungsquadrate erreichen. Mit diesem Modell gelingt es, den Differenzdruckverlauf mit nur zwei Anpassungsparametern gut zu beschreiben.

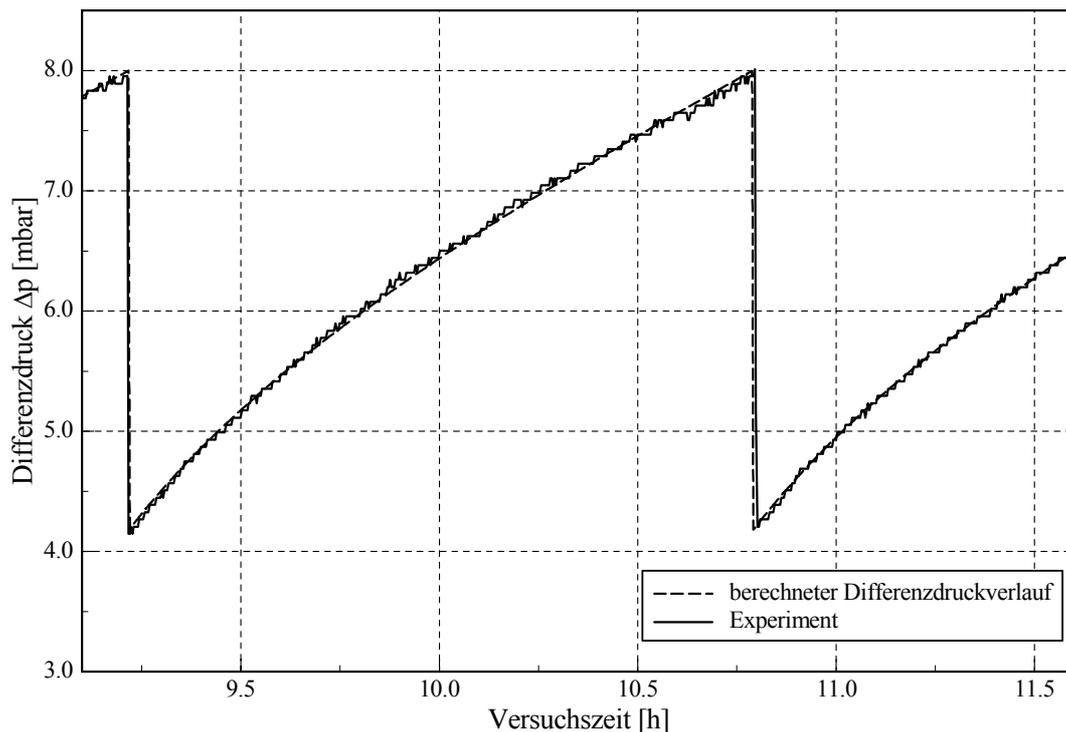


Abbildung 8.7: Vergleich des gemessenen mit dem berechneten Differenzdruckverlauf. Anpassungsparameter des Modells sind die Größen K_M und K_K

8.3.2 Berechnung der Schadgasabscheidung

Da der in Kapitel 8.2 ermittelte Parametersatz durch Anpassung an Festbettversuche bei einer Temperatur von 70 °C und für Feuchten von 0 Vol.-%, 7 Vol.-%, 14 Vol.-%, 20 Vol.-% und 25 Vol.-% festgelegt wurde, erfolgt die Berechnung der Schadgasabscheidung in Schlauchfilteranlagen für diese Temperatur und die angegebenen Feuchten.

In der folgenden Abbildung 8.8 ist exemplarisch der modellierte Verlauf der SO₂-Konzentration im Reingas der Schlauchfilteranlage für eine Feuchte von 14 Vol.-% dargestellt. Mit exakt dieser Feuchte von 14 Vol.-% wurde in der Schlauchfilteranlage kein Versuch durchgeführt. Der Vergleich ist am besten mit Messungen bei einer Feuchte von 13,5 Vol.-% möglich. Die unter diesen Bedingungen gemessene Reingaskonzentration ist zusätzlich eingezeichnet.

Durch die geringfügig abweichende Feuchte kann eine Verschiebung des berechneten Kurvenverlaufs um maximal 5 ppm hervorgerufen werden. Die durchgeführte Berechnung der SO₂-Konzentration mit einer Feuchte von 14 Vol.-% sollte daher zu ähnlichen Werten des Experiments mit Rauchgasfeuchten von 13,5 Vol.-% führen. In

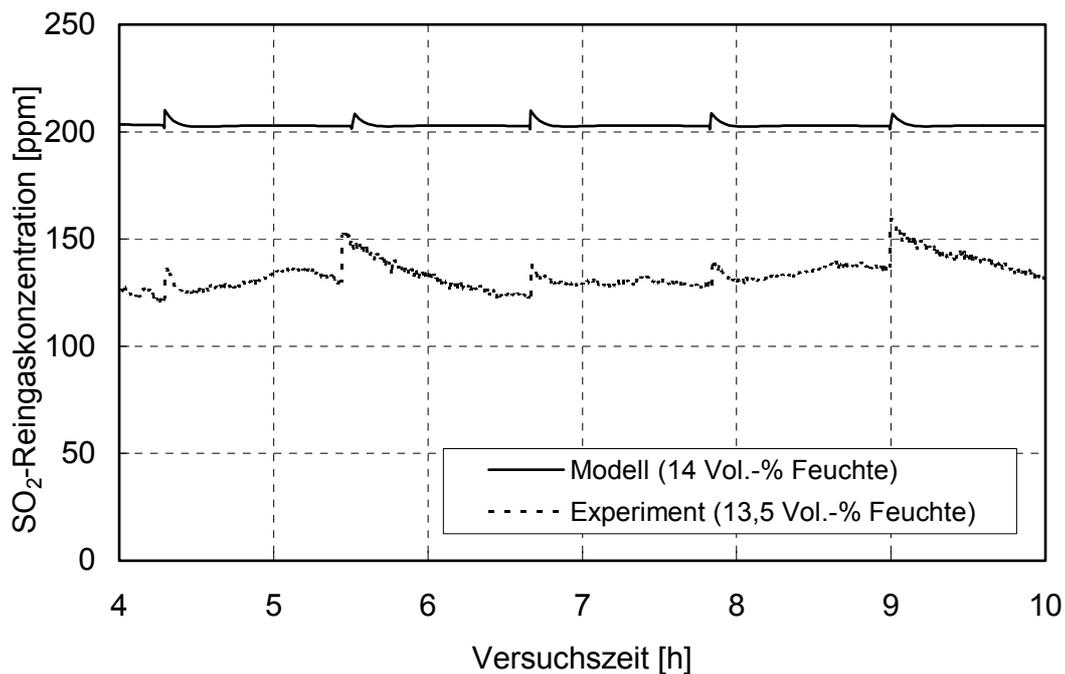


Abbildung 8.8: Vergleich eines gemessenen Verlaufs der SO₂-Reingaskonzentration mit modelliertem Konzentrationsverlauf ($Ca/S = 2$)

Abbildung 8.8 wird zunächst die große quantitative Differenz von ca. 70 ppm zwischen den Werten des Experiments und den Simulationsergebnissen bei vergleichbaren Feuchten deutlich. Mit dem Modell wird im Vergleich zur Messung eine schlechtere Schadgasabscheidung berechnet.

Die Ursache für die Abweichung der berechneten Werte von den Versuchsergebnissen muss in erster Linie in den idealisierten Annahmen gesucht werden, die dem Modell zugrunde liegen. Bei der Berechnung der Reingaskonzentration wird davon ausgegangen, dass nach jedem Abreinigungsstoß der Kuchen vollständig von den Schläuchen geworfen wird und aus dem Rohgasraum entfernt wird. Durch diesen idealisierten Abreinigungsverfahren sind sowohl Additivpartikel betroffen, die bereits relativ lange auf der Filterfläche verweilen und daher durch eine entsprechend dicke Produktschicht sehr reaktionsträge sind, als auch frische und damit noch reaktive Partikel.

In technischen Schlauchfilteranlagen wird hingegen in Abhängigkeit von verschiedenen Faktoren wie z.B. Abreinigungsintensität, Haftkraft zwischen Kuchen und Filtermittel, Partikel- bzw. Agglomeratgröße und lokalen Strömungsbedingungen stets ein Teil des abgereinigten Staubes auf benachbarten oder demselben Filterelement wieder abgeschieden und steht so weiterhin für die Schadgasabscheidung zur Verfügung [66].

Dies führt zu einer schwer zu beschreibenden aber deutlichen Verlängerung der Verweilzeit des Additivs in der Filterkammer der Versuchsanlage. Insbesondere frische und durch einen Abreinigungsstoß im Rohgas redispergierte Additivpartikel tragen daher unter realen Bedingungen zu einer Verbesserung der Abscheidung bei.

Der steile Anstieg der Reingaskonzentration nach jedem Abreinigungsstoß wird durch das Modell wiedergegeben, wobei vorausgesetzt wird, dass die drei Schlauchreihen homogen angeströmt werden. Daher verläuft die berechnete Reingaskonzentration nach jeder Abreinigung streng periodisch.

Das Experiment weist im Gegensatz hierzu einen besonders hohen Anstieg der Reingaskonzentration nach jedem dritten Abreinigungsstoß auf. Wie bereits im Kapitel 7.1 erwähnt, tritt der starke Anstieg der SO₂-Konzentration stets nach der Abreinigung der mittleren Schlauchreihe auf. Die Ursache hierfür muss in der inhomogenen An- bzw. Umströmung der einzelnen Filterschläuche gesucht werden. Im Rahmen der Verweilzeitmessungen im Rohgasraum der Filterkammer wurde festgestellt, dass Partikel, die auf dem mittleren Schlauch abgeschieden werden, eine breitere Verweilzeitverteilung in der Flugstromphase aufweisen als Partikel, die auf den äußeren Schläuchen abgeschieden werden (s. Kapitel 5.2.)

Eine weitere Ursache ist die unterschiedliche Umströmung des inneren Filterschlauchs und der äußeren Filterschläuche, wie mit Hilfe der Strömungssimulation festgestellt werden konnte. Es kann daher nicht erwartet werden, dass der Kuchen auf allen Schläuchen auf gleiche Weise aufgebaut und abgereinigt wird. Insbesondere nach der Abreinigung der mittleren Schlauchreihe wird die Sedimentation des abgeworfenen Staubes durch die nach unten gerichtete Strömung im Zentrum der zylindrischen Filterkammer unterstützt. Das noch teilweise reaktive Additiv steht so nach der Abreinigung nicht mehr zur Schadgasabscheidung zur Verfügung. Anders verhält es sich nach der Abreinigung der äußeren Schläuche. Hier wird u. U. ein größerer Staubanteil nach der Abreinigung nach oben getragen und wieder auf den Schläuchen abgeschieden. Dieser Staub kann weiterhin mit den gasförmigen Schadgaskomponenten reagieren. Diese Vorgänge werden nicht durch die idealisierten Annahmen des hier zur Berechnung herangezogenen Modells wiedergegeben.

Zur weiteren Überprüfung, inwieweit mit dem Modell die Vorgänge in Schlauchfilteranlagen trotz der erläuterten Vereinfachungen qualitativ beschrieben werden können, wurde das Messgas für den Gasanalysator aus dem Reingas eines einzelnen Filterschlauchs abgezogen. Das untersuchte Filterelement gehört zur mittleren

Schlauchreihe und befindet sich am äußeren Rand des Schlauchpaketes. In Abbildung 8.9 sind der Messschrieb und die berechneten Konzentrationsverläufe dargestellt.

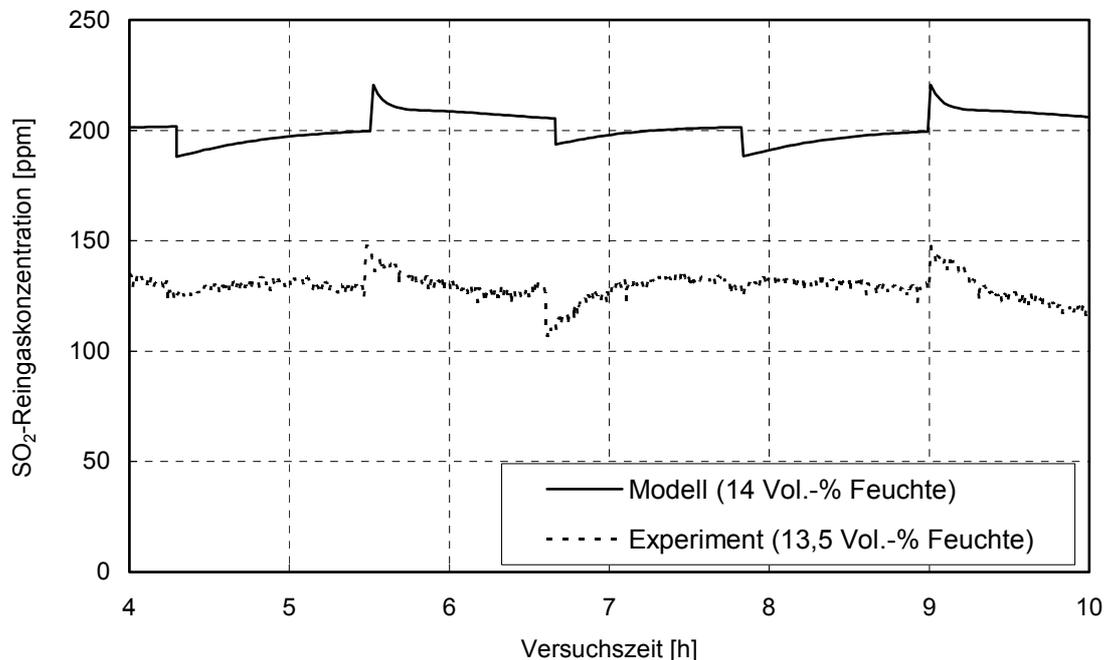


Abbildung 8.9: Verlauf der gemessenen und berechneten Reingaskonzentration hinter einem einzelnen Filterelement (mittlere Reihe, äußerer Schlauch, Ca/S = 2)

Der Verlauf der gemessenen und berechneten Reingaskonzentration wiederholt sich nach jedem dritten Filtrationszyklus. Unmittelbar nach der Abreinigung des untersuchten Filterelementes steigt die Reingaskonzentration deutlich an (in Abbildung 8.9 nach einer Versuchszeit von ca. 5,5 h). Der noch reaktive Staubkuchen wird von der Filterfläche abgeworfen. Als Folge hiervon tritt das Gas nur unzureichend gereinigt durch das Filtermittel. Außerdem weist die gerade abgereinigte Filterfläche einen geringeren Strömungswiderstand auf und das Gas tritt mit einer höheren Filtrationsgeschwindigkeit hindurch (s. Abbildung 8.6).

Während des ersten Filtrationszyklus wird aufgrund der hohen Filtrationsgeschwindigkeit relativ rasch wieder ein Filterkuchen mit reaktionsfähigem Additiv aufgebaut. Dies führt zu einer kontinuierlichen Verbesserung der Schadgasabscheidung für das betrachtete Filterelement.

Ist wieder der maximale Differenzdruck über das gesamte Schlauchpaket erreicht, wird die nächste Schlauchreihe abgereinigt. Dies führt zu einer Verringerung des Strömungs-

widerstandes und zu einer lokal höheren Filtrationsgeschwindigkeit für die gerade abgereinigten Filterelemente. Bei konstantem Gesamtvolumenstrom an Rohgas wird daher die Filtrationsgeschwindigkeit für die übrigen Elemente, also auch für das betrachtete Element, verringert. Eine geringere Strömungsgeschwindigkeit im Staubkuchen bedeutet eine größere Verweilzeit in der reaktiven Staubschicht und damit eine bessere Abscheidung der Schadgase. Der Reingaswert im betrachteten Filterelement wird verringert. Dieser Effekt wiederholt sich auf ähnliche Weise bei der dritten Abreinigung, bevor mit dem vierten Abreinigungsstoß wiederum das untersuchte Element abgereinigt wird.

Wie auch zuvor wird hier wieder die Differenz von ca. 70 ppm zwischen den berechneten Werten bei einer Feuchte von 14 Vol.-% und der Messung bei Rauchgasfeuchten von 13,5 Vol.-% deutlich.

Diese Vorgänge, d.h. das Zusammenspiel zwischen Schichtdicke, Strömungswiderstand, Filtrationsgeschwindigkeit, Kuchenwachstum und Verweilzeit des Gases in der reaktiven Staubschicht, können mit dem vorgeschlagenen Modell für Schlauchfilter, in denen die Filterfläche stets nur teilweise abgereinigt wird, zumindest qualitativ gut wiedergegeben und untersucht werden.

In Abbildung 8.10 werden die bereits in Abbildung 7.3 dargestellten, mit der Schlauchfilteranlage experimentell bestimmten Abscheidegrade, mit berechneten Ergebnissen verglichen. Wie bereits zuvor erwähnt, weichen die berechneten Abscheidegrade in Abhängigkeit von der Feuchte von den Messergebnissen ab. Diese Differenzen treten insbesondere bei hohen Feuchten auf. Hier wird im Vergleich zum Experiment eine schlechtere Abscheidung vorausberechnet.

Wie bereits im Rahmen der Voruntersuchungen von *Naffin* [11] festgestellt und in Abbildung 8.1 verdeutlicht, bleibt unter diesen Bedingungen das Additiv besonders lange reaktionsfähig. Fehler bei der angenommenen Verweilzeit der Partikel im Rohgasraum und insbesondere auf den Filterschläuchen machen sich hier besonders drastisch bemerkbar. Mit den Annahmen des Modells wird für die Verweilzeit der Partikel auf den Filterschläuchen prinzipiell mit zu kurzen Zeiten gerechnet. Die maximale Verweilzeit eines Partikels im Reaktionsraum (Rohgasraum und Filterkuchen) entspricht unter den idealisierten Annahmen gerade der Dauer eines Filtrationszyklus. In technischen Schlauchfilteranlagen wird stets ein Teil des durch den Druckstoß abgeworfenen Staubes wieder auf dem Filtermittel abgeschieden [66] und steht so für die Dauer eines weiteren oder mehrerer Filtrationszyklen für die Schadgasab-

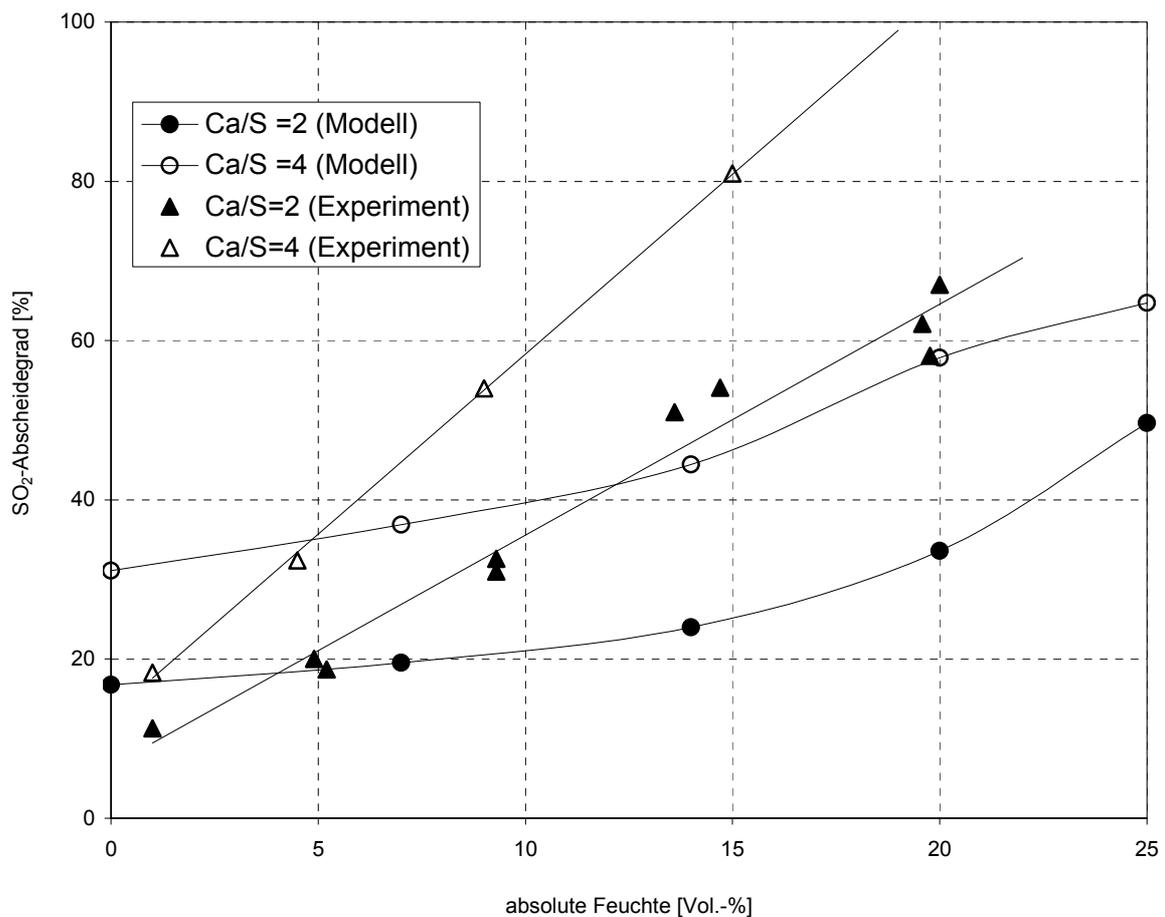


Abbildung 8.10: Vergleich der gemessenen und berechneten Abscheidegrade bei 70 °C und einer mittleren Filtrationsgeschwindigkeit von 60 m³/(m² h) für verschiedene Feuchten des Modellrauchgases

scheidung zur Verfügung. Durch die Einführung einer Altersverteilung des durch die Abreinigung redispergierten und wieder abgeschiedenen Staubes in dem hier vorgeschlagenen Modell könnten derartige Vorgänge beschrieben werden.

Die nicht vollständige Abreinigung des Staubkuchens führt neben einer Verlängerung der Verweilzeit der Additivpartikel auch zu einem Aufbrechen der Kuchenstruktur und einer Umlagerung der Partikel. Hierdurch können örtlich begrenzte Bereiche im porösen Staubkuchen, die aufgrund einer lokal ungünstigen Porenstruktur zuvor nur schlecht vom schadstoffhaltigen Gas durchströmt wurden, wieder freigelegt werden. Durch derartige Vorgänge könnte ebenfalls eine Verbesserung der Schadgasabscheidung im Vergleich zu den hier vorgestellten Berechnungsergebnissen erklärt werden.

Bei niedrigen Rauchgasfeuchten ist das Additiv nur für relativ kurze Zeit überhaupt in der Lage, Schadgase abzuscheiden. Fehler bei der Abschätzung der langen Verweilzeit des Staubes auf dem Filtermittel machen sich unter trockenen Bedingungen nicht mehr bemerkbar, da das auf den Schläuchen abgeschiedene Additiv nach wenigen Sekunden als inertes Material (s. Abbildung 8.1) betrachtet werden kann. Es ist daher für die Schadgasabscheidung weitgehend unerheblich, für wie viele Filtrationsperioden der Staub im Rohgasraum gehalten wird. Die Gründe für die Differenz zwischen der Rechnung und dem Experiment sind unter trockenen Bedingungen eher in einer inhomogenen Verweilzeit- und eventuell in der Partikelverteilung in der Flugstromphase als Folge der tangentialen Rohgaszuführung zu suchen. Strähnenbildung und Partikelabscheidung durch Zentrifugalkräfte führen zu ungünstigen reaktionstechnischen Bedingungen in der Flugstromphase, die sich bei geringen Feuchten besonders stark bemerkbar machen, da die Partikel bereits nach wenigen Sekunden als quasi inert angesehen werden können. Die Schadgasabscheidung im Filterkuchen spielt unter trockenen Bedingungen daher nur eine untergeordnete Rolle.

9 Zusammenfassung

In dieser Arbeit wird die Abscheidung von im Rauchgas enthaltenen gasförmigen und partikulären Verunreinigungen nach dem Trockensorptionsverfahren experimentell und theoretisch betrachtet. Bei diesem Rauchgasreinigungsverfahren erfolgt sowohl die Entstaubung als auch die Schadgasabscheidung vorzugsweise in einem Oberflächenfilter, so dass es sich um kompakte, einfach strukturierte und kostengünstige Anlagen handelt. Verglichen mit nass arbeitenden Verfahren stehen den relativ geringen Investitionskosten meist höhere Betriebskosten gegenüber, die vor allem durch eine nur teilweise Ausnutzung des Additivs und die Kosten für die Entsorgung des abgeschiedenen Staubes verursacht werden.

Zur Steigerung der Additivausnutzung und der damit verbundenen Betriebskostensenkung sind die Grundlagen der Filtration und Trockensorption an verschiedenen Forschungseinrichtungen bereits seit mehreren Jahrzehnten Gegenstand wissenschaftlicher Untersuchungen. Die Kinetik der Abscheidung gasförmiger Schadstoffe an festen Additiven wird zumeist in Laborreaktoren untersucht, in denen sich definierte Bedingungen einstellen lassen. Die wesentlichen gewonnenen Ergebnisse besagen, dass

- die Druckverluste in den anfiltrierten Kalkfilterschichten mit wachsendem Feuchtegehalt deutlich absinken,
- der SO_2 -Abscheidegrad mit steigender relativer Feuchte stark ansteigt,
- die Anwesenheit von Chlorwasserstoff im Reaktionssystem durch Bildung stark hygroskopischen Calciumchlorids die SO_2 -Abscheidung erheblich verbessert.

Das Ziel dieser Arbeit ist die Untersuchung des Einflusses der Verweilzeit, der Rauchgaszusammensetzung und der Temperatur auf die Abscheidung saurer Schadgase in einer technisch betriebenen Schlauchfilteranlage. Ein weiterer Schwerpunkt ist die Überprüfung der Übertragbarkeit der umfangreichen Voruntersuchungen an einer Laboranlage in den technischen Maßstab.

Zu diesem Zweck wurde während dieser Arbeit eine Schlauchfilteranlage errichtet, deren Aufbau sich stark an Rauchgasreinigungsanlagen im industriellen Einsatz orientiert. Diese Technikumsanlage unterscheidet sich naturgemäß erheblich von der im Rahmen von Vorarbeiten verwendeten Laboranlage bezüglich der Strömungs- und Verweilzeitverhältnisse.

An dieser Anlage wurden zunächst Verweilzeituntersuchungen im Rohgaskanal bzw. Reaktionsrohr und in der Filterkammer durchgeführt. Das Reaktionsrohr kann aufgrund der turbulenten Strömung gut als ideales Strömungsrohr beschrieben werden. Innerhalb der Filterkammer werden zwischen Rohgaseintritt und verschiedenen Messorten im Rohgasraum und innerhalb der Filterschläuche unterschiedliche Verweilzeiten festgestellt, woraus auf eine inhomogene Anströmung der Filterfläche geschlossen werden kann.

Die ungleichmäßige An- und Umströmung der Filterelemente konnte mit Hilfe einer Strömungssimulation bestätigt und veranschaulicht werden. Die Simulation gibt genauere Hinweise auf das komplexe Strömungsfeld innerhalb der Filterkammer mit Zonen hoher Strömungsgeschwindigkeiten in der Nähe des Filtermittels und Bereichen, in denen eine Rückströmung des Rohgases entgegen der Hauptströmungsrichtung auftritt.

Zur Charakterisierung des Durchströmungsverhaltens der Filterschicht wird die Dauer eines Filtrationszyklus herangezogen. Die Zykluszeit verlängert sich insbesondere in Gegenwart von HCl bei hohen Feuchten um ein Vielfaches, da der spezifische Kuchenwiderstand bzw. der Druckverlust entsprechend der Voruntersuchungen an einer Laboranlage sinkt. Der schwach druckverlustsenkende Einfluss von SO₂ konnte im Gegensatz zu den Voruntersuchungen an der technischen Anlage nicht festgestellt werden. Feuchte ohne Anwesenheit von HCl macht sich bezüglich des Druckverlustes in der technischen Anlage erst ab Feuchten oberhalb 10 Vol.-% positiv bemerkbar.

Die SO₂-Abscheidung wurde bei verschiedenen Temperaturen und Rauchgasfeuchten untersucht. Wie im Rahmen der Vorversuche festgestellt, kann auch in der technischen Anlage bei niedrigen Temperaturen und hohen absoluten Feuchten der SO₂-Abscheidegrad deutlich gesteigert werden. Bereits eine Absenkung der Rauchgastemperatur von 90 °C auf 70 °C führt zu einer Verdopplung der Abscheideleistung.

In Anwesenheit von HCl und Wasserdampf wird die Schadgasabscheidung weiter deutlich verbessert. HCl bzw. hygroskopisches Calciumchlorid als Produkt der Abscheidereaktion von Kalkhydrat mit Chlorwasserstoff verstärkt den positiven Einfluss der Feuchte auf die SO₂-Abscheidung. Die Rauchgastemperatur konnte in der technischen Anlage in Anwesenheit von HCl jedoch nicht tiefer als 25 °C oberhalb der Taupunkttemperatur abgesenkt werden, da bei tieferen Temperaturen der dosierte Staub an den Wänden des Reaktionsrohres verstärkt abgeschieden wurde.

Die Probleme, die beim Betrieb der Versuchsanlage nahe des Taupunktes auftreten, entstehen stets durch Anbackungen im Rohgaskanal. Der Staubkuchen kann auch unter

sehr feuchten Bedingungen ohne erkennbaren Anstieg des Restdruckverlustes vom Filtermittel abgereinigt werden.

Bei den Experimenten zur Untersuchung der Schadgasabscheidung ist nach der Abreinigung einer einzelnen Schlauchreihe jeweils ein Anstieg der SO_2 -Konzentration auf der Reingasseite der Anlage zu verzeichnen. Die Höhe des Anstieges ist typisch für die jeweilige Reihe, die zuvor abgereinigt wurde.

Die Modellierung der Schadgasabscheidung geht allgemein und unabhängig vom betrachteten Reaktortyp (Flugstrom- oder Festbettreaktor) von einer Beschreibung der Vorgänge am Einzelpartikel aus. Derartige modellhafte Beschreibungen eines einzelnen Additivkorns wurden von verschiedenen Autoren vorgestellt. In dieser Arbeit wurde das von *Naffin* [11] vorgeschlagene Partikelmodell auf ein Schwindkernmodell reduziert und der Stofftransport um einen Adsorptionsschritt erweitert. Dennoch muss auch hier der Feststoffdiffusionskoeffizient mit dem Umsatz gekoppelt werden, um die Reaktionshemmung mit fortschreitendem Umsatz wiedergeben zu können.

Auch dieses Modell enthält neben dem Zusammenhang zwischen Additivumsatz und Feststoffdiffusionskoeffizient weitere Parameter, die durch direkte Messungen nicht zugänglich sind und daher durch die Anpassung berechneter Konzentrationsverläufe an gemessene Durchbruchkurven bestimmt werden müssen. Diese Parameteranpassungen erfolgten mit Hilfe von Untersuchungen, die *Naffin* unter definierten Bedingungen an einer Laboranlage durchgeführt hat. Mit dem Modell können die gemessenen Durchbruchkurven gut wiedergegeben werden.

Bei der Beschreibung der Vorgänge in Schlauchfilteranlagen sind im Vergleich zum Festbettreaktor verschiedene Punkte zu beachten. Zum einen erfolgt die Staub- und Schadgasabscheidung simultan, d.h. dass sich die Dicke der Staubschicht während des Prozesses verändert. Zum anderen wird bei Erreichen des maximalen Druckverlustes nur ein Teil der gesamten Filterfläche abgereinigt, so dass lokal unterschiedliche Filtrationswiderstände und damit auch Filtrationsgeschwindigkeiten auftreten.

Unter Vernachlässigung des inhomogenen Strömungsfeldes im Rohgasraum der Filterkammer können die an der Schlauchfilteranlage gemessenen Verläufe der Reingaskonzentration qualitativ wiedergegeben werden. Rein quantitativ stimmen die berechneten Abscheidegrade nicht mit den gemessenen überein. Insbesondere für hohe Feuchten werden mit dem Modell schlechtere Abscheidegrad berechnet als sie die Messungen ergeben. Diese Differenzen haben vermutlich zwei Ursachen: Das reale Strömungsfeld führt zu einem ungleichmäßigen Kuchenaufbau und zweitens verbleibt ein unbekannter

Anteil des Staubes auch nach der Abreinigung auf dem gleichen Filterelement bzw. wird auf benachbarten Filterelementen wieder anfiltrierte.

Ausblick

Mit Hilfe der Kopplung der realen strömungs- und reaktionstechnischen Vorgänge bei der Simulation von Schlauchfilteranlagen, die zur trockenen Abscheidung gasförmiger Verunreinigungen eingesetzt werden, könnten sicherlich noch vorhandene Optimierungspotentiale bezüglich der Anströmung einzelner Filterelemente erkannt und bei der Konstruktion von Trockensorptionsanlagen berücksichtigt werden. Diese Betrachtungen sollten zusätzlich zu den Vorgängen während des Kuchenaufbaus auch die Effekte während und unmittelbar nach einem Abreinigungsstoß berücksichtigen. Hierdurch wird die Einführung einer Altersverteilung des abgeschiedenen und redispersierten Staubes erforderlich.

Strömungstechnisch optimierte Oberflächenfilter werden bereits bei speziellen Entstaubungsproblemen erfolgreich eingesetzt. Z.B. bei der Abscheidung von Stäuben, die aufgrund ihrer geringen Dichte oder Partikelgröße nach einem Abreinigungsstoß nur unzureichend in den Staubbunker sedimentieren, wird bei der Rohgasführung auf eine gleichmäßige Umströmung der Filterelemente und die Vermeidung von Rückströmungen, die der Sedimentation entgegenwirken, Wert gelegt. Durch die Übertragung der auf diesem Gebiet gesammelten Erfahrungen auf Oberflächenfilter, die zur trockenen Rauchgasreinigung eingesetzt werden, könnte ein gleichmäßiger Kuchenaufbau unter definierten strömungs- und reaktionstechnischen Bedingungen erreicht werden.

Die im Rahmen dieser Arbeit gewonnenen neuen Erkenntnisse und den damit wiederum aufgeworfenen Fragestellungen, führten zu der Formulierung eines Forschungsantrages, der die strömungstechnische Optimierung von zur Schadgasabscheidung genutzten Oberflächenfiltern zum Thema hat.

Die hier vorgestellten Experimente und Modellentwicklungen wurden dankenswerter Weise von der AiF unterstützt.

10 Literaturverzeichnis

- [1] Thome-Kozmiensky, K. J.; Thermische Abfallbehandlung; 2. Auflage, EF-Verlag für Energie- und Umwelttechnik, 1994
- [2] VDI-3928, Abgasreinigung durch Chemisorption, VDI/DIN-Handbuch Reinhaltung der Luft, Bd.6 (1992)
- [3] W. Peukert, Handbuch zum VDI-Seminar „Gasreinigung mit Oberflächenfiltern“, 24. November 1999, Düsseldorf
- [4] Metschke, J.: Rauchgasreinigung nach dem CDAS-Verfahren; VGB KraftwerksTechnik 10 (2000), S. 108-112
- [5] Kürzinger, K.; Thome, E.: Stand der Rauchgasreinigung von thermischen Abfallverwertungsanlagen; Müll und Abfall 3 (1997), S. 136-139
- [6] Kaiser, S.; Weigl, K.; Spiess-Knafl, K.; Aichernig, C.; Friedl, A.: Modeling a dry-scrubbing flue gas cleaning process; Chemical Engineering and Processing 39 (2000), S. 425-432
- [7] Heap, B. M.: The continuing evolution and development of the dry scrubbing process for the treatment of incinerator flue gas; Filtration & Separation, May 1996, S. 375-380
- [8] Golesworthy, T.: A Review of Industrial Flue Gas Cleaning (Part 3); Filtration & Separation, July/August 1999, S. 16-19
- [9] Firmenprospekt, LÜHR FILTER GmbH & Co. KG, Enzer Straße 26, 31655 Stadthagen
- [10] Rzepka, M.; Einfluß von Wasserdampf und Kohlendioxid auf das Durchströmungsverhalten von Kalkhydratfilterschichten; Dissertation; Fachbereich Chemietechnik; Universität Dortmund; 1993
- [11] Naffin, B.; Einflüsse von Gaszusammensetzung und Temperatur auf das Durchströmungsverhalten von Kalkfilterschichten und die Schwefeldioxidabscheidung; Dissertation; Fachbereich Chemietechnik; Universität Dortmund; 1998

- [12] Krammer, G.; Reissner, H.-K.; Staudinger, G.: Cyclic activation of calcium hydroxide for enhanced desulfurization; *Chemical Engineering and Processing* 41 (2002), S. 463-471
- [13] Chisholm, P. N.; Rochelle, G. T.: Absorption of HCl and SO₂ from Humidified Flue Gas with Calcium Silicate Solids, *Ind. Eng. Chem. Res.*, 39 (2000), S. 1048-1060
- [14] Garea, A.; Viguri, J. R.; Irabien, A.: Kinetics of flue gas desulphurization at low temperatures: fly ash / calcium (3/1) sorbent behavior; *Chemical Engineering Science*, Vol. 52 (1997), S. 715-732
- [15] Izquiero, J. F.; Fite, C.; Cunill, F.; Iborra, M.; Tejero, J.: Kinetic study of the reaction between sulfur dioxide and calcium hydroxide at low temperature in a fixed-bed reactor; *Journal of Hazardous Materials B76* (2000), S. 113-123
- [16] Schmidt, E.: Abscheidung von Partikeln aus Gasen mit Oberflächenfiltern; *Fortschr.-Ber. VDI Reihe 3 Nr. 546*, Düsseldorf, VDI-Verlag 1998
- [17] Löffler, F., Dietrich, H., Flatt, W.: Staubabscheiden mit Schlauch- und Taschenfiltern; 2. Aufl., Vieweg-Verlag, 1991
- [18] Schmidt, E.; Pilz, T.; Beeinflussung des Betriebsverhaltens von Oberflächenfiltern durch Rohgaskonditionierung und andere additive Maßnahmen, Teil 1: Precoatieren und Additive; *Staub - Reinhaltung der Luft*, 55 (1995) 31-35
- [19] Schulz, R.; Weber, E.: Kriterien für den Einsatz von Filtrationsabscheidern zur Rauchgasreinigung; *Entsorgungspraxis* 6 (1993), S. 470-475
- [20] Albrecht, F.: Theoretische Untersuchungen über die Ablagerung von Staub aus strömender Luft und ihre Anwendung auf die Theorie der Staubfilter; *Physikalische Zeitschrift*, 23 (1931), S. 48-56

- [21] Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit; Erste Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Bundes-Immissionsschutzgesetz; Technische Anleitung zur Reinhaltung der Luft – TA Luft vom 24. Juli 2002
- [22] Rudnick, S. N.; First, M. W.: Specific Resistance (K2) of Filter Dust Cakes: Comparison of Theory and Experiments, Third Symposium on Fabric Filters for Particulate Collection, EPA-600/7-78-087 (1978), S. 251-288
- [23] Brauer, H.; Grundlagen der Einphasen- und Mehrphasenströmungen; Verlag Sauerländer, Aarau und Frankfurt am Main, 1971
- [24] Schmidt, E.; Zur Kompression von auf Filtermedien abgeschiedenen Staubschichten; Staub Reinhalt. Luft; 53 (1993) Nr. 10; S. 369-376
- [25] Schmidt, E.: Problematik der Angabe eines spezifischen Durchströmungswiderstandes anfiltrierter Staubkuchen; Chem.-Ing.-Tech. 67 (1995) Nr.4, S. 464-467
- [26] Schmidt, E.; Pilz, T.; Beeinflussung des Betriebsverhaltens von Oberflächenfiltern durch Rohgaskonditionierung und andere additive Maßnahmen, Teil 2: Einfluß der Gasfeuchtigkeit, elektrische und akustische Beeinflussung; Staub - Reinhaltung der Luft, 55 (1995) 65-70
- [27] Klingel R.: Untersuchung der Partikelabscheidung aus Gasen an einem Schlauchfilter mit Druckstoßabreinigung; Dissertation, Universität Karlsruhe, 1982
- [28] Riepe, T.: Trockensorption mit neuer Abreinigungsmethode; Wasser, Luft und Boden 6 (1994), S. 50-51
- [29] Bedienungsanleitung IFJC-Rundfilter, Firma INTENSIV FILTER
- [30] Naffin, B.; Werner, U.; Abscheidung saurer Schadgase in durchströmten, befeuchteten Kalkfilterschichten; ZKG International, S.494-508, Nr.9, 1996

- [31] Klingspor, J.; Karlsson, H.T.; Bjerle, I.; A kinetik study of the dry SO₂-lime-stone reaction at low temperature, Chem. Eng. Comm.; Vol. 22, pp. 81-103, 1983
- [32] Baerns, M.; Hofmann, H.; Renken, A.; Chemische Reaktionstechnik; Georg Thieme Verlag, Stuttgart, 1992
- [33] Ewert, G.; Melenk, I.; Otto, A., Zur simultanen Minderung SO₂- und HCl-haltiger Prozeßgase in der zirkulierenden Wirbelschicht (ZWS); Gefahrstoffe - Reinhaltung der Luft, S.89-92, Nr.56, 1996
- [34] Verfahrenstechnische Berechnungsmethoden, Teil 8: Experimente in der Verfahrenstechnik; VCH Verlagsgesellschaft mbH, Weinheim, 1985
- [35] Bhatia, S. K.; Perlmutter, D. D.: The effect of pore structure on fluid-solid reactions: Application to the SO₂-lime reaction; AIChE J. 27 (1981) No.2, S. 226-234
- [36] Blythe, G.; Smith, R.; McElroy, M.; Rhudy, R.; Bland, V.; Martin, C.: EPRI pilot testing of SO₂ removal by calcium injection upstream of a particulate control device; Proceedings Joint Symposium on dry SO₂ and simultaneous SO₂/NO_x Control Technology; 2 (1986), S. 35-1 – 35-21, EPA, Washington DC
- [37] Dam-Johansen, K.; Hansen, P. F. B.; Ostergaard, K.: High-temperature reaction between sulphur dioxide and limestone-III. A grain-micrograin model and its verification; Chem. Eng. Sci., 46 (1991) No. 3, S. 847-853
- [38] Daniell, P.; Soltani-Ahmadi, A.; Kono, H.O.: Reaction kinetics of the SO₂-CaO system – Pore closure model; Powder technol., 55 (1988), S. 75-85
- [39] Dennis, J. S.; Hayhurst, A.N.: A simplified analytical model for the rate of reaction of SO₂ with limestone particles; Chem. Eng. Sci., 41 (1986) No. 1, S. 25-36
- [40] Hartman, M.; Coughlin, R. W.: Reaction of sulfur dioxide with limestone and the grain model; AIChE J., 22 (1976) No. 3, S. 490-498

- [41] Krishnan, S.V.; Sotirchos, S.V.: A variable diffusivity shrinking-core model and its application to the direct sulfation of limestone; *Can. J. Chem. Eng.*; 71 (1993), S. 734-745
- [42] Ramachandran, P.A.; Smith, J.M.: A single-pore model for gas-solid noncatalytic reactions; *AIChE J.* 36 (1977), No. 3, S. 353-361
- [43] Sotirchos, S.V.; Zarkanitis, S.: A distributed size and length model for porous media reacting with diminishing porosity; *Chem. Eng. Sci.*, 48 (1993) No. 8, S. 1487-1502
- [44] Patisson, F.; Ablitzer, D.: Modeling of Gas-Solid Reactions: Kinetics, Mass and Heat Transfer, and Evolution of the Pore structure; *Chem. Eng. Technol.* 23 (2000) 1, S. 75-79
- [45] Gäng, P.: Die kombinierte Abscheidung von Stäuben und Gasen mit Abreinigungsfiltern bei hohen Temperaturen, Dissertation, Fakultät für Chemieingenieurwesen, Universität Karlsruhe (TH), 1990
- [46] Peukert, W.: Optimierung der Feinstaubabscheidung bei hohen Temperaturen und der simultanen Sorption gasförmiger Schadstoffe in einem Schüttstofffilter; Dissertation, Institut für Mechanische Verfahrenstechnik und Mechanik, Universität Karlsruhe, 1990
- [47] Duo, W.; Kirkby, N. F.; Seville, J. P. K.; Clift, R.: Alteration with reaction progress of the rate limiting step for solid-gas reactions of Ca-compounds with HCl; *Chem. Eng. Sci.*; 50 (1995) No. 13, S 2017-2027
- [48] Duo, W.; Kirkby, N. F.; Seville, J. P. K.; Clift, R.: Modelling of dry scrubbing of acid gases in filter cakes; *Proceedings of the 1993 International Incineration Conference*; Knoxville; TN May 3-7; 1993
- [49] Duo, W.; Seville, J. P. K.; Kirkby, N. F.; Clift, R.: Formation of Product layers in solid-gas reactions for removal of acid gases; *Chem. Eng. Sci.*, 49 (1994) No. 24; S. 4429-4442
- [50] Rode, H.; Orlicki, D.; Hlavacek, V.: Reaction rate modeling in non catalytic gas-solid systems: Species Transport and mechanical stress; *AIChE J.*, 41 (1995) No. 12, S. 2614-2624

- [51] Rode, H.; Orlicki, D.; Hlavacek, V.: Noncatalytic gas-solid reactions and mechanical stress generation; *AIChE J.*, 41 (1995) No. 5, S. 1235-1250
- [52] Kast, W.: Adsorption aus der Gasphase, ingenieurwissenschaftliche Grundlagen und technische Verfahren, VCH Verlagsgesellschaft Weinheim (1988)
- [53] Specht, E.: Kinetik der Abbaureaktionen; CUTEC-Schriftenreihe 7: Monographien; Göttingen, Cuvillier Verlag; 1993
- [54] Brauer, H.: Stoffaustausch einschließlich chemischer Reaktionen; Verlag Sauerländer, Aarau und Frankfurt am Main, 1971
- [55] VDI-Wärmeatlas; Verein Deutscher Ingenieure; 6. Erweiterte Auflage; VDI-Verlag Düsseldorf (1991)
- [56] Fitzer E.; Fritz, W.; Emig, G.: Technische Chemie, Einführung in die Reaktionstechnik; Springer, 4. Auflage (1995)
- [57] Tsotsas, E.; Schlünder, E. U.: On axial dispersion in packed beds with fluid flow; *Chem. Eng. Process*; 24 (1988), S. 15-31
- [58] Bedienungsanleitung für Massendurchflußregler, Firma HI TEC
- [59] STAHL-EISEN-Prüfblätter des Vereins Deutscher Eisenhüttenleute, SEW 400, 7. Ausgabe, 1997
- [60] Leybold-Heraeus, Bedienungsanleitung: HT Binos 5.1
- [61] COSMOS/FloWorks 2001 PE User's Guide
- [62] Palas; Bedienungsanleitung: Partikelzähler und -größenanalysator PCS-2000
- [63] gPROMS Advanced User Guide; Process Systems Enterprise Ltd.; Release 2.2 January 2003
- [64] Martinson, W. S., Barton, P. I.: Distributed Models in Plantwide Dynamic Simulators; *AIChE J.*, 47 (2001) No. 6, S. 1372-1386

-
- [65] Klingspor, J.; Strömberg, A. M.; Karlsson, H. T.; Bjerle, I.: Similarities between lime and limestone in wet dry scrubbing; Chem. Eng. Process; 18 (1984), S. 239-247
- [66] Schmidt, E.; Xu, X.: Wiederanlagerung von Staub bei der Regenerierung von Oberflächenfiltern; Chemie Ingenier Technik 73 (2001) 12, S. 1597-1599
- [67] Verfahrenstechnische Berechnungsmethoden, Teil 8: Experimente in der Verfahrenstechnik; VCH Verlagsgesellschaft mbH, Weinheim, 1985

11 Symbolverzeichnis

Lateinische Symbole

A_F	Filterfläche	[m ²]
A_i	Filterfläche einer Filterelementgruppe	[m ²]
A_P	innere Oberfläche eines Partikels	[m ²]
A_x	Fläche zwischen der Funktion $x(t)$ und der Geraden $x=1$	[s]
A_y	Fläche zwischen der Funktion $y(t)$ und der Geraden $y=1$	[s]
B_K	Permeabilität des Filterkuchens	[m ²]
B_M	Permeabilität des Filtermediums	[m ²]
c	Konzentration	[mol/m ³]
c_0	Schadgaskonzentration im Rohgas	[mol/m ³]
c_{FB}	Schadgaskonzentration nach einem Festbettreaktor	[mol/m ³]
c_{FS}	Schadgaskonzentration nach einer Filterschicht	[mol/m ³]
c_{FSP}	Schadgaskonzentration nach einem Flugstromreaktor	[mol/m ³]
c_G	Schadgaskonzentration in der Hauptströmung	[mol/m ³]
c_{OP}	Schadgaskonzentration auf der äußeren Oberfläche des Partikels	[mol/m ³]
c_{Par}	Anzahlkonzentration der Additivpartikel	[1/m ³]
c_{Rein}	Schadgaskonzentration im Reingas	[mol/m ³]
c_s	Staubkonzentration	[kg/m ³]
C_z	Konstante	[-]
d	Durchmesser	[m]
D_{AB}	molekularer Diffusionskoeffizient	[mm]
D_{ax}	axialer Dispersionskoeffizient	[m ² /s]
D_C	Kapillardurchmesser	[m]
d_h	hydraulischer Durchmesser	[m]
D_S	Feststoffdiffusionskoeffizient	[m ² /s]
D_{S0}	Anfangsfeststoffdiffusionskoeffizient	[m ² /s]
$E(t)$	Altersverteilung	[-]
f	Formfaktor	[-]
f_l	Hilfsfunktion	[-]

f_2	Hilfsfunktion	[-]
H	Henry-Koeffizient	[m ³ /mol]
H	Schichtdicke des Festbettes bzw. Filterkuchen	[m]
K	Hemmungsfaktor Feststoffdiffusion	[-]
k_{ad}	Stoffdurchgangskoeffizient	[m/s]
k_{CK}	Carman-Kozeny-Konstante	[m ³ /kg]
K_K	spezifischer Widerstand des Filterkuchens	[m/kg]
K_M	Restwiderstand des Filtermediums	[1/s]
k_r	Geschwindigkeitskonstante	[m/s]
K_r	Konstante	[-]
k_{ro}	Geschwindigkeitskonstante ohne kinetische Limitierung	[m/s]
K_z	Konstante	[-]
L	Länge eines Flugstromreaktors	[m]
L_K	Dicke des Filterkuchens	[m]
L_M	Dicke des Filtermediums	[m]
\dot{m}_{Add}	Additivmassenstrom	[kg/s]
m_{Par}	Masse eines Additivpartikels	[kg]
m_S	Kuchenmasse	[kg]
M_{SO_2}	Molmasse von Schwefeldioxid	[kg/mol]
n_0	Tracerstoffmenge	[mol]
n_{ad}	an einem Partikel adsorbierte Stoffmenge	[mol]
\dot{n}_{GS}	durch die Grenzschicht transportierter Schadgasstrom	[mol/s]
\dot{n}_{PS}	durch die Produktschicht transportierter Schadgasstrom	[mol/s]
n_r	in einem Partikel reagierte Stoffmenge	[mol]
P	Hemmungsfaktor der Oberflächenreaktion	[-]
p	Druck	[Pa]
Δp_{ges}	Druckverlust über Staubschicht und Filtermedium	[Pa]
Δp_K	Druckverlust des Filterkuchens	[Pa]
Δp_M	Druckverlust des Filtermediums	[Pa]
Δp_{max}	maximaler Druckverlust	[Pa]

Δp_R	Restdruckverlust	[Pa]
r_K	Kugelradius des unreaktierten Feststoffkerns	[m]
r_P	Kugelradius des Partikels	[m]
S_V	volumenbezogene Oberfläche	[m ² /m ³]
t	Zeit	[s]
Δt_i	Zeitdifferenz zwischen zwei diskreten Messpunkten	[s]
\bar{t}	mittlere Verweilzeit	[s]
T	Dauer einer Filtrationsperiode	[s]
U	Feststoffumsatz	[-]
u	Strömungs- oder Filtrationsgeschwindigkeit	[m/s]
u_0	Filtrations- bzw. Leerrohrgeschwindigkeit	[m/s]
u_G	Relativgeschwindigkeit zwischen Bilanzgrenzen und Feststoff	[m/s]
V	Volumen	[m ³]
V_K	Kuchenvolumen	[m ³]
V_{ME}	molares Volumen des Eduktes	[m ³ /mol]
V_{MP}	molares Volumen des Produktes	[m ³ /mol]
V_P	Feststoffvolumen	[m ³]
\dot{V}_{ges}	gesamter Rohgasvolumenstrom	[m ³ /s]
w_∞	Relativgeschwindigkeit	[m/s]
W	Flächenmasse	[kg/m ²]
x	Ortskoordinate eines Flugstromreaktors	[m]
$x(t)$	Eingangssignal	[-]
x_i	i -ter Messpunkt des Eingangssignals	[-]
X^*	Gleichgewichtsbeladung	[kg/kg]
\bar{X}	mittlere Beladung	[kg/kg]
$y(t)$	Antwort- bzw. Ausgangssignal	[-]
y_i	i -ter Messpunkt des Antwort- bzw. Ausgangssignals	[-]
z	Ortskoordinate im Festbett bzw. Filterkuchen	[m]

Griechische Symbole

α	Volumenverhältnis von Produkt zu Edukt	[-]
β	Stoffübergangskoeffizient	[m/s]
ε_E	Feststoffporosität des Eduktes	[-]
ε_P	Feststoffporosität des Produkts	[-]
ε_{Par}	Porosität des Partikels	[-]
ε_S	Porosität der Schüttung	[-]
η	dynamische Viskosität	[kg/(m s)]
η	Abscheidegrad	[-]
μ_i	i -tes Moment	[s ^{i}]
ρ_P	Feststoffdichte	[kg/m ³]
σ^2	Varianz	[s ²]
τ	Tortuositätsfaktor	[-]
ν_P	stöchiometrischer Koeffizient des Produktes	[-]
ν_E	stöchiometrischer Koeffizient des Eduktes	[-]
ξ_C	Durchmesser Verhältnis	[-]

Dimensionslose Kennzahlen

Pe	Péclet-Zahl
Pe_{ax}	axiale Péclet-Zahl
Pe_z	effektive Péclet-Zahl in axialer Richtung
Pe_r	effektive Péclet-Zahl in radialer Richtung
Re	Reynolds Zahl
Sc	Schmidt-Zahl
Sh	Sherwood-Zahl

12 Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1.1: Verfahrensbeispiel eines trockenen Rauchgasreinigungsverfahrens [1]	3
Abbildung 2.1: Abscheidemechanismen an Einzelfasern: a Sieb- oder Sperreffekt, b Trägheitseffekt, c Diffusionseffekt, d elektronischer Effekt [19]	7
Abbildung 2.2: Angenommener Druckverlauf bei der Durchströmung staubbelegter Filtermedien [19]	9
Abbildung 2.3: Verlauf des Druckverlustes bei konstanter Filtrationsgeschwindigkeit [17]	13
Abbildung 2.4: Filtrier- und Abreinigungsstellung eines druckluftabgereinigten Filterschlauchs [29]	15
Abbildung 2.5: Einfluss der Temperatur und der relativen Feuchte auf den SO ₂ -Abscheidegrad [30]	19
Abbildung 2.6: Schema für die Zerlegung einer beliebigen Eingangsfunktion in einzelne Pulsfunktionen	24
Abbildung 2.7: Berechnung der Antwort auf eine einzelne Pulsfunktion und Überlagerung der Pulsantworten des Systems als Antwort auf ein beliebiges Eingangssignal	24
Abbildung 2.8: Beispiel einer nicht idealen Sprungfunktion als Eingangssignal	25
Abbildung 2.9: Schematische Darstellung eines Partikels gemäß des Modells mit schrumpfendem Feststoffkern	27
Abbildung 3.1: Einfluss der Feuchte und Temperatur auf die kinematische Viskosität des Gasgemisches bestehend aus Luft und Wasserdampf bei einem Gasdruck von 101325 Pa	34
Abbildung 3.2: Abhängigkeit des molekularen Gasdiffusionskoeffizienten von SO ₂ in feuchter Luft von der Temperatur und der absoluten Feuchte bei einem Gasdruck 101325 Pa	35
Abbildung 3.3: Schematische Darstellung eines Flugstromreaktors/Rohgaskanals zur Veranschaulichung der Bilanzgleichung für die Flugstromphase	40
Abbildung 3.4: Filterkuchen als durchströmter Festbettreaktor	47
Abbildung 3.5: Schematische Darstellung des anwachsenden Filterkuchens zum Zeitpunkt t und zu einem späteren Zeitpunkt t + dt	50
Abbildung 4.1: Aufbau der Pilotanlage	54

Abbildung 4.2:	Prinzip des Feststoffdosierers	56
Abbildung 4.3:	Aufbau des Schlauchfilters mit Druckluftabreinigung	58
Abbildung 4.4:	R&I Fließbild der Versuchsanlage	60
Abbildung 5.1:	Versuchsaufbau zur Verweilzeitmessung	63
Abbildung 5.2:	Eingangssignal $x_n(t)$ und Antwortsignale $y_n(t)$ innerhalb der Filterschläuche auf der unteren Messebene, mittlere Filterflächenbelastung $60 \text{ m}^3 / (\text{m}^2 \text{ h})$, Temperatur $70 \text{ }^\circ\text{C}$	64
Abbildung 5.3:	Eingangssignal $x_n(t)$ und Antwortsignale $y_n(t)$ innerhalb des zentralen Filterschlauchs und im Rohgasraum der Filterkammer auf der unteren und oberen Messebene	66
Abbildung 5.4:	Schnittansichten der Filterkammer mit Geschwindigkeitsvektoren, die Färbung gibt die Größe der aufwärts gerichteten Komponente an: links: senkrechter Schnitt durch die Filterkammer, der Rohgasstutzen steht normal zur Papierebene; rechts oben: horizontaler Schnitt durch den Rohgasraum und die Filterschläuche; rechts unten: horizontaler Schnitt durch den Rohgasraum und Rohgasstutzen	68
Abbildung 6.1	Beispiel für den gemessenen Verlauf des Differenzdrucks in der Schlauchfilteranlage	71
Abbildung 6.2:	Abhängigkeit der Zykluszeit von der absoluten Gasfeuchte, Temperatur $60 \text{ }^\circ\text{C}$, $70 \text{ }^\circ\text{C}$, $90 \text{ }^\circ\text{C}$ und $140 \text{ }^\circ\text{C}$, SO_2 -Rohgaskonzentration 250 ppm	73
Abbildung 6.3:	Beispiel eines Differenzdruckmessschriebes zur Verdeutlichung des Einflusses von HCl auf den Differenzdruckverlauf bei einer Temperatur von $90 \text{ }^\circ\text{C}$	74
Abbildung 6.4:	Abhängigkeit der Zykluszeit von Temperatur, Feuchte und HCl -Konzentration	75
Abbildung 7.1:	Veränderung des Druckverlaufs und der Schadgaskonzentration im Reingas während der Abreinigung	76
Abbildung 7.2:	SO_2 -Abscheidegrad in Abhängigkeit von der absoluten Feuchte und der Gastemperatur, SO_2 -Rohgaskonzentration 250 ppm , Ca/S -Verhältnis ≈ 2 , mittlere Filtrationsgeschwindigkeit $60 \text{ m}^3 / (\text{m}^2 \text{ h})$	78
Abbildung 7.3:	Abhängigkeit des SO_2 -Abscheidegrades von der Feuchte und der Temperatur bei verschiedenen stöchiometrischen Verhältnissen von $\text{Ca/S} = 2$ und $\text{Ca/S} = 4$	79

Abbildung 7.4: SO ₂ -Abscheidegrad in Abhängigkeit von der relativen Feuchte, der Rauchgastemperatur und dem stöchiometrischen Verhältnis	81
Abbildung 7.5: Einfluss von HCl als zusätzlicher Rohgaskomponente auf den SO ₂ -Abscheidegrad, Vergleich der Effekte bei verschiedenen Rauchgasfeuchten und einer Temperatur von 90 °C	82
Abbildung 7.6: Einfluss von HCl als zusätzlicher Schadgaskomponente auf die SO ₂ -Abscheidung	83
Abbildung 8.1: Vergleich von gemessenen [11] und in dieser Arbeit berechneten SO ₂ -Durchbruchskurven für verschiedene Gasfeuchten, Temperatur 70 °C, Rohgaskonzentration 750 ppm, Filtrationsgeschwindigkeit 80 m ³ / (m ² h)	86
Abbildung 8.2: Auftragung des Ausdruckes (k _{ad} ·H) über der absoluten Feuchte, Ergebnis der Parameteranpassung für verschiedene Modellgasfeuchten	88
Abbildung 8.3: Wasserdampfsorptionsisotherme von calciumhaltigen Sorbentien, Temperatur 70 °C [65]. Zusätzlich ist das Ergebnis der Parameteranpassung von (k _{ad} H) auf aufgetragen.	89
Abbildung 8.4: Auftragung des Parameters K über der absoluten Feuchte, Ergebnis der Parameteranpassung für verschiedene Modellgasfeuchten	90
Abbildung 8.5: Verschaltung von Flugstrom- und Festbettreaktoren zur Modellierung der Schadgasabscheidung in Schlauchfilteranlagen	91
Abbildung 8.6: Beispiel für eine idealisierte Berechnung der zeitlichen Verläufe der Flächenmasse W ₁ (t), der Filtrationsgeschwindigkeit u _{0,1} (t) und des Differenzdruckes Δp(t) für die Schlauchreihe 1	92
Abbildung 8.7: Vergleich des gemessenen mit dem berechneten Differenzdruckverlauf. Anpassungsparameter des Modells sind die Größen K _M und K _K	94
Abbildung 8.8: Vergleich eines gemessenen Verlaufs der SO ₂ -Reingaskonzentration mit modellierten Konzentrationsverläufen	95
Abbildung 8.9: Verlauf der gemessenen und berechneten Reingaskonzentration hinter einem einzelnen Filterelement (mittlere Reihe, äußerer Schlauch)	97
Abbildung 8.10: Vergleich der gemessenen und berechneten Abscheidegrade bei 70 °C und einer mittleren Filtrationsgeschwindigkeit von 60 m ³ /(m ² h) für verschiedene Feuchten des Modellrauchgases	99

13 Anhang

Mathematische Grundlagen zur Bestimmung der Verweilzeit anhand nicht idealer Sprungfunktionen

Für das Eingangs- und Antwortsignal sollen die Bedingungen

$$x(t \leq 0) = 0 \quad , \quad (13.2)$$

$$y(t \leq 0) = 0 \quad , \quad (13.3)$$

$$\lim_{t \rightarrow \infty} x(t) = 1 \quad (13.4)$$

und

$$\lim_{t \rightarrow \infty} y(t) = 1 \quad (13.5)$$

gelten.

Außerdem wird vorausgesetzt, dass die uneigentlichen Integrale

$$A_x = \int_0^{\infty} 1 - x(t) dt \quad (13.6)$$

und

$$A_y = \int_0^{\infty} 1 - y(t) dt \quad (13.7)$$

konvergieren.

Mit der Definition

$$a_y(t) = \int_0^t 1 - y(t') dt' \quad (13.8)$$

kann die Fläche A_y auch als Grenzwert

$$A_y = \lim_{t \rightarrow \infty} a_y(t) \quad (13.9)$$

geschrieben werden.

Mit $L\{f(t)\} = F(s)$ wird die Laplace-Transformierte der Funktion $f(t)$ bezeichnet. Mit Hilfe des Grenzwertsatzes

$$\lim_{t \rightarrow \infty} f(t) = \lim_{s \rightarrow 0} (s \cdot F(s)) \quad (13.10)$$

kann Gleichung (13.9) auch durch

$$A_y = \lim_{t \rightarrow \infty} a_y(t) = \lim_{s \rightarrow 0} (s \cdot L\{a_y(t)\}) = \lim_{s \rightarrow 0} \left(s \cdot L \left\{ \int_0^t 1 - y(t') dt' \right\} \right) \quad (13.11)$$

ausgedrückt werden. Durch Anwendung des Integrations- und Additionssatzes ergibt sich für A_y der Ausdruck

$$\begin{aligned} A_y &= \lim_{t \rightarrow \infty} a_y(t) = \lim_{s \rightarrow 0} (s \cdot L\{a_y(t)\}) \\ &= \lim_{s \rightarrow 0} \left(s \cdot L \left\{ \int_0^t 1 - y(t') dt' \right\} \right) \\ &= \lim_{s \rightarrow 0} \left(s \cdot \frac{1}{s} L\{1 - y(t)\} \right) \\ &= \lim_{s \rightarrow 0} (L\{1\} - L\{y(t)\}) \quad . \end{aligned} \quad (13.12)$$

Die Laplace-Transformierte $L\{1\}$ entspricht s^{-1} . Somit kann der Grenzwert der Differenz in Gleichung (13.12) auch als Bruch in der Form

$$\begin{aligned} A_y &= \lim_{s \rightarrow 0} (L\{1\} - L\{y(t)\}) = \lim_{s \rightarrow 0} \left(\frac{1}{s} - L\{y(t)\} \right) \\ &= \lim_{s \rightarrow 0} \left(\frac{1 - s \cdot L\{y(t)\}}{s} \right) \end{aligned} \quad (13.13)$$

geschrieben werden, auf den die Regel von *de l' Hospital* angewendet werden kann. Durch Differentiation des Zählers und Nenners in Gleichung (13.13) wird der Grenzwert bzw. die Fläche A_y durch

$$\begin{aligned} A_y &= \lim_{s \rightarrow 0} \left(\frac{1 - s \cdot L\{y(t)\}}{s} \right) = \lim_{s \rightarrow 0} \left(\frac{\frac{d}{ds} (1 - s \cdot L\{y(t)\})}{\frac{d}{ds} s} \right) \\ &= \lim_{s \rightarrow 0} \left(\frac{d}{ds} (-s \cdot L\{y(t)\}) \right) = \lim_{s \rightarrow 0} \left(-L\{y(t)\} - s \frac{d}{ds} L\{y(t)\} \right) \end{aligned} \quad (13.14)$$

ausgedrückt. Laut Gleichung (2.20) bzw. (2.21) entspricht das Antwortsignal $y(t)$ der Faltung von $x(t)$ mit der Funktion $E(t)$. Die Faltung im Originalbereich kann gemäß des Faltungssatzes als gewöhnliche Multiplikation der Laplace-Transformierten geschrieben werden, so dass aus Gleichung (13.14) der Ausdruck

$$\begin{aligned} A_y &= \lim_{s \rightarrow 0} \left(-L\{y(t)\} - s \frac{d}{ds} L\{y(t)\} \right) \\ &= \lim_{s \rightarrow 0} \left(-L\{x(t) \otimes E(t)\} - s \frac{d}{ds} L\{x(t) \otimes E(t)\} \right) \\ &= \lim_{s \rightarrow 0} \left(-L\{x(t)\} \cdot L\{E(t)\} - s \frac{d}{ds} (L\{x(t)\} \cdot L\{E(t)\}) \right) \\ &= \lim_{s \rightarrow 0} \left(-L\{x(t)\} \cdot L\{E(t)\} - s \cdot \frac{d}{ds} L\{x(t)\} \cdot L\{E(t)\} - s \cdot L\{x(t)\} \cdot \frac{d}{ds} L\{E(t)\} \right) \end{aligned} \quad (13.15)$$

hervorgeht. Diese Gleichung kann vereinfacht werden, indem die Gleichungen (2.17), (2.18) und (13.4) ebenfalls als Grenzwert einer Laplace-Transformierten in der Form

$$1 = \int_0^{\infty} E(t) dt = \lim_{s \rightarrow 0} L\{E(t)\} \quad (13.16)$$

$$\bar{t} = \int_0^{\infty} tE(t) dt = \lim_{s \rightarrow 0} L\{t \cdot E(t)\} = \lim_{s \rightarrow 0} \left(-\frac{d}{ds} L\{E(t)\}\right) \quad (13.17)$$

$$1 = \lim_{t \rightarrow \infty} x(t) = \lim_{t \rightarrow \infty} (s \cdot L\{x(t)\}) \quad (13.18)$$

geschrieben und in Gleichung (13.15) eingesetzt werden

$$\begin{aligned} A_y &= \lim_{s \rightarrow 0} \left(-L\{x(t)\} \cdot L\{E(t)\} - s \cdot \frac{d}{ds} L\{x(t)\} \cdot L\{E(t)\} - s \cdot L\{x(t)\} \cdot \frac{d}{ds} L\{E(t)\}\right) \quad (13.19) \\ &= \lim_{s \rightarrow 0} \left(-L\{x(t)\} \cdot 1 - s \cdot \frac{d}{ds} L\{x(t)\} \cdot 1 - 1 \cdot (-\bar{t})\right) \\ &= \lim_{s \rightarrow 0} \left(-L\{x(t)\} - s \cdot \frac{d}{ds} L\{x(t)\}\right) + \bar{t} \end{aligned}$$

Analog zu Gleichung (13.14) entspricht letztendlich der Grenzwertausdruck in Gleichung (13.19) gerade der Fläche A_x , womit die Beziehung

$$A_y = A_x + \bar{t} \quad (13.20)$$

zwischen den Flächen A_x und A_y nicht idealer Sprungfunktionen und der mittleren Verweilzeit des Fluids \bar{t} hergestellt ist.

Die mittlere Verweilzeit des Fluids \bar{t} kann bei diskreten Messpunkten des Eingangs- und Antwortsignals mit Hilfe des Zusammenhangs

$$\begin{aligned} \bar{t} = A_y - A_x &= \int_0^{\infty} 1 - y(t) dt - \int_0^{\infty} 1 - x(t) dt \quad (13.21) \\ &= \int_0^{\infty} x(t) - y(t) dt \\ &\approx \sum_i [(x_i - y_i) \cdot \Delta t_i] \end{aligned}$$

ermittelt werden.

Lebenslauf

Persönliche Daten

Name: Jörg Vietmeier
geboren am: 09.05.72 in Greven
Familienstand: verheiratet

Schulbildung

1979 - 1983 Grundschule Lengerich (Westf) – Niedermark
1983 - 1992 Städt. Gymnasium Lengerich (Westf)
06/1992 Abitur

1992 - 1993 Ableistung des Wehersatzdienstes

Studium

10/1993 – 05/1999 Universität Dortmund, Studium der Chemietechnik
Abschluss: Diplom-Ingenieur

Berufstätigkeit

06/1999 – 06/2003 Wissenschaftlicher Angestellter am Lehrstuhl für
Mechanische Verfahrenstechnik, Universität Dortmund,
Prof. Dr.-Ing. U. Werner, Prof. Dr. techn. P. Walzel

10/2003 – 01/2005 Wissenschaftlicher Mitarbeiter im Nordzucker InnoCenter
(GmbH) im Bereich Verfahrenstechnik, Braunschweig

seit 02/2005 Manager Produktion und Technik im Standort Schladen
der Nordzucker AG