

# Neue Wege der Stickstoffoxidminderung bei der energetischen Nutzung von landwirtschaftlichen Reststoffen

Winfried Juschka, Michael Struschka

Die energetische Verwertung von landwirtschaftlichen Reststoffen, wie z. B. Heu, Stroh oder Reste der Getreidereinigung, ist aus wirtschaftlichen und energiepolitischen Gesichtspunkten in Betracht zu ziehen. Allerdings ist deren Nutzung gegenüber Holzbrennstoffen aufgrund von ungünstigen Brennstoffeigenschaften feuerungstechnisch anspruchsvoller. In einem Verbundprojekt wurde ein neues Verbrennungskonzept entwickelt und intensiv getestet. Neben einer weitgehend vollständigen Verbrennung konnten vor allem auch die Stickstoffoxidemissionen deutlich reduziert werden. Es ergab sich ein deutlicher Zusammenhang von Stickstoffoxidkonzentrationen im Abgas und den Reduktionsbedingungen in der Ausbrandzone, die mithilfe der numerischen Strömungs- und Verbrennungssimulation abgebildet werden konnten. Die neuen Erkenntnisse liefern wertvolle Informationen für die Entwicklung und optimale Betriebsführung neuer Feuerungsanlagen für landwirtschaftliche Reststoffe.

## Schlüsselwörter

Biomasse, landwirtschaftliche Reststoffe, Verbrennung, Stickstoffoxide, CFD-Simulation

Die starke Nachfrage nach Holzbrennstoffen und die steigenden Preise der Energieträger erfordern die Suche nach alternativen biogenen Brennstoffen, wie z.B. Heu, Miscanthus, Stroh oder Getreidereste. Die derzeit auf dem Markt verfügbaren Feuerungen kleiner und mittlerer Leistung für landwirtschaftliche Reststoffe haben ohne hohen Wartungsaufwand weder eine ausreichende Betriebssicherheit noch halten sie die Grenzwerte für neu errichtete Anlagen ein. Deshalb stand die Untersuchung von grundsätzlichen Vorgängen bei der thermischen Zersetzung dieser biogenen Brennstoffe in Feuerungssystemen kleiner und mittlerer Leistung (Leistungsbereich ca. 50–500 kW) im Fokus des Verbundprojektes. Dabei sollten auch primäre Minderungsmaßnahmen für Stickstoffoxide untersucht werden, die mit einer möglichst vollständigen Verbrennung und damit geringen Konzentrationen von Produkten unvollständiger Verbrennung über einen weiten Leistungsbereich möglich sein müssen. Diese Anforderungen wurden in dem Verbundprojekt mit einem Feuerungshersteller in einem Prototyp mit einem neuen Verbrennungskonzept für die thermische Nutzung von landwirtschaftlichen Reststoffen umgesetzt. Mit diesem Prototyp wurden Verbrennungsversuche mit Heupellets, als Vertreter für landwirtschaftliche Reststoffe, sowie mit dem Referenzbrennstoff Holzpellets in DINplus-Qualität durchgeführt.

## Bildung von Stickstoffverbindungen und deren Reduktion

Der Stickstoffgehalt des Brennstoffs wirkt sich direkt auf die Stickstoffoxidemissionen der Biomassefeuerungen, in dem hier betrachteten Leistungsbereich bis einige hundert kW, aus (KELLER 1994, HARTMANN et al. 2007, EDER et al. 2006). Die Stickstoffoxidkonzentration im Abgas nimmt, bei vergleichbaren Verbrennungsbedingungen, mit steigendem Brennstoffstickstoffgehalt zu. Die Oxidation des im Brennstoff gebundenen Stickstoffes stellt hier den wichtigsten Bildungspfad für Stickstoffoxide dar. Die Bildung von thermischen oder prompten Stickstoffoxiden ist, aufgrund von zu geringen Verbrennungstemperaturen, nur von untergeordneter Bedeutung. Dies zeigt u.a. KELLER (1994) bei Verbrennungsversuchen mit der Substitution des Luftstickstoffes durch Argon. In dieser Arbeit werden unter anderem die Vorgänge und die möglichen Reaktionspfade bei der Stickstoffoxidbildung zusammenfassend beschrieben. So wird bei der thermischen Zersetzung von Biomassen der überwiegende Teil des Brennstoffstickstoffs als elementarer Stickstoff freigesetzt. Ein geringerer Anteil des Brennstoffstickstoffes wird als stickstoffoxidbildende Komponenten in Form von Cyanwasserstoff (HCN), Ammoniak ( $\text{NH}_3$ ) und Stickstoffmonoxid (NO) freigesetzt, aus Letzterem bildet sich in geringem Umfang Stickstoffdioxid ( $\text{NO}_2$ ). Die Komponenten NO und  $\text{NO}_2$  werden zusammenfassend als  $\text{NO}_x$  bezeichnet und sind als Masse von  $\text{NO}_2$  berechnet. Ein gewisser Anteil des Brennstoffstickstoffs wird nicht freigesetzt und verbleibt in den Verbrennungsrückständen.

Inwieweit sich aus den stickstoffoxidbildenden Komponenten im weiteren Verbrennungsverlauf  $\text{NO}_x$  bildet bzw. bereits gebildetes  $\text{NO}_x$  erhalten bleibt, hängt von den Bedingungen in den nachfolgenden Reaktionszonen ab. Liegen im Wesentlichen oxidative Bedingungen vor, ergeben sich hohe  $\text{NO}_x$ -Konzentrationen im Abgas. Eine wirksame primärseitige Minderung der  $\text{NO}_x$ -Konzentration im Abgas der Feuerungsanlage wird nur dann erreicht, wenn eine definierte Reduktionszone bei kontrollierten Verbrennungsbedingungen vorliegt. Haupteinflussparameter für den Abbau der gebildeten Stickstoffverbindungen sind die Temperatur, die Sauerstoffkonzentration, der Gehalt von Methan, Cyanwasserstoff und Ammoniak in der Reduktionszone. Die Konzentrationen von Wasserstoff, Wasserdampf, Kohlenstoffmonoxid und Kohlenstoffdioxid haben keinen nennenswerten Einfluss auf die Reduktion der Stickstoffverbindungen. Bei der homogenen Reduktion von Cyanwasserstoff und Ammoniak in der Gasphase entscheidet die Einhaltung der stöchiometrischen Verhältnisse darüber, ob deren Weiterreaktion zu  $\text{NO}_x$  oder zu molekularem Stickstoff ( $\text{N}_2$ ) abläuft. Unter sauerstoffarmen Bedingungen wird die  $\text{NO}_x$ -Bildung unterdrückt und das Gleichgewicht verschiebt sich in Richtung von molekularem Stickstoff. Für den vollständigen Abbau von Stickstoffverbindungen in der Gasphase sollten folgende Bedingungen eingehalten werden (KELLER 1994):

- Temperaturen in der Reduktionszone 1.100–1.200 °C
- unterstöchiometrische Bedingungen
- Abwesenheit von Methan
- Molverhältnis  $\text{NO}/\text{NH}_3$  von 2
- homogene Konzentrationsverteilung der Reaktionspartner

## Neues Verbrennungskonzept für landwirtschaftliche Reststoffe

Für die Verbrennung von landwirtschaftlichen Reststoffen sind Feuerungsanlagen kleiner und mittlerer Leistung, die für Holzbrennstoffe entwickelt wurden, nur bedingt tauglich. Die hohen Aschegehalte und die niedrigen Ascheschmelzpunkte von vielen landwirtschaftlichen Reststoffen führen meist zu Betriebsproblemen durch massive Verschlackungen im Brennstoffbett. Damit verbunden

sind Leistungseinbrüche, hohe Emissionen von Produkten unvollständiger Verbrennung und Probleme beim Austrag der Verbrennungsrückstände. Die teilweise hohen Stickstoffgehalte der landwirtschaftlichen Reststoffe führen zu hohen bis sehr hohen Stickstoffoxidemissionen. Dies kann in der Praxis bei Anlagen im Geltungsbereich der TA Luft (2002) zu Grenzwertüberschreitungen oder bei Anlagen im Geltungsbereich der 1. BImSchV (2010) zur Nichteinhaltung der Anforderungen an den Emissionsgrenzwert bei der Typprüfung führen. Um diese Probleme zu vermeiden, wurde in einem Verbundprojekt mit einem Hersteller ein neues Verbrennungskonzept für die thermische Nutzung von landwirtschaftlichen Reststoffen entwickelt, bei dem eine Aufteilung der Verbrennungsphasen Entgasung sowie Oxidation der Pyrolysegase und der Entgasungsrückstände in getrennten Reaktionsräumen erfolgt.

Abbildung 1 zeigt das Schema des Verbrennungskonzeptes, welches in einem Prototyp umgesetzt wurde, der an einen marktüblichen Heizkessel angebaut wurde. Um Versinterungen und Verschlackungen im Brennstoffbett entgegenzuwirken, soll die Entgasung des Brennstoffes bei möglichst niedrigen Temperaturen stattfinden. Dies wird durch die Einstellung einer möglichst geringen Luftüberschusszahl in der primären Entgasungszone erreicht. Zusätzlich ist ein Bewegungselement zur Vermeidung von Brennstoffanhaftungen und zur Auflösung von bereits gebildeten Verschlackungen in die primäre Entgasungszone eingebaut. Der Austrag von Brennstoff- und Aschepartikeln wird durch die vergleichsweise geringen Strömungsgeschwindigkeiten in der primären Entgasungszone minimiert. Dadurch können die Staubkonzentrationen im Abgas vergleichsweise gering gehalten werden.

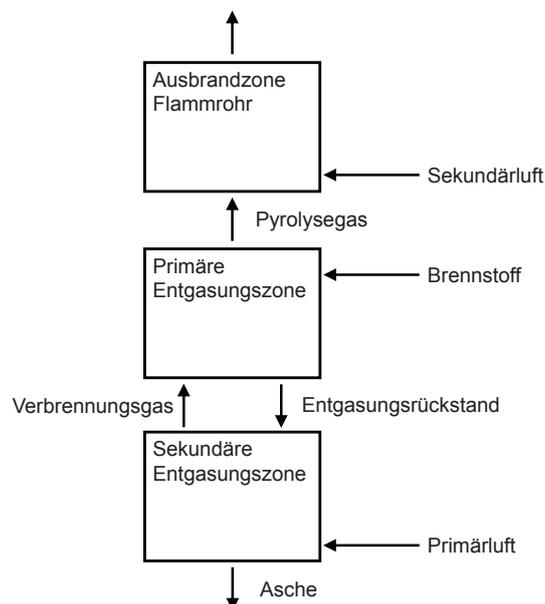


Abbildung 1: Schematische Darstellung des im Prototypen umgesetzten Verbrennungskonzeptes

Die in der primären Entgasungszone entstandenen Pyrolysegase werden mit Sekundärluft vermischt und in der nachfolgenden Ausbrandzone in einem Flammrohr weitgehend vollständig oxidiert. Durch den geringen Luftüberschuss und die niedrigen Entgasungstemperaturen in der primären Entgasungszone kann der Kohlenstoff im Brennstoff nicht vollständig umgesetzt werden. Dieser Entgasungsrückstand setzt sich aus nicht vollständig umgesetztem Brennstoff und der Asche zusammen.

Für eine vollständige Brennstoffumsetzung wird der Entgasungsrückstand in die darunterliegende sekundäre Entgasungszone überführt und durch Zugabe von Verbrennungsluft weiter oxidiert. Die hier vorgestellten Versuchsergebnisse wurden meist ohne Nutzung der sekundären Entgasungszone gewonnen. Die Verwendung der sekundären Entgasungszone erschwert eine für die Untersuchungen notwendige Bilanzierung der Stoffströme, da sich hier stationäre Zustände schwerer und weniger reproduzierbar einstellen lassen. In der sekundären Entgasungszone fand somit keine bzw. nur eine sehr geringe Brennstoffumsetzung statt. Das Verbrennungsgas entspricht daher in diesen Fällen der primären Verbrennungsluft.

Da der Zündvorgang und die Aufwärmphase mit Heupellets vergleichsweise lange dauerte und mit teilweise höheren Emissions- und Geruchsbelastungen einherging, wurden die Versuche überwiegend mit Holzpellets durchgeführt. Außerdem konnte mit Heupellets, unabhängig vom Betriebszustand, ein stationärer Zustand nicht über einen längeren Zeitraum gewährleistet werden, da es trotz des Bewegungselementes zeitweise zu Verschlackungen und ungleichmäßigen Entgasungsvorgängen kam.

Der Prototyp wurde am Institut für Feuerungs- und Kraftwerkstechnik (IFK) installiert und für die messtechnische Untersuchung mit Holz- und Heupellets betrieben. Für die Bewertung des Prototyps wurde eine umfassende Stoffstrombilanz erstellt, wodurch die Einflussparameter bei der Bildung und Reduktion von Stickstoffoxiden aufgezeigt werden können. In Abbildung 2 ist das Bilanzierungsschema für das umgesetzte Verbrennungskonzept dargestellt. Die Bilanzierungs- und Kontrollrechnungen konnten mit den Messwerten abgeglichen werden. Damit war es möglich, den Umwandlungsgrad von Kohlenstoff in  $\text{CO}_2$  ( $X_C$ ) und den Umwandlungsgrad von Brennstoffstickstoff zu Stickstoffoxiden ( $X_N$ ) zu bestimmen. Der jeweilige Umwandlungsgrad ist das prozentuale molare Verhältnis aus der freigesetzten, im Abgas gemessenen Verbindung ( $\text{CO}_2$  und  $\text{NO}_x$  als  $\text{NO}_2$ ) und die durch den Brennstoff eingebrachte Menge des Stoffes (C und N), abzüglich der verbliebenen Menge des Stoffes (C und N) in den Entgasungsrückständen. Für die Bilanzierung wurde auf eine weitere Oxidation der Entgasungsrückstände verzichtet. Diese wurden nach dem Ausschleusen aus der primären Entgasungszone mit Hilfe der Ascheschnecke aus der Feuerung ausgetragen. Der Falschlufteintrag durch Öffnungen und

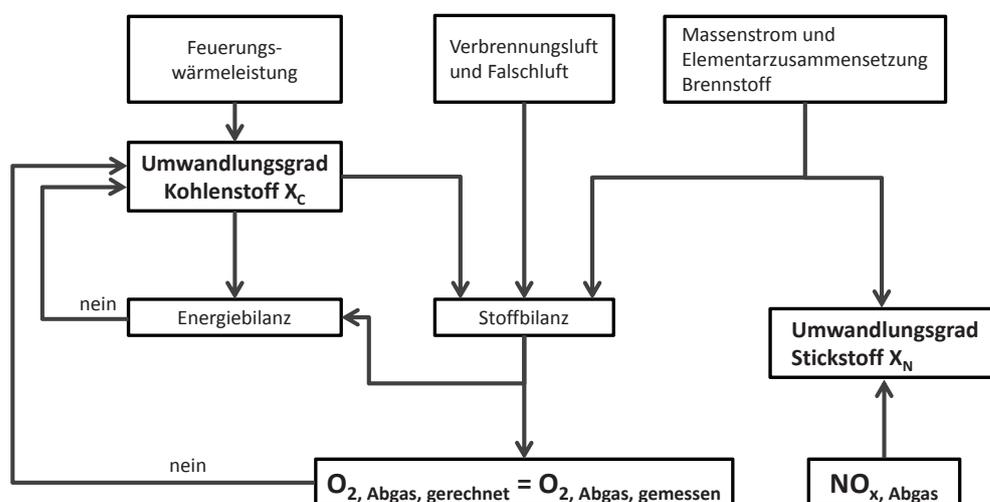


Abbildung 2: Bilanzierungsschema zur Berechnung der Umwandlungsgrade  $X_C$  und  $X_N$

Undichtigkeiten im Heizkessel und in der Abgasstrecke liegt im Bilanzierungsraum und muss infolgedessen bestimmt werden. Da dieser Falschlufteintrag nicht messbar ist, musste er abgeschätzt werden. Die Abschätzung erfolgte anhand eines Versuches, bei dem die Wärmeleistung, der Primärluftstrom und der Brennraumunterdruck über einen Zeitraum von über zwei Stunden konstant gehalten wurden. In diesem Versuch wurden drei verschiedene Restsauerstoffgehalte im Abgas eingestellt. Dabei wurde die Bilanzgleichung nach Abbildung 2 gelöst, indem der Kohlenstoffumsatz bei allen drei Messreihen so gewählt wurde, dass die Energiebilanzen über die zweistündige Versuchszeit die geringsten Abweichungen aufwiesen. Danach wurde die Falschlufteintragsrate für alle drei Messreihen so festgelegt, dass sich wieder bei allen drei Messreihen gleiche Werte für die gerechnete und die gemessene Sauerstoffkonzentration im Abgas ergaben. Der so ermittelte Falschlufteintrag wurde dann für alle Versuche angesetzt und als konstant, bei konstantem Brennraumunterdruck, angenommen.

Für die Bilanzierungsräume der primären und sekundären Entgasungszone sowie der Ausbrandzone wurden jeweils Luftüberschusszahlen berechnet. Die Luftüberschusszahl für den Bilanzierungsraum primäre und sekundäre Entgasungszone wird als Primärluftzahl und die Luftüberschusszahl für den Bilanzierungsraum der Ausbrandzone wird als Gesamtluftzahl bezeichnet. Die Primär- und die Gesamtluftzahl beziehen sich immer auf den gesamten Brennstoff, das heißt es wird der Quotient aus der tatsächlichen Verbrennungsluft zur minimal benötigten Verbrennungsluft für eine vollständige Verbrennung des Brennstoffes gebildet. Die Luftzahlen sind somit unabhängig vom Umwandlungsgrad des Kohlenstoffes. Da die Bedingungen im Brennstoffbett in der primären Entgasungszone nicht genau erfasst werden konnten, ist der berechnete Umwandlungsgrad für den Kohlenstoff und den Stickstoff noch mit einer gewissen Unsicherheit behaftet. Diese Einflussfaktoren sind zum Beispiel die örtlichen Temperaturen im Brennstoffbett, die Brennstoffbetthöhe, das Verhältnis von frischem Brennstoff zu Entgasungsrückständen, die Intensität der Brennstoffbewegung und der lokale Sauerstoffüberschuss im Brennstoffbett. Zum Vergleich der unterschiedlichen Betriebszustände und Brennstoffe müssen die Messwerte auf einen einheitlichen Bezugssauerstoffgehalt umgerechnet werden. Daher sind alle Ergebnisse auf 13 % O<sub>2</sub> bezogen.

In Abbildung 3 ist beispielhaft der Umwandlungsgrad des Kohlenstoffes  $X_C$  über der Primärluftzahl  $\lambda_{\text{Primär}}$  bei der Verbrennung von Holzpellets im Prototyp aufgetragen. Die einzelnen Punkte stel-

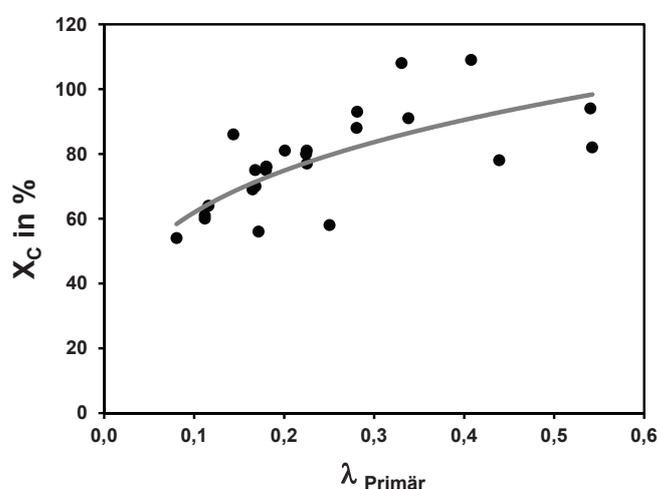


Abbildung 3: Zusammenhang zwischen Primärluftzahl  $\lambda_{\text{Primär}}$  und Umwandlungsgrad  $X_C$  bei der Verbrennung von Holzpellets im Prototyp

len berechnete Mittelwerte aus verschiedenen Versuchen mit einer Dauer von ca. 15 bis 30 Minuten dar, die an unterschiedlichen Tagen durchgeführt wurden. Es ist eine Abhängigkeit zwischen der Primärluftzahl und dem Kohlenstoffumsatz  $X_C$  zu erkennen. Allerdings sind auch Versuchsmittelwerte vorhanden, bei denen neben der Primärluft die bereits genannten weiteren Einflussfaktoren die Kohlenstoffumsetzung beeinflusst haben. Diese Einflussfaktoren sind vermutlich auch Ursache für die größere Streuung der berechneten Versuchsmittelwerte.

Zwischen dem Umwandlungsgrad  $X_N$  des Brennstoffstickstoffes in  $\text{NO}_x$  und dem Umwandlungsgrad  $X_C$  des Kohlenstoffes in  $\text{CO}_2$  ergibt sich bei Holzpellets kein Zusammenhang (Abbildung 4). Dies bedeutet, dass die Höhe der Stickstoffoxidkonzentration im Abgas beim Prototyp bei der Verbrennung von Holzpellets in DINPlus-Qualität nicht durch die Primärluftzahl bestimmt wird und damit auch nicht durch geringe Primärluftzahlen reduziert werden kann. Infolgedessen ist der Anteil der Stickstoffoxide, die sich aus dem Brennstoffstickstoff bilden, bei Holzpellets weitgehend unabhängig vom Umwandlungsgrad des Kohlenstoffes.

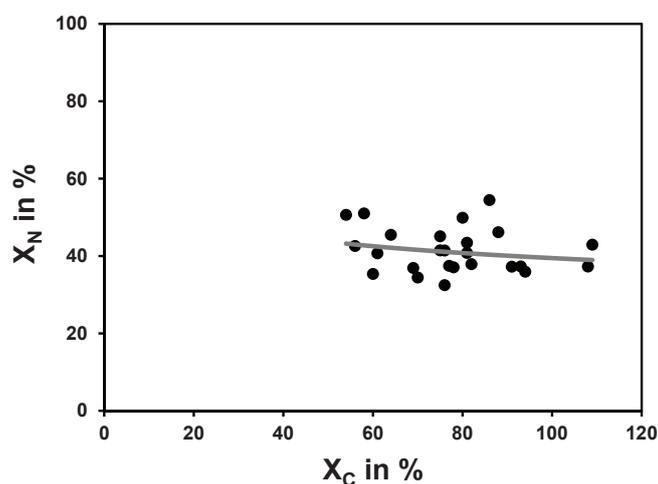


Abbildung 4: Zusammenhang zwischen dem Umwandlungsgrad von Kohlenstoff  $X_C$  und von Stickstoff  $X_N$  bei der Verbrennung von Holzpellets im Prototyp

Allerdings konnte ein Zusammenhang zwischen der Gesamtluftzahl  $\lambda_{\text{Global}}$  und den  $\text{NO}_x$ -Konzentrationen bei gleichem Brennstoffumsatz ermittelt werden. In Abbildung 5 ist dieser Zusammenhang beispielhaft dargestellt, wobei neben den  $\text{NO}_x$ - auch die  $\text{CO}$ -Konzentrationen in Abhängigkeit der Gesamtluftzahl  $\lambda_{\text{Global}}$  aufgeführt sind. Die Verbrennungsversuche wurden mit Holzpellets im Prototyp über einen Messzeitraum von jeweils ca. 40 Minuten durchgeführt. Gezeigt werden Mittelwerte einer Messreihe von jeweils 10 Sekunden mit einer Primärluftzahl von  $\lambda_{\text{Primär}} = 0,18$  und einem Umwandlungsgrad  $X_C$  von 75–76 %, bei unterschiedlichen mittleren Restsauerstoffgehalten im Abgas von 2,6 / 4,6 und 7,0 %. Hierbei ergeben sich  $\text{NO}_x$ -Konzentrationen im Abgas von 140  $\text{mg}/\text{m}^3$  bei einem  $\lambda_{\text{Global}}$  im Bereich von 1,4 bis 1,6. Mit abnehmenden  $\lambda_{\text{Global}}$  nehmen auch die  $\text{NO}_x$ -Konzentrationen in etwa linear bis zu einem Minimum von ca. 80  $\text{mg}/\text{m}^3$  ab. Die Reduktion der Stickstoffoxide findet im Bereich der Ausbrandzone im Flammrohr statt. Dies wird im nachfolgenden Abschnitt mithilfe der numerischen Simulation beschrieben. Die  $\text{CO}$ -Konzentrationen sind über einen weiten  $\lambda_{\text{Global}}$ -Bereich äußerst niedrig. Erst ab einer Gesamtluftzahl von kleiner 1,2 nehmen auch die  $\text{CO}$ -Konzentrationen zu.

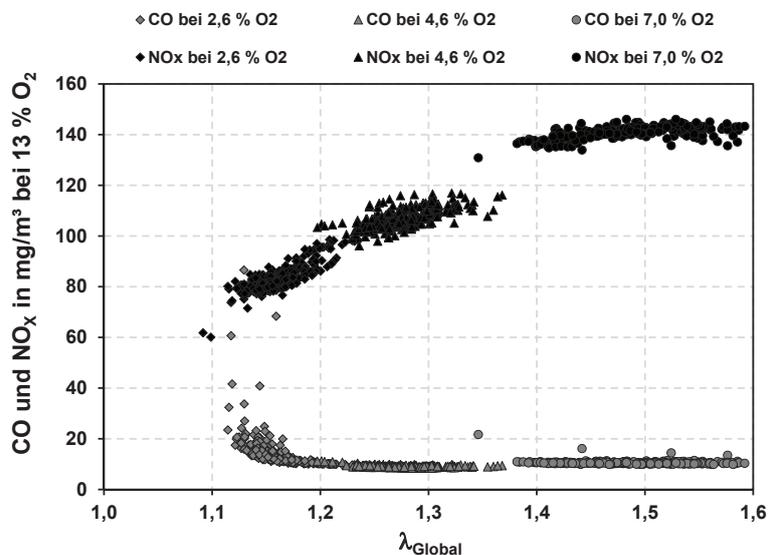


Abbildung 5: CO- und NO<sub>x</sub>-Konzentrationen in Abhängigkeit der Gesamtluftzahl  $\lambda_{Global}$  bei der Verbrennung von Holzpellets im Prototyp

In Abbildung 6 sind mittlere NO<sub>x</sub>-Konzentrationen (Mittelungszeit jeweils 10 s) bei unterschiedlicher Primärluftzahl und unterschiedlichem Umwandlungsgrad des Kohlenstoffs  $X_C$  in Abhängigkeit der Gesamtluftzahl  $\lambda_{Global}$  aufgetragen. Bei diesen unterschiedlichen Versuchen kann eine Abnahme der NO<sub>x</sub>-Konzentrationen bei einer Verringerung von  $\lambda_{Global}$  für alle eingestellten Primärluftzahlen und unterschiedliche Umwandlungsgrade  $X_C$  beobachtet werden. Das NO<sub>x</sub>-Konzentrationsniveau und die Konzentrationsabnahme sind von weiteren Einflussfaktoren in der primären Entgasungszone abhängig. Um die weiteren Einflussfaktoren in der primären Entgasungszone auf die NO<sub>x</sub>-Konzentrationen zu bewerten, sind weitere Untersuchungen notwendig.

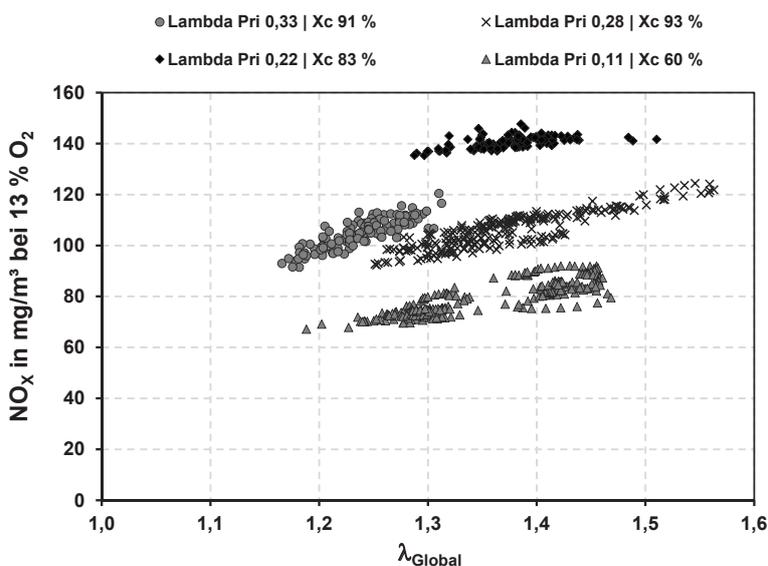


Abbildung 6: NO<sub>x</sub>-Konzentrationen bei unterschiedlichen Primärluftzahlen (Lambda Pri) und Umwandlungsgraden  $X_C$  in Abhängigkeit der Gesamtluftzahl  $\lambda_{Global}$  bei der Verbrennung von Holzpellets im Prototyp

Bei der Verbrennung von Heupellets im Prototyp ergeben sich aufgrund der, im Vergleich zu Holzpellets, unterschiedlichen Brennstoffeigenschaften (z.B. Entgasungsverhalten) und unterschiedlichen Konzentrationen an Inhaltsstoffen (z.B. Brennstoffstickstoff) z.T. andere Zusammenhänge. In Tabelle 1 sind die Hauptelemente und Heizwerte der eingesetzten Brennstoffe gegenübergestellt.

Tabelle 1 Hauptelemente und Heizwerte der eingesetzten Holz- und Heupellets

		Holzpellets	Heupellets
Flüchtige Stoffe - roh -	%	79,1	67,5
Fixed C - roh -	%	15,6	15,7
Wasser (H <sub>2</sub> O) - roh -	%	4,9	7,2
Kohlenstoff (C) - roh -	%	47,8	41,2
Organischer Wasserstoff (H) - roh -	%	5,33	5,15
Sauerstoff (O) - roh -	%	41,4	35,2
Stickstoff (N) - roh -	%	0,10 <sup>1)</sup>	1,62
Asche (A) - roh -	%	0,42	9,55
Heizwert (Hi) - roh -	MJ/kg	17,68	15,11
Heizwert (Hi) - waf -	MJ/kg	19,69	19,80

roh = Brennstoff wie verfeuert (feucht); waf = wasser- und aschefrei

<sup>1)</sup> Stickstoffgehalt eigener Analysen lag unter dem Bestimmungswert von 0,3 %, daher wurde ein Literaturwert verwendet (HARTMANN et al. 2007).

So hängt bei Heupellets der Umwandlungsgrad  $X_N$  von Brennstoffstickstoff zu  $NO_x$  deutlich vom Umwandlungsgrad des Kohlenstoffes  $X_C$  ab (Abbildung 7). Bei sinkendem Kohlenstoffumsatz in der primären Entgasungszone nimmt auch der Umwandlungsgrad  $X_N$  ab. Dadurch hat die Primärluftzahl indirekt einen Einfluss auf die Höhe der Stickstoffoxidemissionen. Dieser Zusammenhang ist durch weitere Versuche zu verifizieren.

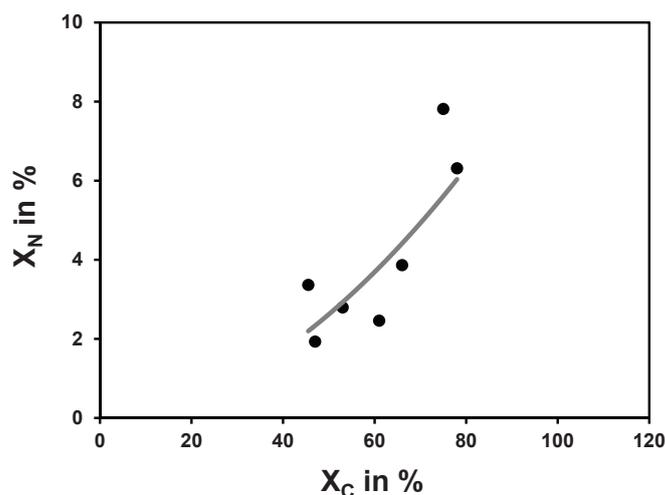


Abbildung 7: Zusammenhang zwischen dem Umwandlungsgrad von Kohlenstoff  $X_C$  und von Stickstoff  $X_N$  bei der Verbrennung von Heupellets im Prototyp

Bei der Verbrennung von Heupellets mit dem neuen Verbrennungskonzept zeigt sich eine deutliche Abhängigkeit der  $\text{NO}_x$ -Konzentration von der Gesamtluftzahl  $\lambda_{\text{Global}}$  (Abbildung 8). Dargestellt sind hier Mittelwerte von 10 Sekunden von unterschiedlichen Messreihen an verschiedenen Versuchstagen, in denen die Primärluftzahlen variiert wurden und sich damit einhergehend auch eine Änderung des Umwandlungsgrads für Kohlenstoff ergab. Bei einer Primärluftzahl von 0,22 und einem Umwandlungsgrad  $X_C$  von 75 % ergibt sich eine mittlere  $\text{NO}_x$ -Konzentration im Bereich von ca.  $470 \text{ mg/m}^3$  (Mittelungszeit 43 Minuten) bei einem mittleren  $\lambda_{\text{Global}}$  von 1,27. Wird die Primärluftzahl  $\lambda_{\text{Primär}}$  auf 0,14 reduziert, so nehmen die  $\text{NO}_x$ -Konzentrationen stark ab und liegen im Bereich von ca.  $200 \text{ mg/m}^3$  (Mittelungszeit 63 Minuten), wobei der Umwandlungsgrad  $X_C$  auf 53 % zurückgeht. Bleibt die Primärluftzahl bei 0,14 konstant, ergibt sich bei einem reduzierten Kohlenstoffumsatz von 47 % eine mittlere  $\text{NO}_x$ -Konzentration im Bereich von ca.  $150 \text{ mg/m}^3$  (Mittelungszeit 28 Minuten).

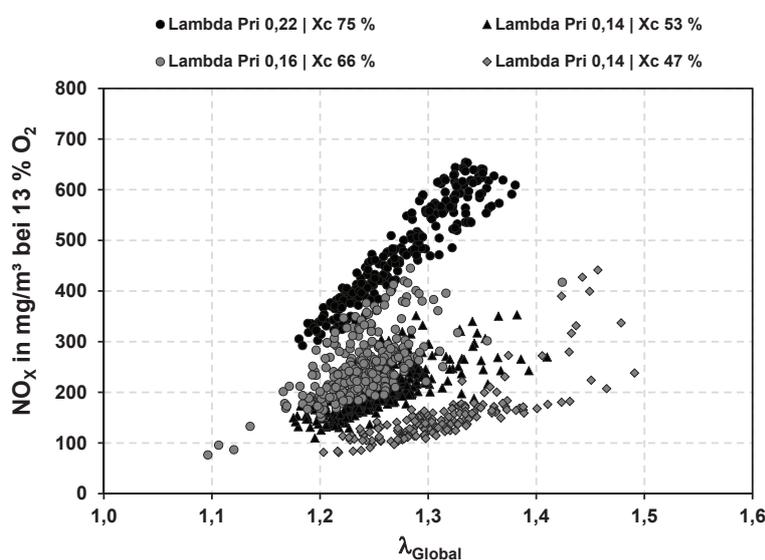


Abbildung 8:  $\text{NO}_x$ -Konzentrationen bei unterschiedlichen Primärluftzahlen (Lambda Pri) und Umwandlungsgraden  $X_C$  in Abhängigkeit von der Gesamtluftzahl  $\lambda_{\text{Global}}$  bei der Verbrennung von Heupellets im Prototyp

Die dargestellten Zusammenhänge lassen darauf schließen, dass der Umwandlungsgrad des Kohlenstoffes, einhergehend mit einer Verringerung der Feuerungswärmeleistung, einen wesentlichen Einfluss auf die  $\text{NO}_x$ -Konzentrationen im Abgas hat. Bei gleichem  $\lambda_{\text{Global}}$  sinken mit abnehmendem Kohlenstoffumsatz auch die  $\text{NO}_x$ -Konzentrationen merklich. Daraus lässt sich schließen, dass der Umsetzungsgrad  $X_N$  von Brennstoffstickstoff zu Stickstoffoxidemissionen nicht nur von der Primär- und Gesamtluftzahl, sondern auch von den vorherrschenden Bedingungen in der primären Entgasungszone abhängt.

Die aufgezeigte Stickstoffoxidminderung bei der Verbrennung von Holz- und Heupellets findet im Bereich der Ausbrandzone im Flammrohr aufgrund einer Verringerung der Gesamtluftzahl  $\lambda_{\text{Global}}$  statt. Um die Zustände (Temperaturen, Strömungsverhältnisse und Sauerstoffkonzentrationen) in diesem Bereich des Prototypen näher zu beschreiben, wurden CFD-Simulationen (Computational Fluid Dynamics = numerische Strömungsmechanik) durchgeführt, auf die im Folgenden eingegangen wird.

## Numerische Simulation der Ausbrandzone

CFD ist die räumlich aufgelöste Simulation von Strömungsprozessen. Die Qualität der Simulationsergebnisse hängt stark von den zugrunde liegenden Strömungs- und Reaktionsmodellen, dem mathematischen Rechengitter und den gewählten bzw. zu bestimmenden Randbedingungen ab. Für die Durchführung einer Simulationsrechnung bedarf es ein hohes Maß an Erfahrung und Wissen, um plausible Rechenergebnisse zu generieren, denn die Simulationsrechnungen werden mit vereinfachten chemischen Modellen und globalen Reaktionsmechanismen durchgeführt.

Als Reaktionsmodell wurde eine Zwei-Schritt-Reaktion von Methan gewählt. Im ersten Schritt reagiert Methan mit Sauerstoff zu Kohlenmonoxid und Wasserdampf. Das Kohlenmonoxid reagiert dann in einem zweiten Schritt mit Sauerstoff zu Kohlendioxid. Das bei den Versuchen in der primären Entgasungszone entstandene Pyrolysegas besteht aus einer Vielzahl von komplexen Verbindungen, die nur teilweise durch aufwendige Messtechnik bestimmbar sind und daher nicht als Randbedingung für die Simulation zur Verfügung stehen. Da die chemischen Vorgänge im Brennstoffbett zu komplex sind und sich mit dem derzeitigen Kenntnisstand nicht mathematisch beschreiben lassen, wird ein Synthesegas bestehend aus  $\text{CH}_4$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{CO}_2$  und  $\text{H}_2\text{O}$  definiert. Anhand einer typischen Brennstoffzusammensetzung kann, unter Annahme einer vollständigen Verbrennung, eine Massenbilanzgleichung aufgestellt und die Zusammensetzung des Synthesegases bestimmt werden. Die Freisetzung von Vorläufersubstanzen, aus denen sich Stickstoffoxide bilden können, wie Cyanwasserstoff, Ammoniak und Stickstoffmonoxid aus dem Brennstoffbett und die Reaktionspfade zur Bildung von Stickstoffoxiden sind nur mit großem Aufwand bestimmbar und daher mathematisch schwer zu beschreiben. Daher soll die Wirkung der Reduktionszone nicht durch eine Berechnung der Stickstoffoxidkonzentrationen, sondern indirekt über die Temperatur- und Sauerstoffverteilung beschrieben werden.

Es wurden Simulationsrechnungen für drei verschiedene Gesamtluftzahlen durchgeführt. Die Zusammensetzung, Temperatur und der Massenstrom des Synthesegases wurden konstant gehalten. In Abbildung 9 ist das Modell für die CFD-Simulation illustriert. Das Synthesegas wird mit der ringförmig einströmenden Sekundärluft vermischt und tritt in das Flammrohr ein, welches in den Brennraum des Heizkessels eingebracht ist. Der Heizkessel fungiert als Wärmeübertrager. Wärmeverluste über die Oberfläche wurden nicht berücksichtigt, daher sind die in der Simulation errechneten Temperaturen in der Tendenz zu hoch. Validierungsmessungen der auftretenden Temperaturen im Brennraum des Heizkessels oder am Flammrohr waren aufgrund der Unzugänglichkeit nicht durchführbar. Ebenso wurde ein Falschlufteintrag über

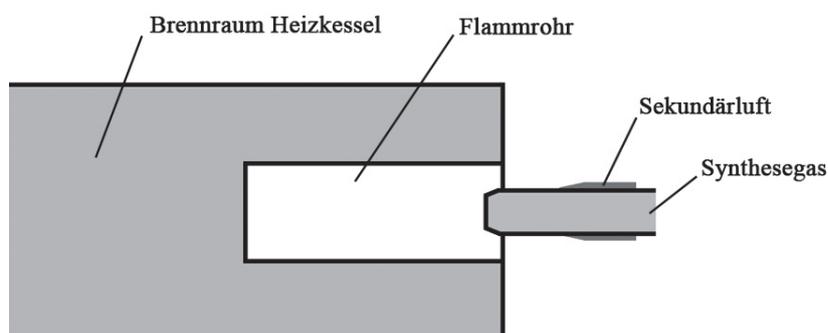


Abbildung 9: Modell der Ausbrandzone mit Mischeinrichtung für Sekundärluft und Synthesegas, sowie Flammrohr und Brennraumheizkessel für die CFD-Simulation

den Heizkessel in der Simulation nicht berücksichtigt, da keine Informationen über den Ort der Einbringung bekannt sind. Daher liegen die berechneten Sauerstoffkonzentrationen im Brennraum des Heizkessels zu niedrig und stimmen nicht genau mit den Messergebnissen überein.

Die flächenhafte Verteilung der Sauerstoffkonzentrationen und der Temperaturen in der Symmetrieebene der Simulation für die drei untersuchten Gesamtluftzahlen ist in Abbildung 10 dargestellt. Eine hohe  $\text{NO}_x$ -Reduktion ist nach KELLER (1994) bei einer Temperatur von ca.  $1.200\text{ }^\circ\text{C}$  und der gleichzeitigen Abwesenheit von Sauerstoff zu erwarten. Im Fall 1 ist keine Reduktionszone feststellbar, obwohl Temperaturen über  $1.200\text{ }^\circ\text{C}$  im Flammrohr und im Brennraum des Heizkessels herrschen. Um reduzierende Bedingungen und damit ein Abbau der Stickstoffoxidemissionen zu erreichen, ist die Abwesenheit von Sauerstoff nötig. Im Fall 1 sind Sauerstoffkonzentrationen von über 1,8 % in der Ausbrandzone zu verzeichnen.

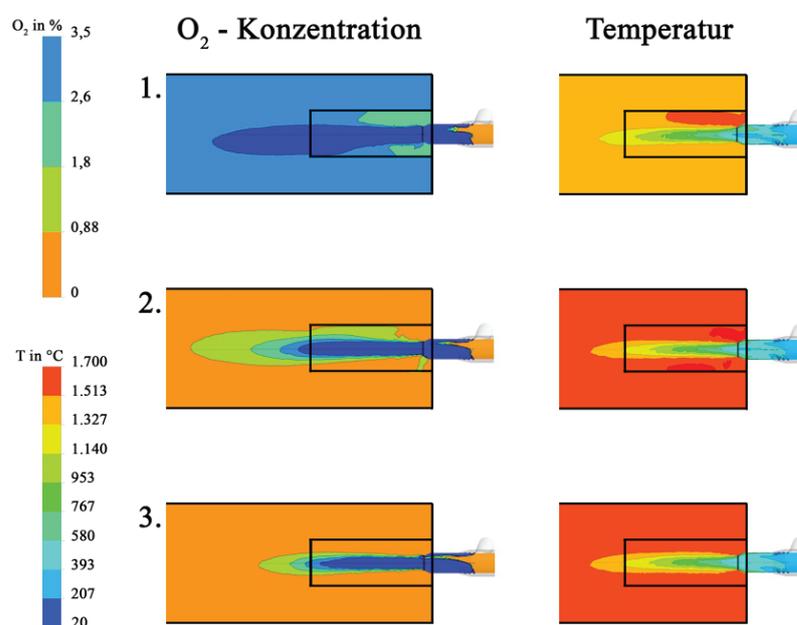


Abbildung 10: Berechnete flächenhafte Verteilung der Sauerstoffkonzentration und der Temperatur in der Ausbrandzone des Prototypen bei unterschiedlichen Gesamtluftzahlen (Fall 1:  $\lambda_{\text{Global}} = 1,26$ ; Fall 2:  $\lambda_{\text{Global}} = 1,05$ ; Fall 3:  $\lambda_{\text{Global}} = 0,94$ )

Wird die Gesamtluftzahl durch Verringerung der Sekundärluft reduziert, ist eine Verteilung der Sauerstoffkonzentration wie im berechneten Fall 2 zu verzeichnen. Auch bei diesem Fall 2 herrschen Temperaturen von  $> 1.200\text{ }^\circ\text{C}$  im Flammrohr und im Brennraum des Heizkessels. Hinzu kommt der deutlich geringere Luftüberschuss im heißen Bereich der Ausbrandzone. Dadurch ergeben sich in einigen Bereichen des Flammrohres reduzierende Bedingungen. Wird die Sekundärluft noch weiter reduziert, sodass nur noch eine vollständige Oxidation von brennbaren Verbindungen mit Einbeziehung der Falschlufft stattfinden würde, kann eine ausgeprägte Reduktionszone im Flammrohr geschaffen werden. Dies zeigen die Ergebnisse der Simulation im Fall 3 mit hohen Temperaturen und Bereiche mit der Abwesenheit von Sauerstoff.

## Schlussfolgerungen

Die thermische Nutzung von landwirtschaftlichen Reststoffen stellt große Anforderungen an die Feuerungs- und Anlagentechnik. Die bisherige Anlagentechnik kann ein notwendiges niedriges Emissionsniveau und eine hohe Betriebssicherheit nicht zuverlässig gewährleisten. Durch die in einem Prototyp umgesetzte räumliche Trennung der Verbrennungsphasen Entgasung des Brennstoffes, Oxidation der Pyrolysegase sowie der Entgasungsrückstände konnte eine Reduktionszone in der Ausbrandzone geschaffen werden. Durch diese Reduktionszone konnten die Stickstoffoxidkonzentrationen im Abgas deutlich reduziert werden. Gegenüber der üblichen Feuerungstechnik lag das Emissionsniveau an gasförmigen Schadstoffen, wie Kohlenmonoxid und Stickstoffoxide, deutlich unter den derzeitigen Grenzwerten der TA Luft (2002). Allerdings besteht noch Verbesserungspotenzial in der Gestaltung der Reduktions- und Ausbrandzone, um bei einer noch weitergehenden Stickstoffoxidreduktion bei noch geringerem Gesamtluftüberschuss einen vergleichbar vollständigen Ausbrand zu erreichen. Die strengen Anforderungen der 1. BImSchV für kleine und mittlere Feuerungsanlagen an die Gesamtstaubkonzentration von  $0,02 \text{ g/m}^3$  (bezogen auf 13 %  $\text{O}_2$ ) konnten bei der Verbrennung von Holzpellets im Prototyp teilweise erreicht werden. Die Grenzwerte der 1. BImSchV (2010) oder der TA Luft (2002) für Gesamtstaub können mit dem Brennstoff Heupellets nur mit einem nachgeschalteten Staubfilter erreicht werden. So wurden in den Verbrennungsversuchen Staubkonzentrationen im Bereich von 70 bis  $140 \text{ mg/m}^3$  (bezogen auf 13 %  $\text{O}_2$ ) ermittelt. Das im Prototyp umgesetzte Verbrennungskonzept mit einer sehr niedrigen Primärluftzahl und einem Bewegungselement im Brennraum konnte die Verschlackungen meist reduzieren, aber nicht in jedem Betriebszustand komplett unterbinden. Auf diesem Gebiet ist weiterhin ein hoher Forschungs- und Entwicklungsbedarf vorhanden.

## Literatur

1. BImSchV (2010): Erste Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes (Verordnung über kleine und mittlere Feuerungsanlagen – 1. BImSchV) vom 26. Januar 2010. BGBl I, 2010, S. 38
- Eder, G.; Luisser, M.; Wörgetter, M. (2006): Energiekornmonitoring – Erforschung der technischen und wirtschaftlichen Möglichkeiten für die thermische Nutzung von Energiekorn und Strohpellets in Kleinfeuerungsanlagen im Praxisbetrieb. Austrian Bioenergy Center GmbH, Graz, In: Endbericht des Austrian Bioenergy Center (Hrsg.)
- Hartmann, H.; Roßmann, P.; Turowski, P.; Ellner-Schuberth, F.; Hopf, N.; Bimüller, A. (2007): Getreideköhner als Brennstoff für Kleinfeuerungsanlagen. Technische Möglichkeiten und Umwelteffekte. Berichte aus dem TFZ 13, Technologie- und Förderzentrum im Kompetenzzentrum für Nachwachsende Rohstoffe, Straubing, Eigenverlag TFZ Straubing
- Keller, R. (1994): Primärmaßnahmen zur  $\text{NO}_x$ -Minderung bei der Holzverbrennung mit dem Schwerpunkt der Luftstufung. Dissertation ETH Nr. 10514, Abhandlung zur Erlangung des Titels eines Doktors der Technischen Wissenschaften der Eidgenössischen Technischen Hochschule ETH, Zürich
- TA Luft (2002): Erste Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Bundes-Immissionsschutzgesetz (Technische Anleitung zur Reinhaltung der Luft – TA Luft) vom 24. Juli 2002. Gemeinsamen Ministerialblatt vom 30. Juli 2002 (GMBl.), Heft 25–29, S. 511–605

## Autoren

**M. Sc. Dipl.-Ing. (BA) Winfried Juschka** und **Dr.-Ing. Michael Struschka** sind akademische Mitarbeiter an der Universität Stuttgart, Institut für Feuerungs- und Kraftwerkstechnik (IFK), Abteilung Reinhaltung der Luft (RdL), Pfaffenwaldring 23, 70569 Stuttgart, E-Mail: winfried.juschka@ifk.uni-stuttgart.de

## Hinweise

Die vorgestellten Forschungsarbeiten wurden im Rahmen des Verbundvorhabens FKZ 22032111 „Entwicklung einer Feuerungsanlage zur energetischen Nutzung von landwirtschaftlichen Reststoffen auf Basis der AirRo®-Brennertechnologie – Teilvorhaben 1: Grundlegende Untersuchungen“ aus Mitteln des Bundesministeriums für Ernährung, Landwirtschaft und Verbraucherschutz (BMELV) aufgrund eines Beschlusses des Deutschen Bundestages durch die Fachagentur Nachwachsende Rohstoffe e.V. gefördert.

Der Endbericht zum Vorhaben kann unter <http://www.ifk.uni-stuttgart.de/forschung/rdl/forschungsberichte.html> bezogen werden.