



## Schlussbericht zum Vorhaben

### **VOKos**

## Effizienzsteigerung durch verfahrenstechnisch optimierende Korrosionsschutzkonzepte in Verbrennungsanlagen mit heterogenen Festbrennstoffen

Förderkennzeichen  
03X3589D

Laufzeit  
01.07.2013 – 30.04.2017

*Projektleitung:*  
Dr.-Ing. Christof Asbach

*Mitwirkende:*  
Dr. rer. nat. Stefan Schumacher  
Dipl.-Ing. Jörg Lindermann  
Dipl.-Ing. Till van der Zwaag  
Dipl.-Ing. Thomas Zeiner  
Dr. rer. nat. Burkhard Stahlmecke  
Dipl.-Ing. Dirk Jarzyna  
Amit Khot, M.Sc.

*Unterauftragnehmer:*  
Dr.-Ing. Bernd Benker (Ingenieurbüro Benker)  
Dipl.-Ing. Martin Weghaus (Weghaus GmbH)

GEFÖRDERT VOM



Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung

Duisburg, Oktober 2017

## Inhaltsverzeichnis

### I Kurze Darstellung des Vorhabens

- I.1 Aufgabenstellung
- I.2 Voraussetzungen, unter denen das Vorhaben durchgeführt wurde
- I.3 Planung und Ablauf des Vorhabens
- I.4 Wissenschaftlicher und technischer Stand
- I.5 Zusammenarbeit mit anderen Stellen

### II Eingehende Darstellung des Vorhabens

#### II.1 Verwendung der Zuwendung und erzielte Ergebnisse

##### A Entwicklung einer Probenahmesonde

- A.1 Vorüberlegungen zum Probenahmekonzept
- A.2 Auslegung des Trägheitsabscheiders
  - A.2.1 Weitere Optimierungen der Sonde
  - A.2.1 Einfluss der Temperatur auf die Abscheidung
  - A.2.2 Einfluss der Gravitation auf die Abscheidung
  - A.2.2 Laborevaluierung der Probenahmesonde
- A.3 Wahl eines geeigneten Filtersubstrats
  - A.3.1 Abscheideeffizienz der Membranen
- A.5 Modifizierung der Sonde für Gesamtstaubmessungen
- A.6 Temperaturverhältnisse im Sondengehäuse

##### B Methoden zur Probenanalyse

- B.1 Partikelgrößenverteilungen und Gesamtstaub
- B.2 Chemische Analyse

##### C Charakterisierung der Partikel in Feuerraum und Kessel

- C.1 Messkampagne im Februar 2015 am GKS Schweinfurt
  - C.1.1 Morphologie der Partikel
  - C.1.2 Partikelgrößenverteilungen und Gesamtstaub
  - C.1.3 Chemische Zusammensetzung
  - C.1.4 Messungen im Feuerraum
- C.2 Messkampagne im August 2015 am GKS Schweinfurt
  - C.2.1 Partikelgrößenverteilungen und Gesamtstaub
  - C.2.2 Chemische Zusammensetzung
  - C.2.3 Nasschemische Analyse der Gesamtstaubproben
  - C.2.4 Messungen während des Rußblasens

- C.2.5 Zusammensetzung der submikronen Partikel
  - C.2.6 Zusammenhang von Morphologie und Chemie
  - C.2.7 Untersuchungen zur Rundheit der Partikel
- C.3 Messkampagne im Mai 2016 am AEZ Asdonkshof
  - C.3.1 Partikelgrößenverteilungen und Gesamtstaub
  - C.3.2 Chemische Zusammensetzung
- C.4 Zusammenführung und Interpretation der Ergebnisse
  - C.4.1 Partikelgrößenverteilungen
  - C.4.2 Chemische Zusammensetzung
  - C.4.3 Vergleich der beiden Anlagen
- D Partikeldynamiksimulationen
  - D.1 Methodenentwicklung
  - D.2 Eindimensionale Betrachtungen am GKS
  - D.3 Dreidimensionale Betrachtungen am GKS
  - D.4 Betrachtung einzelner Stromfäden am GKS
  - D.5 Untersuchungen zur Kinetik der Partikeldynamik
  - D.6 Vergleich mit dem AEZ Asdonkshof
- E Elektrostatische Partikelabscheidung
  - E.1 Bau einer Sonde zur Messung der Partikelladung
  - E.2 Simulationen zur Ladung der Partikel
- F Partikelabscheidung an den Überhitzerrohrbündeln
  - F.2 Einfluss der elektrophoretischen Abscheidung
  - F.3 Prognose der Salzdeposition auf den Rohrbündeln
- G Zusammenfassung
- H Literaturverzeichnis
- II.2 Wichtigste Positionen des zahlenmäßigen Nachweises
- II.3 Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Arbeit
- II.4 Voraussichtlicher Nutzen und Verwertbarkeit
- II.5 Bekannt gewordener Fortschritt anderer Stellen
- II.6 Erfolgte oder geplante Veröffentlichungen

## **I Kurze Darstellung des Vorhabens**

### **I.1 Aufgabenstellung**

Die Hochtemperaturkorrosion in Kesseln und Feuerungen zählt zu den Korrosionsformen mit dem größten Werkstoffverbrauch [Krause1986, Bryers1996, Lee2007] und bewirkt damit einen besonders hohen Verlust an Ressourcen. Dies betrifft sowohl die für Kessel, Wärmetauscher und Rohrleitungen benötigten metallischen Werkstoffe, als auch Beschränkungen hinsichtlich der Erzielung eines optimalen Anlagenwirkungsgrades und maximaler Verfügbarkeit. Dies gilt neben der Nutzung fossiler Energieträger insbesondere auch für biobasierte Energielieferanten und die thermische Nutzung von Abfällen. Besonders betroffen sind dabei die ersten Überhitzerrohrbündel bei Rauchgastemperaturen um die 550°C.

Zwar ist bekannt, dass die Hochtemperaturchlorkorrosion ein wesentlicher Mechanismus ist [Miller1972, Chang1991, Sorell1997, Zahs2000, Spiegel2003], jedoch findet man in vergleichbaren Anlagen trotz ähnlicher Brennstoffzusammensetzung teils drastische Unterschiede in den Korrosionsraten, was bisher nicht vollständig verstanden ist. Um die korrosionsfördernden Prozesse besser zu verstehen und ihnen entgegenwirken zu können, sind sowohl praxisorientierte Beobachtungen in realen Anlagen und Versuche unter wohl definierten Bedingungen, als auch eine theoretische Erfassung und Interpretation der Erkenntnisse notwendig. Die durchgeführten Untersuchungen haben dabei sowohl die Seite der korrosionsverursachenden Spezies als auch die Werkstoffseite der Hochtemperaturkorrosion im Blick.

Im Rahmen des Projektes sollen zunächst die korrosionsverursachenden Gase und Partikel im Kesselverlauf charakterisiert werden. Parallel dazu werden neue Werkstoffe und Beschichtungen im praktischen Einsatz an einer realen Anlage und im Labor unter Berücksichtigung der Partikeleinflüsse untersucht. Alle Erkenntnisse fließen in eine Modellierung mit integrierten chemischen, physikalischen und elektrostatischen Modellen ein. Daraus soll ein Konzept zur Reduzierung der korrosionsrelevanten Spezies bei gleichzeitigem Werkstoffschutz gegen den verbleibenden Restkorrosionsangriff abgeleitet werden, mit dem Ziel der deutlichen Verminderung des Ressourcenverbrauchs bestehender und neuer Anlagen.

Das vom IUTA durchgeführte Teilprojekt umfasst dabei im Wesentlichen die Untersuchung der Partikelphase in Feuerraum und Kessel zweier Müllverbrennungsanlagen. Dieses Vorhaben birgt große Herausforderungen: Zum einen muss das Probenahmesystem hohen Temperaturen bis zu 1250°C und stark korrosiven Bedingungen standhalten. Zudem enthält das bei der Verbrennung entstehende Aerosol Partikel sehr unterschiedlicher Größe (von etwa 10 nm bis über 1 mm) und komplexer chemischer Zusammensetzung. Dieses breite Spektrum muss mit dem Probenahmesystem zunächst gesammelt und anschließend ausgewertet werden können. Weiterhin befindet sich das Aerosol im Verlauf des Kessels in ständiger Veränderung. So findet beispielsweise durch die Abkühlung stets Kondensation gasförmiger Bestandteile aus der übersättigten Gasphase statt. Um bei der Sammlung den tatsächlichen Zustand des Aerosols bei der jeweiligen Temperatur im Kessel einzufrieren, ist es somit essentiell solche Effekte bei der Probenahme selbst zu vermeiden. Begleitet werden die experimentellen Untersuchungen von Simulationen der Partikeldynamik, um ein umfassendes Bild der Entwicklung des Aerosols im Verlauf des Kessels zu erlangen.

## **I.2 Voraussetzungen, unter denen das Vorhaben durchgeführt wurde**

Die zuvor beschriebene Aufgabenstellung wurde durch ein Projektkonsortium verfolgt, das den notwendigen Kompetenzbereich abdeckt und somit eine wissenschaftlich fundierte Durchführung, Auswertung sowie Interpretation der Versuche, Messungen und Modellierungen gewährleistet. Das Konsortium bestand aus folgenden Partnern:

- GKS Gemeinschaftskraftwerk Schweinfurt GmbH
- Universität Augsburg, Lehrstuhl Experimentalphysik II
- Universität Bochum, Lehrstuhl für Energieanlagen und Energieprozesstechnik (LEAT)
- Institut für Energie- und Umwelttechnik e.V. (IUTA)
  - Unterauftragnehmer Weghaus GmbH
  - Unterauftragnehmer Ingenieurbüro Benker
- bifa Umweltinstitut GmbH
- SAR Electronic GmbH
- DECHEMA-Forschungsinstitut (DFI)

Das IUTA als verfahrenstechnisches Institut hat seine Forschungs- und Entwicklungsschwerpunkte im Bereich der Energie- und Umwelttechnik. In Kooperation mit Universitäten, Hochschulen, Forschungseinrichtungen sowie Industriepartnern befassen sich die Mitarbeiter mit der Beantwortung grundlegender wissenschaftlicher sowie anwendungsorientierter Fragestellungen in den Kernarbeitsgebieten des Instituts. Im für das Projekt relevanten Kontext beschäftigen sich mehrere Abteilungen des IUTA intensiv mit der Charakterisierung sowie dem Transport- und Abscheideverhalten von Partikeln im Größenbereich von einigen Nanometern bis zu Millimetern. Hierzu stehen unter anderem ein hochauflösendes Rasterelektronenmikroskop mit EDX-Analyser, optische Partikelzähler, Mobilitätsanalytoren, etc. zur Verfügung. Die Messgeräte werden von den einzelnen Arbeitsgruppen insbesondere zur Aufklärung der morphologischen Struktur, chemischen Zusammensetzung und Konzentration in Abhängigkeit der jeweiligen Größe der Partikelfraktion eingesetzt. Eine weitere Kernkompetenz liegt bei Simulationen partikeldynamischer Prozesse, insbesondere auch im Hochtemperaturbereich und unter Berücksichtigung komplexer elektrohydrodynamischer Wechselwirkungen.

Die technische Ausstattung zur Durchführung des Vorhabens war am IUTA und seinen Unterauftragnehmern bereits zu Projektbeginn weitgehend vorhanden. Die Mitarbeiter sind im Umgang mit den unterschiedlichen Techniken versiert und können auf langjährige einschlägige Erfahrungen zurückblicken.

## **I.3 Planung und Ablauf des Vorhabens**

Im Rahmen des gesamten Projektes war das IUTA an den im Folgenden aufgelisteten Arbeitspaketen beteiligt. Die Arbeitspakete, die nur die Unterauftragnehmer Weghaus GmbH und Ingenieurbüro Benker betreffen, werden in deren separat beigefügten Schlussberichten behandelt. Auswertungen zur Zusammensetzung der Gasphase (AP 1.4 und 3.2) sind im Teilschlussbericht des Projektpartners bifa enthalten. Durch diese Umverteilung stand dem IUTA ausreichend Zeit für die Neuentwicklung der Messmethode für Partikel zur Verfügung.

### AP 1: Feuerungsmessungen

- AP 1.3 Feuerraum-Partikelmessung (Elektrostatik, Morphologie, Struktur, Reaktivität, Größenverteilung, Chemie, Phasen, Gesamtmasse) in zwei Anlagen (IUTA/bifa/Benker)
- AP 1.4 Messung der Gasphase im Feuerraum (O<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O, HCl, (Cl<sub>2</sub>, HF), SO<sub>2</sub>, CO, CO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, NH<sub>3</sub>, (HCN, N<sub>2</sub>O)) in zwei Anlagen (IUTA/bifa/Benker)
- AP 1.6 Dokumentation und Auswertung (Bochum/IUTA/Benker/GKS)

### AP 2: Feuerungsberechnungen

- AP 2.4 CFD-Berechnungen zu elektrostatischen/strukturellen Einflüssen auf die Partikelbewegung in Feuerung (und Kessel) (IUTA/Weghaus)
- AP 2.6 Vergleich von CombAte-/DEM-/Anlagen-Ergebnissen mit Übertragbarkeitsuntersuchung für andere Anlagen (GKS/Weghaus/Bochum/IUTA/SAR)
- AP 2.7 Dokumentation und Auswertung (Benker/Weghaus/IUTA/Bochum/GKS/SAR)

### AP 3: Kesselmessungen

- AP 3.1 Kessel-Partikelmessung (Elektrostatik, Morphologie, Struktur, Reaktivität, Größenverteilung, Chemie, Phasen, Gesamtmasse) in zwei Anlagen (IUTA/bifa/Benker)
- AP 3.2 Messung der Gasphase im Kessel (O<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O, HCl, (Cl<sub>2</sub>, HF), SO<sub>2</sub>, CO, CO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, NH<sub>3</sub>, (HCN, N<sub>2</sub>O)) in 2 Anlagen (IUTA/bifa)
- AP 3.7 Dokumentation und Auswertung (Benker/GKS/IUTA/bifa/Augsburg/Bochum)

### AP 6: Gesamtmodellierung

- AP 6.1 Entwicklung einer Gesamt-Korrosions-Prozessbeschreibung mit Validierung, Modell-Wahrscheinlichkeitsanalyse und Übertragbarkeit; unter Einschluss von Stoff- und Chemie-Kinetik in Belag und im rohrwandnahen Bereich (GKS/bifa/Benker/IUTA/Augsburg/DFI)
- AP 6.4 Erarbeitungen von Anleitungen zur prozessrelevanten Optimierung einerseits der Verfahrenstechnik in Großanlagen und andererseits zur zukünftigen Versuchsgestaltung in der Werkstoffoptimierung (GKS/DFI/IUTA/SAR/Augsburg/Weghaus)
- AP 6.5 Dokumentation und Auswertung (GKS/Bifa/Benker/DFI/Augsburg/IUTA/Weghaus)

Für den weiteren Verlauf des Berichtes wurde entschieden, die durchgeführten Arbeiten nicht nach Arbeitspaketen, sondern vorrangig nach chronologischem Vorgehen und thematischer Zusammengehörigkeit strukturiert zu beschreiben. Im Folgenden soll ein Überblick über Planung und Ablauf des Vorhabens gegeben werden:

Hauptziel der Arbeiten des IUTA war es durch Entwicklung einer Probenahmesonde das Aerosol in Feuerraum (AP 1.3 und 1.6) und Kessel (AP 3.1 und 3.7) zweier Müllverbrennungsanlagen physikalisch und chemisch zu charakterisieren. Nachdem sich zu Projektbeginn das Zurückgreifen auf eine vom bifa Umweltinstitut entwickelte Verdünnungs-sonde als nicht zielführend erwiesen hat, wurde ein neues Konzept erarbeitet, das es erlaubt, die Partikel direkt im Heißgas zur anschließenden Charakterisierung abzuscheiden. Dazu wurde zunächst basierend auf der klassischen Impaktortheorie begleitet durch Simulationsrechnungen ein erster Prototyp eines Trägheitsabscheiders (Impaktor) ausgelegt, gefertigt und in einer ersten Messkampagne zwischen dem 14. und 16. Mai 2014 am GKS getestet. Parallel dazu wurde ein Versuchsaufbau zur Laborvalidierung der Simulationsdaten aufgebaut und erste Testmessungen bei Raumtemperatur vorgenommen.

Aus der ersten Messkampagne ergaben sich wichtige Erkenntnisse zur Handhabung und Probenahme. Darauf basierend wurde das Design der Sonde überarbeitet und eine neue Version angefertigt, welche in einer zweiten Messkampagne zwischen dem 7. und 11. Juli 2014 eingesetzt wurde. Hauptziel war es hier die Eignung verschiedener Filtersubstrate für die zweite Stufe des Sammlers zu testen. Als am besten geeignetes Filtersubstrat haben sich dabei mikrogalvanisch gewachsene Nickelmembranen herausgestellt, deren größenabhängige Abscheideeffizienz daraufhin mit Hilfe von Simulationen bestimmt wurde. Darauf basierend wurde ein detailliertes Auswerteschema zur Bestimmung der luftgetragenen Anzahl- und Massenverteilungen entwickelt, wobei das Augenmerk unter anderem auf der Möglichkeit zum Vergleich mit Daten des bifa Umweltinstituts lag.

Mit der überarbeiteten Sonde wurde vom 9. bis zum 13. Februar 2015 eine dritte Messkampagne am GKS Schweinfurt durchgeführt, bei welcher ein umfangreicher Datensatz mit Partikelmessungen in allen vier Kesselzügen sowie im Feuerraum gewonnen werden konnte. Durch eine umfangreiche Analyse der Proben im Rasterelektronenmikroskop (REM) sowie Untersuchungen mittels energiedispersiver Röntgenspektroskopie (EDX) wurden die Anzahl- und Massengrößenverteilungen sowie die chemische Zusammensetzung der Partikelphase im Kesselverlauf bestimmt. Zusätzlich wurden die Daten in Hinblick auf die Partikelmorphologie betrachtet und erste Versuchsmessungen mit einer modifizierten Sonde zur Gewinnung von Gesamtstaubproben durchgeführt. Darüber hinaus wurde durch weitere Simulationen ein noch tiefergehendes Verständnis des Abscheideverhaltens des Impaktors erlangt, welches zur weiteren Optimierung der Sonde eingesetzt wurde. Zudem wurde eine Möglichkeit zur Temperaturmessung im Inneren der Sonde vorgesehen.

Um die bis dahin gewonnenen Daten zu validieren und sie um weitere Partikelmessungen zu ergänzen, wurde zwischen dem 3. und 7. August 2015 eine vierte Messkampagne in den vier Zügen des GKS durchgeführt. Zusätzlich wurde eine Messung während des Rußblasens, d.h. der Abreinigung der Überhitzerrohre mittels Wasserdampf, gemacht. Zu jeder Probenahme wurde diesmal ergänzend eine Gesamtstaubmessung vorgenommen, die wertvolle Zusatzinformationen lieferte. So konnte

beispielsweise die chemische Analyse mittels EDX durch eine unabhängige nass-chemische Untersuchung validiert werden.

Um die am GKS gewonnenen Daten mit denen einer Vergleichsanlage in Bezug setzen zu können, wurde zwischen dem 9. und 13. Mai 2016 eine Messkampagne am AEZ Asdonkshof durchgeführt und die Ergebnisse mit den Daten der letzten beiden Messkampagnen am GKS verglichen. Abschließend wurden alle Daten unter Einbezug der Messungen des bifa Umweltinstituts zusammengeführt, um so eine umfassende Charakterisierung der Partikelphase in Feuerraum und Kessel zu erlangen, die den weiteren Projektpartnern für Simulation und Laboruntersuchung des Korrosionsverhaltens einen wichtigen Ausgangspunkt liefert. Zusammen münden die Ergebnisse schließlich in der Entwicklung eines Gesamtkorrosionsmodells und Empfehlungen zu einem Korrosionsschutzkonzept (AP 6.1, 6.4 und 6.5).

Tabelle 1 listet zur Übersicht nochmals die insgesamt fünf Messkampagnen am GKS Schweinfurt und am AEZ Asdonkshof, bei denen verschiedene Entwicklungsstadien der Probenahmesonde bei zum Einsatz kamen.

Nr.	Ort	Zeitraum	Durchgeführte Messungen
1	GKS	14.-16.05.2014	Test des ersten Prototyps der Probenahmesonde
2	GKS	07.-11.07.2014	Versuchsmessungen zur Wahl eines geeigneten Filtersubstrats (Tressengewebe, Membranen)
3	GKS	09.-13.02.2015	Messungen im Feuerraum und den vier Zügen, erste Tests zur Gesamtstaubprobenahme
4	GKS	03.-07.08.2015	Messungen in den vier Zügen und während des Rußblasens, Gesamtstaubmessungen
5	AEZ	09.-13.05.2016	Messungen im Feuerraum und den vier Zügen, Gesamtstaubmessungen

Tabelle 1: Übersicht über die einzelnen Messkampagnen und die wichtigsten dabei durchgeführten Messungen.

Parallel zu den experimentellen Untersuchungen wurden Simulationen zur Partikeldynamik im Kessel durchgeführt, insbesondere auch unter Berücksichtigung elektrostatischer Einflüsse (AP 2.4 und 2.6). Zudem wurde die Abscheidung der Partikel auf den Überhitzerrohrbündeln untersucht und somit die dort deponierte Salzmenge, die schließlich zur Korrosion beiträgt, abgeschätzt.

#### **I.4 Wissenschaftlicher und technischer Stand**

Die Korrosion in Kesseln für heterogene Brennstoffe ist seit den 1960er Jahren Gegenstand von Forschungsaktivitäten. Trotzdem ist sie immer noch als ungelöstes und kostenintensives Problem vorhanden und führt nach wie vor zu Rohrreißern mit der Folge von Effizienzverlust und übermäßigem Ressourceneinsatz. Übereinstimmend werden an der Korrosionsfront zum wärmeübertragenden Rohr stets weitgehend geschlossene Metall-Chlorschichten gefunden. Dies lässt den Schluss zu, dass Chlor

den Rohrwerkstoff angreift und somit den Korrosionsschaden ursächlich bedingt. Da die alleinige Anwesenheit von chlorhaltigen Gasen, wie beispielsweise HCl, die hohen Korrosionsraten nicht erklären kann [Grabke1995, Nielsen2000], besteht der begründete Verdacht, dass die Partikelphase als Chlorlieferant eine entscheidende Rolle spielt. Ein notwendiger Schritt zu einem besseren Verständnis ist somit die Untersuchung der Partikelphase in einer realen Anlage.

Während es bereits einige Studien zur Zusammensetzung der abreagierten Beläge auf den Überhitzerrohrbündeln gibt [Kawahara2002, Uusitalo2004, Persson2007, Phongphiphat2010, Otsuka2011, Chen2015], ist die luftgetragene Partikelphase in Kesseln von Müllverbrennungsanlagen bisher nur wenig untersucht: So nutzten Brunner et al. einen Hochtemperaturkaskadenimpaktor, um die Partikel im Kessel größenfraktioniert zu sammeln [Brunner2013]. Diese Methode ist jedoch nur für Partikel kleiner etwa 1 µm geeignet, da das Aerosol senkrecht zur Strömungsrichtung abgesaugt wird, was die Sammeleffizienz für größere Partikel aufgrund ihrer Trägheit drastisch reduziert. Deuerling et al. haben das Aerosol hingegen isokinetisch aus dem Kessel abgesaugt und mit einem porösen Rohr (porous tube diluter, PTD) zügig gekühlt und verdünnt, um es konventioneller Aerosolmesstechnik zugänglich zu machen [Deuerling2009, Deuerling2010].

Durch Messungen mit der Verdünnungssonde an verschiedenen Anlagen konnte gezeigt werden, dass mehr als 25 µm große, aus dem Brennbett ausgetragene Primärpartikel eher nicht die vordringliche Rolle bei der Korrosion spielen, da sie nur geringe Chlorbestandteile aufweisen. Auf der anderen Seite kommen durch Kondensation und Agglomeration gebildete nanoskalige Sekundärpartikel sowohl in Anlagen mit starker als auch in Anlagen mit geringer Korrosionsrate vor und sind somit vermutlich ebenfalls nicht maßgeblich für die Korrosion. Daher liegt die Vermutung nahe, dass die Hauptursache im Bereich chloridhaltiger mittelgroßer Partikel (ca. 1 bis 25 µm) zu suchen ist. Diese lassen sich mit der Verdünnungsmethode jedoch schlecht untersuchen, da die meist klebrigen Partikel bereits im gekrümmten Einlass der Sonde abgeschieden werden und somit der Aerosolmesstechnik nicht mehr zur Verfügung stehen [Deuerling2010]. Darüber hinaus sind die Ergebnisse bei hohen Temperaturen stark durch Kondensation von Salzdämpfen während der Abkühlung in der Sonde beeinflusst. An dieser Stelle knüpft das hier beschriebene Teilprojekt an. Zudem waren umfassende CFD-Simulationen zur Partikeldynamik im Kessel zu Projektbeginn nicht bekannt, sodass hier großer Entwicklungsbedarf besteht.

## **1.5 Zusammenarbeit mit anderen Stellen**

Zur erfolgreichen Bearbeitung der Aufgabenstellung war eine enge Zusammenarbeit zwischen den einzelnen Projektpartnern während der gesamten Projektlaufzeit notwendig. Zum fachlichen Austausch und zur Bewertung der Zwischenergebnisse wurden mehrere Treffen zwischen den Mitarbeitern der verschiedenen Teilprojekte abgehalten, teils unter Teilnahme des Verbundprojektleiters. Bei Bedarf wurden außerdem Telefonkonferenzen durchgeführt und Ergebnisse per E-Mail oder über eine eigens für das Projekt eingerichtete Cloud ausgetauscht.

Die Zusammenarbeit bestand insbesondere mit dem GKS Schweinfurt als Verbundkoordinator sowie zur Abstimmung und Organisation der dort durchgeführten Messkampagnen. Des Weiteren wurde enger Kontakt mit dem bifa Umweltinstitut gehalten, das aus Vorgängerprojekten über umfassende Erfahrung zur Partikelprobe-

nahme in Müllverbrennungsanlagen und den relevanten Korrosionsprozessen verfügt. Zudem wurden je eine Partikelmesskampagne am GKS Schweinfurt und am AEZ Asdonkshof von beiden Projektpartnern parallel durchgeführt, um so die beiden Messmethoden miteinander vergleichen zu können.

Darüber hinaus wurden Daten und Simulationsergebnisse zu den Strömungsverhältnissen im Kessel mit den Unterauftragnehmern Ingenieurbüro Benker und Weghaus GmbH abgeglichen und mit dem Lehrstuhl für Energieanlagen und Energieprozesstechnik der Universität Bochum ausgetauscht. Die vom IUTA bestimmten Partikelmassenkonzentrationen und chemischen Zusammensetzungen wurden zudem der Universität Augsburg und dem DECHEMA-Forschungsinstitut für deren Laborexperimente und thermodynamische Berechnungen zur Verfügung gestellt.

Außerhalb des Projektkonsortiums wurde mit dem Fraunhofer-Institut UMSICHT in Oberhausen zusammengearbeitet, um ein geeignetes Membranmaterial für die Sonde zu finden. Die schließlich verwendeten mikrogalvanisch gewachsenen Membranen wurden vom UMSICHT hergestellt und für die Messungen zur Verfügung gestellt. Die Fertigung der Probenahmesonde erfolgte in der Feinmechanikwerkstatt der Universität Duisburg-Essen. Die Messkampagne am AEZ Asdonkshof konnte durch die Zusammenarbeit mit den dortigen Mitarbeitern erfolgreich geplant und durchgeführt werden.

## **II Eingehende Darstellung des Vorhabens**

### **II.1 Verwendung der Zuwendung und erzielte Ergebnisse**

#### **A Entwicklung einer Probenahmesonde**

##### **A.1 Vorüberlegungen zum Probenahmekonzept**

Wesentliches Ziel des IUTA war es, eine Probenahmesonde zu entwickeln, die es ermöglicht das Aerosol im Kessel einer Müllverbrennungsanlage an unterschiedlichen Stellen bei Temperaturen bis zu etwa 1250°C zu charakterisieren. Zunächst wurde davon ausgegangen, dass hierfür auf eine beim bifa Umweltinstitut vorhandene Sonde zurückgegriffen werden kann, deren schematische Aufbau in Abbildung 1 gezeigt ist und im Folgenden kurz beschrieben werden soll. Nähere Details zu Methode und Messverfahren finden sich in [Deuerling2010]. Da die Probenahmesonde horizontal (d.h. senkrecht zum Rohgasstrom) in den Kessel eingeführt wird, ist zunächst eine Umlenkung des Aerosols um 90° mittels eines Schwanenhalskrümmers notwendig. Direkt hinter dem Einlasskrümmer ist ein poröses Rohr (porous tube diluter, PTD) platziert, durch dessen Wände vorgewärmte partikelfreie Luft gepresst wird. Die durch die Wände radial eintretende Luft verdünnt das angesaugte Aerosol schnell und homogen und kühlt es gleichzeitig auf 300°C ab.

Das verdünnte Aerosol durchläuft einen Zyklon mit 20 µm Cutoff-Durchmesser, der zum einen als Staubvorabscheider zum Schutz der Messinstrumente und zum anderen zur Beprobung der Grobstaubfraktion dient. Im Anschluss wird mit einem isokinetischen Teiler ein Teilstrom für die Partikelanalyse vom Hauptstrom abgetrennt. Dieser wird in einem zweistufigen Ejektorverdünner weiter verdünnt und auf unter 100°C abgekühlt. Hinter dem zweiten Ejektor befindet sich ein weiterer isokinetischer Teiler, der eine parallele Beschickung verschiedener Impaktoren und Aerosolmessgeräte ermöglicht. Der Hauptstrom wird in einem zweiten Zyklon weiter entstaubt und ein

danach abgezogener Teilstrom zur Gasanalyse verwendet. Der Hauptstrom des verdünnten Gases wird nach Trocknung mit einer Pumpe abgesaugt.

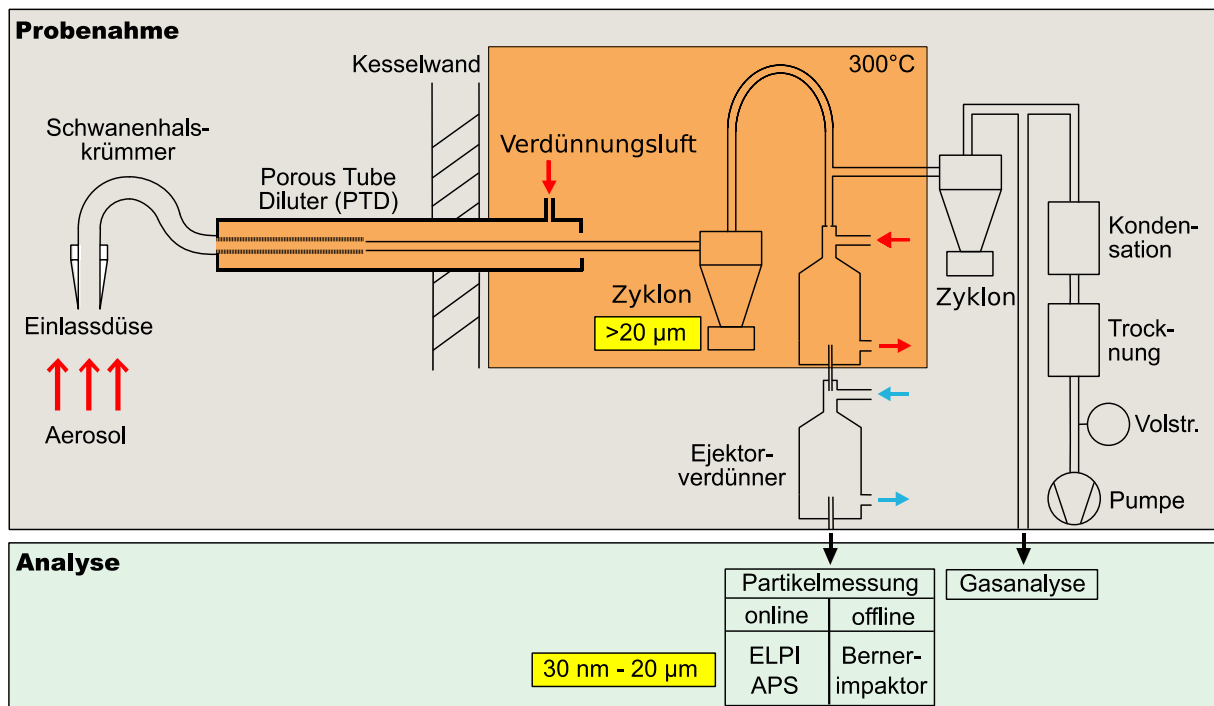


Abbildung 1: Schematischer Aufbau der Verdünnungssonde.

Die Messung mit der Verdünnungssonde birgt zwei wesentliche Nachteile: Zum einen werden die meist klebrigen Partikel ab einer Größe von wenigen Mikrometern zu einem Großteil bereits im Schwanenhalskrümmer abgeschieden und stehen somit der Aerosolmesstechnik nicht mehr zur Verfügung. Darüber hinaus sind die Ergebnisse je nach Temperatur im Kessel mehr oder weniger stark von Artefakten durch Kondensation von Salzdämpfen während der Abkühlung in der Sonde beeinflusst. Betrachtet man den temperaturabhängigen Sättigungsdampfdruck eines typischen kondensierbaren Gases wie beispielsweise NaCl (siehe Abbildung 2), so zeigt sich, dass dieser bei Abkühlung von 1000°C auf 300°C um mehr als acht Größenordnungen fällt [Ewing1974]. Somit wäre zur vollständigen Vermeidung von Nukleation und Kondensation von Salzen bei der Probenahme eine Verdünnung in der Größenordnung 1:10<sup>8</sup> nötig. Dies ist technisch kaum umsetzbar und würde zudem die vorhandene Partikelkonzentration zu stark verdünnen, um noch messbar zu sein.

Die Aerosolprobenahme mit der Verdünnungsmethode birgt noch weitere Nachteile: Es besteht ein hoher Aufwand bei Aufbau und Betrieb, sodass nur etwa eine Messung pro Tag möglich ist. Des Weiteren kann die chemische Zusammensetzung nur als Mittelwert für verschiedene Partikelgrößenklassen bestimmt werden. Dies hat zwar den Vorteil mit wenig Aufwand für makroskopische Substanzmengen möglich zu sein, jedoch gehen dabei Informationen über die chemische Zusammensetzung und Morphologie einzelner Partikel verloren. Diesbezügliche Unterschiede können Einfluss auf die Korrosionseigenschaften haben, da sie Unterschiede in der Abscheidung auf den Wärmeübertragern, in der Struktur des Belags und im Stoffaustausch mit der Umgebung verursachen.

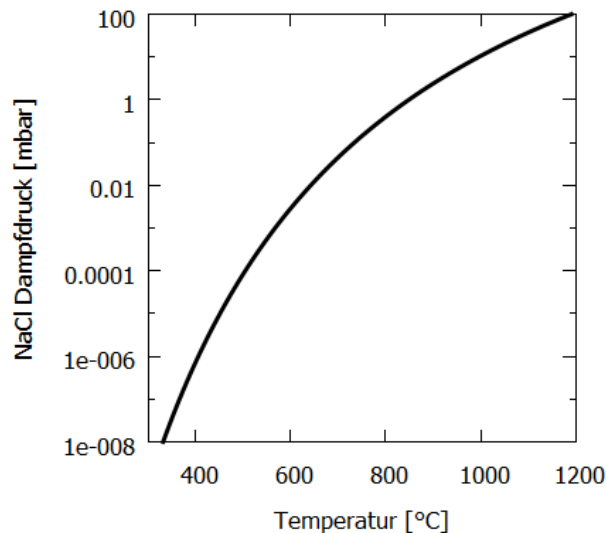


Abbildung 2: Temperaturabhängigkeit des Sättigungsdampfdrucks von NaCl.

Um die zuvor beschriebenen Artefakte weitgehend zu minimieren, wurde deshalb ein neues Konzept erarbeitet, das es erlaubt, die Partikel bereits im Heißgas auf Oberflächen zur anschließenden Charakterisierung abzuschneiden. Somit werden Umlenkungen und Rohrleitungen vermieden, die zu Partikelverlusten führen. Zum anderen können durch die isotherme Sammlung Kondensationsartefakte weitgehend vermieden werden. Neben den harschen Umgebungsbedingungen stellt die begrenzte Baugröße des Sammlers eine weitere Herausforderung dar. Da der Sammler mit Hilfe einer Lanze durch vorhandene, runde Zugänge zum Kessel mit 50 mm Durchmesser in den Kessel eingeführt werden muss, darf die äußere Abmessung des Sammlers 50 mm nicht überschreiten.

Um diese Bedingungen zu erfüllen und zudem einen weiten Partikelgrößenbereich von wenigen 10 nm bis hin zu einigen 100  $\mu\text{m}$  abzudecken, wurde entschieden, die Probenahme als zweistufiges System auszulegen: Zunächst werden größere Partikel aufgrund ihrer Trägheit von einem Impaktor abgeschieden, um ein schnelles Zusetzen des darunterliegenden Filtersubstrats zu vermeiden. Letzteres wird zur Sammlung der verbleibenden, kleineren Partikel verwendet. Da a priori nicht bekannt war, ob die zu sammelnden Partikel auf einer Prallplatte tatsächlich haften bleiben, sollte der auszulegende Sammler so konstruiert sein, dass er sowohl als herkömmlicher Impaktor als auch als virtueller Impaktor ausgeführt werden kann. Im Falle des virtuellen Impaktors sollen auch die „abgeschiedenen“ Partikel auf einem zusätzlichen Membranfilter gesammelt werden. Im Projektverlauf wurde jedoch auf die Konstruktion eines virtuellen Impaktors aufgrund des deutlich höheren Aufwandes verzichtet. Im Folgenden soll zunächst die Auslegung des Impaktors und anschließend die Wahl eines geeigneten Filtersubstrats beschrieben werden.

## A.2 Auslegung des Trägheitsabscheiders

Als Vorarbeit zur Auslegung des Sammlers wurden zunächst grundlegende Überlegungen zur trägheitsbedingten Partikelabscheidung angestellt. Anschließend wurden diese auf die bestehende Theorie zur Trägheitsabscheidung von Partikeln in Impaktoren und virtuellen Impaktoren angewendet, um so zu einer Auslegung des Sammlers zu gelangen. Der erste Prototyp wurde anschließend per numerischer Strö-

nungssimulation (computational fluid dynamics, CFD) modelliert, um so die Auslegung weiter zu optimieren.

Zur Untersuchung der Trägheitsabscheidung wird in der Regel die sogenannte Stokeszahl herangezogen. Sie ist definiert als das Verhältnis der Relaxationszeit  $\tau$  eines Partikels in einer Strömung zu einer charakteristischen Zeit, welche die Strömung zur Überwindung eines Hindernisses benötigt. Diese charakteristische Zeit ergibt sich aus der Strömungsgeschwindigkeit  $U$  und der Größe  $d_c$  des angeströmten Hindernisses. Die Stokeszahl berechnet sich somit zu

$$\text{Stk} = \frac{\rho_p d_p^2 U}{18 \eta d_c} \quad (1)$$

Da die Stokeszahl proportional zum Quadrat des Partikeldurchmessers ist, wird häufig die Wurzel der Stokeszahl angegeben. In Runddüsenimpaktoren unter Normalbedingungen werden bei einer Stokeszahl von  $\text{Stk}^{0,5} = 0,49$ , d.h.  $\text{Stk}_{50} = 0,24$ , genau 50% der Partikel abgeschieden. Dies ist gültig für Reynoldszahlen im Bereich zwischen etwa 40 und 4000. Mit Hilfe dieser Stokeszahl berechnet sich der Cutoff-Durchmesser  $d_{50}$  eines Impaktors zu

$$d_{50} = \sqrt{\frac{9 \cdot \eta \cdot D_1 \cdot \text{Stk}_{50}}{\rho_p \cdot C_c \cdot U}} \quad (2)$$

Hierin ist  $D_1$  der Düsendurchmesser,  $\rho_p$  die Partikeldichte und  $U$  die Strömungsgeschwindigkeit in der Düse. Der Cutoff-Durchmesser des Impaktors soll im hier betrachteten Fall bei  $40 \mu\text{m}$  (aerodynamisch) liegen. Bei einer angenommenen Partikeldichte von  $2200 \text{ kg/m}^3$  entspricht dies einer geometrischen Größe von etwa  $25 \mu\text{m}$ . Als Volumenstrom des Impaktors wurden zunächst  $1,6 \text{ l/min}$  angenommen. Um bei diesem Volumenstrom den gewünschten Cutoff-Durchmesser von  $40 \mu\text{m}$  zu erreichen, müsste der Düsendurchmesser  $D_1$   $11 \text{ mm}$  betragen. Es gibt jedoch noch weitere geometrische Randbedingungen, die für die Anwendung der Impaktortheorie einzuhalten sind. Diese sind in Tabelle 2 aufgelistet.

Beschreibung	Impaktor	virtueller Impaktor	gewählt
Düsenlänge / Düsendurchmesser $l/D_1$	0,25 – 2	0,8 – 1,2	0,8
Abstand Düse / Prallplatte (Trennebene) $S/D_1$	0,5 – 5	1,2 – 1,8	1,2
Durchmesser Behälter / Düsendurchmesser $D_2/D_1$		1,3 – 1,4	1,4

Tabelle 2: Geometrische Randbedingungen für Impaktoren (nach [Hinds1999]) und virtuelle Impaktoren (nach [Loo1988]) sowie die hier gewählten Bedingungen.

Da der Impaktor in seinen maximalen Abmaßen  $50 \text{ mm}$  nicht überschreiten darf, ist ein Düsendurchmesser von  $11 \text{ mm}$  unter Berücksichtigung der genannten Konstruk-

tionsparameter von Impaktoren nicht realisierbar. Aus diesem Grund ist für die Erstauslegung der größtmögliche Innendurchmesser von 7,5 mm gewählt worden. Neben einem geeigneten Cutoff-Durchmesser soll der Sammler zudem eine isokinetische Probenahme gewährleisten. Bei einer Strömungsgeschwindigkeit im Kessel von 4,5 m/s und dem oben genannten Probenvolumenstrom von 1,6 l/min ergibt sich ein benötigter Durchmesser des Probeneintritts von 2,75 mm. Der Querschnitt der Düse erweitert sich danach auf die oben genannten 7,5 mm.

Damit die zuvor gemachten Überlegungen gültig sind, muss sich die Reynoldszahl im Gültigkeitsbereich der klassischen Impaktortheorie zwischen 40 und 4000 bewegen. Mit den zuvor gewählten Parametern ergibt sich jedoch bei 1200°C eine Reynoldszahl in der Düse von lediglich 25. Es ist also fraglich, ob insbesondere die angenommene Stokeszahl  $Stk_{50}$  von 0,24 anwendbar ist. Da darüber hinaus bei einer umfassenden Literaturrecherche auch keine Studien zur Auslegung von Impaktoren für einen Temperaturbereich bis 1200°C gefunden werden konnten, wurden im folgenden numerische Strömungssimulationen mit ANSYS FLUENT durchgeführt, um das Abscheideverhalten zu validieren.

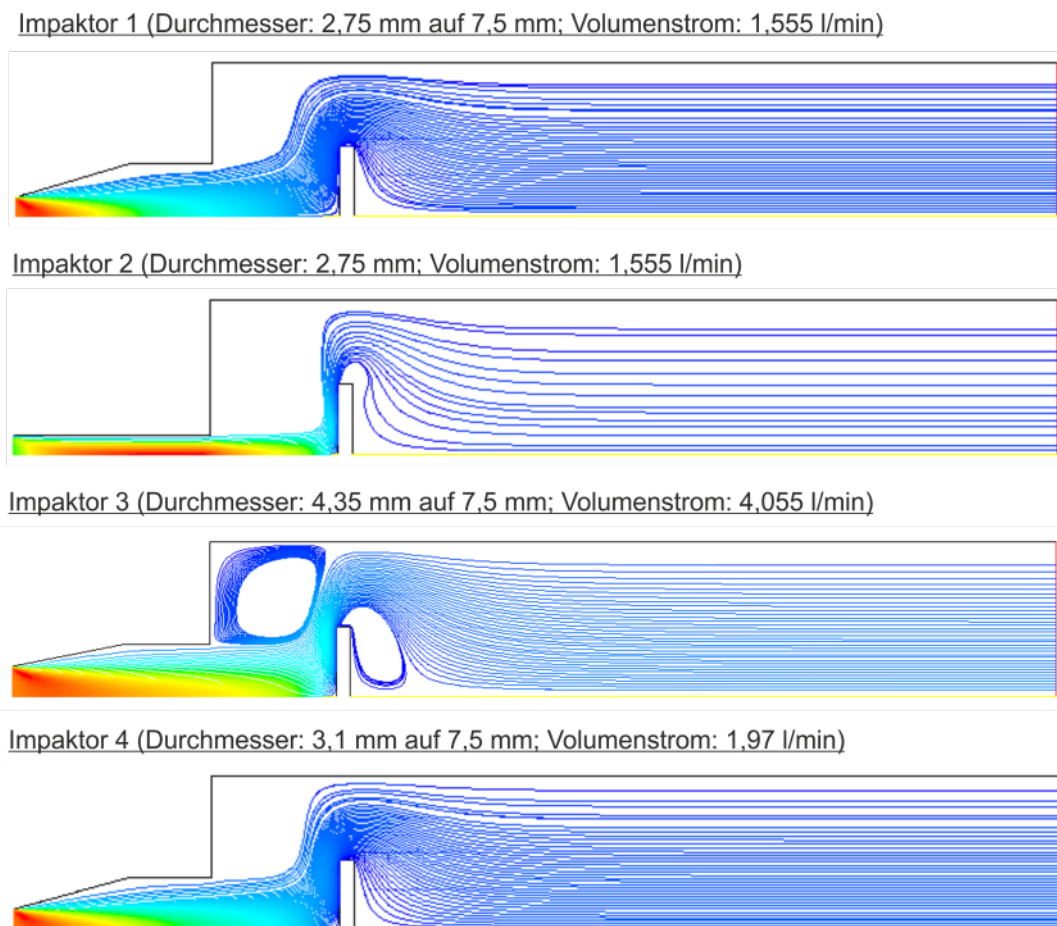


Abbildung 3: Stromlinien mit einem Düsendurchmesser von 7,5 mm und einer Eintrittsgeschwindigkeit von ca. 4,5 m/s.

Dazu wurden vier geringfügig unterschiedliche Varianten des Sammlers untersucht: Die auf der Theorie basierende erste Auslegung (Impaktor 1), ein Impaktor mit gleichbleibendem Düsendurchmesser (Impaktor 2) und zwei Impaktoren mit größe-

ren Einlassdurchmessern und darauf angepassten Volumenströmen (Impaktoren 3 und 4). Die verschiedenen Sammlergeometrien wurden achsensymmetrisch ausgeführt, wie in Abbildung 3 dargestellt. Zur Simulation der Partikeldynamik wurde das Discrete Phase Model (DPM) von ANSYS FLUENT verwendet. Hierbei handelt es sich um eine Lagrangesche Betrachtungsweise der Partikeldynamik. Zusätzlich zu den standardmäßig verfügbaren Effekten wie Impaktion und Diffusion, wurde bei den hier durchgeführten Berechnungen eine selbst entwickelte Erweiterung des Partikelmodells verwendet, die die Berechnung des Effekts der Interzeption auf die Partikelabscheidung erlaubt, da diese bei den hier betrachteten Partikelgrößen nicht vernachlässigbar ist. Folgende Randbedingungen wurden bei der Simulation verwendet:

Viskosität von Luft:  $5,19 \times 10^{-5}$  Pas  
 Dichte der Partikel:  $1000 \text{ kg/m}^3$  (aerodynamischer Durchmesser)  
 Temperatur:  $1200^\circ\text{C}$   
 Gasdichte:  $0,239 \text{ kg/m}^3$

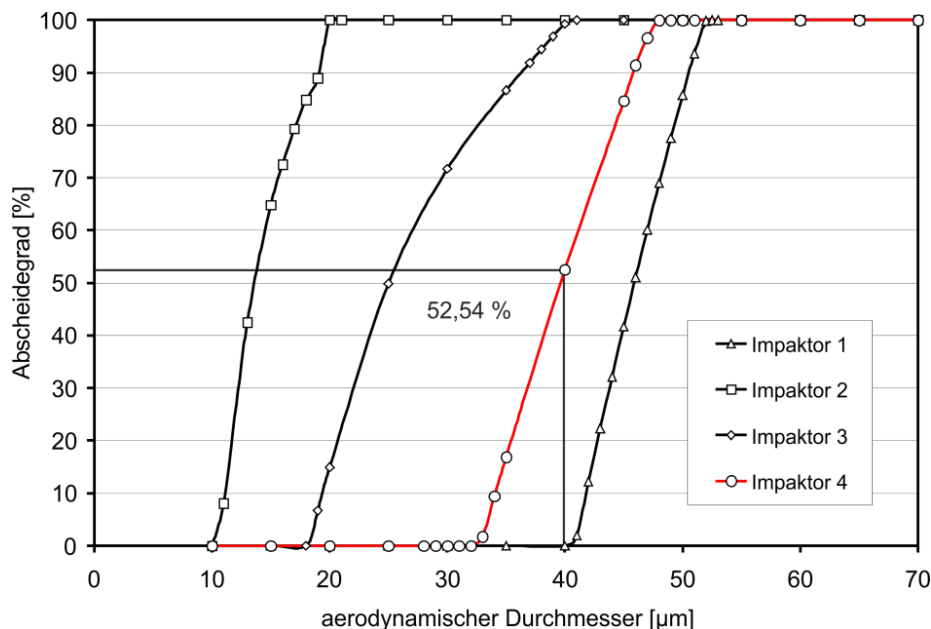


Abbildung 4: Vergleich numerisch ermittelter Abscheidegradverläufe der untersuchten Sammlervarianten (siehe Abbildung 3).

Abbildung 4 zeigt die ermittelten Abscheidegradverläufe für die untersuchten Sammlervarianten. Die nach der Theorie ausgelegte Variante (Impaktor 1) zeigt einen sehr linearen Trenngradverlauf, scheidet jedoch bei einem etwas größeren Durchmesser als zunächst geplant ab. Durch eine leichte Vergrößerung des Einlassdurchmessers auf 3,1 mm mit gleichzeitiger Erhöhung des Volumenstromes auf 1,97 l/min zum Erhalt der isokinetischen Probenahmebedingungen (Impaktor 4) kann die Vorgabe eines Cutoff-Durchmessers von 40 µm jedoch nahezu perfekt erfüllt. Eine weitere Vergrößerung des Düsendurchmessers bei gleichzeitiger Erhöhung des Volumenstroms (Impaktor 3) würde hingegen zu einem zu kleineren Cutoff-Durchmesser und einem Verlust an Trennschärfe führen. Auch bei Verwendung eines gleich bleibenden kleinen Düsendurchmessers (Impaktor 2) ergeben sich kein linearer Trenngradverlauf und ein wesentlich kleinerer Cutoff-Durchmesser von lediglich 13 µm aufgrund der stärkeren Richtwirkung der Anströmung. Auf Basis der Ergebnisse der Simulations-

rechnungen wurde Impaktor 4 als erster Prototyp für die durchzuführenden Messungen ausgewählt und gefertigt.

Neben der Auslegung für einen bestimmten Cutoff-Durchmesser bestand eine weitere Herausforderung in der Umsetzung der artefaktfreien Sammlung. Artefakte können insbesondere durch Kondensation gasförmiger Substanzen (speziell von Salzen) auf den Probenträgern vor, während oder nach der Beprobung entstehen. Um dies zu vermeiden, ist im Sammler eine Stickstoffzuführung vorgesehen, mit der der Messkopf vor und nach der Beprobung gespült wird. Solange der Stickstoffvolumenstrom größer als der abgesaugte Volumenstrom ist, tritt Stickstoff aus dem Sammler einlass aus, sodass weder Partikel noch gasförmige Substanzen aus der Kesselluft in den Sammler eintreten können. Neben der Kondensation werden hierdurch auch chemische Nachreaktionen auf der Probenplatte vermieden, welche die Partikel verändern können. Eine genaue Zuordnung des Ab- und Wiedereinschaltens des Stickstoffes ermöglicht zudem eine sehr genaue Kontrolle der Probenahmezeit. Dies ist insbesondere bei den hier zu erwartenden sehr kurzen Probenahmezeiten wichtig.

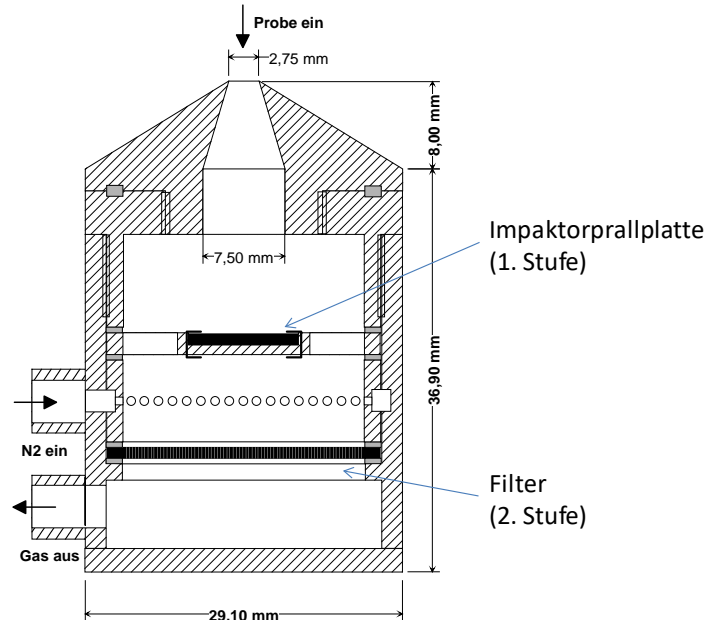


Abbildung 5: Erster Prototyp des Partikelsammlers für die Heißgasprobenahme.



Abbildung 6: Explosionszeichnung der ausgelegten Sonde (links); demontierte Sonde (Mitte); an Lanze montierte Sonde beim Einsatz im GKS (rechts).

Die Skizze für einen ersten Prototyp des Sammlers ist in Abbildung 5 gezeigt. Anhand dieser wurde der Impaktor in der feinmechanischen Werkstatt der Universität Duisburg-Essen aus hitzebeständigem Edelstahl (X15CrNiSi25-21, Typ 1.4841) ge-

fertigt. Abbildung 6 zeigt links eine Explosionszeichnung der Sonde und in der Mitte die gefertigte, aber noch demontierte Sonde, während auf dem rechten Bild die montierte und mittels einer Halterung an einer wassergekühlten Probenahmelanze befestigte Sonde zu sehen ist. Man erkennt die Stickstoffzuführung (obere Edelstahlleitung) sowie die Abführung des Probenahmegases (untere Edelstahlleitung). Sonde und Halterung wurden so ausgelegt, dass sie durch die 50 mm Öffnungen in den Kesselwandungen in den Kessel einzuführen sind. Insgesamt wurden drei Sonden und 50 Impaktorplatten gefertigt.

### A.2.1 Weitere Optimierungen der Sonde

Das Sondengehäuse wurde im Mai 2014 in einer ersten Messkampagne am GKS Schweinfurt getestet. Dazu wurde die Sonde im zweiten Zug bei einer Abgastemperatur von 650°C derart in den Kessel eingeführt, dass sich der Einlass entgegen der Strömungsrichtung befand, um zu verhindern, dass trotz Stickstoffspülung Partikel in die Sonde gelangen können. Nach einer mehrminütigen Aufwärmzeit wurde die Sonde in Strömungsrichtung eingeschwenkt und die Stickstoffzufuhr zum Beginn der Probenahme unterbrochen, um nach einer Probenahmezeit von entweder 10 s oder 30 s wieder eingeschaltet zu werden. Nach der Probenahmezeit zeigte sich, dass die Verschraubungen der Sondengehäuse nicht mehr öffnen ließen, sodass die Probenahmen nach wenigen Versuchen abgebrochen werden mussten. Die Impaktorplatten und Tressengewebe konnten anschließend nur durch Zerstörung der Gehäuse zurückgewonnen werden, standen dadurch aber für Analysen zur Verfügung.

Basierend auf den Erkenntnissen der ersten Inbetriebnahme wurde das Design der Probenahmesonde noch einmal überarbeitet. An die Stelle des zuvor verwendeten Feingewindes zur Verbindung der beiden Gehäuseteile ist ein Flansch mit M3 Schrauben und Muttern getreten. Diese Schrauben und Muttern werden als Einwegteile angesehen und nach einer Probenahme ausgetauscht. Dieser Wechsel zu einer Flanschverbindung hat sich im weiteren Projektverlauf bewährt. So konnte ein einziges Gehäuse durchgehend für eine ganze Messkampagne verwendet und alle Probenträger verlustfrei entnommen werden.



Abbildung 7: Neue Probenahmesonde. Links: 3D Bauteilzeichnung; Mitte: demontierte Sonde mit Halter; rechts: an Halter montierte Sonde.

Darüber hinaus wurden keine weiteren Änderungen der eigentlichen Sonde vorgenommen. Die neue Probenahmesonde ist in Abbildung 7 gezeigt. Der Einlass der Probenahmesonde, der für die hier vorgestellte Messkampagne verwendet wurde, weicht aus fertigungstechnischen Gründen leicht von der ursprünglichen Auslegung ab. Wie in Abbildung 8(a) gezeigt, musste die Querschnittsänderung der Einlassdüse von 3,1 mm auf 7,5 mm mit einem Standardbohrer (118° Spitzenwinkel) durchgeführt werden, was eine recht abrupte Aufweitung zur Folge hat. Die CFD-Simulationen in

Abbildung 8(c) zeigen, dass sich dadurch eine Aufweichung der Abscheidekurve und ein verkleinerter Cutoff-Durchmesser von etwa 30  $\mu\text{m}$  statt 40  $\mu\text{m}$  (bei 1473 K) ergeben. Der Unterschied lässt sich mit einer höheren mittleren Partikelgeschwindigkeit durch die schlechtere Aufweitung des Fluids bei der abrupten Querschnittsänderung erklären.

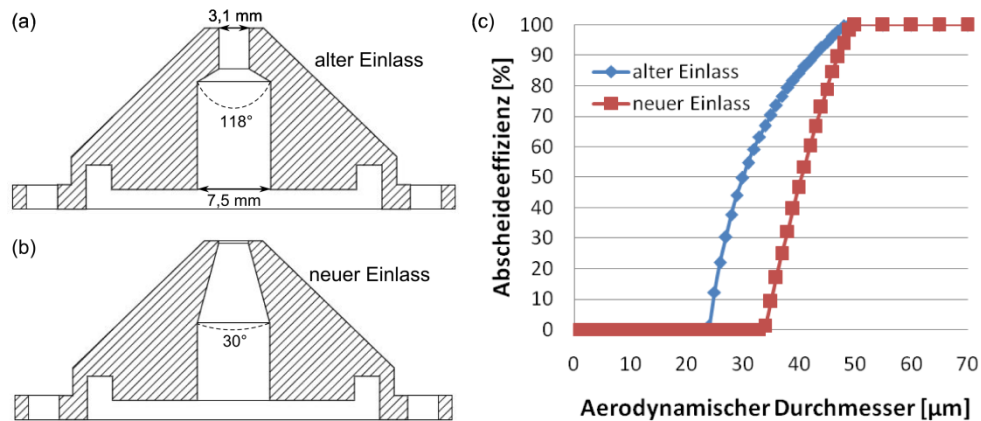


Abbildung 8: Querschnitte der Einlässe zweier Probenahmesonden. (a) Sonde, die für die hier vorgestellte Messkampagne verwendet wurde. (b) Neue Konstruktion unter Benutzung eines Spezialbohrers. (c) Zugehörige Abscheidekurven bei 1473 K.

Im Projektverlauf wurde ein Spezialbohrer mit 30° Spitzenwinkel gefunden, der eine Konstruktion nahe an der ursprünglichen Auslegung ermöglicht (siehe Abbildung 8(b)). Mit Hilfe dieses Bohrers wurde in der feinmechanischen Werkstatt der Universität Duisburg-Essen eine neue Sonde gefertigt. Im Vergleich zur Vorgängerversion wurden weitere Optimierungen vorgenommen. Die Gasleitungen sind nun beide direkt an das Sondengehäuse angeschweißt, um das geringe Platzangebot effizienter zu nutzen. Die Zahl der Schrauben am Flansch des Deckels wurde von acht auf sechs reduziert, um Zeit beim Probenwechsel zu sparen.

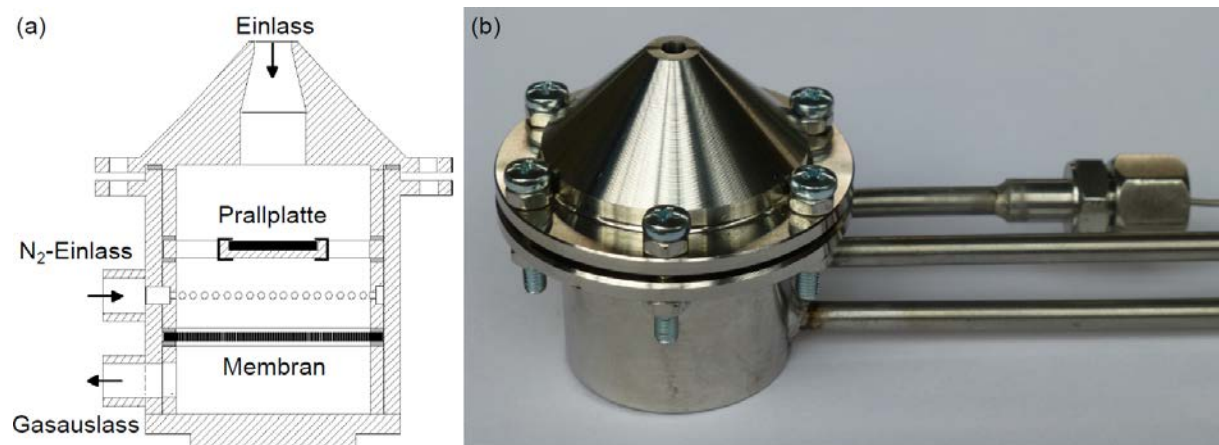


Abbildung 9: (a) Querschnitt der Probenahmesonde. (b) Fotografie der Sonde. Im Hintergrund das neu integrierte Thermoelement zu sehen.

Um auch eine experimentelle Möglichkeit zur Temperaturmessung zu haben, wurde die Probenahmesonde zusätzlich um ein Thermoelement erweitert. Dazu wird ein mit korrosionsfestem Edelstahl (Werkstoff 1.4841) ummanteltes Thermoelement vom Typ K (NiCr-Ni) geschützt durch die wassergekühlte Lanze geleitet und durch eine

seitliche Bohrung unterhalb des Membranfilters in das Sondengehäuse eingeführt. Somit kann die Gastemperatur im Inneren der Sonde bestimmt werden. Zum Vergleich mit der Rauchgastemperatur wurde zudem ein weiteres temperatur- und korrosionsbeständiges Thermoelement beschafft, das direkt in den Gasstrom gehalten werden kann. Die dritte Version der Sonde ist in Abbildung 9 gezeigt.

## A.2.2 Einfluss der Temperatur auf die Abscheidung

Im Verlaufe des Projekts wurden weitere Berechnungen durchgeführt, um ein umfassenderes Verständnis des Abscheideverhaltens des Impaktors zu erlangen. Dies betrifft insbesondere die Änderung des Cutoff-Durchmessers über den relevanten Temperaturbereich von etwa 600 bis 1500 K. Wie bereits zuvor diskutiert wurde für den Cutoff-Durchmesser zunächst die Abhängigkeit

$$d_{50} = \sqrt{\frac{9 \cdot \eta \cdot D_1 \cdot \text{Stk}_{50}}{\rho_p \cdot C_c \cdot U}} \quad (3)$$

gemäß der klassischen Impaktortheorie angenommen [Hinds1982]. Hier bezeichnet  $D_1$  den Düsendurchmesser,  $\rho_p$  die Partikeldichte und  $U$  die Anströmgeschwindigkeit. Der Cunningham-Korrekturfaktor  $C_c$  kann für die hier relevanten Partikeldurchmesser von mindestens 10  $\mu\text{m}$  vernachlässigt werden. Für die dynamische Viskosität des Gases gilt  $\eta \sim \sqrt{T}$ , sodass sich insgesamt eine Temperaturabhängigkeit von  $d_{50} \sim \sqrt[4]{T}$  ergibt, wie in Abbildung 10 durch die blaue Kurve gezeigt. Dabei wurde angenommen, dass  $\text{Stk}_{50}$  (Stokeszahl bei 50% Abscheidung) einen konstanten Wert annimmt.

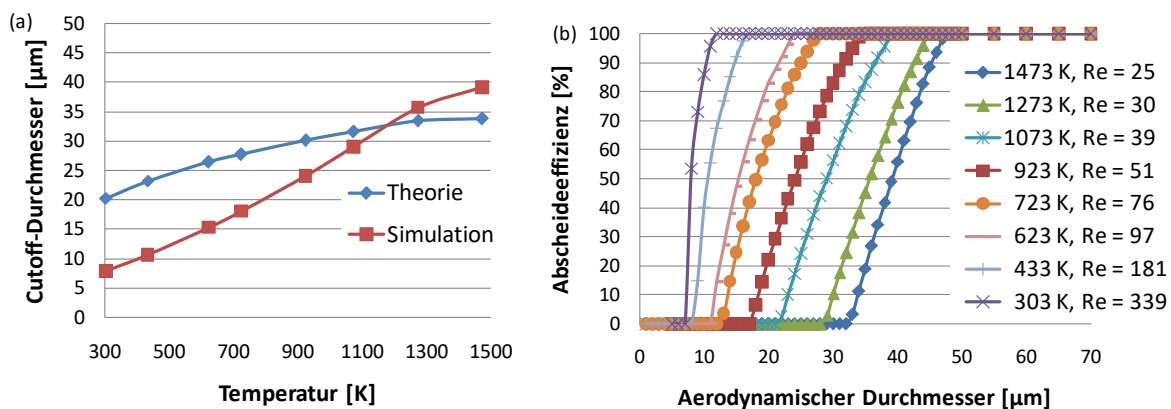


Abbildung 10: (a) Cutoff-Durchmesser in Abhängigkeit der Temperatur nach Gleichung (3) mit  $\text{Stk}_{50} = 0,24$  und  $u = 0,74$  m/s (blau) und simuliert mit CFD (rot). (b) Zugehörige simulierte Abscheidekurven für verschiedene Temperaturen. Zusätzlich sind die jeweiligen Reynoldszahlen der Strömung angegeben.

Um die Gültigkeit dieses einfachen Modells zu überprüfen, wurden CFD-Simulationen bei verschiedenen Temperaturen durchgeführt. Die Geometrie der rotationssymmetrischen Einheitszelle ist in Abbildung 11 gezeigt. Die Strömungsgeschwindigkeit am Einlass betrug 4,3 m/s, was einer Geschwindigkeit von 0,74 m/s am Düsenende entspricht. Die Berechnungen wurden für aerodynamische Durchmesser, d.h. für  $\rho_p = 1000$   $\text{kg}/\text{m}^3$  durchgeführt.

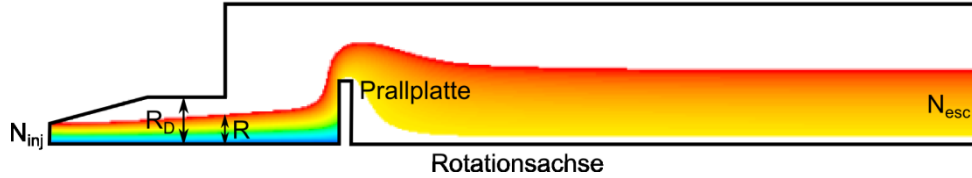


Abbildung 11: Rotationssymmetrisches Modell des Impaktors. Von  $N_{inj}$  injizierten Partikeln erreichen  $N_{esc}$  den Auslass, während der Rest auf der Prallplatte abgeschieden wird. Am Austritt der Düse mit Radius  $R_D$  sind die Partikel auf einen Bereich mit Radius  $R$  konzentriert.

Als Nebenbemerkung sei erwähnt, dass nach Abbildung 11 die Partikel hinter der Prallplatte nur im inneren Bereich des Rohres und somit nicht auf dem gesamten Membranfilter zu finden sein sollten. Es wurden jedoch zusätzlich Berechnungen durchgeführt, bei denen ein Membranfilter in Form eines porösen Mediums ergänzt wurde. Der zur Modellierung nötige Druckverlust wurde zuvor durch experimentelle Messungen bestimmt. Als Ergebnis der Simulation zeigt sich, dass die Membran durch den aufgebauten Gegendruck über fast ihren gesamten Querschnitt gleichmäßig mit Partikeln angeströmt wird.

Zur Bestimmung der Abscheideeffizienz wurden  $N_{inj}$  Partikel gleichmäßig über den Einlass verteilt und die Zahl  $N_{esc}$  der Partikel am Auslass bestimmt. Die Abscheideeffizienz für den dreidimensionalen Fall berechnet sich zu

$$\varepsilon = \left(1 - \frac{N_{esc}}{N_{inj}}\right)^2 \quad (4)$$

Die rote Kurve in Abbildung 10(a) zeigt die Cutoff-Durchmesser, die aus den simulierten Abscheidekurven in Abbildung 10(b) bestimmt wurden. Für niedrige Temperaturen liegt der Cutoff-Durchmesser deutlich unter den Erwartungen der klassischen Impaktortheorie mit  $Stk_{50} = 0,24$ , während sich für hohe Temperaturen sogar leicht größere Cutoff-Durchmesser ergeben. Somit ist die Temperaturabhängigkeit insgesamt stärker als zunächst erwartet.

Die Abweichung lässt sich durch zwei Effekte begründen, die hier nur kurz umrissen werden sollen. Zunächst zeigt sich, dass die Partikel nicht vollständig der Aufweitung auf den Düsenradius  $R_D$  folgen, sondern am Düsenaustritt auf einen Bereich mit Radius  $R < R_D$  konzentriert sind, wie in Abbildung 11 deutlich zu sehen ist. Bei niedrigen Temperaturen, d.h. niedriger Viskosität, ist dieser Effekt ausgeprägter, da das Gas weniger mit der Gehäusewand wechselwirkt. Die schlechte Aufweitung führt zu einer erhöhten mittleren Partikelgeschwindigkeit

$$u_{avg} = \frac{1}{2\pi R} \int_0^{2\pi} \int_0^R u(r) r dr d\varphi \quad (5)$$

Dies führt zu niedrigeren Cutoff-Durchmessern, wie durch die grüne Kurve in Abbildung 12 gezeigt. Für niedrige Temperaturen ergibt sich eine gute Übereinstimmung mit der CFD-Simulation, für höhere Temperaturen werden die Cutoff-Durchmesser jedoch deutlich unterschätzt. Hier ist ein zweiter Effekt relevant: Mit steigender Temperatur rückt die Reynoldszahl zunehmend aus dem Geltungsbereich der klassischen Impaktortheorie (siehe Abbildung 10(b)). Die Berechnungen eines Impaktors ohne Aufweitung (hier nicht gezeigt) belegen, dass  $Stk_{50}$  vom klassischen Wert von

0,24 bei 303 K mit steigender Temperatur kontinuierlich auf einen Wert von 0,50 bei 1473 K ansteigt. Berücksichtigt man diese Temperaturabhängigkeit von  $Stk_{50}$ , wie durch die orange Kurve in Abbildung 12 gezeigt, so lässt sich die CFD-Simulation gut durch Gleichung (3) beschreiben.

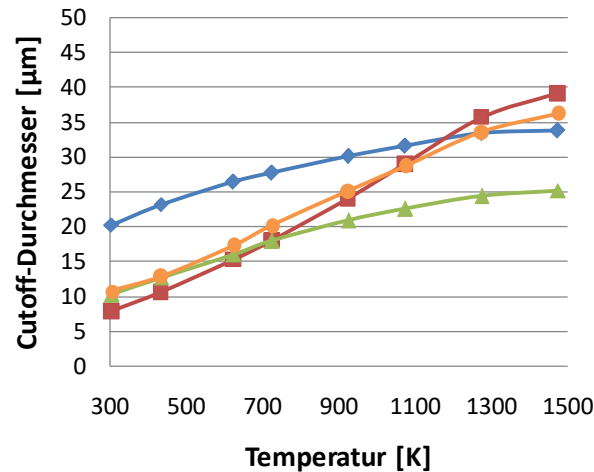


Abbildung 12: Cutoff-Durchmesser in Abhängigkeit der Temperatur: Rot: CFD Simulation. Blau: Gleichung (3) mit  $Stk_{50} = 0,24$  und  $u = 0,74$  m/s. Grün: Gleichung (3) mit  $Stk_{50} = 0,24$  und  $u_{avg}$  aus Gleichung (5). Orange: Gleichung (3) mit temperaturabhängigem  $Stk_{50}$  und  $u_{avg}$  aus Gleichung (5).

### A.2.3 Einfluss der Gravitation auf die Abscheidung

Als nächstes soll der Einfluss der Gravitation auf die Impaktionsabscheidung diskutiert werden. Da die Partikel in der Anlage abhängig von der Messstelle entweder aufwärts (erster und dritter Zug) oder abwärts (zweiter und vierter Zug) strömen, muss der Impaktor entweder mit dem Einlass nach oben oder nach unten verwendet werden. Bisher wurden die CFD-Rechnungen zur Auslegung des Impaktors ohne Berücksichtigung der Gravitation durchgeführt. In der klassischen Impaktorthorie ist dies gerechtfertigt, da für Reynoldszahlen größer 500 die Sedimentationsgeschwindigkeit im Vergleich zur Strömungsgeschwindigkeit vernachlässigbar ist [Huang2002]. Da in unserem Fall aber deutlich niedrigere Reynoldszahlen vorliegen, wurde der Einfluss der Gravitation mittels CFD-Simulationen überprüft.

Abbildung 13(a) zeigt die Temperaturabhängigkeit des Cutoff-Durchmessers ohne Berücksichtigung der Gravitation (vgl. Abbildung 10(a)) sowie mit Berücksichtigung der Gravitation mit dem Impaktoreinlass nach oben bzw. unten. Für niedrige Temperaturen, d.h. hohe Reynoldszahlen, ergibt sich wie erwartet kein merklicher Unterschied. Bei höheren Temperaturen, d.h. niedrigen Reynoldszahlen, zeigt sich jedoch ein deutlicher Effekt. Wirkt die Gravitation beschleunigend auf die Partikel, so sinkt der Cutoff-Durchmesser, wirkt sie hingegen abbremsend, so steigt er leicht. In Abbildung 13(b) ist zudem der Einfluss der Gravitation auf die Form der Abscheideturven gezeigt. Für Gravitation entlang der Strömungsrichtung wird ein zusätzlicher Teil kleinerer Partikel abgeschieden, während die Abscheideturve bei Gravitation entgegen der Strömungsrichtung zwar zu größeren Cutoff-Durchmessern verschoben ist, aber ihre Form bewahrt.

Insgesamt ist der Effekt der Gravitation auf den Cutoff-Durchmesser jedoch relativ gering. Die maximale Abweichung zur ursprünglichen Auslegung beträgt etwa 8% und ergibt sich bei hohen Temperaturen mit dem Einlass nach oben. Diese Kombination kommt in der Praxis allerdings nicht vor, da der Einlass im Feuerraum und im ersten Zug nach unten gehalten wird. Die relevante Abweichung reduziert sich damit zu maximal 5%.

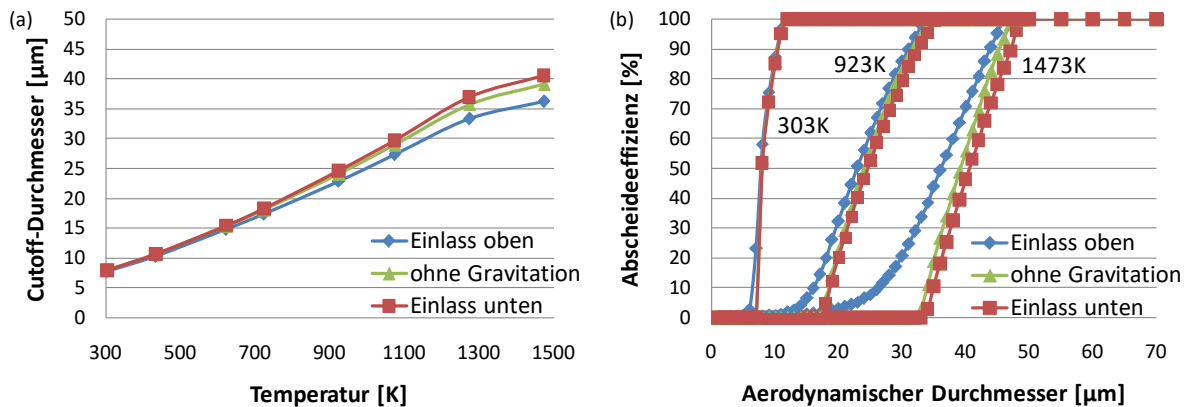


Abbildung 13: (a) Cutoff-Durchmesser in Abhängigkeit der Temperatur berechnet mit CFD ohne Berücksichtigung der Gravitation (grün) sowie mit Berücksichtigung der Gravitation mit Einlass der Probenahmesonde nach oben (blau) bzw. unten (rot). (b) Zugehörige Abscheidekurven für drei Temperaturen.

#### A.2.4 Laborevaluierung der Probenahmesonde

Um die Ergebnisse der CFD-Simulation in der Praxis zu validieren, wurde parallel ein Versuchsstand aufgebaut, der in Abbildung 14 gezeigt ist. Mittels eines Bürstengenerators wird ein Prüfstaub (z.B. Arizona-Staub A3 mit Partikelgrößen von etwa 1 bis  $80 \mu\text{m}$ ) in eine Box dispergiert. Daraus wird der benötigte Aerosolvolumenstrom abgesaugt, während der Überschuss über einen Auslass entweichen kann. Das Aerosol wird durch ein Rohr in den Einlass der Probenahmesonde geleitet und durch ein Rohr am Boden der Sonde abgesaugt. Die Sonde mit einem Teil der Zu- und Ableitung befindet sich im Inneren zweier Öfen, sodass Gastemperaturen von bis zu  $900^\circ\text{C}$  erreicht werden können.

Die Partikelanzahlkonzentration wird vor und hinter der Sonde optisch mit einem Streulichtspektrometer gemessen. Durch eine Vergleichsmessung am leeren Sondengehäuse ohne Prallplatte und Filter können die Verluste im System berücksichtigt werden. Die Einheit zur Aerosolerzeugung ist austauschbar; so könnten beispielsweise durch Dispergieren einer NaCl-Lösung auch kleinere Partikel erzeugt und vermessen werden.

Nach erfolgreichem Aufbau des Prüfstandes, wurden erste Messungen bei Raumtemperatur durchgeführt. Abbildung 15 zeigt eine Abscheidekurve, die mit Arizona-Staub A4 gemessen wurde. Die erwartete Trennkurve des Impaktors ist zu erkennen und der Cutoff-Durchmesser von etwa  $10 \mu\text{m}$  liegt im Bereich der Erwartungen. Allerdings ist die Streuung zwischen verschiedenen Messungen recht groß, da der verwendete A4-Staub zu wenig Partikel im Größenbereich des Cutoff-Durchmessers des Impaktors aufweist. Es wurde nach besser geeigneten Stäuben recherchiert, jedoch hatte sich die Sonde zwischenzeitlich im praktischen Einsatz bereits etabliert,

sodass zur besseren Nutzung der Ressourcen auf eine weitere Laborevaluierung verzichtet wurde.



Abbildung 14: Versuchsaufbau zur Laborvalidierung der Probenahmesonde. (1) Bürstengenerator, (2) Box, (3a,b) Streulichtspektrometer, (4) Öfen. Rechts unten ist die Sonde mit angeschweißten Rohren gezeigt.

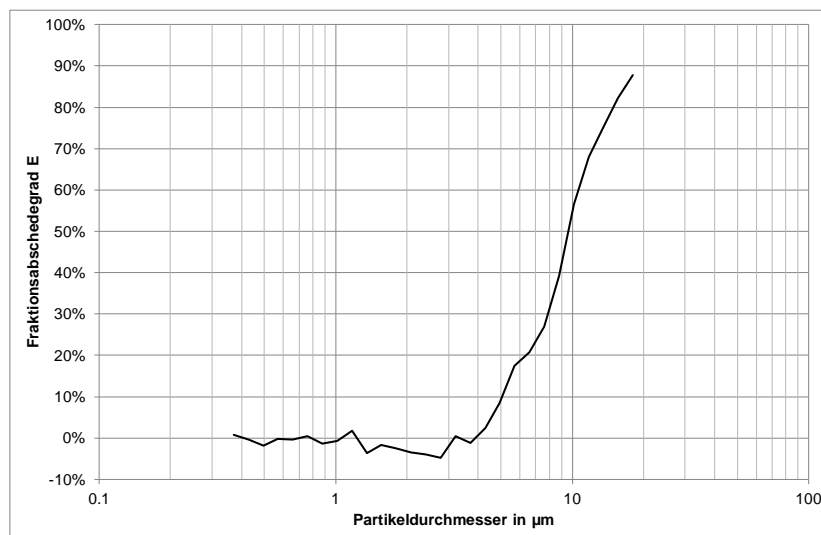


Abbildung 15: Exemplarische Abscheidekurve an der Prallplatte des Impaktors gemessen am Prüfstand zur Laborevaluierung der Sonde mit A4 Prüfstaub.

### A.3 Wahl eines geeigneten Filtersubstrats

Alle Partikel, die nicht auf der Prallplatte des Impaktors verbleiben, werden auf dem Filter in der zweiten Stufe abgeschieden. Für die ersten beiden Messkampagnen im

Mai und Juli 2014 wurden zunächst Köpertressengewebe als Sammelmedium eingesetzt. Solche Gewebe wurden bereits von Pohl (2013) verwendet, um Partikel aus Heißgasen in Müllverbrennungsanlagen zu sammeln. Der Vorteil von Köpertressengewebe ist, dass sie in ausreichend temperaturbeständigen Ausführungen günstig kommerziell erhältlich sind. Eine elektronenmikroskopische Aufnahme des hier verwendeten Gewebes (Werkstoff 1.4404) ist in Abbildung 16 gezeigt.

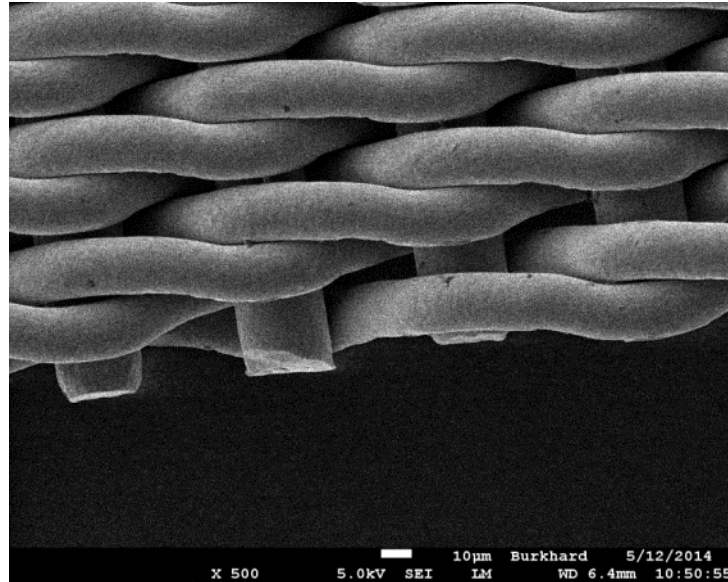


Abbildung 16: Rasterelektronenmikroskopische Aufnahme eines Köpertressengewebes mit folgenden Drahtdurchmessern: Kette 30 µm, Schuss 20 µm.

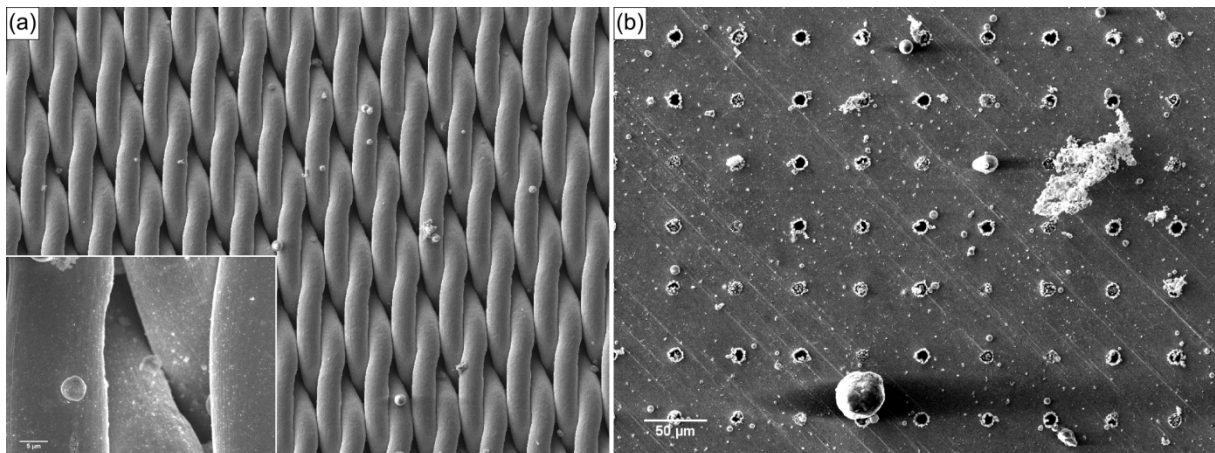


Abbildung 17: REM-Aufnahmen ( $480 \times 360 \mu\text{m}^2$ ) nach jeweils 20 s im 2. Zug auf einem Köpertressengewebe (a) und einer lasergebohrten Membran (b). Der Inset ( $48 \times 36 \mu\text{m}^2$ ) in (a) zeigt die Abscheidung nanoskaliger Partikel an den Eingängen der Maschen.

Wie Abbildung 17(a) zeigt, sind Köpertressengewebe zwar zur Abscheidung von Partikeln geeignet, bergen jedoch verschiedene Nachteile: Zum einen wird ein Teil der Partikel im Inneren der Maschen abgeschieden, wo er einer Analyse nicht mehr zugänglich ist. Zum anderen ist aufgrund der komplexen Geometrie eine räumlich sehr inhomogene Abscheidung zu erwarten, die sich nur mit großem Aufwand numerisch

simulieren lässt. Letztlich erschweren Abschattungseffekte durch die dreidimensionale Struktur die chemische Analyse mittels EDX.

Bei Versuchen mit verschiedenen Sammelzeiten (hier nicht abgebildet) zeigte sich nach 10 s eine eher geringe, nach 30 s Sammelzeit bereits eine recht hohe Belegung des Materials. Daraus wurde geschlossen, dass Sammelzeiten von ca. 20 s zum einen zu einer ausreichend hohen Beladung, zum anderen aber nicht zu einer Überladung der Substrate führt. Deshalb wurde diese Sammelzeit für die meisten der folgenden Versuche verwendet.

Vor dem Hintergrund der sehr aufwändigen Datenauswertung der auf den Köpfortressengewebe gesammelten Partikel wurde die Suche nach alternativen Filtersubstraten verstärkt. Eine vielfältig einsetzbare Option bieten dabei Membranfilter. Teflon-Membranfilter kommen unter anderem bei der Sammlung von atmosphärischen Partikeln zum Einsatz. Chen et al. (2013) haben vorgeschlagen, Nuclepore Membranfilter in personengetragenen Sammlern an Arbeitsplätzen einzusetzen, um anschließend rasterelektronenmikroskopisch die Größenverteilung der Exposition von Arbeitern zu bestimmen. Die vorgeschlagene Auswertemethodik ist sehr ähnlich zu der hier angedachten Methodik. Stahl (2011) vom Fraunhofer Institut UMSICHT in Oberhausen verwendete Membranfilter zur Feinentstaubung hinter Kleinf Feuerungsanlagen und zeigte somit, dass diese Filter auch bei erhöhten Temperaturen (in ihrem Fall bis ca. 300°C) einsetzbar sind. Hierbei zeigten sich insbesondere Nickelmembranen als besonders temperaturbeständig.

Zum Bezug temperaturbeständiger Membranfilter wurde daher Kontakt mit dem Fraunhofer Institut UMSICHT aufgenommen. Das Institut verfügt über eine automatisierte Laserbohrereinrichtung, mit der sich definierte Membranstrukturen herstellen lassen. In ersten Vorversuchen zeigte sich jedoch, dass die Bohrungen für eine einzelne Membran mit 25 mm Durchmesser bei der ursprünglich angedachten Membranstärke von 1 mm mehrere Tage in Anspruch nehmen. Zum anderen wurden die Poren konisch und waren zudem nicht mehr rund. Die Verwendung dünnerer Membranen verkürzte die Zeit zur Herstellung auf wenige Stunden pro Membran. Eine solche Membran wurde bei der zweiten Messkampagne im Juli 2014 getestet. Aufgrund technischer Probleme bei deren Herstellung am Fraunhofer Institut UMSICHT stand leider nur eine teilweise perforierte Membran zur Verfügung. Abbildung 17(b) zeigt, dass diese Membranen offenbar auch zur Abscheidung der Partikel geeignet sind. Da aufgrund der kleineren durchbohrten Fläche die Anströmgeschwindigkeit jedoch wesentlich höher war, ist bei gleicher Probenahmedauer bereits ein großer Teil der Poren zugesetzt.

Da die Herstellung der lasergebohrten Membranen weiterhin sehr aufwändig ist, wurde im weiteren Projektverlauf eruiert, inwiefern alternativ galvanisch gewachsene Membranen einsetzbar sind. Abbildung 18 zeigt mit einem optischen Mikroskop erhaltene Aufnahmen verschiedener galvanisch hergestellter Membranen bei 10-facher (oben) und 100-facher (unten) Vergrößerung. Zur Verfügung standen Membranen mit Porendurchmessern von 19,3 µm, 10,0 µm, 4,7 µm und 1,9 µm. Sämtliche Membranen wurden mit derselben Maske hergestellt, sodass die Lochmittelpunkte immer denselben Abstand voneinander haben. Während des Herstellprozesses wird Nickel galvanisch abgeschieden, sodass sich der Porendurchmesser verkleinert und gleichzeitig die Membranstärke anwächst. Die Abbildungen zeigen eine sehr große Homogenität der Porendurchmesser sowie eine sehr gleichmäßige, periodische An-

ordnung der Poren. Dies ist ein großer Vorteil gegenüber geätzten Membranen (z.B. Nuclepore Filtern), die eine eher inhomogene Verteilung der Poren aufweisen. Durch die hier gezeigte Homogenität ergibt sich eine ebenfalls homogenere Abscheidung der Partikel, wodurch sich die quantitative Auswertung deutlich vereinfacht, da nur eine geringe Anzahl an Bildfeldern ausgewertet werden muss.

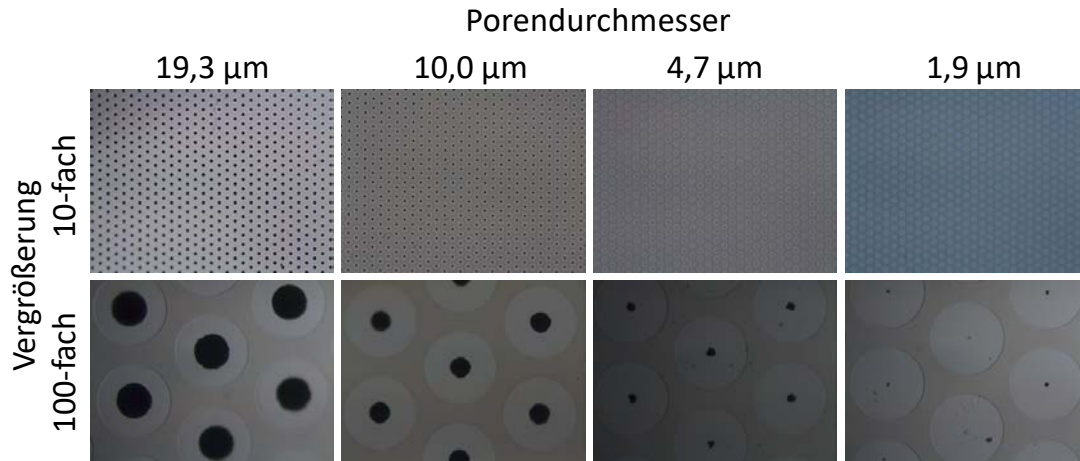


Abbildung 18: Mikroskopische Aufnahmen der verschiedenen galvanisch hergestellten Nickelmembranen in 10-facher Vergrößerung (oben) und 100-facher Vergrößerung (unten) mit Porendurchmessern von 19,3 µm, 10,0 µm, 4,7 µm und 1,9 µm

Es sei angemerkt, dass die galvanisch gewachsenen Membranen deutlich dünner sind als lasergebohrte Plättchen. Je nach Porendurchmesser ergeben sich herstellungsbedingt Membranstärken zwischen etwa 10 und 20 µm. Inwiefern derart dünne Membranen eine ausreichende Festigkeit und Temperaturbeständigkeit für die Verwendung in der Probenahmesonde aufweisen, wurde in der zweiten Messkampagne Juli 2014 geklärt. Dabei zeigte sich, dass sämtliche verwendete, galvanisch hergestellte Nickelmembranen bis zur höchsten untersuchten Temperatur von 1000°C einsetzbar waren. Zwar oxidierende Membranen an der Oberfläche, jedoch hat die gleichmäßige Oxidschicht keine negativen Auswirkungen auf die Verwendbarkeit.

Als am besten geeignetes Sammelmedium haben sich die mikrogalvanisch gewachsenen Nickelmembranen mit 10 µm Porendurchmesser erwiesen. Deshalb sollen diese nun zunächst anhand exemplarischer Ergebnisse diskutiert werden. Im Anschluss wird kurz auf die Eigenschaften der Membranen mit anderen Durchmessern eingegangen. Wie in Abbildung 19 gezeigt, ergibt sich für die Membranen mit 10 µm Porendurchmesser sowohl im ersten als auch im zweiten Zug mit einer Sammelzeit von 20 s eine ausreichende Belegung, um statistisch verwertbare Ergebnisse zu erhalten. Gleichzeitig ist die Belegung jedoch nicht so hoch, dass sich die deponierten Partikel überlappen, wodurch eine Auszählung nicht mehr möglich wäre.

Einige Partikel sind von charakteristischen dunklen Höfen umgeben, wie exemplarisch für zwei Partikel durch Pfeile in Abbildung 19 gezeigt. Dabei handelt es sich vermutlich um Reste einer schmelzflüssigen Hülle, die beim Auftreffen der Partikel auf die Oberfläche zerfließt. Aus den obigen Beobachtungen lässt sich bereits schließen, dass mit der hier verwendeten Methode effizient klebrige (d.h. mit einer schmelzflüssigen Hülle umgebene) Partikel zwischen 1 und 30 µm auf einer flachen und für weitere Analyse gut zugänglichen Fläche gesammelt werden können. Gerade diese Partikel stehen im Verdacht hauptsächlich für die Korrosion in Müllverbren-

nungsanlagen verantwortlich zu sein. Sie konnten mit der bisherigen Aerosolprobennahmetechnik nicht als Einzelpartikel untersucht werden, da sie bereits in den Biegungen des Schwanenhalskrümmers abgeschieden wurden und dort einen agglomerierten Belag bilden.

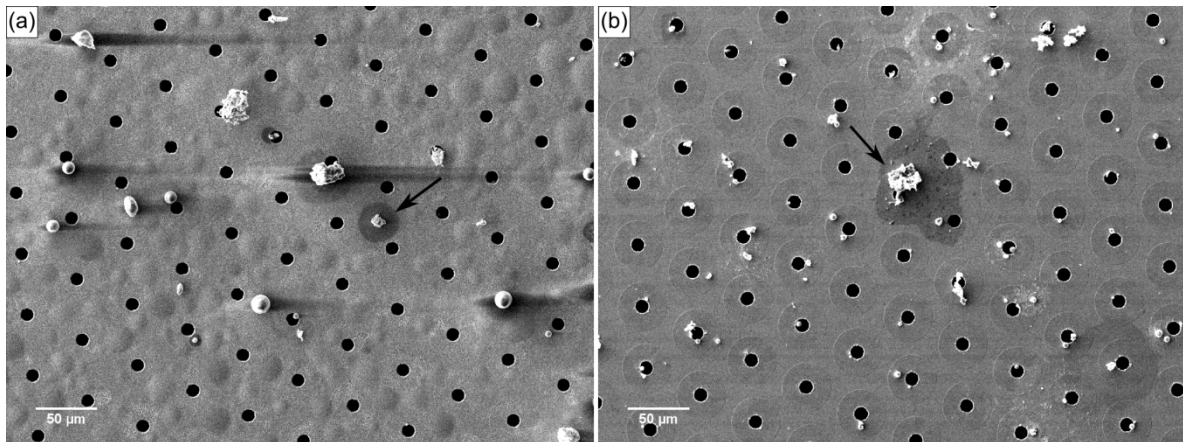


Abbildung 19: REM-Aufnahmen ( $480 \times 360 \mu\text{m}^2$ ) zweier mikrogalvanisch gewachsener Membranen mit  $10 \mu\text{m}$  Porendurchmesser nach jeweils 20 s Beprobung im 1. Zug (a) bzw. 2. Zug (b). Die Pfeile weisen exemplarisch auf Partikel, die von dunklen Höfen umgeben sind. Die Ausbeulungen in (a) sind auf eine leichte Ablösung der oxidierten Oberfläche vom metallischen Substrat zurückzuführen.

Die stärker vergrößerten REM-Aufnahmen in Abbildung 20 zeigen den Bereich um eine einzelne Pore. Die Filteroberfläche ist weitgehend frei von submikronen Salzpartikeln; die körnige Struktur in Abbildung 20(a) zeigt lediglich das oxidierte Nickelsubstrat. Dies ist ein deutlicher Hinweis darauf, dass mit dem gewählten Ansatz die unerwünschte Kondensation von Salzdämpfen weitgehend unterdrückt werden kann.

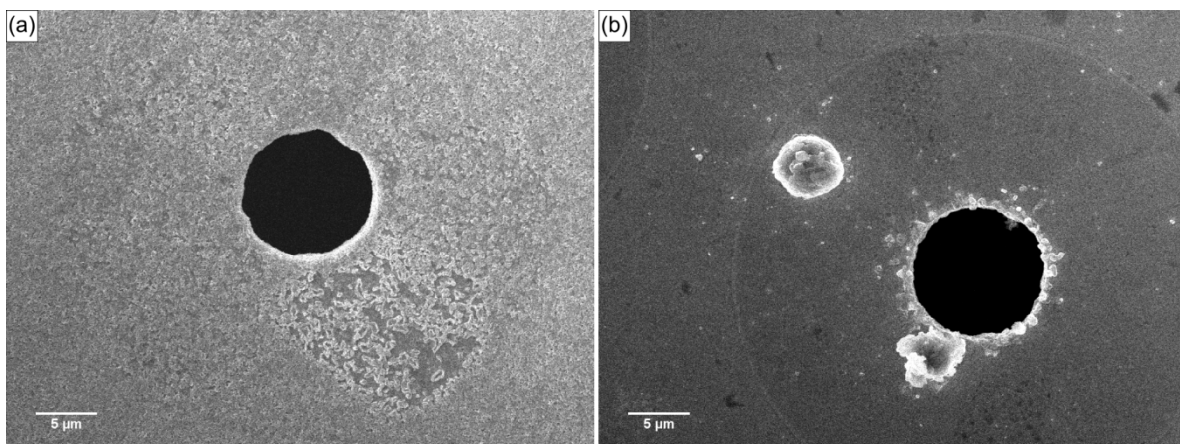


Abbildung 20: REM-Aufnahmen ( $48 \times 36 \mu\text{m}^2$ ) zweier mikrogalvanisch gewachsener Membranen mit  $10 \mu\text{m}$  Porendurchmesser nach jeweils 20 s Beprobung im 1. Zug (a) bzw. 2. Zug (b).

Ein deutlicher Unterschied zwischen den beiden Proben in Abbildung 20 zeigt sich an den Porenrändern. Während diese nach der Probenahme im ersten Zug frei von Partikeln sind, sind die Porenränder nach Probenahme im zweiten Zug vollständig mit Partikeln von einigen  $100 \text{ nm}$  Durchmesser dekoriert. Dies entspricht der Erwartung, dass im ersten Zug noch keine Kondensation der Salzdämpfe im Rauchgas

stattgefunden hat, während im zweiten Zug bereits kleine Salzpartikel vorhanden sind. Diese werden dann durch Diffusionsabscheidung an den Porenrändern gesammelt.

Zum Abschluss dieses Abschnitts sollen noch kurz die anderen verwendeten Membranen vorgestellt werden. Neben der mikrogalvanisch gewachsenen Nickelmembran mit 10  $\mu\text{m}$  Porendurchmesser standen noch Membranen mit 1,9  $\mu\text{m}$ , 4,7  $\mu\text{m}$  und 19,3  $\mu\text{m}$  Porendurchmesser zur Verfügung. Ein Teil der Proben wurde bereits vor Ort mit einem optischen Mikroskop untersucht, um schnell Rückschlüsse über die Eignung der Membranen und die optimale Probenahmedauer ziehen zu können. Wie Abbildung 21 zeigt, wurde dabei deutlich, dass sich die Poren der Membranen mit den beiden kleinsten Porendurchmessern sehr schnell zusetzen und somit als Sammelmedium nicht geeignet sind.

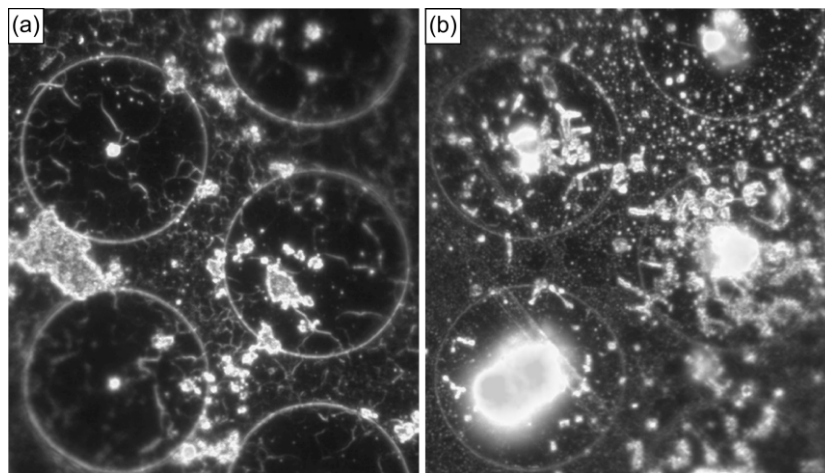


Abbildung 21: Optische Dunkelfeld-Mikroskopaufnahmen ( $86 \times 100 \mu\text{m}^2$ ) zweier Membranen nach 20 s Beprobung im 2. Zug. (a) 1,9  $\mu\text{m}$  Porendurchmesser. (b) 4,7  $\mu\text{m}$  Porendurchmesser.

Da die Membranen mit 10  $\mu\text{m}$  Porendurchmesser wie oben gezeigt gut als Sammelmedium geeignet sind, wurde davon abgesehen die Membranen mit 19,3  $\mu\text{m}$  Porendurchmesser weiter zu verwenden, da diese eine geringere Abscheideeffizienz aufweisen und keine zusätzlichen Vorteile bieten.

### A.3.1 Abscheidecharakteristik der Membranen

Um von der auf den Membranen gefundenen Partikelzahl auf die luftgetragene Anzahl im Rauchgas rückschließen zu können, ist es notwendig die Abscheideeffizienz der Membranen zu kennen. Deshalb wurden für die in Abbildung 18 gezeigten Membranen Berechnungen zur Partikelabscheidung durchgeführt. Die hier verwendeten mikrogalvanisch hergestellten Membranen weisen geometrisch große Ähnlichkeiten zu sogenannten Nucleporefiltern auf. Dabei handelt es sich um dünne Polycarbonatfilme mit zylindrischen Poren, die durch Schwerionenbeschuss und anschließendes chemisches Ätzen hergestellt werden. Für solche Filter wurden die zu Grunde liegenden Abscheideeffekte in der Vergangenheit eingehend untersucht (siehe z.B. [Spurny1979], [Heidam1980], [Cyrs2010], [Chen2013]). Im Folgenden werden die wichtigsten Ergebnisse zusammengefasst. Zudem soll hier explizit die Abhängigkeit der Abscheidung von der Temperatur hervorgehoben werden.

Zur Bestimmung der Gesamtabscheideeffizienz eines Membranfilters müssen vier verschiedene Mechanismen separat betrachtet werden: (i) Abscheidung durch Impaktion auf der Filteroberfläche, (ii) Abscheidung durch Diffusion an den Porenwänden, (iii) Abscheidung durch Diffusion auf der Filteroberfläche und (iv) Abscheidung durch Interzeption an den Porenwänden.

Die Teileffizienz  $\epsilon_i$  der Abscheidung durch Impaktion ist gegeben durch

$$\epsilon_i = \frac{2\epsilon'_i}{1+\xi} - \frac{\epsilon'^2_i}{(1+\xi)^2} \quad (6)$$

mit den Größen

$$\epsilon'_i = 2\text{Stk}\sqrt{\xi} + 2\text{Stk}^2\xi \exp\left(-\frac{1}{\text{Stk}\sqrt{\xi}}\right) - 2\text{Stk}^2\xi \quad (7)$$

und

$$\xi = \frac{\sqrt{P}}{1-\sqrt{P}}. \quad (8)$$

Dabei bezeichnet  $P$  die Porösität des Filters. Die Stokeszahl  $\text{Stk}$  ist gegeben durch

$$\text{Stk} = \frac{d_p^2 \rho_p C_c q}{18\eta R_0} \quad (9)$$

mit dem Partikeldurchmesser  $d_p$ , der Partikeldichte  $\rho_p$ , der Anströmgeschwindigkeit  $q$  und dem Porenradius  $R_0$ . Die Stokeszahl hängt über den Cunningham-Faktor  $C_c$  und die Viskosität  $\eta$  von der Temperatur ab. Der Cunninghamfaktor ist gegeben durch

$$C_c = 1 + \text{Kn} \left[ \alpha + \beta \cdot \exp\left(-\frac{\gamma}{\text{Kn}}\right) \right] \quad (10)$$

mit den Konstanten  $\alpha = 1,165$ ,  $\beta = 0,483$  und  $\gamma = 0,997$  sowie der Knudsen Zahl

$$\text{Kn}(T) = \frac{2 \cdot \lambda(T)}{d_p}. \quad (11)$$

Dabei ist die mittlere freie Weglänge der Gasmoleküle gegeben durch

$$\lambda(T) = \lambda_0 \left(\frac{T}{T_0}\right)^2 \left(\frac{p}{p_0}\right) \left(\frac{T_0+110,4 \text{ K}}{T+110,4 \text{ K}}\right) \quad (12)$$

mit  $\lambda_0 = 67,3 \times 10^{-9} \text{ m}$  bei den Standardbedingungen  $p_0 = 1013,25 \text{ hPa}$  und  $T_0 = 296,15 \text{ K}$ . Die Temperaturabhängigkeit der Viskosität ist gegeben durch

$$\eta(T) = \eta_0 \left(\frac{T}{T_0}\right)^{\frac{3}{2}} \left(\frac{T_0+110,4 \text{ K}}{T+110,4 \text{ K}}\right) \quad (13)$$

mit  $\eta_0 = 1,83245 \times 10^{-5} \frac{\text{kg}}{\text{ms}}$  bei  $T_0 = 296,15 \text{ K}$ .

Zur Bestimmung der Teileffizienz  $\epsilon_{d,p}$  der Abscheidung durch Diffusion in den Poren werden zwei verschiedene Formeln verwendet, je nach Größe des Parameters

$$N_d = \frac{L \cdot D \cdot P}{R_0^2}. \quad (14)$$

Hierbei bezeichnet  $L$  die Dicke der Membran. Der Diffusionskoeffizient  $D$  hängt wiederum von der Temperatur ab. Es gilt

$$D = \frac{k_B \cdot T \cdot C_c}{4\pi \cdot \eta \cdot d_p} \quad (15)$$

mit der Boltzmann-Konstanten  $k_B$ . Für die Abscheideeffizienz gilt für  $N_d < 0,02$

$$\epsilon_{d,p} = 2,56N_d^{\frac{2}{3}} - 1,2N_d - 0,177N_d^{\frac{4}{3}}, \quad (16)$$

sowie für  $N_d > 0,02$

$$\begin{aligned} \epsilon_{d,p} = 1 - 0,819 \exp(-3,657N_d) - 0,098 \exp(-22,305N_d) \\ - 0,032 \exp(-56,95N_d) - 0,016 \exp(-107,6N_d) - \dots \end{aligned} \quad (17)$$

Zusätzlich zur Diffusionsabscheidung an den Porenwänden ist zudem noch die Diffusionsabscheidung auf der Filteroberfläche zu berücksichtigen. Die entsprechende Effizienz  $\epsilon_{d,s}$  berechnet sich zu

$$\epsilon_{d,s} = 1 - \exp\left(\frac{-\alpha_1 \Psi^{\frac{2}{3}}}{1 + \left(\frac{\alpha_1}{\alpha_2}\right) \Psi^{\frac{7}{15}}}\right) \quad (18)$$

mit den (porositätsabhängigen) Konstanten  $\alpha_1 = 4,57 - 6,46P + 4,58P^2$  und  $\alpha_2 = 4,5$ , sowie dem Parameter  $\Psi = DP^{\frac{1}{2}}/r_0q$ . Somit ist auch die Diffusionsabscheidung auf der Oberfläche über den Diffusionskoeffizienten temperaturabhängig. Letztlich ist die Effizienz der Abscheidung durch Interzeption  $\epsilon_r$  gegeben durch

$$\epsilon_r = N_r(2 - N_r) \quad (19)$$

mit dem Interzeptionskoeffizienten

$$N_r = \frac{d_p}{2R_0} \quad (20)$$

Da die Interzeption ein rein geometrischer Effekt ist, liegt hier keine Temperaturabhängigkeit vor. Zur Bestimmung der Gesamteffizienz  $\epsilon$  wird angenommen, dass die vier Mechanismen unabhängig hintereinander auftreten. Somit ergibt

$$\epsilon = \epsilon_{d,s} + (1 - \epsilon_{d,s})\epsilon_i + (1 - \epsilon_{d,s})(1 - \epsilon_i)\epsilon_r + (1 - \epsilon_{d,s})(1 - \epsilon_i)(1 - \epsilon_r)\epsilon_{d,p} \quad (21)$$

Uns stehen vier verschiedene galvanische Mikromembranen zur Verfügung (siehe Abbildung 18), die sich in Porendurchmesser  $D_0$ , Porosität  $P$  und Filterdicke  $L$  unterscheiden. Die entsprechenden Parameter sind in Tabelle 3 aufgelistet.

Membran	$D_0$ [ $\mu\text{m}$ ]	$P$ [%]	$L$ [ $\mu\text{m}$ ]
A	1,9	0,1	20
B	4,7	0,8	20
C	10,0	3,6	15
D	19,3	13,5	10

Tabelle 3: Porendurchmesser, Porosität und Dicke verschiedener mikrogalvanisch hergestellter Membranen.

In Abbildung 22 ist die Gesamtabseideeffizienz gemäß Gleichung (21) für die vier verschiedenen Membranen bei  $T=600^\circ\text{C}$  (relevant im 2. Zug) und  $T=1000^\circ\text{C}$  (relevant im ersten Zug) für eine Anströmgeschwindigkeit von  $10,3\text{ cm/s}$  und eine mittlere Partikeldichte von  $2.200\text{ kg/m}^3$  dargestellt.

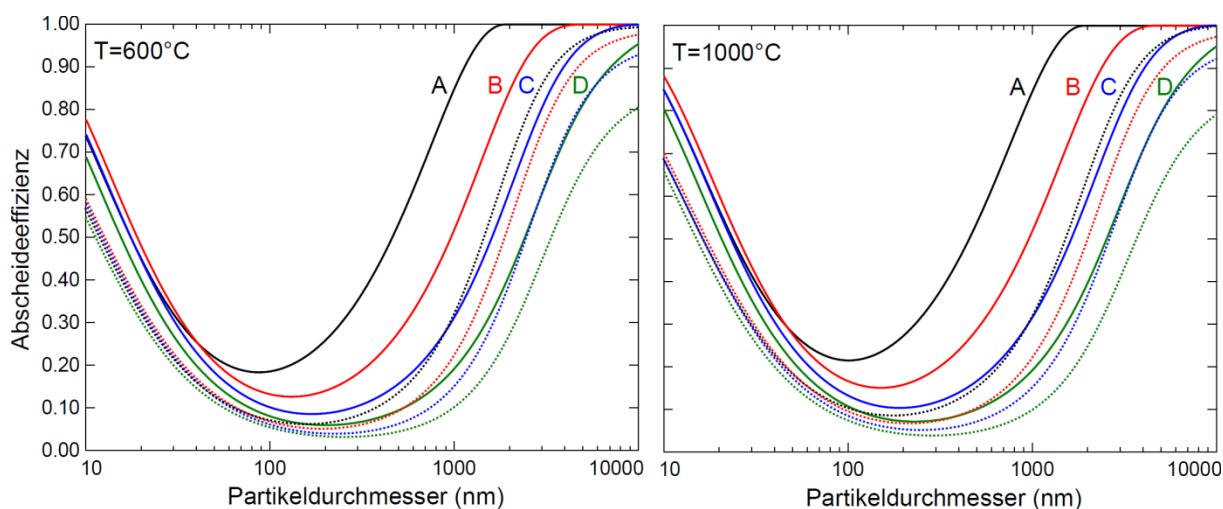


Abbildung 22: Nach Gleichung (21) berechnete Abscheideeffizienz der in Tabelle 3 aufgelisteten mikrogalvanisch hergestellten Membranen A (Porendurchmesser  $1,9\ \mu\text{m}$ ), B ( $4,7\ \mu\text{m}$ ), C ( $10,0\ \mu\text{m}$ ) und D ( $19,3\ \mu\text{m}$ ) für zwei verschiedene Temperaturen; durchgezogene Linien: Gesamtabseideeffizienz, gestrichelte Linien: Abscheidung nur auf der Membranoberfläche.

Der Haupteinfluss der Temperatur zeigt sich in einer zunehmenden Abscheideeffizienz für kleine Partikel, die auf die effizientere Diffusionsabscheidung zurückzuführen ist. Man erkennt zudem, dass die Abscheideeffizienz mit abnehmendem Porendurchmesser zunimmt. Allerdings ist dabei auch zu berücksichtigen, dass sich kleine Poren schnell zusetzen. Weiterhin wird deutlich, dass sämtliche Abscheideeffizienzen ein Minimum durchlaufen, das je nach Porendurchmesser zwischen  $100$  und  $300\text{ nm}$  liegt. Die minimale Effizienz liegt bei den Membranen zwischen ca.  $10$  und  $20\%$ . Bedenkt man die sehr hohen Konzentrationen im Probengas, so ist diese Effizienz allemal ausreichend, um eine genügend hohe Beladung der Membranen auch in diesem Partikelgrößenbereich zu erhalten. Abbildung 22 zeigt zudem als gestrichelte Linien die Summe der diffusiven sowie der Impaktionsabscheidung ausschließlich auf der Membranoberfläche. Da nur hiervon rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen gemacht werden können steht somit auch nur diese Fläche für die anschließenden Analysen zur Verfügung. Die Abbildung verdeutlicht allerdings, dass

der wesentliche Teil der Abscheidung in allen Größenbereichen auf der Membranoberfläche stattfindet und dass somit über den gesamten Partikelgrößenbereich ausreichend Partikel zur Verfügung stehen.

Diese Abschätzung anhand vorhandener Literatur zur Abscheidung an Nuclepore-Filtern zeigt bereits die wesentlichen Grundzüge des Abscheideverhaltens der Membranen. Da sich die Nucleporefilter jedoch im Detail von den hier verwendeten Membranen unterscheiden, wurden zusätzlich CFD-Simulationen durchgeführt, um ein genaueres Verständnis zu erlangen. Wir fokussieren uns hier auf die Membranen mit 10 µm Porendurchmesser, da diese sich im Versuch als am besten geeignet erwiesen haben.

Alle CFD-Simulationen wurden in ANSYS FLUENT durchgeführt. Für Partikel größer etwa 1 µm dominiert die Abscheidung durch die Trägheit der Partikel (Impaktion). Dieser Effekt ist standardmäßig im Discrete Phase Model (DPM) von FLUENT enthalten. Hierbei handelt es sich um eine Lagrangesche Betrachtungsweise der Partikeldynamik, in der einzelne repräsentative Partikeltrajektorien berechnet werden. Um Rechenzeit zu sparen, wurden die Simulationen rotationssymmetrisch in einem zweidimensionalen Modell gerechnet (siehe Abbildung 23).

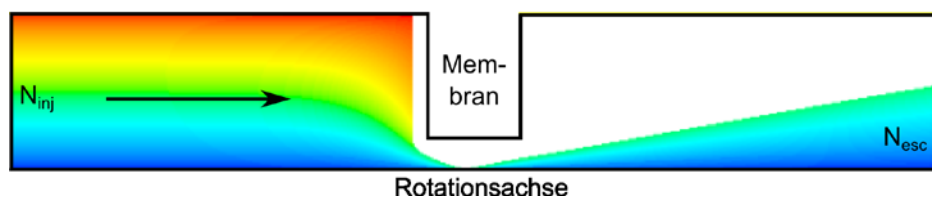


Abbildung 23: Rotationssymmetrisches CFD-Modell. Gezeigt ist die Abscheidung von Partikeln mit 5 µm Durchmesser an einer Membran mit 10 µm Porendurchmesser. Von  $N_{inj}$  injizierten Partikeln erreichen  $N_{esc}$  den Auslass, während der Rest auf der Membranoberfläche abgeschieden wird.

Zur Bestimmung der Abscheideeffizienz wurden  $N_{inj}$  monodisperse Partikel gleichmäßig über den Einlass verteilt und die Zahl  $N_{esc}$  der Partikel, die den Auslass erreichen, bestimmt. Die Abscheideeffizienz für den dreidimensionalen Fall berechnet sich dann zu

$$\varepsilon = 1 - \left( \frac{N_{esc}}{N_{inj}} \right)^2 \quad (22)$$

Der Unterschied zu Gleichung (4) ergibt sich daraus, dass hier im Gegensatz zur Impaktorabscheidung die äußeren und nicht die zentralen Partikel bevorzugt abgeschieden werden. Da die räumliche Ausdehnung der Partikel in der gleichen Größenordnung wie der Porendurchmesser der Membranen liegt, stellt Interzeption einen weiteren wesentlichen Abscheidemechanismus dar. Dieser wurde durch eine selbstentwickelten Erweiterung des FLUENT Programmcodes berücksichtigt. Darüber hinaus wurde mit einer zusätzlichen Erweiterung eine automatisierte Anwendung der Cunningham-Slipkorrektur unter Berücksichtigung der Temperatur und Partikelgröße ermöglicht, die nicht standardmäßig im DPM integriert ist.

Für Partikel kleiner etwa 1 µm sind Trägheitseffekte zu vernachlässigen. Hier bietet sich die Verwendung des Fine Particle Models (FPM) an. Hier wird in der Eulerschen Betrachtungsweise die räumliche und zeitliche Entwicklung einer diskreten Partikel-

phase simuliert. Die Berechnungen wurden für monodisperse Phasen mit verschiedenen Durchmessern durchgeführt. Das FPM kann nur bis zu einer unteren Grenze von etwa 5 nm verwendet werden, da sonst die Diffusionsgeschwindigkeit im Vergleich zur Konvektionsgeschwindigkeit zu hoch wird, um plausible Resultate zu liefern. Damit ist jedoch der messtechnisch erfassbare Bereich vollständig abgedeckt.

Die Berechnungen wurden im Temperaturbereich zwischen 623 K (vierter Zug) und 1273 K (erster Zug) durchgeführt. Als Partikeldichte wurde ein mittlerer Wert von 2200 kg/m<sup>3</sup> verwendet. Für die Viskosität und Dichte des Gases wurden die Stoffdaten von Luft bei den entsprechenden Temperaturen gemäß dem VDI-Wärmeatlas verwendet. Abbildung 24 zeigt die simulierte Abscheideeffizienz für eine Membran mit 10 µm Porendurchmesser und 15 µm Dicke bei verschiedenen Temperaturen. Als Anströmgeschwindigkeit wurden 10,3 cm/s verwendet, wie durch die Geometrie des Impaktors und die isokinetische Probenahme vorgegeben.

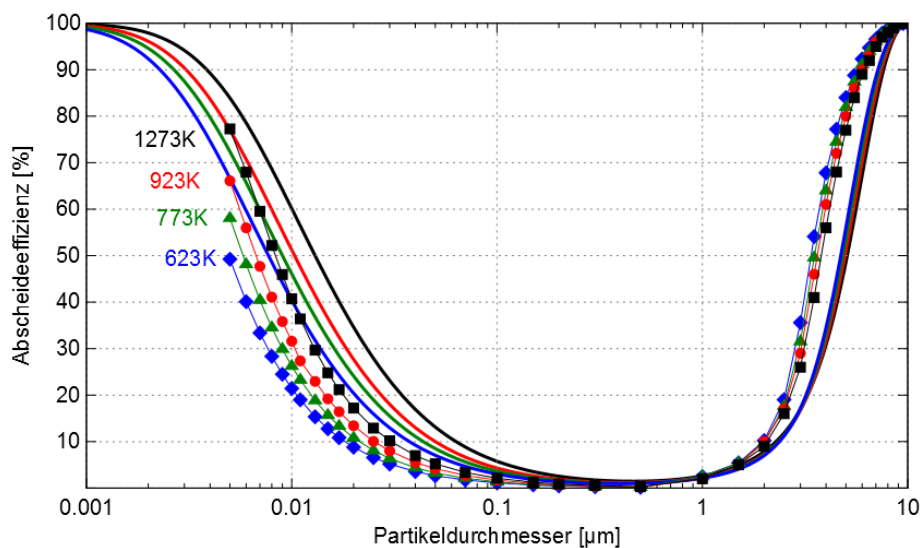


Abbildung 24: Abscheideverhalten von Membranfiltern mit 10 µm Porendurchmesser bei verschiedenen Temperaturen. Die Punkte markieren die Ergebnisse aus CFD-Rechnungen, während die dicken Linien die theoretische Erwartung nach Gleichung (26) zeigen.

Zum Vergleich zeigen die dicken Linien die Erwartungen anhand vorhandener Theorie. Im Gegensatz zur ersten Abschätzung wurde hier für die Abscheideeffizienz  $\varepsilon_i$  durch Impaktion und Interzeption ein mathematisch griffigeres Modell von Manton verwendet [Manton1978]:

$$\varepsilon_i = (2R - R^2) \frac{2}{1+aR+bR^2} \quad (23)$$

mit dem Verhältnis

$$R = \frac{d_p}{D_0} \quad (24)$$

zwischen Partikel- und Porendurchmesser. Die Konstanten  $a$  und  $b$  hängen komplex von der Membrangeometrie und den Strömungseigenschaften ab, wie im Detail in [Manton1978] zu finden. Im Vergleich zum einfachen Modell vom Spurný

[Spurný1969] zeigt das Modell von Manton deutlich bessere Übereinstimmung mit den simulierten Abscheidegraden.

Die Diffusionsabscheidung auf der Filteroberfläche  $\varepsilon_d$  berechnet sich wie zuvor zu

$$\varepsilon_d = 1 - \exp\left(\frac{-\alpha_1 \Psi^{\frac{2}{3}}}{1 + \left(\frac{\alpha_1}{\alpha_2}\right) \Psi^{\frac{7}{15}}}\right) \quad (25)$$

mit den geometrie- und strömungsabhängigen Konstanten  $\alpha_1$  und  $\alpha_2$  sowie dem Parameter  $\Psi = 2D\sqrt{P}/D_0u$ , wobei  $D$  den Diffusionskoeffizienten,  $P$  die Porösität und  $u$  die Anströmgeschwindigkeit bezeichnet (für Details siehe [Manton1979]).

Zur Bestimmung der Gesamteffizienz  $\varepsilon$  wird angenommen, dass die Mechanismen unabhängig hintereinander auftreten. Somit ergibt sich

$$\varepsilon = \varepsilon_d + (1 - \varepsilon_d)\varepsilon_i \quad (26)$$

Theorie und Simulation stimmen in wesentlichen Aspekten überein. Für größere Partikel findet sich nur eine sehr geringe Temperaturabhängigkeit der Abscheidung, während für kleinere Partikel die Abscheideeffizienz mit steigender Temperatur aufgrund der höheren Diffusivität deutlich zunimmt. Simulation und Theorie weisen beide ein breites Minimum zwischen etwa 0,1 und 1  $\mu\text{m}$  auf. Während die Impaktions- und Interzeptionsabscheidung für größere Partikel von den CFD-Simulationen im Vergleich zur Theorie überschätzt wird, fällt die Diffusionsabscheidung für kleinere Partikel etwas geringer aus als erwartet.

Um die mit dem REM bestimmten Partikelkonzentrationen mit der Abscheidekurve gewichten zu können, ist es nützlich, letztere durch eine mathematische Funktion zu beschreiben. Basierend auf den Gleichungen (23), (25) und (26) wurde folgender Ansatz gewählt:

$$\varepsilon_i = (2R - R^2)^{\frac{2}{1+aR+bR^2}} \quad \text{mit } R = \frac{d_p}{D_0} \quad (27)$$

$$\varepsilon_d = 1 - \exp\left(-cD^{\frac{2}{3}}\right) \quad \text{mit } D = \frac{k_B \cdot T \cdot C_c}{6\pi \cdot \eta \cdot d_p} \quad (28)$$

$$\varepsilon = \varepsilon_d + (1 - \varepsilon_d)\varepsilon_i \quad (29)$$

Dabei ergibt sich Gleichung (28) aus Gleichung (25) durch Zusammenfassen aller Konstanten und für  $\alpha_2 \ll \alpha_1$ . Wie in Abbildung 25 gezeigt, lässt sich für die vorliegende Membran durch die geeignete Wahl der drei Parameter  $a$ ,  $b$  und  $c$  die Simulation im messtechnisch erfassbaren Größenbereich oberhalb von etwa 10 nm hinreichend genau wiedergeben.

Um für beliebige Temperaturen interpolieren zu können, wurden die Parameter  $a$ ,  $b$  und  $c$  zudem empirisch in Abhängigkeit der Temperatur gefittet:

$$a = 1,83 \times 10^{-6} \frac{1}{\text{mK}^2} \cdot T^2 + 5,37 \times 10^{-3} \frac{1}{\text{mK}} \cdot T - 6,91 \frac{1}{\text{m}} \quad (30)$$

$$b = 2011 \frac{\text{K}^{0,74}}{\text{m}^2} \cdot T^{-0,74} \quad (31)$$

$$c = 8300 \left( \frac{\text{s}}{\text{m}^2} \right)^{\frac{2}{3}} \quad (32)$$

Man beachte, dass  $c$  temperaturunabhängig ist, da die Temperaturabhängigkeit der Diffusionsabscheidung bereits über den Diffusionskoeffizienten  $D$  korrekt wiedergegeben wird.

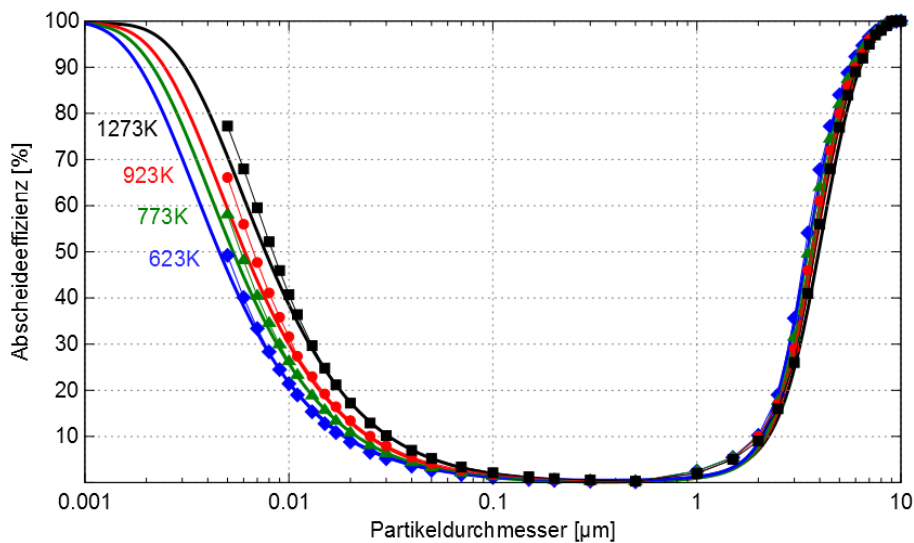


Abbildung 25: Abscheideverhalten von Membranfiltern mit 10 µm Porendurchmesser bei verschiedenen Temperaturen. Die Punkte markieren die Ergebnisse aus CFD-Rechnungen, während die dicken Linien die theoretische Modellierung durch die Gleichungen (27) bis (29) zeigen.

#### A.4 Modifizierung der Sonde für Gesamtstaubmessungen

Der Vergleich der Gesamtstaubkonzentration beispielsweise mit vorherigen Messungen des bifa Umweltinstituts liefert einen wichtigen Beitrag zur Validierung der neu entwickelten Messmethode. Jedoch ist für eine statistisch relevante Bestimmung aus REM-Bildern eine sehr große Datenmenge erforderlich. Deshalb wurde als Ergänzung zur Sammlung von Einzelpartikeln im Projektverlauf auch eine Methode zur direkten Gewinnung von Gesamtstaubproben entwickelt. Dazu wurde im Sondengehäuse die Nickelmembran durch einen Quarzfaserfilter ersetzt und die Prallplatte entfernt. Filter aus reinen Quarzmikrofaser erlauben nahezu partikelgrößenunabhängige effiziente Abscheidung bei geringem Druckverlust. Durch ihre chemische Beständigkeit gegenüber aggressiven Medien und die Stabilität bei hohen Temperaturen sind Quarzfaserfilter für den Einsatz im Rauchgas bestens geeignet.

In einem Vorversuch wurden Filtermaterialien verschiedener Hersteller getestet. Dabei zeigten manche Filter eine geringe mechanische Stabilität bei der Handhabung mit der Pinzette. Zudem wurde teilweise trotz Konditionierung eine deutliche Drift der Wäageanzeige beobachtet, die mit elektrostatischen Aufladungen, Desorption oder

Faserverlusten zusammenhängen kann. Dennoch konnte ein Filtermaterial gefunden werden, das ausreichend stabil ist, sich drifffrei und reproduzierbar wiegen lässt und laut Herstellerangaben bis 1100 °C einsetzbar ist. Die Filter können mit einem Ringstanzeisen einfach und präzise in das benötigte Format gebracht werden.

Um reproduzierbare Ergebnisse zu erzielen, werden Filterproben üblicherweise vor jeder Wägung konditioniert. Am IUTA steht dazu ein Wägeraum gemäß DIN EN 12341 für Feinstaubproben zur Verfügung, welcher auf  $(20 \pm 1)$  °C und  $(50 \pm 5)$  % rF geregelt wird. Da in unserem Fall jedoch ein Großteil an Beladung mit z.T. stark hygroskopischen Salzen wie NaCl, KCl und CaCl<sub>2</sub> zu erwarten ist, war vorab zu prüfen, ob die Lagerung bei einer relativen Luftfeuchte von 50% rF nicht zu Verfälschungen führt.

Mit diesem Ziel wurde ein Vorversuch durchgeführt. Zunächst wurden Quarzfaserfilter für 24 h im Wägeraum konditioniert und zweimal gewogen und anschließend mit Hilfe eines Aerosolgenerators 25-prozentige Salzlösungen (NaCl, KCl und CaCl<sub>2</sub>) vernebelt. Das Aerosol wurde mittels einer Trockenstrecke und eines Diffusionstrockners getrocknet und auf dem Filter dosiert. Die Filter wurden wiederum 24 h im Wägeraum konditioniert und zweimal gewogen. Aus der Differenz vor und nach der Dosierung ergaben sich die in Abbildung 26 blau dargestellten Salzpartikelmassen.

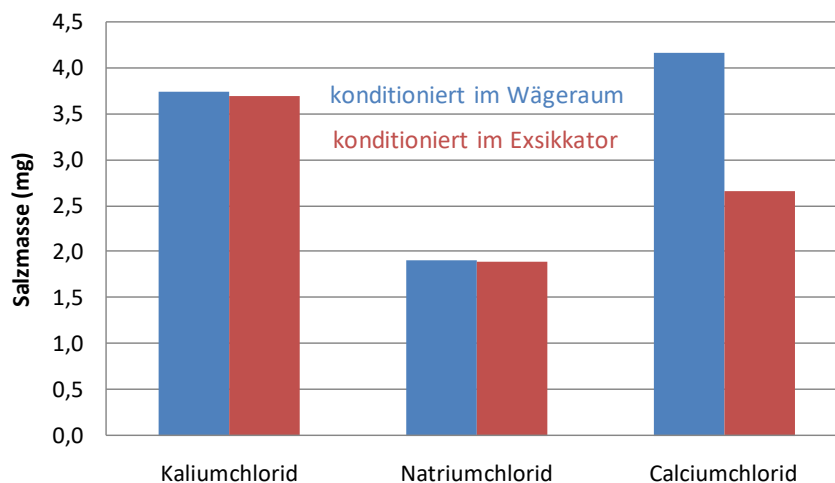


Abbildung 26: Massen der mit Salzpartikeln belegten Filter nach Konditionierung im Wägeraum bei 50% rF (blau) und nach Konditionierung im Exsikkator (rot).

Danach wurden die Filter in einen Exsikkator mit weniger als 1% rF umgelagert und nach jeweils 24 h wiederum zweimal gewogen. Bei KCl und NaCl zeigt sich nach dem Wechsel keine merkliche Änderung der Masse. Dies entspricht den Erwartungen, da NaCl und KCl Partikel auch in anderen Arbeiten erst hygroskopisches Verhalten ab etwa 70% rF gezeigt haben [Park2009].

Für CaCl<sub>2</sub> wurden zuvor jedoch schon Effekte ab 30% rF beobachtet [Park2009] und so zeigt sich auch hier ein deutlicher Massenverlust von fast 40% im Exsikkator. Das heißt, die Partikel haben zuvor bei der Lagerung bei 50% rF deutliche Mengen an Wasser aufgenommen. Somit ist es sinnvoll, die Filter nach den Probenahmen schnellstmöglich im Exsikkator zu lagern und erst direkt vor der Wägung wieder her-

auszunehmen. Um den Fehler durch die Wasseraufnahme abzuschätzen, könnten die Filter danach in den Wägeraum umgelagert und erneut gewogen werden.

Es sei noch angemerkt, dass die Wägung der Filter nach Entnahme aus dem Exsikator nicht ganz unproblematisch ist, da die Filter direkt beginnen Wasser aufzunehmen und deshalb keine stabile Wägeanzeige erreicht wird. Denkbar wäre die Wägung in einem Trockenschrank durchzuführen. Diese Möglichkeit war jedoch nicht gegeben.

Während der dritten Messkampagne im Februar 2015 wurden erste Testversuche mit den Quarzfaserfiltern durchgeführt. Dazu wurden die Quarzfaserfilter vor der Messung bei  $(20 \pm 1) \text{ }^\circ\text{C}$  und  $(50 \pm 5) \text{ \% rF}$  konditioniert und zweimal im Abstand von 24 h gewogen. Die belegten Proben wurden unter den gleichen Bedingungen ausgelegt und wiederum zweimal gewogen.

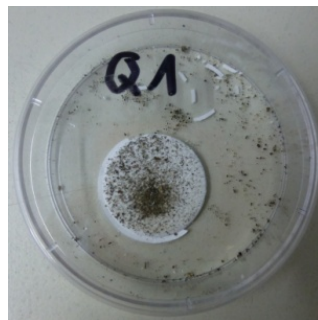


Abbildung 27: Belegter Quarzfaserfilter. Teile des Randes sind vom Filter abgetrennt und ein Teil der Partikel haftet an der statisch aufgeladenen Probendose.

Nach etwa zwei bis vier Minuten erreichen die Filter Partikelbelegungen von einigen Milligramm, die sich gravimetrisch gut bestimmen lassen. Jedoch sind bei der Messung zwei wesentliche Probleme offenkundig geworden, die eine quantitative Auswertung erschweren. Diese sind in Abbildung 27 zu sehen: Zum einen wurden Teile des Filterrandes durch den Druck der angrenzenden Metallringe beim Verschließen der Sonde vom Rest des Filters abgetrennt. Zum anderen blieben Partikel, die vom Filter fallen an den statisch aufgeladenen Kunststoffdosen hängen und waren so nicht mehr für die Wägung zugänglich. Beide Probleme wurden im weiteren Projektverlauf korrigiert. Zum einen lässt sich das Stanzen der Proben durch Zufügen von weichen Dichtungsringen über und unter dem Filter verhindern. Das Problem der statischen Aufladung wurde durch die Anschaffung antistatischer Probendosen verhindert. Somit stand die Möglichkeit für verlässliche Gesamtstaubmessungen in den folgenden Messkampagnen zur Verfügung.

## A.5 Temperaturverhältnisse im Sondengehäuse

Wie später noch ausführlich erklärt, wurden bei den meisten Messungen auf der Impaktorplatte mikrometergroße Salzpartikel gefunden. Eine mögliche Erklärung ist, dass entgegen der Planung doch eine Kondensation von Salzen auf einer kühleren Oberfläche stattgefunden hat. Um dies zu verhindern, wird die Sonde vor der eigentlichen Probenahme einige Minuten im Rauchgas vorgeheizt. Da die Sonde während dieser Zeit von Stickstoff durchflossen wird, ist es entscheidend, dass dieser auch die Umgebungstemperatur annimmt, um eine Kühlung zu vermeiden. Ob dies der Fall ist, soll im Folgenden abgeschätzt werden.

Vor Eintritt in die Sonde fließt der Stickstoff mit einem Volumenstrom von  $\dot{V} = 1,5 \text{ l/min}$  (entsprechend einem Massenstrom von  $\dot{m} = \dot{V}\rho = 2,83 \times 10^{-5} \text{ kg/s}$ ) durch ein langes dünnes Röhrchen. Um das Gas von 298 K auf 1273 K zu erwärmen, benötigt man einen Wärmestrom von

$$\dot{Q} = \dot{m}c_p\Delta T \approx 29 \text{ W} \quad (33)$$

Hierbei bezeichnet  $c_p$  die spezifische Wärmekapazität von Stickstoff. Für die Temperaturdifferenz zwischen Innen- und Außenwand des Röhrchens gilt

$$\Delta T = \frac{\dot{Q} \ln\left(\frac{d_a}{d_i}\right)}{2\pi L\lambda} \approx 0,08 \text{ K} \quad (34)$$

mit dem Außendurchmesser  $d_a = 4 \text{ mm}$ , dem Innendurchmesser  $d_i = 2 \text{ mm}$ , der beheizten Rohrlänge  $L = 1,5 \text{ m}$  und der Wärmeleitfähigkeit  $\lambda = 27,1 \text{ W/mK}$  des Stahls. Es kann also in guter Näherung angenommen werden, dass die Rohrinneenseite konstant die Temperatur des Rauchgases annimmt.

Für eine kompressible Strömung mit Geschwindigkeits- und Temperaturgradienten ist eine analytische Betrachtung der Gaserwärmung sehr komplex. Deshalb wurde in ANSYS FLUENT die laminare Strömung (die Reynoldszahl ist hier durchgehend kleiner 1000) von Stickstoff in einem Rohr mit konstanter Wandtemperatur simuliert. Der Stickstoff wurde mit 300 K und einem Massenstrom von  $2,83 \times 10^{-5} \text{ kg/s}$  eingeleitet. Die Temperatur des Gases in der Rohrmitte (d.h. die minimale Gastemperatur) ist in Abbildung 28 als grüne Kurve gezeigt.

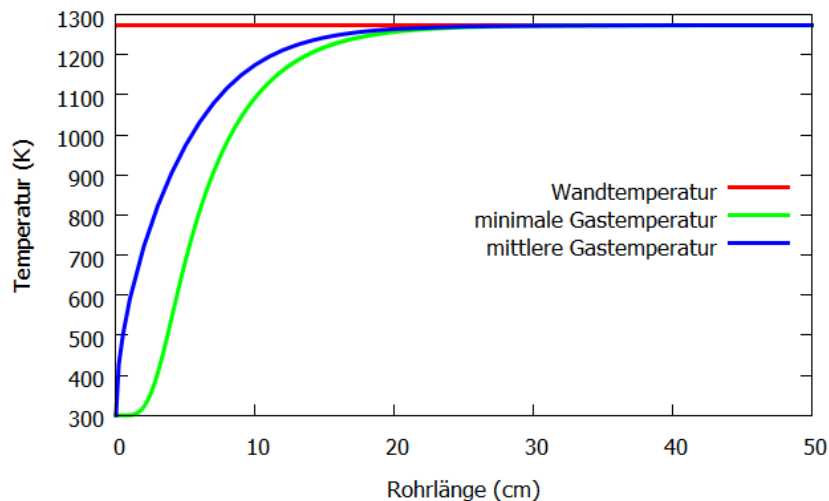


Abbildung 28: Erwärmung von Stickstoff bei Durchfließen eines Rohres mit konstanter Wandtemperatur.

Bereits nach gut 20 cm Rohrlänge ist das Gas in der Rohrmitte auf die Wandtemperatur aufgeheizt. Die mittlere Gastemperatur, die sich als massengewichteter Mittelwert über den Rohrquerschnitt ergibt, steigt noch deutlich schneller an (siehe blaue Kurve in Abbildung 28). Da die Gaszuleitung im realen Betrieb sogar 1,5 m Meter in

den Zug hineinragt, ist somit sichergestellt, dass der Stickstoff vor Eintritt in die Sonde die Temperatur des Rauchgases angenommen hat.

## B Methoden zur Probenanalyse

### B.1 Partikelgrößenverteilungen und Gesamtstaubmengen

Ein wesentlicher Schritt bei der quantitativen Datenauswertung ist die Bestimmung von Anzahl- und Massengrößenverteilungen. Dazu wurde anhand einer Beispielmessung ein detailliertes Auswerteschema entwickelt: Zunächst werden sowohl auf der Membran als auch auf der Prallplatte REM-Aufnahmen an neun gleichmäßig über das Substrat verteilten Stellen gemacht, um lokale Inhomogenitäten erfassen zu können. Pro Position werden solange Bilder bei 1000-facher Vergrößerung entlang eines festen Rasters aufgenommen bis je mindestens 100 Partikel abgebildet wurden. Partikel kleiner 1  $\mu\text{m}$  werden in zusätzlichen Bildern mit 5000-facher Vergrößerung gezählt, die selten vorkommenden Partikel größer 100  $\mu\text{m}$  in Übersichtsbildern bei nur 50-facher Vergrößerung.

Auf den erhaltenen REM-Bildern werden mittels der Bildbearbeitungssoftware ImageJ die einzelnen Partikel gezählt und ihre Durchmesser bestimmt. Als Partikeldurchmesser wird dabei der Durchmesser der projektionsflächengleichen Kugel

$$d = \sqrt{\frac{4A_{\text{proj}}}{\pi}} \quad (35)$$

verwendet. Die so erhaltenen Partikeldurchmesser müssen anschließend in Größenklassen einsortiert werden. Um eine gute Vergleichbarkeit mit den vorhandenen Daten aus früheren Messungen zu ermöglichen, wurde eine einheitliche Größenklasseneinteilung mit dem bifa Umweltinstitut abgestimmt. Die Einteilung ist in Tabelle 4 aufgelistet.

Um aus den gezählten Partikeln die Anzahlkonzentration zu bestimmen, werden die Partikelzahlen in den einzelnen Größenklassen auf das Gasvolumen bezogen, das die im REM untersuchte Fläche  $A_{\text{REM}}$  angeströmt hat. Dieses berechnet sich zu

$$V_{\text{prob, Betrieb}} = \frac{A_{\text{REM}}}{A_{\text{Membran}}} \cdot \dot{V}_{\text{Betrieb}} \cdot t_{\text{mess}} \quad (36)$$

mit der Membranfläche  $A_{\text{Membran}}$ , dem Betriebsvolumenstrom  $\dot{V}_{\text{Betrieb}}$  und der Probenahmezeit  $t_{\text{mess}}$ . Üblicherweise werden Konzentrationen unter Normbedingungen, d.h. bei  $T_{\text{norm}} = 273 \text{ K}$ , angegeben. Dazu wird das Gasvolumen nach dem idealen Gasgesetz zu  $V_{\text{prob, Norm}} = V_{\text{prob, Betrieb}} \cdot T_{\text{norm}}/T_{\text{Betrieb}}$  umgerechnet. Um die partikelgrößenabhängige Abscheideeffizienz zu berücksichtigen, müssen die Anzahlkonzentrationen anschließend noch mit der Abscheideeffizienz  $\varepsilon$  der Membran gemäß Gleichung (37) gewichtet werden:

$$C_{\text{gewichtet}}^N = \frac{C_{\text{gezählt}}^N}{\varepsilon} \quad (37)$$

Die Partikel auf der als Vorabscheider fungierenden Prallplatte werden ohne Gewichtung zu denen auf der Membran addiert. Neben den Anzahlgrößenverteilungen wurden auch Massengrößenverteilungen bestimmt, indem die Partikel als projektionsflä-

chenäquivalente Kugeln mit einer mittleren Dichte von 2200 kg/m<sup>3</sup> angenommen wurden. Dieser Wert hat sich in der Vergangenheit als typisch für die Dichte von Flugaschepartikeln in Müllverbrennungsanlagen herausgestellt [Deuerling2010].

Um die Gesamtstaubkonzentration abzuschätzen, muss die Massenverteilungskurve über den gesamten untersuchten Größenbereich integriert werden. Es sei angemerkt, dass bereits sehr wenige große Partikel auf den REM-Bildern das Ergebnis beträchtlich beeinflussen können. Deshalb ist eine ausreichend große Anzahl an gezählten Partikeln nötig, um statistisch abgesichert quantitative Aussagen machen zu können.

Untere Grenze [µm]	Klassenmitte [µm]	Obere Grenze [µm]
0,029	0,041	0,057
0,057	0,074	0,095
0,095	0,123	0,158
0,158	0,205	0,266
0,266	0,321	0,388
0,388	0,491	0,622
0,622	0,777	0,971
0,971	1,241	1,587
1,587	1,981	2,473
2,473	3,163	4,045
4,045	5,048	6,300
6,300	8,059	10,31
10,31	12,86	16,05
16,05	18,43	25,00
25,00	50,00	100,0
100,0	350,0	1225

Tabelle 4: Einteilung der Partikelgrößenklassen in Absprache mit dem bifa Umweltinstitut.

## B.2 Chemische Analyse

Die chemische Zusammensetzung der Partikel wurde mittels energiedispersiver Röntgenspektroskopie (EDX) bestimmt. Dazu wurden Punktspektren an einzelnen Partikeln aufgenommen und die Emissionslinien der relevanten Elemente gefittet, um die jeweiligen Massenanteile zu bestimmen. Da sich das gesamte Signal immer aus dem Signal des Partikels und einem Untergrundsignal zusammensetzt, wurde eine Separation durchgeführt, wie in Abbildung 29(a) gezeigt.

Bei der Nickelmembran ist im Untergrundsignal neben Nickel noch Sauerstoff zu finden. Dieser ist zwar auch als Bestandteil der Partikel zu erwarten, wurde hier aber systematisch dem Untergrund zugerechnet, da eine eindeutige Zuordnung nicht möglich ist. Der Sauerstoffanteil kann unter der Annahme, dass alle anderen Elemente vollständig oxidiert bzw. halogeniert sind, aus deren Massenanteilen berechnet werden. Das EDX-Signal von Kohlenstoff ist aus ähnlichen Gründen nicht quantitativ verwertbar. Kohlenstoff ist jedoch erfahrungsgemäß höchstens in Spuren vorhanden.

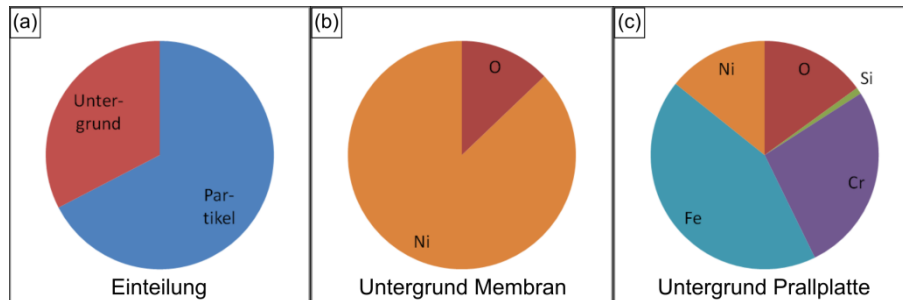


Abbildung 29: Beispiele der EDX-Analyse. (a) Einteilung in Untergrund- und Partikel-signal. (b) Untergrund der Nickelmembran. (c) Untergrund der Stahlprallplatte.

Für die Prallplatte aus korrosionsbeständigem Edelstahl (Werkstoff 1.4841) besteht der Untergrund im Wesentlichen aus Eisen, Chrom, Nickel und wiederum Sauerstoff. Zudem enthält die Stahllegierung etwa 2% Silizium. Da dies auch ein häufiger Bestandteil der Partikel ist, ist eine quantitative Zuordnung schwierig. Deshalb wurde Silizium hier durchgehend zum Untergrund gezählt; es kann lediglich qualitativ aus einem überdurchschnittlich starken Siliziumsignal auf einen Anteil an Silizium im Partikel geschlossen werden. Beispiele für die Untergrundsignale sind in Abbildung 29(b) und (c) gezeigt. Es sei angemerkt, dass das Untergrundsignal je nach Partikel variiert, da die verschiedenen Spektrallinien unterschiedlich stark gedämpft werden.

## C Charakterisierung der Partikel in Feuerraum und Kessel

Im Folgenden sollen die Ergebnisse der beiden großen Messkampagnen am GKS Schweinfurt im Februar und August 2015 vorgestellt und miteinander verglichen werden. Im Anschluss werden die im Mai 2016 durchgeführten Vergleichsmessungen am AEZ Asdonkshof präsentiert und alle Ergebnisse mit Messungen des bifa Umweltinstituts verglichen, die mit einer Verdünnungssonde durchgeführt wurden.

### C.1 Messkampagne im Februar 2015 am GKS Schweinfurt

Bei der Messkampagne im Februar 2015 am GKS Schweinfurt kam die zuvor entwickelte und optimierte Probenahmesonde zum Einsatz. Als Sammelmedium wurden in Kombination mit der Prallplatte mikrogalvanisch gewachsene Nickelmembranen mit Porendurchmessern von 10 µm verwendet, die sich zuvor als beste Wahl erwiesen haben. Alle Proben wurden mit einer Sammelzeit von 20 s belegt. Diese Probenahmedauer hat sich als geeignet erwiesen, um genügend Partikel für statistisch verwertbare Ergebnisse zu sammeln und gleichzeitig eine Überbelegung zu vermeiden.

Die Messungen wurden in allen vier Zügen der Linie 11 des GKS Schweinfurt durchgeführt. Die Anlage verfügt über drei weitgehend baugleiche Verbrennungslinien mit separater Abgasreinigung. Die Verbrennung des Abfalls erfolgt auf einem Vorschub-

rost, unter dem in fünf Zonen die Verbrennungsluft durch Gebläse zugeführt wird. Die Feuerung wird im Gegenstrom betrieben. Zudem werden Sekundärluft und rezirkuliertes Abgas seitlich in den Verbrennungsraum eingeleitet. Die freigesetzte Wärme wird in einem Vertikalkessel mit vier Zügen zur Produktion von Heißdampf genutzt. In Abbildung 30 ist ein Kesselschnitt der Anlage mit den Positionen der Messstellen gezeigt. Pro Messstelle wurden mindestens drei Proben genommen, um zeitliche Schwankungen erfassen zu können. Zusätzlich wurden zwei Messungen im Feuerraum durchgeführt. Die Sonde und die Probenträger sind auch bei den hohen Temperaturen von bis zu 1250°C problemlos einsetzbar. Die Proben wurden im Anschluss an die Probenahme am REM des IUTA untersucht.

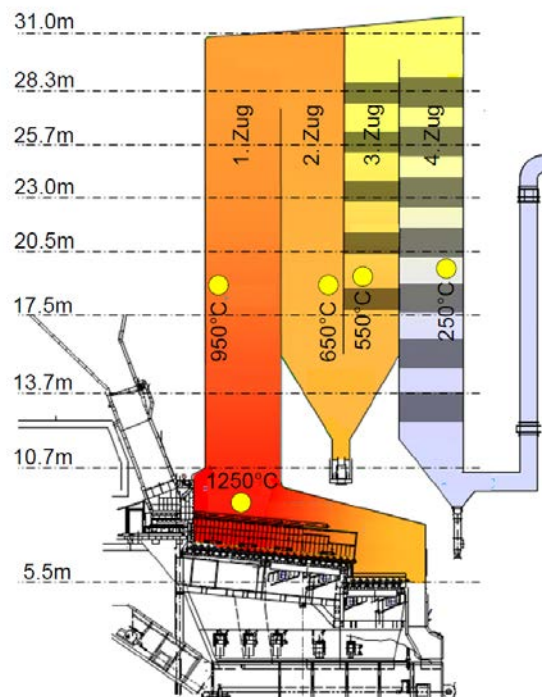


Abbildung 30: Kesselschnitt einer Linie des GKS mit farblich dargestelltem Temperaturverlauf. Die Überhitzerrohrbündel sind durch graue Felder angedeutet, während gelbe Punkte die Lage der untersuchten Messstellen markieren.

### C.1.1 Morphologie der Partikel

Abbildung 31 zeigt typische REM Aufnahmen der belegten Membranen für alle vier Züge. Die zugefügten Ausschnitte sind Vergrößerungen von Regionen von besonderem Interesse, auf die noch im Einzelnen eingegangen wird. Abbildung 31(a) zeigt die im ersten Zug eingesetzte Membran. Die Blasen auf der Oberfläche sind auf Oxidation der Oberfläche bei den hohen Temperaturen von 950°C zurückzuführen. Diese beeinflussen allerdings weder das Abscheideverhalten noch verschlechtern sie die mechanische Stabilität der Membran. Die im Feuerraum verwendeten Membranen sehen sehr ähnlich aus und sind hier deshalb nicht gezeigt. In Abbildung 31(a) sind mehrere Partikel im Größenbereich einiger zehn Mikrometer zu erkennen, während die Fläche weitgehend frei von submikronen Partikeln ist. Es gibt im Wesentlichen drei Arten von Partikelmorphologien: (i) nahezu perfekt sphärische Partikel mit glatter Oberfläche, (ii) eher kompakte, aber unregelmäßig geformte Partikel und (iii) fraktale Agglomerate aus kleineren Partikeln. Die kugelförmigen Partikel sind typisch für Partikel, die durch Erstarrung von Flüssigkeitstropfen entstehen [Akinyemi2012];

sie bestehen zumeist aus komplexen Aluminosilikatverbindungen [Eighmy1995, Evans2000]. Die kompakten unregelmäßig geformten Partikel werden hingegen vermutlich bereits als feste Partikel vom Rost emittiert. Sie können entweder einen höheren Schmelzpunkt als die sphärischen Partikel aufgrund einer anderen chemischen Zusammensetzung besitzen oder von einer anderen Zone des Rostes mit niedrigerer Temperatur stammen. Die Agglomerate sind typische Beispiele für verbrennungsgenerierte Partikel, die auf dem Weg durch den Kessel durch Koagulation aufgrund der hohen Konzentrationen von Einzelpartikeln entstehen [Yao2002]. Eine klare Unterscheidung zwischen Typ (ii) und (iii) ist nicht immer möglich, da die Oberfläche größerer Partikel auch mit kleinen Partikeln bedeckt sein kann. Solch eine heterogene Koagulation (auch Scavenging genannt) ist typisch für stark polydisperse, bzw. multimodale Aerosole [Seipenbusch2008, Schneider2011].

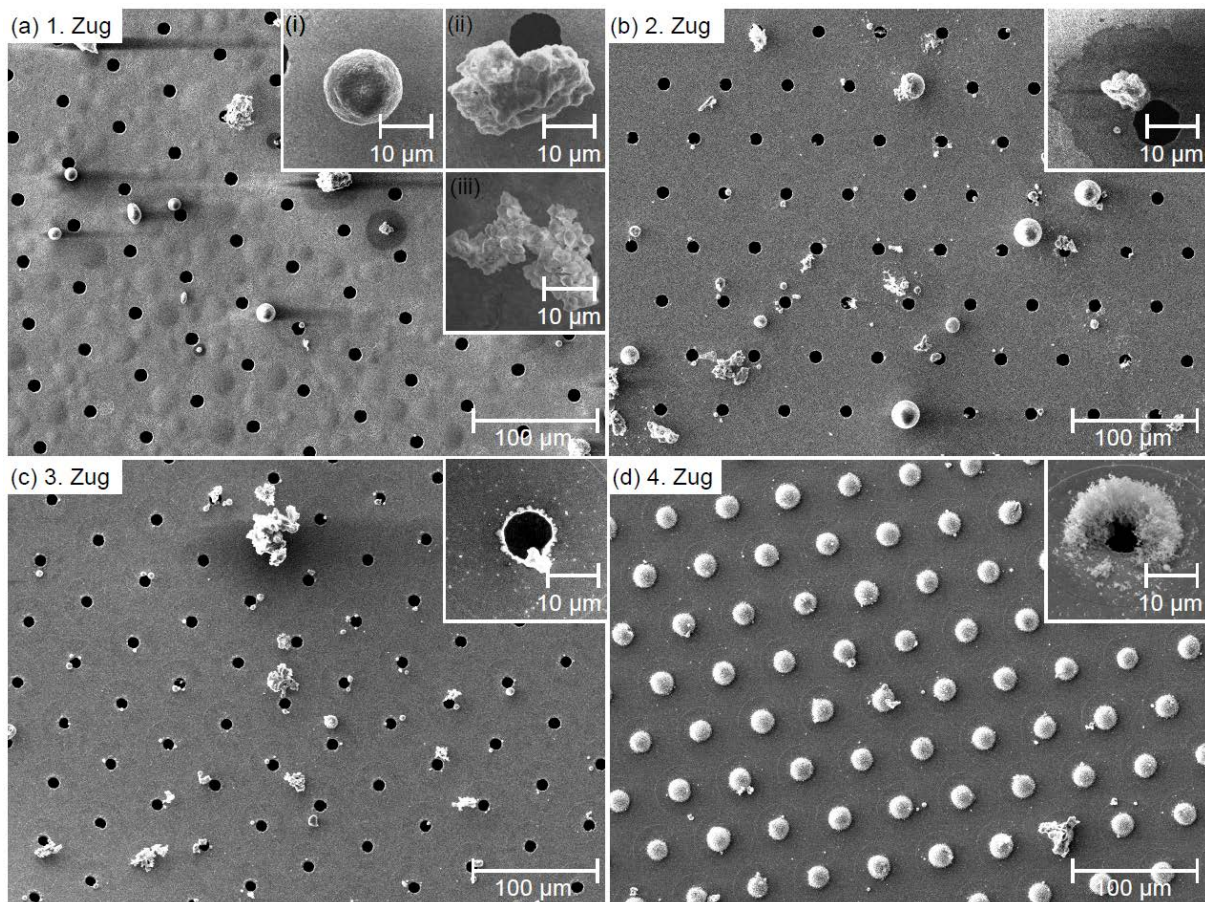


Abbildung 31: Charakteristische REM-Aufnahmen der belegten Membranen in allen vier Zügen. Die Ausschnitte zeigen Regionen von besonderem Interesse. Die Bildgröße beträgt jeweils  $480 \times 360 \mu\text{m}^2$  bzw.  $33 \times 33 \mu\text{m}^2$  für die Ausschnitte. Der Ausschnitt in (d) wurde unter  $30^\circ$  in Bezug auf die Oberflächennormale aufgenommen.

Im zweiten Zug in Abbildung 31(b) ändert sich wenig am generellen Erscheinungsbild bis auf die glattere Nickeloberfläche, die bei der niedrigeren Temperatur von  $650^\circ\text{C}$  deutlich weniger oxidiert. Wiederum ist die Oberfläche weitgehend frei von submikronen Partikeln. Eine Ausnahme bilden vereinzelte dunkel erscheinende konzentrische Bereiche um größere Partikel, die mit einer Ansammlung von kleinen Partikeln einhergehen (siehe Ausschnitt in Abbildung 31(b)). Diese Bereiche lassen sich als Reste einer schmelzflüssigen Hülle der Partikel interpretieren, die beim Auftreffen der Partikel zerfließt und teilweise als Partikel auskondensiert. Solche schmelzflüssigen

Hüllen wurden bereits zuvor beobachtet und sind dafür bekannt zur Klebrigkeit der Partikel beizutragen [Maisch2011]. Im dritten Zug in Abbildung 31(c) ist die Fläche zwischen den größeren Partikeln im Gegensatz zu den ersten beiden Zügen substantiell mit submikronen Partikeln bedeckt, wie besonders gut im vergrößerten Ausschnitt zu sehen ist. Insbesondere dekoriert ein Teil der Partikel die Porenränder. Bei der Morphologie der größeren Partikel dominieren nun die agglomerierten Partikel vom Typ (iii). Im vierten Zug hat die Zahl an submikronen Partikeln schließlich soweit zugenommen, dass sich poröse Hauben aus kleinen Partikeln ähnlich einem Filterkuchen über den Poren bilden. Da der Volumenstrom bei der Probenahme aufgrund der hohen Porosität der Hauben jedoch aufrechterhalten werden konnte, ist die Staubaufnahmekapazität der Membran noch nicht erreicht und es ist keine signifikante Beeinflussung der Abscheideeffizienz zwischen den Poren zu erwarten.

Als Zusammenfassung dieser qualitativen Analyse lässt sich sagen, dass Kondensationsartefakte durch die Probenahme offenbar weitgehend unterdrückt werden können, da im ersten und zweiten Zug kaum submikrone Partikel zu finden sind. Im dritten und vierten Zug steigt die Zahl an kleinen Salzpartikeln jedoch deutlich an, da diese hier durch die Abkühlung im Kessel bereits auskondensiert sind. Bisher schwierig zu untersuchende Partikel im Größenbereich zwischen 1 und 25  $\mu\text{m}$  lassen sich offenbar effizient sammeln.

Die auf der Prallplatte gesammelten Partikel sind für exemplarisch für den zweiten Zug in Abbildung 32(a) gezeigt. Der Großteil der Partikel ist größer als der Cutoff-Durchmesser des Impaktors. Da die Abscheidekurve jedoch nicht ideal steil verläuft, ist auch ein gewisser Anteil an kleineren Partikeln zu finden. Aus dem gleichen Grund findet man umgekehrt auch Partikel größer als der Cutoff-Durchmesser des Impaktors auf der Membran. Dies ist jedoch nicht problematisch, da beide Substrate bei der Analyse einbezogen werden.

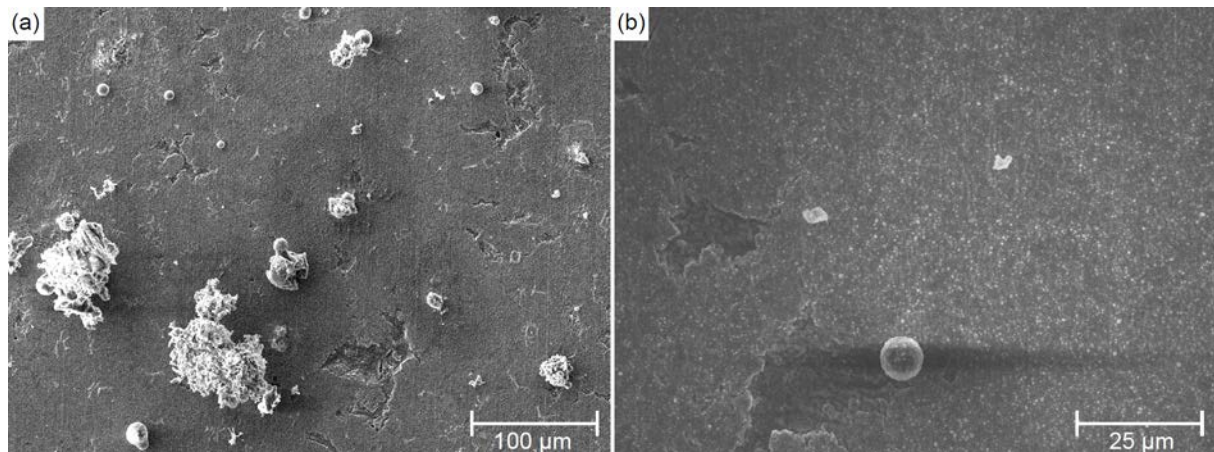


Abbildung 32: (a) Charakteristisches REM-Bild der Prallplatte nach 20 s Probenahme im 2. Zug. Die Bildgröße beträgt 480 x 360  $\mu\text{m}^2$ . (b) Stärker vergrößerte Aufnahme einer Prallplatte, die für 20 s im 1. Zug eingesetzt wurde (120 x 90  $\mu\text{m}^2$ ).

Die drei wesentlichen zuvor diskutierten Morphologietypen finden sich auch auf den Prallplatten wieder. Die dunklen Flecken, deren Ursprung im Zerfließen schmelzflüssiger Hüllen liegt, zeigen sich auch um einige Partikel in Abbildung 32(a). Im Gegensatz zu der sehr glatten Oberfläche der galvanisch gewachsenen Membranen ist die

manuell polierte Oberfläche der Prallplatten mit Furchen durchzogen, die sich bei der REM-Analyse jedoch in der Regel leicht von Partikeln unterscheiden lassen.

Im Gegensatz zu den Membranen ist die Oberfläche der im ersten Zug eingesetzten Prallplatten gleichmäßig mit submikronen Partikeln bedeckt wie in Abbildung 32(b) gezeigt. Dasselbe ist in geringerem Ausmaß im zweiten Zug zu beobachten. Da es auf der Prallplatte keinen effizienten Abscheidemechanismus zur Abscheidung solcher kleiner Partikel gibt, ist es wahrscheinlich, dass diese Artefakte durch Kondensation von Salzdämpfen darstellen und wurden deshalb nicht in die Analyse mit einbezogen. Ein möglicher Grund für die unerwünschte Kondensation wäre, dass die Temperatur der Prallplatte während des Vorheizens trotz der zuvor durchgeführten Abschätzung noch nicht endgültig die Temperatur des umgebenden Gases erreicht hat. Da die Membranen wesentlich dünner sind (15  $\mu\text{m}$  im Vergleich zu 2 mm), werden diese deutlich schneller aufgeheizt, sodass in diesem Fall keine Kondensationsartefakte auftreten.

### C.1.2 Partikelgrößenverteilungen und Gesamtstaubmengen

Die Entwicklung der Anzahlgrößenverteilung im Kesselverlauf ist in Abbildung 33 gezeigt. Die Werte wurden pro Zug über je zwei Proben gemittelt und umfassen somit einen Datensatz von je etwa 8000 Partikeln.

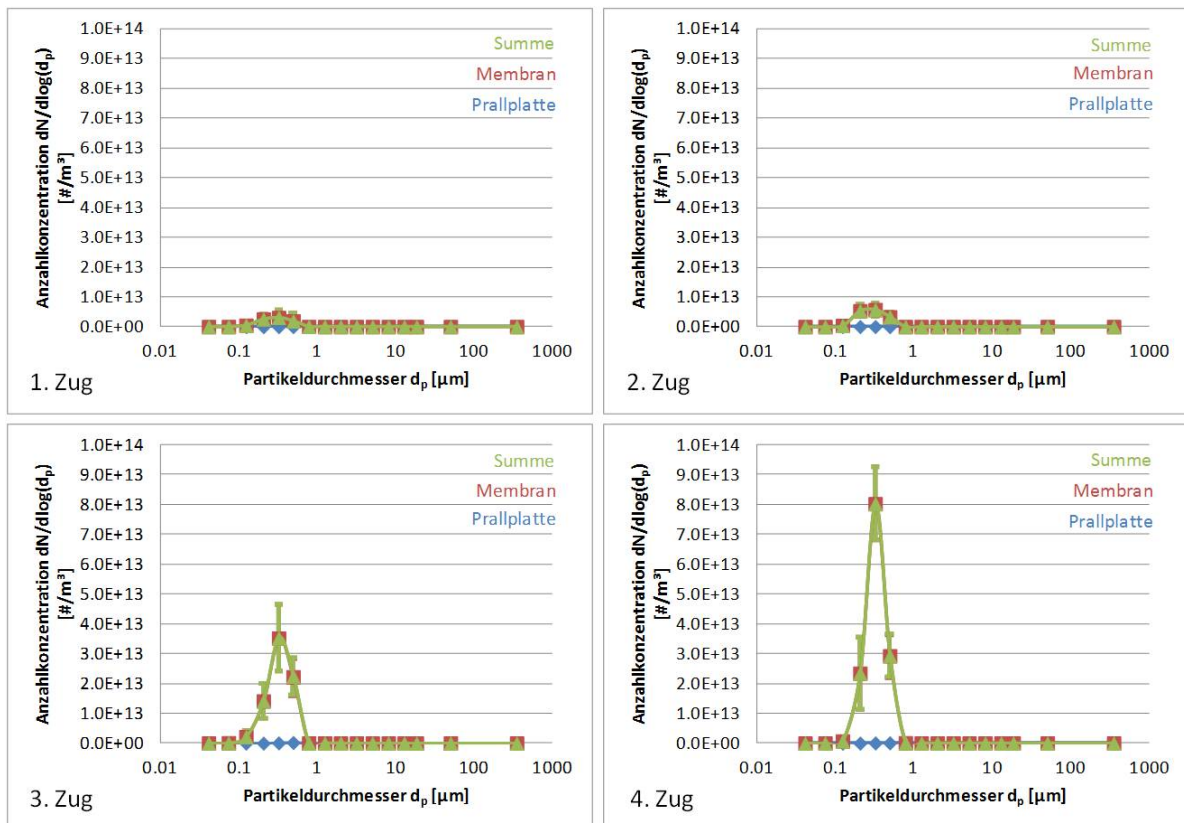


Abbildung 33: Anzahlgrößenverteilungen in allen vier Zügen. Dargestellt sind die Partikel auf der Prallplatte (blau), der Membran (rot) und deren Summe (grün).

Die Anzahlgrößenverteilung ist dominiert durch kleine Partikel mit einem Modalwert von etwa 300 nm. Die Gesamtkonzentration von  $(8 \pm 3) \times 10^{11} \text{ m}^{-3}$  im Feuerraum ist relativ gering und erhöht sich nur leicht bis zum Messpunkt im zweiten Zug. Im dritten

Zug steigt die Konzentration an submikronen Partikeln deutlich auf einen Wert von  $(1,4 \pm 0,3) \times 10^{13} \text{ m}^{-3}$  und erreicht ihr Maximum von  $(2,5 \pm 0,4) \times 10^{13} \text{ m}^{-3}$  im vierten Zug. Eine Änderung der Partikelgröße im Verlauf des Kessels ist hingegen im Rahmen der gewählten Größenklassierung nicht zu beobachten.

Ein hypothetischer Ansatz zur Erklärung der zahlenmäßigen Zunahme der submikronen Partikel wäre homogene Nukleation von neuen Partikeln aus der Gasphase wie in Abbildung 34(a) skizziert. Dieses Szenario scheidet jedoch aus, da die nötige Übersättigung von einigen Prozent aufgrund des Vorhandenseins von Partikeln, die als Kondensationskeime dienen, nicht erreicht werden kann. Jedoch scheidet auch reine Kondensation an den bereits im Feuerraum vorhandenen 300 nm großen Partikeln wie in Abbildung 34(b) gezeigt als Erklärung aus, da sich die Gesamtpartikelzahl dabei nicht verändern würde, während die mittlere Größe deutlich zunehmen müsste. Dies entspricht beides nicht den Beobachtungen in Abbildung 33.

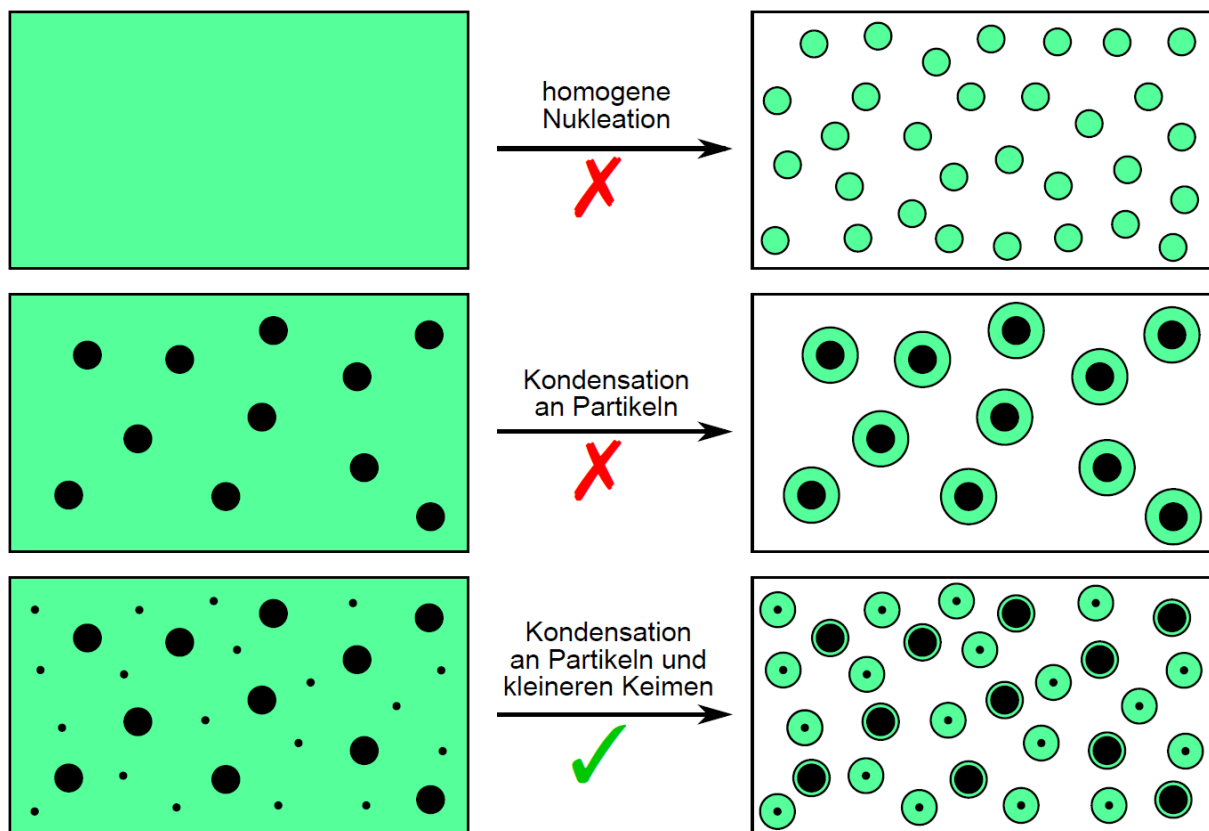


Abbildung 34: Verschiedene Möglichkeiten zum Übergang von kondensierbaren Stoffen (grün) aus der Gas- in die Partikelphase. (a) Homogene Nukleation. (b) Kondensation von Gas an bereits vorhandenen Partikeln. (c) Kondensation an bereits vorhandenen Partikeln und zusätzlichen nanoskaligen Keimen. Die Partikelgrößen sind nicht maßstabsgetreu wiedergegeben.

Somit bleibt als plausible Erklärung, dass sich im Feuerraum neben den beobachteten Partikeln mit einer Größe von etwa 300 nm noch eine hohe Zahl an deutlich kleineren Keimen befindet, die sich im REM aufgrund ihrer geringen Größe nicht vom Untergrund unterscheiden lassen. Wie in Abbildung 34(c) skizziert kondensiert das Gas nun an diesen Keimen, die auf eine Größe von etwa 300 nm anwachsen, während die ursprünglichen 300 nm Partikel wegen ihrer geringen Anzahl nur wenig

Kondensat aufnehmen und dementsprechend wenig wachsen. Dieser Gedankengang wird später im Rahmen der CFD-Simulationen noch im Detail ausgeführt.

Die in Abbildung 41 dargestellte Massenverteilung zeigt im Bereich der submikronen Partikel den gleichen Verlauf wie die Anzahlverteilung. Zusätzlich ist hier jedoch auch der Anteil der größeren Partikel zu erkennen. Während deren Konzentration in den ersten drei Zügen ähnlich ist, nimmt sie im vierten Zug deutlich ab. Dies lässt sich leicht verstehen, da zwischen dem dritten und vierten Zug zahlreiche Überhitzerrohrbündel passiert werden, an denen ein Teil der größeren Partikel abgeschieden wird.

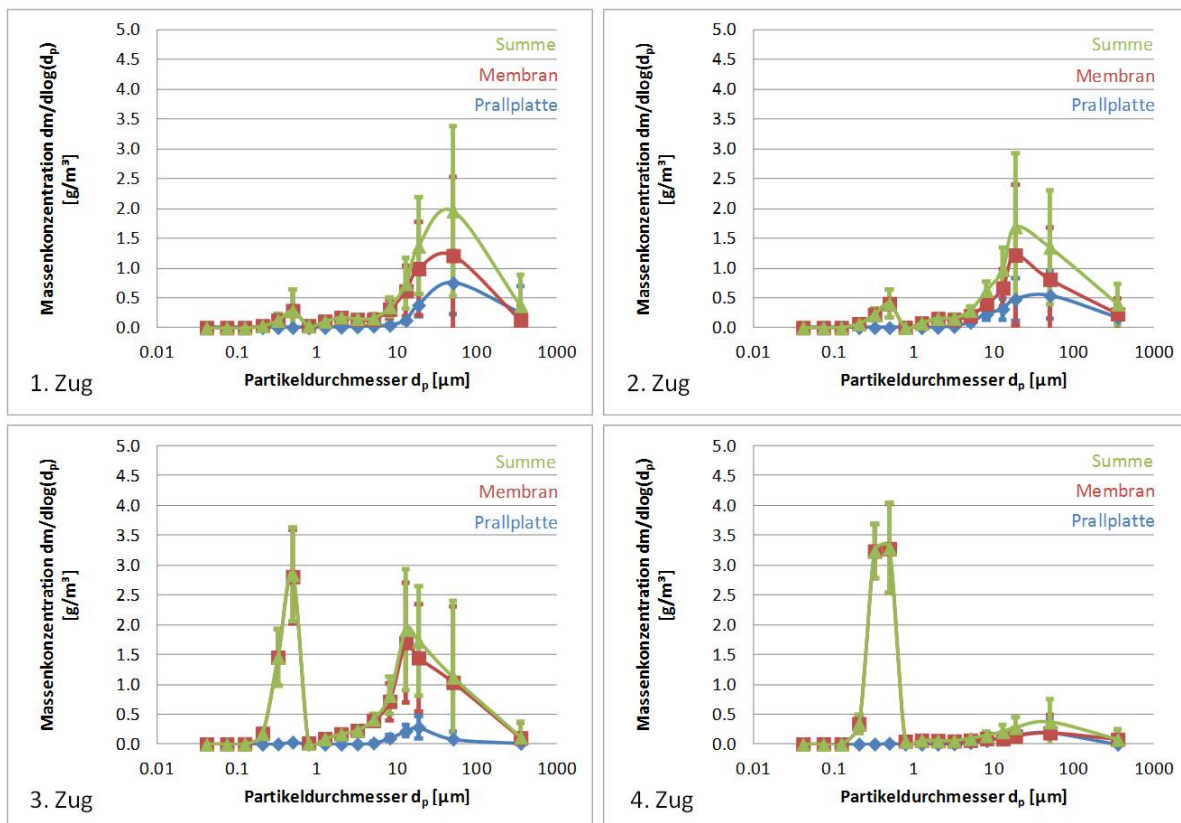


Abbildung 35: Massengrößenverteilungen in allen vier Zügen. Dargestellt sind die Partikel auf der Prallplatte (blau), der Membran (rot) und deren Summe (grün).

Die soeben diskutierten Ergebnisse lassen sich auch gut anhand der Gesamtstaubmenge verdeutlichen, welche sich durch Integration über die Massenverteilung bestimmen lässt. Der Verlauf der Gesamtstaubmenge über die vier Züge ist in Abbildung 36 gezeigt. Die Werte liegen in der erwarteten Größenordnung von 2 – 4 g/m<sup>3</sup> [Deuerling2010]. Weitere Informationen liefert eine Unterteilung in feine und grobe Partikel. Basierend auf den bimodalen Massenverteilungen in Abbildung 35 wurde hier die Grenze bei etwa 2 µm angesetzt. Deutlich ist zu erkennen, wie der Anteil an kleinen Partikeln aufgrund von Kondensation im Verlauf des Kessels stark ansteigt. Der Anteil der großen Partikel nimmt hingegen im Kesselverlauf ab, da Verluste an Hindernissen und Umlenkungen auftreten. Besonders deutlich ist auch hier der Verlust an den Überhitzerrohrbündeln zwischen drittem und viertem Zug zu sehen.

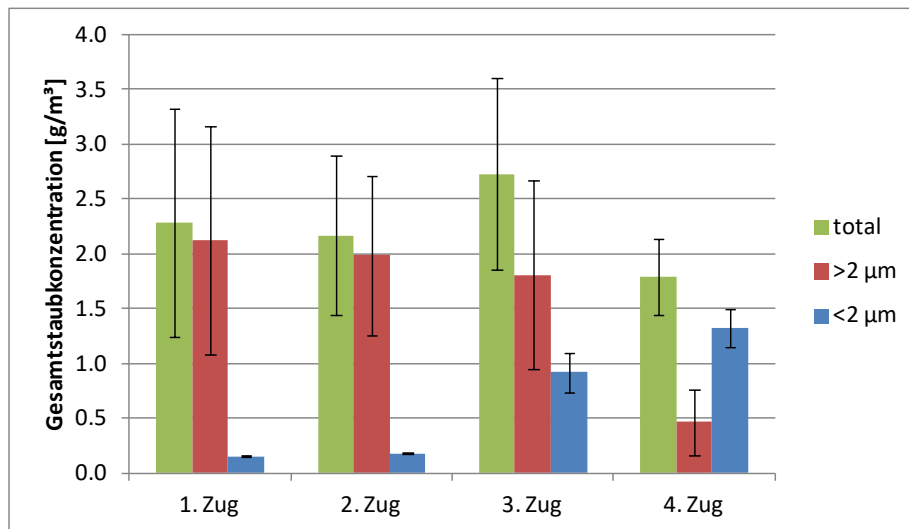


Abbildung 36: Entwicklung der Gesamtstaubmenge (grün) über die vier Züge. Zusätzlich sind die Anteile an Partikeln größer 2 µm (rot) und kleiner 2 µm (blau) gezeigt.

### C.1.3 Chemische Zusammensetzung

In Abbildung 29 ist die größenabhängige chemische Zusammensetzung der Partikel auf der Membran gezeigt. Pro Zug wurden je etwa 150 Partikel auf zwei Proben untersucht. Partikel kleiner 1 µm geben nicht ausreichend Signal, um die chemische Zusammensetzung zu bestimmen. Für die beiden größten Größenklassen konnten mit dem gewählten Auswerteschema nicht genügend Partikel untersucht, um statistisch relevante Aussagen zu erhalten. Deshalb beschränken sich die chemischen Zusammensetzungen auf den Partikelgrößenbereich zwischen etwa 1 und 25 µm. Zur besseren Übersicht wurden die Elemente in Gruppen zusammengefasst: inerte Aschebildner (Si, Al), Ca, sonstige Kationen (Mg, Ti, Cr, Fe, Zn), Alkalimetalle (Na, K) sowie die einzelnen Anionen (Cl, S, F, P, O).

Die Partikel bestehen im Wesentlichen aus Si, Al und Ca, die als Oxide vorliegen. Das ist in Übereinstimmung mit der chemischen Zusammensetzung von auf Gewebefiltern gesammelten Partikeln in Müllverbrennungsanlagen, die SiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und CaO als Hauptkomponenten aufweisen [Lam2010]. Weitere substantielle Beiträge kommen von den metallischen Kationen Mg, Fe und Ti, die ebenfalls typische Bestandteile von Flugasche in Form von MgO, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und TiO<sub>2</sub> sind [Lam2010]. Des Weiteren werden geringe Mengen an Zn gefunden, das dafür bekannt ist Korrosionseffekte durch Schmelzpunktniedrigung von Metallchloriden zu verstärken [Bankiewicz2009]. Das Gleiche gilt für Blei, das hier jedoch leider aufgrund von Überlappung der Röntgenemissionslinie mit der von S nicht zweifelsfrei zugeordnet werden kann.

Die deutlichste Veränderung der chemischen Zusammensetzung im Kesselverlauf zeigt sich bei den Alkalimetallen Na und K sowie im Chloranteil, die wir im Folgenden unter dem Begriff Salz zusammenfassen. Im ersten Zug finden sich ebenso wie im Feuerraum lediglich geringe Salzanteile von weniger als 4%. Dies entspricht den Erwartungen, da NaCl und KCl bei 950°C nur gasförmig vorliegen sollten. Im Vergleich zur Verdünnungsprobenahme, mit der auch im ersten Zug große Mengen an Salzen gefunden werden, konnte hier die unerwünschte Kondensation somit weitgehend

unterdrückt werden, wie bereits zuvor anhand der Größenverteilungen gefolgert wurde. Im zweiten Zug sind bereits hingegen substantielle Mengen an Salzen vorhanden, da hier die Kondensation durch Abkühlung im Kessel bereits teilweise stattgefunden hat. Der Salzanteil ist bei kleineren Partikeln größer, da die aufkondensierte Salzschrift bei diesen einen größeren Anteil am Volumen ausmacht als bei größeren Partikeln. Der Salzanteil steigt im dritten und vierten Zug weiter auf schließlich über 20%. Gleichzeitig ist eine leichte Zunahme im S Gehalt über die Züge zu verzeichnen, was aufgrund der Sulfatierung der chlorhaltigen Partikel während des Fluges durch den Kessel zu erwarten ist. Die übrigen Anionen P und F liegen im gesamten Kessel nur in Spuren vor.

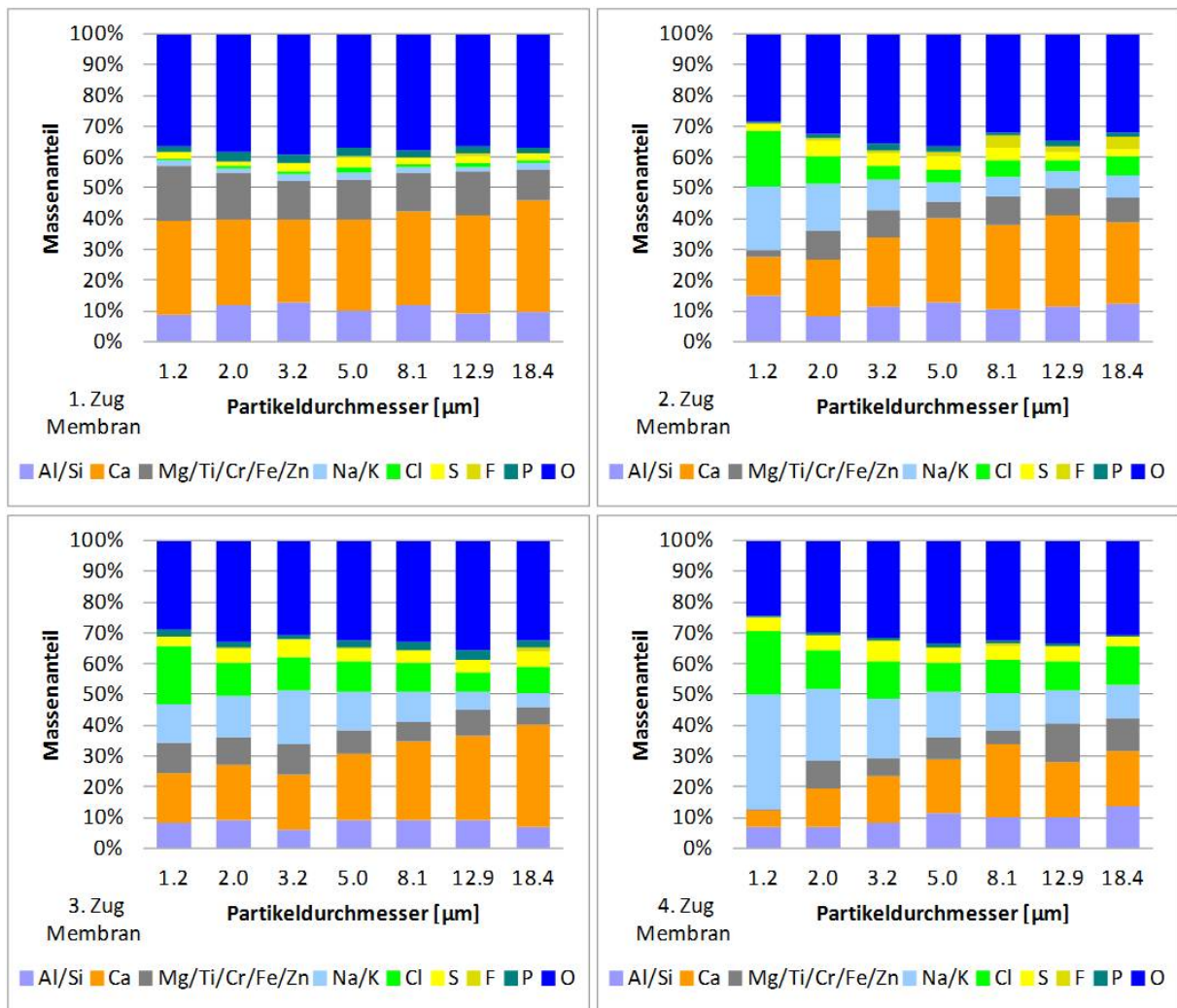


Abbildung 37: Chemische Zusammensetzung der Partikel auf der Membran in allen vier Zügen.

Abbildung 38 zeigt zum Vergleich die chemische Zusammensetzung der Partikel, die auf der Prallplatte gesammelt wurden. Im dritten und vierten Zug ist die chemische Zusammensetzung ähnlich zu derjenigen auf der Prallplatte. Lediglich die Tatsache, dass Fe, Cr und Si als Partikelbestandteile nicht detektiert werden können, da sie vom Untergrundsignal der Stahlplatte überlagert werden, führt zu scheinbar kleineren Anteilen der entsprechenden Elementgruppen.

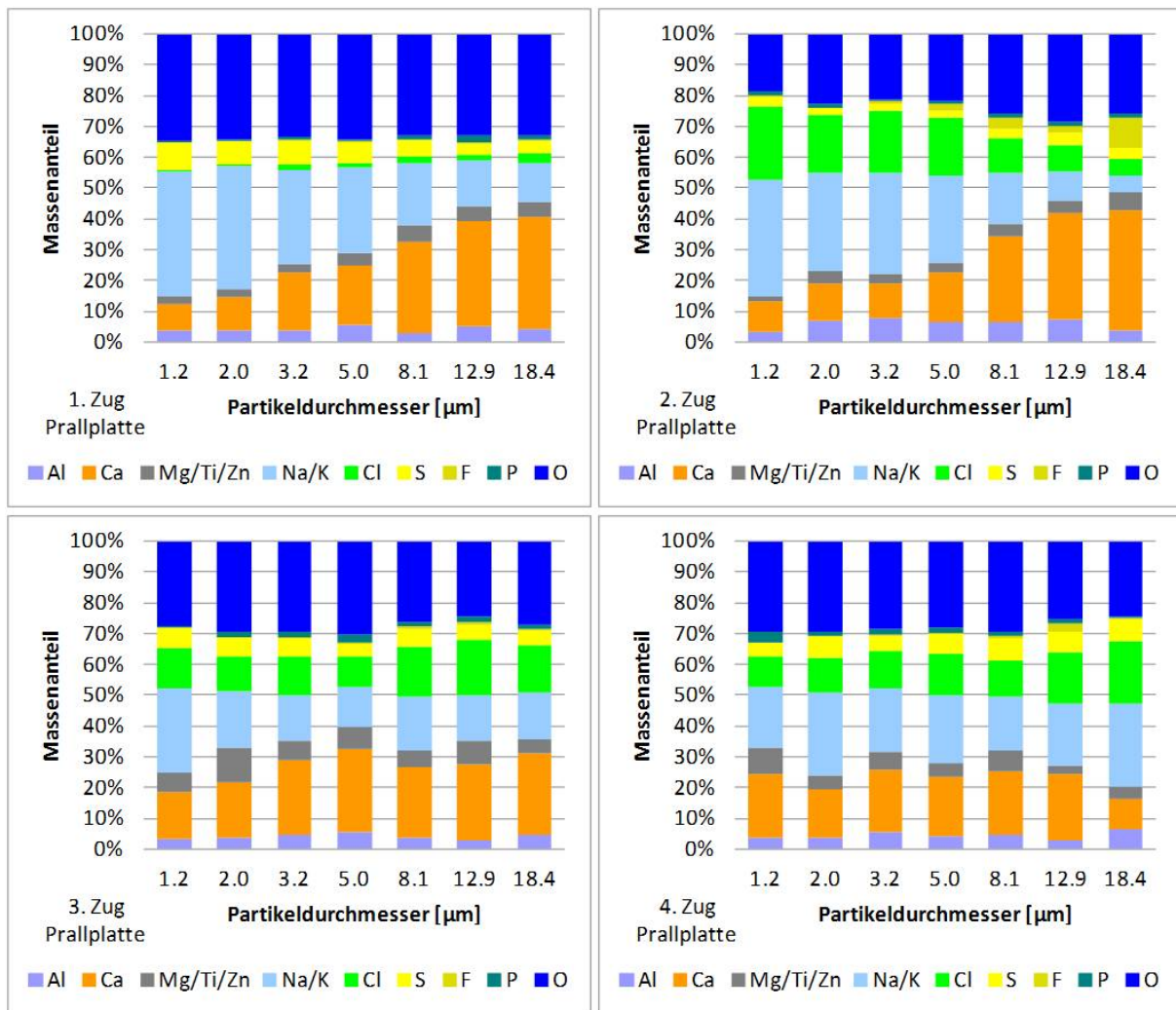


Abbildung 38: Chemische Zusammensetzung der Partikel auf der Prallplatte in allen vier Zügen.

Zusätzlich ist der Salzanteil leicht höher als bei den Partikeln auf der Membran. Dies zeigt sich noch stärker im zweiten Zug und am deutlichsten im ersten Zug, wo auf der Prallplatte bis zu 40% Alkalimetalle gefunden wurden, während deren Anteil in den Partikeln auf der Membran verschwindend gering ist. Dies zeigt wiederum, dass auf der Prallplatte vermutlich doch noch unerwünschte Kondensationsartefakte auftreten, die sich am stärksten bei den höchsten Temperaturen bemerkbar machen.

Abschließend sei als Nebenbemerkung noch das deutliche Ungleichgewicht zwischen Alkalimetallen und Chlor auf der Prallplatte im ersten Zug erwähnt. Dies ist bisher noch nicht verstanden, könnte aber womöglich auf eine Reaktion des Chlors mit dem Stahlsubstrat hindeuten, sodass dieses nicht mehr detektiert werden kann.

#### C.1.4 Messungen im Feuerraum

Da die Untersuchung der Partikelphase im Feuerraum ein eigenes Arbeitspaket (AP 1.3) darstellt, sollen die gewonnenen Ergebnisse hier separat vorgestellt werden. Die in Abbildung 39 gezeigte Anzahl- und Massengrößenverteilung gliedert sich gut in den Kesselverlauf ein. Die Anzahl an submikronen Partikeln liegt erwartungsgemäß ähnlich niedrig wie im ersten Zug, während sich eine vergleichbar hohe Konzentration

on an groben Partikeln findet. Dies zeigt, dass im Feuerraum die maximale Menge an Primärpartikeln, die aus dem Brennbett ausgetragen werden, zu finden ist, während sich noch keine Sekundärpartikel durch Kondensation gebildet haben.

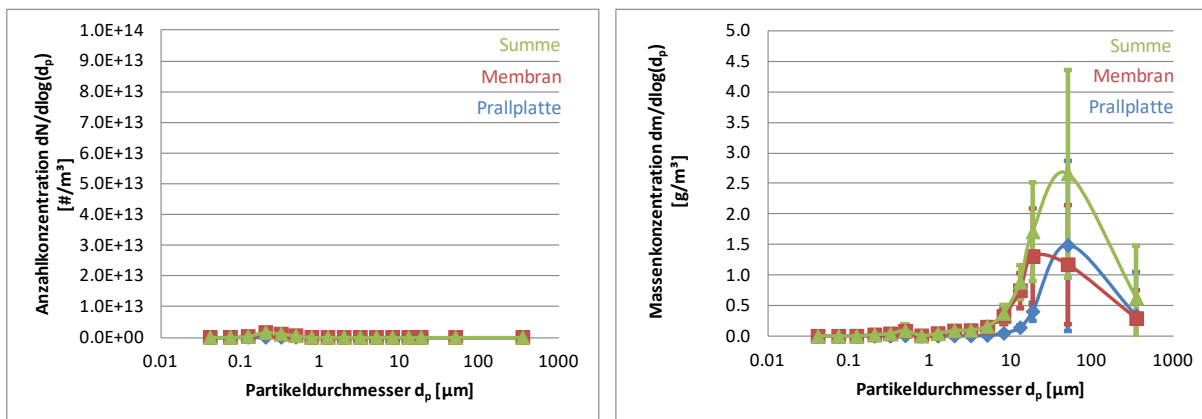


Abbildung 39: Anzahl- und Massengrößenverteilung von Partikeln im Feuerraum.

Die chemische Zusammensetzung der Partikel ist in Abbildung 40 gezeigt. Auch hier findet sich eine gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen im ersten Zug. Dies zeigt erwartungsgemäß, dass im Temperaturbereich zwischen 1000 und 1250°C zwar womöglich chemische Reaktionen, aber keine deutliche Änderung der elementaren Zusammensetzung z.B. durch Aufkondensieren gasförmiger Substanzen stattfindet. Wie auch im ersten Zug finden sich auf der Prallplatte signifikant höhere Konzentrationen an Alkalimetallen als auf der Membran, die wohl auf unerwünschte Kondensation durch mangelnde Aufheizung der Prallplatte zurückzuführen sind.

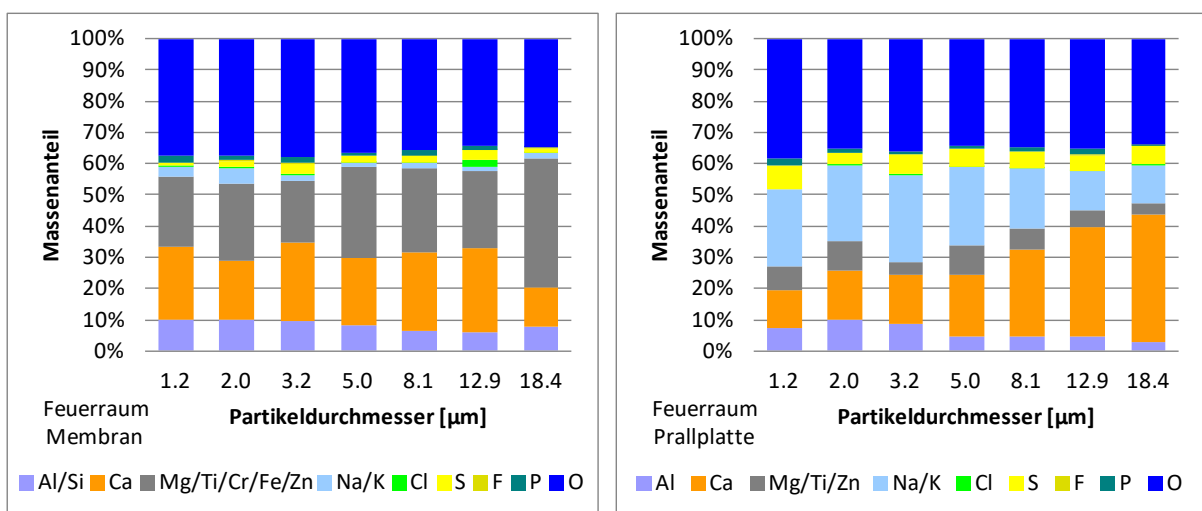


Abbildung 40: Chemische Zusammensetzung der Partikel im Feuerraum, die auf den Membranen (links) bzw. Prallplatten (rechts) gesammelt wurden.

## C.2 Messkampagne im August 2015 am GKS Schweinfurt

Bei der Messkampagne im August 2015 am GKS kam erneut zweistufige Probenahmesonde zum Einsatz. Es wurden neben den Prallplatten mikrogalvanisch gewachsene Nickelmembranen mit Porendurchmessern von 10  $\mu m$  mit einer Sammelzeit von 20 s belegt. Die Messungen wurden in allen vier Zügen der Linie 11 des GKS an den gleichen Messstellen wie in der vorherigen Messkampagne durchgeführt. Aus

Zeitgründen konnte der Feuerraum diesmal nicht vermessen werden. Pro Messstelle wurden mindestens drei Proben genommen, um zeitliche Schwankungen erfassen zu können. Zudem wurde nach jeder Probenahme eine zusätzlich Gesamtstaubmessung mittels eines Quarzfaserfilters durchgeführt.

### **C.2.1 Partikelgrößenverteilungen und Gesamtstaub**

Die in Abbildung 41 dargestellte Anzahlverteilung ist dominiert durch submikrone Partikel und zeigt gute Übereinstimmung zwischen den beiden Messkampagnen. Während im ersten Zug nur sehr geringe Konzentrationen an submikronen Partikeln vorhanden sind, nimmt deren Zahl im Kesselverlauf durch Kondensation von Salzen stetig zu. Ein wesentlicher Unterschied zwischen den Messkampagnen liegt darin, dass die stärkste Konzentrationszunahme im Februar zwischen den Messstellen im zweiten und dritten Zug lag, während sie bei der aktuellen Messzeit bereits vor der Messstelle im zweiten Zug stattfindet. Dies ist jedoch kein Widerspruch, da in diesem Bereich des Kessels womöglich schon kleine Änderungen in Temperatur, Rauchgaszusammensetzung oder Kondensationskeimzahl starke Einflüsse auf den genauen Punkt des Einsetzens der Kondensation haben können. Wie empfindlich genau das System reagiert, wird später noch in den numerischen Simulationen betrachtet.

Der in Abbildung 42 dargestellte Verlauf der Massenkonzentrationen zeigt ebenfalls gute Übereinstimmung zwischen den beiden Messzeiten. Bei den submikronen Partikeln sieht man wie schon zuvor in der Anzahlkonzentration eine Zunahme im Kesselverlauf aufgrund von Kondensation. Die Massenkonzentration der groben Partikel nimmt hingegen durch Verluste an Umlenkungen und Strömungshindernissen ab. Der Hauptunterschied zwischen den beiden Messzeiten liegt darin, dass die Gesamtkonzentration an Partikeln bei der Messung im August merklich niedriger ausfällt. Dies lässt sich besonders gut anhand der in Abbildung 43 gezeigten totalen Gesamtstaubmenge (grün) zeigen, die wiederum zusätzlich in die Anteile an Partikeln größer (gelb) bzw. kleiner (orange) 2  $\mu\text{m}$  eingeteilt ist.

Als Ergänzung zu den mittels REM bestimmten Gesamtstaubmengen sind in Abbildung 42 auch die Ergebnisse der gravimetrischen Analyse der Quarzfaserfilter gezeigt. Im Februar 2015 wurden erste Versuche mit dieser Methode gemacht. Dabei traten jedoch zwei Probleme auf, die eine quantitative Auswertung erschweren: Zum einen wurden Teile des Filterrandes durch den Druck der angrenzenden Metallringe vom Rest des Filters abgetrennt. Zum anderen blieben teilweise Partikel an den statisch aufgeladenen Kunststoffdosen hängen. Da zudem lediglich Einzelmessungen durchgeführt wurden, sind die Ergebnisse nicht sonderlich repräsentativ und zeigen dementsprechend nur mäßige Übereinstimmung mit den Gesamtstaubmengen auf Membran und Prallplatte.

Bei der aktuellen Messkampagne wurden die beschriebenen Probleme weitgehend eliminiert, zum einen durch das Einlegen von dünnen Zwischenringen mit größerer Auflagefläche für die Quarzfaserfilter, zum anderen durch Aufbewahrung der Filter in antistatischen Probendosen. Zudem wurden je drei Proben pro Zug genommen, um eine ausreichende statistische Basis zu bilden. Im Rahmen der üblichen statistischen Schwankungen zeigen die Daten gute Übereinstimmung mit den Gesamtstaubmengen auf Membran und Prallplatte. So spiegelt sich auch die insgesamt niedrigere Gesamtstaubmenge in der Messkampagne vom August im Vergleich zum Februar in den Quarzfaserfiltermessungen wider. Die Werte liegen nichtsdestotrotz noch in der

erwarteten Größenordnung und können somit durch übliche Schwankungen im Betrieb der Anlage erklärt werden.

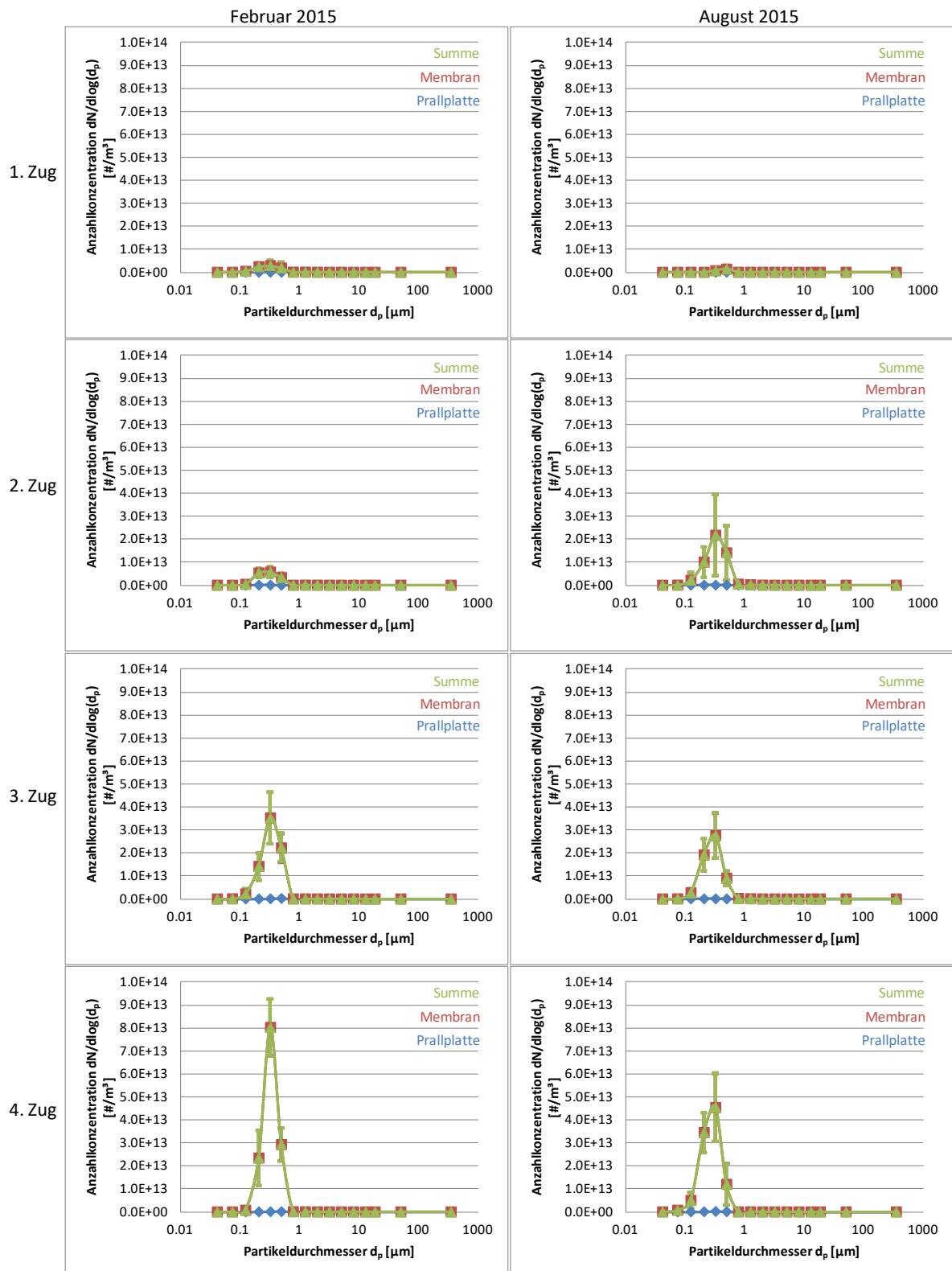


Abbildung 41: Vergleich der Anzahlkonzentration in allen vier Zügen zwischen den beiden Messzeiten.

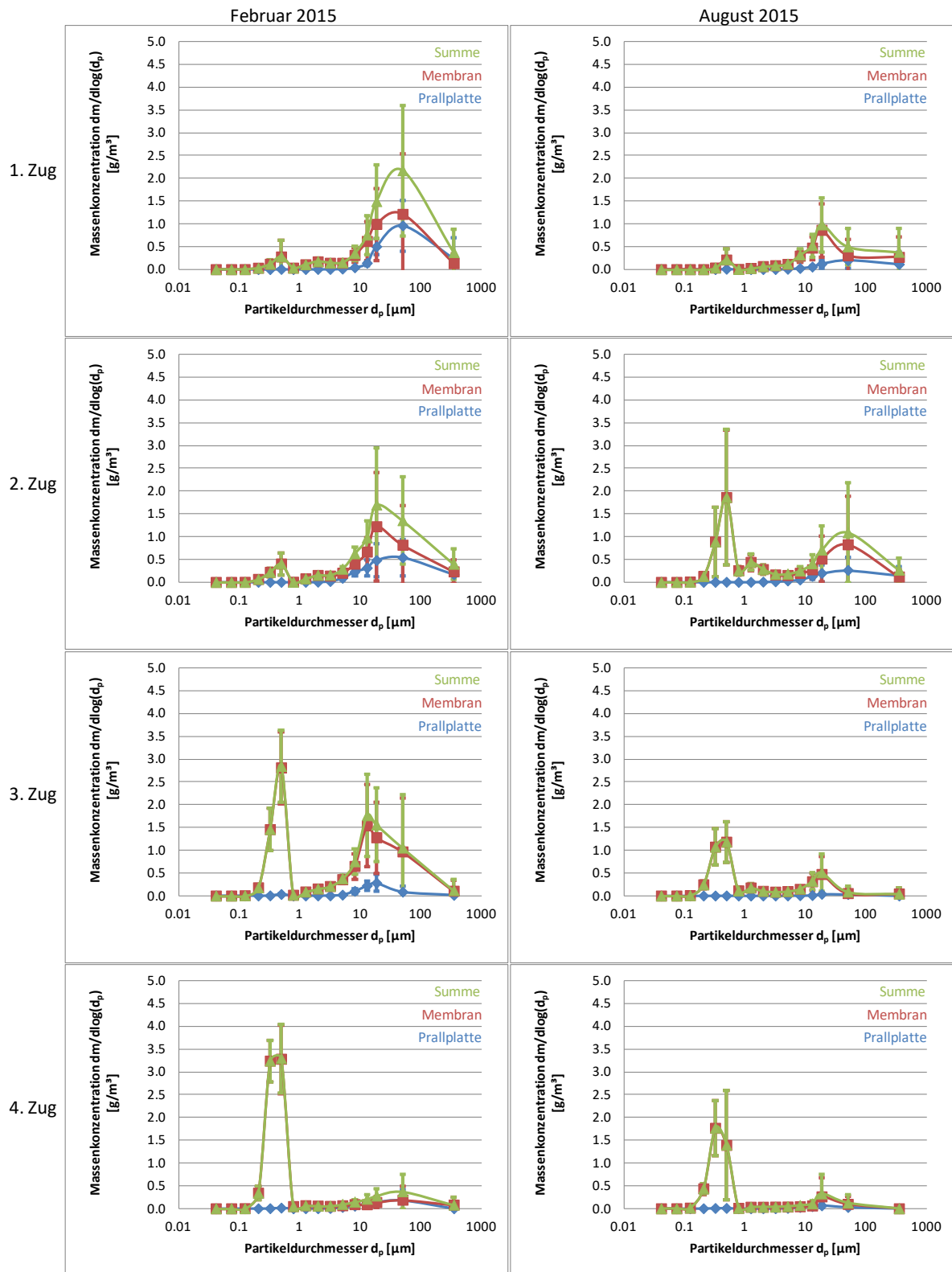


Abbildung 42: Vergleich der Massenkonzentration in allen vier Zügen zwischen den beiden Messzeiten.

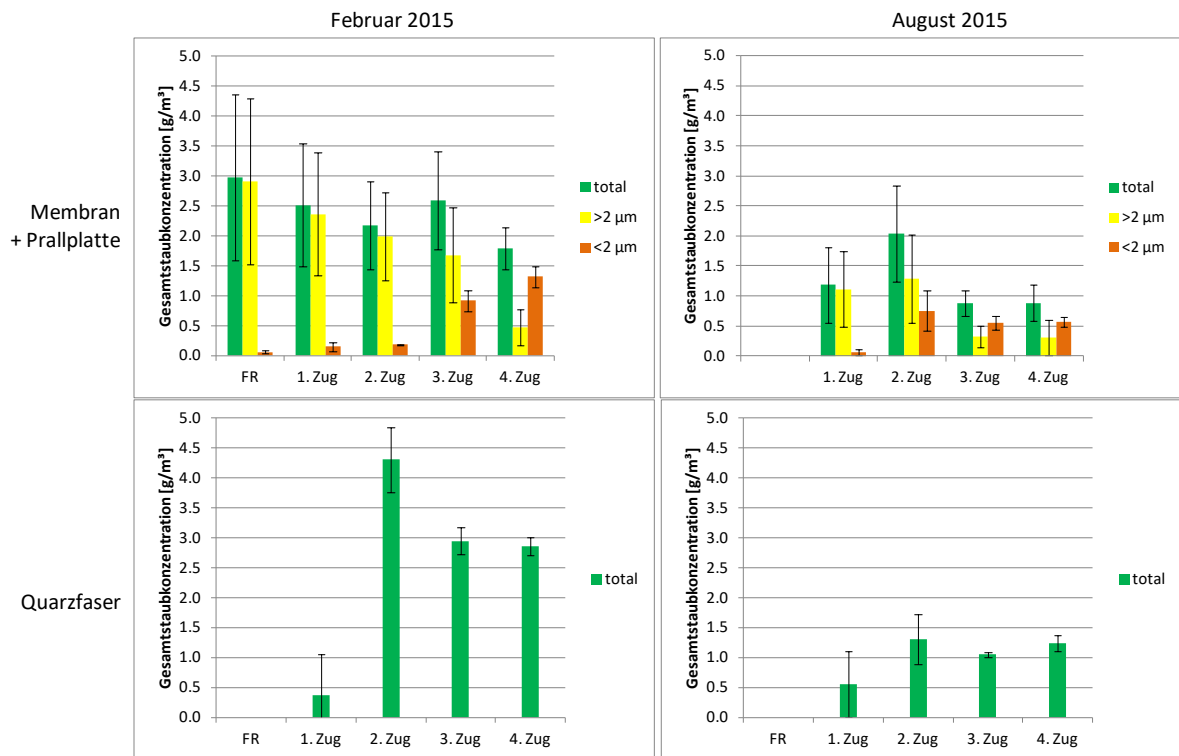


Abbildung 43: Entwicklung der Gesamtstaubmenge (grün) über die vier Züge (zzgl. Feuerraum im Februar 2015) für beide Messzeiten. Zusätzlich sind die Anteile an Partikeln  $> 2 \mu\text{m}$  (gelb) und  $< 2 \mu\text{m}$  (orange) dargestellt. Die unteren Diagramme zeigen die Gesamtstaubmenge auf den Quarzfaserfiltern.

### C.2.2 Chemische Zusammensetzung

Die Ergebnisse der chemischen Analyse der Proben sind in Abbildung 44 (Membranen) und Abbildung 45 (Prallplatten) gezeigt. Hier ergibt sich durchgehend eine gute Übereinstimmung zwischen den beiden Messzeiten. Während im ersten Zug keine Chloride zu finden sind, fangen diese im zweiten Zug an zu kondensieren und nehmen bis zum vierten Zug noch leicht zu. Während im zweiten Zug die Salzkonzentration bei den kleineren Partikeln noch deutlich höher ist als bei den größeren, verteilt sich der Salzgehalt bis zum vierten Zug gleichmäßig über alle Größenklassen. Dies ist verständlich, da im Kesselverlauf eine Koagulation von kleinen und großen Partikeln stattfindet.

Erstaunlicherweise finden sich auch bei der Messkampagne im August deutlich mehr Alkalichloride auf den Prallplatten als auf den Membranen, was in den ersten beiden Zügen besonders ausgeprägt ist. Bei der letzten Messkampagne wurde dies einer mangelnden Vorheizung der Prallplatte zugeschrieben, was zur unerwünschten Kondensation von Alkalichloriden führt. Deshalb wurde in der aktuellen Messzeit als Ergänzung zur Vorgängerversion der Sonde ein Thermoelement in das Gehäuse integriert, um während der Probenahme die Gastemperatur im Inneren der Sonde zu messen. Dabei zeigte sich in der Tat, dass in den ersten beiden Zügen die Temperatur des Gases in der Sonde nach den im Februar verwendeten drei Minuten Vorheizzeit noch bis zu  $80^\circ\text{C}$  unter der umgebenden Rauchgastemperatur lag. Somit ist auch plausibel, dass die Prallplatte noch nicht ausreichend aufgeheizt war.

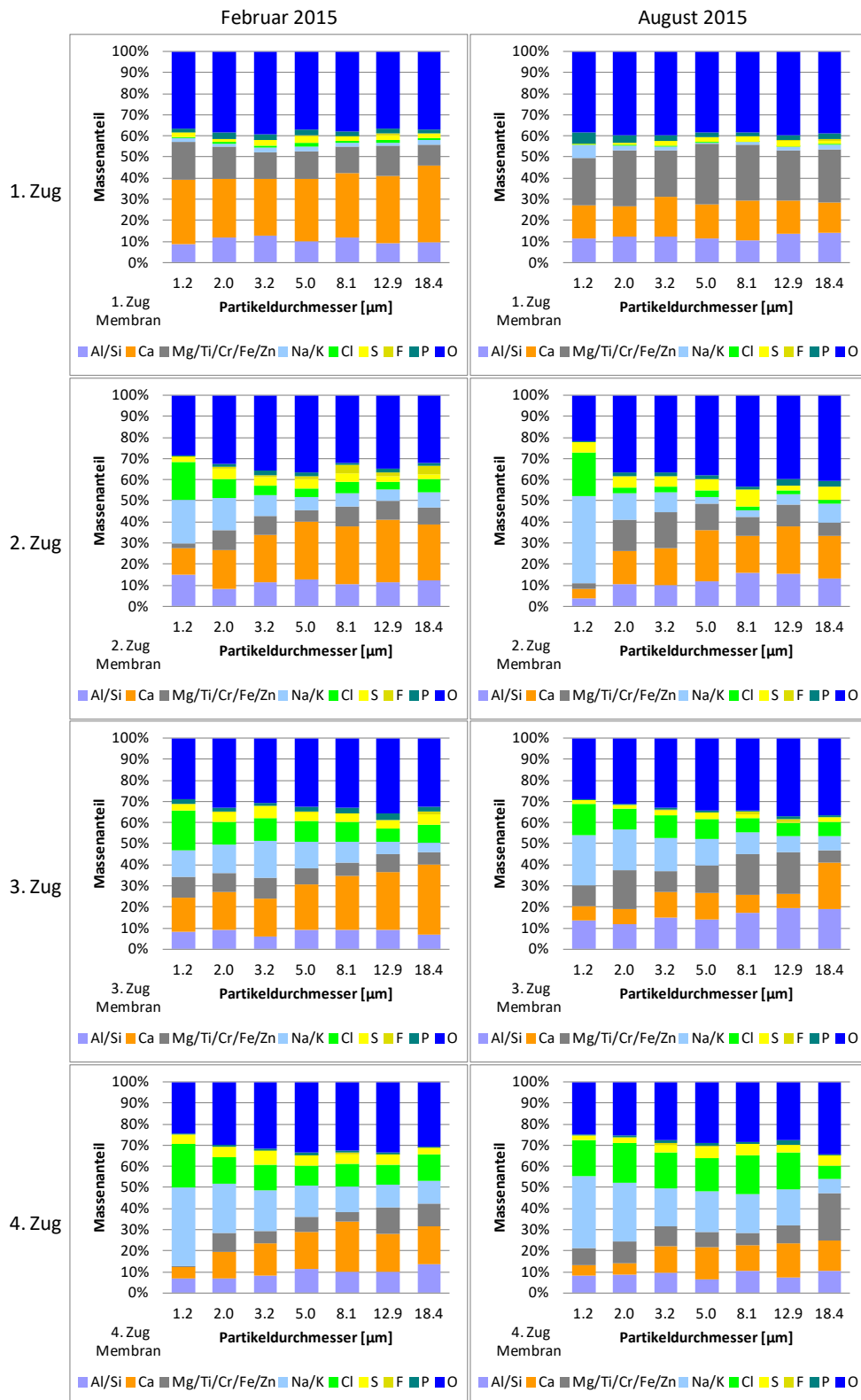


Abbildung 44: Vergleich der chemischen Zusammensetzung der auf den Membranen gesammelten Partikel in allen vier Zügen für beide Messzeiten.

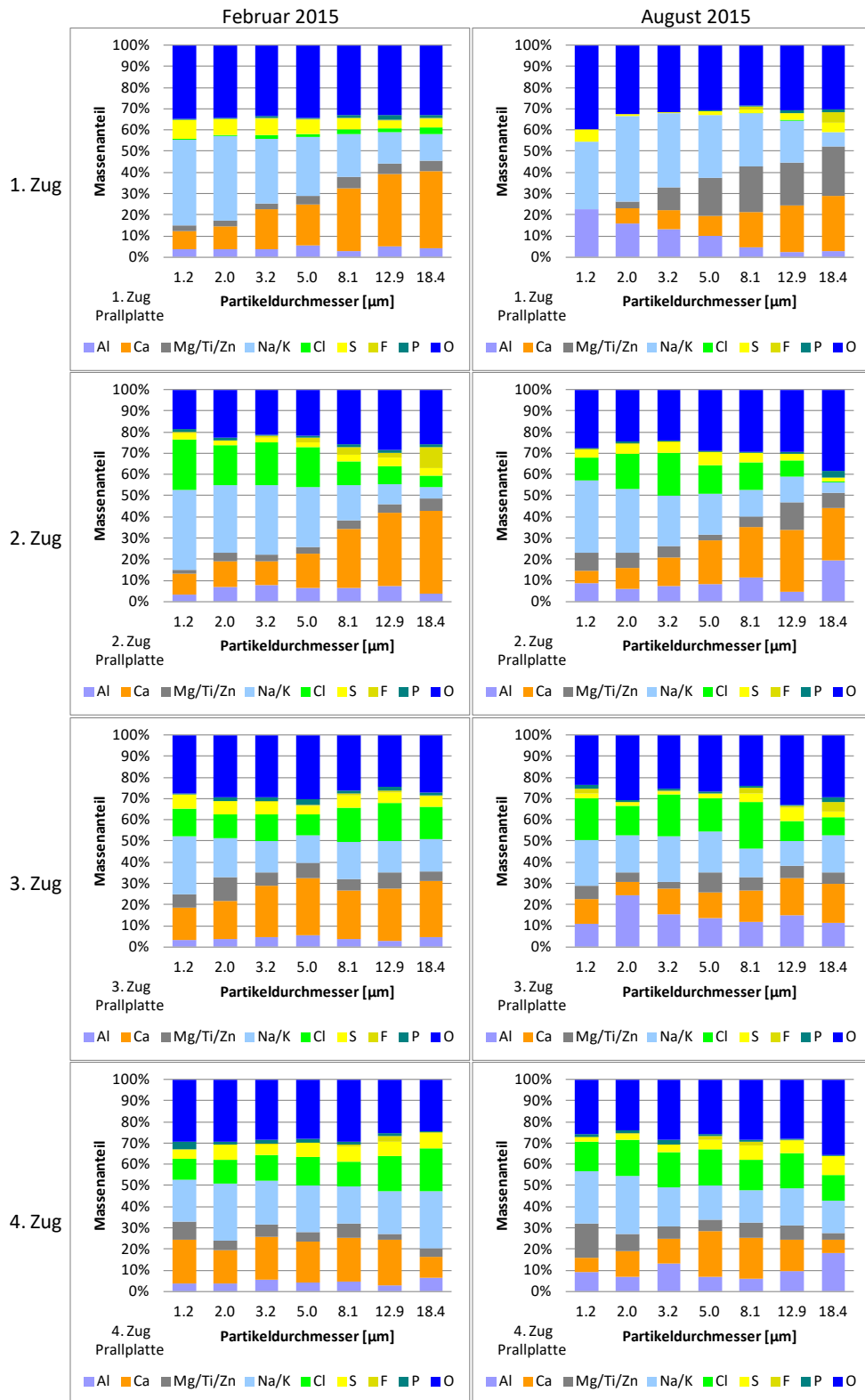


Abbildung 45: Vergleich der chemischen Zusammensetzung der auf den Prallplatten gesammelten Partikel in allen vier Zügen für beide Messzeiten.

Aus diesem Grund wurde in der Messkampagne im August die Vorheizzeit auf bis zu neun Minuten erhöht. Damit konnte die Temperatur auf bis maximal 20°C Differenz der Umgebungstemperatur angeglichen werden. Längere Vorheizzeiten haben zu keiner weiteren Erhöhung der Temperatur geführt, was entweder auf einen nicht

kompensierbaren Kühlungseffekt durch den eingeströmten Stickstoff oder eine systematische Abweichung zwischen den beiden verwendeten Thermoelementen hinweist. Da trotz der längeren Vorheizzeit weiterhin artifizielle Kondensation auf der Prallplatte zu finden war, ist ein tatsächlicher Temperaturunterschied die wahrscheinlichere Ursache. Ein Weg diesen womöglich vollständig auszugleichen wäre die Verwendung dünnerer Prallplatten oder eine bessere Vorheizung des Stickstoffs. Es sei angemerkt, dass im dritten und vierten Zug die Temperatur im Inneren der Sonde trotz längerer Vorheizzeit nur auf etwa 50°C der Umgebungstemperatur angeglichen werden konnte, was hier jedoch keine merklichen Konsequenzen haben sollte, da kaum noch kondensierbare Gase vorhanden sind.

### **C.2.3 Nasschemische Analyse der Gesamtstaubproben**

Die chemische Analyse der Proben wurde bisher ausschließlich mittels EDX durchgeführt. Dies ermöglicht zum einen die Bestimmung der Zusammensetzung einzelner Partikel, zum anderen aber auch eine effiziente Möglichkeit Werte für die mittlere chemische Zusammensetzung des auf Quarzfaserfiltern gesammelten Gesamtstaubes zu erhalten. Dieser Ansatz unterliegt jedoch gewissen Beschränkungen: Zum einen weist die Beladung des Filters mit Partikeln ein Tiefenprofil auf (große Partikel verbleiben auf der Filteroberfläche, kleine Partikel werden bevorzugt tiefer im Filter abgeschieden). Dies kann aufgrund der endlichen Eindringtiefe des Elektronenstrahls die chemische Analyse mittels EDX verfälschen. Aus dem gleichen Grund ist EDX prinzipiell eher empfindlich auf die Oberflächenzusammensetzung großer Partikel als auf die mittlere Gesamtzusammensetzung. Wenn Partikel aus einem Kern mit einer umhüllenden Schale bestehen, wie es beispielsweise für Kondensation auf einem festen Keim zu beobachten ist, kann dies zu merklichen Abweichungen führen. Zum anderen betrachtet die EDX-Analyse lediglich einen sehr kleinen Bereich der Probe. Um herauszufinden, wie repräsentativ die EDX-Analyse dennoch ist, haben wir die Filter einer nasschemischen Analyse zum Vergleich unterzogen. Diese sollte die oben beschriebenen Nachteile umgehen, da alle Partikel unabhängig von ihrer Lage im Filter einbezogen werden, die Festkörper- und nicht nur die Oberflächenzusammensetzung untersucht wird und das gesamte Filtermaterial eine größere statistische Basis liefert.

Für die nasschemische Analyse wurden von den Filterproben (mit Ausnahme der keilförmigen Ausschnitte, die bereits für die EDX-Analyse verwendet wurden) im Ultraschallbad ein wässriger Auszug hergestellt, um die wasserlöslichen Anionen zu untersuchen. Der Auszug wurde über eine 0.45 µm Polypropylen(PP)-Membran gefiltert um unlösliche Bestandteile zu separieren. Der Anteil der einzelnen Anionen wurde mittels Ionenchromatographie gemäß Din EN ISO 10304 bestimmt. Im Anschluss wurden die Filterproben sowie die PP-Membranen mit den unlöslichen Rückständen in einer Mischung aus Fluss- und Salpetersäure in einer Mikrowelle bei 200°C aufgelöst. Die Lösungen und der wässrige Auszug wurden mittels optischer Emissionsspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-OES) gemäß DIN EN ISO 11885 untersucht, um die metallischen Kationen zu bestimmen. Zusätzlich wurden drei unbenutzte Filter untersucht, um die Blindwerte zu bestimmen, die im Anschluss von den Resultaten für die belegten Filter abgezogen wurden.

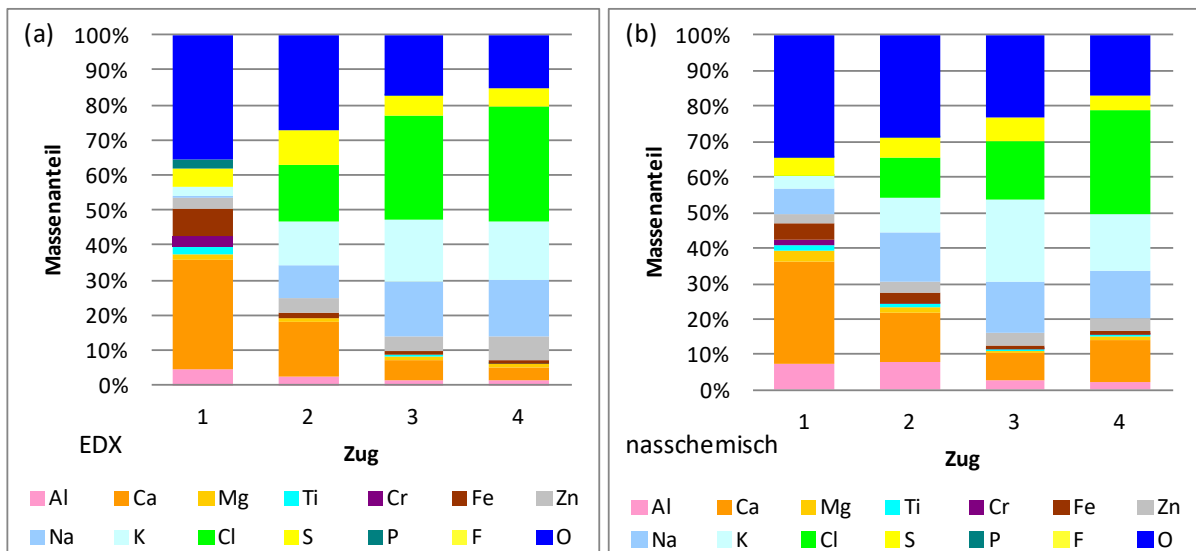


Abbildung 46: Mittlere chemische Zusammensetzung des Gesamtstaubes, der auf den Quarzfaserfiltern in allen vier Zügen gesammelt wurde. (a) EDX-Analyse an fünf zufällig gewählten Stellen auf je einem Filter pro Zug. (b) Nasschemische Analyse von je frei kompletten Filtern pro Zug.

Die Ergebnisse der nasschemischen Analyse sind in Abbildung 46(b) gezeigt und stimmen gut mit den Ergebnissen der EDX-Analyse in Abbildung 46(a) überein. Dies zeigt, dass die EDX-Analyse eines kleinen Ausschnitts bereits eine gute Näherung für die mittlere Zusammensetzung des Gesamtstaubes liefert. Dabei liegt der große Vorteil der EDX-Methode darin, dass sie deutlich weniger zeitaufwändig ist als eine umfassende nasschemische Analyse ist. Wir vermuten, dass die Übereinstimmung dadurch weiter verbessert werden kann, dass die EDX-Analyse für mehr über die gesamte Filterfläche verteilte Bereiche durchgeführt wird.

Der deutlichste Unterschied zwischen den beiden Methoden (in absoluten Werten) besteht darin, dass die nasschemische Analyse weniger Chlor findet. Dies könnte auf zwei unterschiedliche Gründe zurückzuführen sein: Entweder ist der Anteil der großen Partikel, die typischerweise geringe Salzanteile aufweisen, in den mit EDX untersuchten Bildern unterrepräsentiert oder während der nasschemischen Probenpräparation wurden nicht alle Chloride vollständig gelöst und fehlen daher im Analyseergebnis. Letzteres ist jedoch aufgrund der hohen Wasserlöslichkeit der meisten Chloride als eher unwahrscheinlich einzustufen.

#### C.2.4 Messungen während des Rußblasens

Bei der Messkampagne im August 2015 wurde neben den Messungen im Normalbetrieb auch eine Messung im dritten Zug während des Rußblasens durchgeführt. Beim Rußblasen handelt es sich um ein Reinigungsverfahren, das die auf den Überhitzerrohren gebildeten Beläge partiell abreinigt, um so die Korrosion zu minimieren und den Wärmeübertrags zu verbessern. Dazu wird in einem Zyklus von üblicherweise acht Stunden eine rotierende Lanze mit einer Düse langsam in den Kessel gefahren, durch die Wasserdampf unter Hochdruck gezielt auf die Überhitzerrohre geblasen wird. Der dabei entfernte feinere Staub wird mit der normalen Strömung abtransportiert, während gröbere Bruchstücke in den Aschetrichter fallen. Die Rußbläser sind zwischen den Rohrbündeln so angeordnet, dass jedes Rohrbündel sowohl von oben

als auch von unten abgereinigt werden kann. Vor dem Rußblasen wird weniger Brennstoff auf den Rost gegeben und die Zugabe der Primärluft reduziert, um die Last abzusenken und somit einen sicheren Betrieb im Unterdruck zu gewährleisten. Die Leistungsabsenkung führt prinzipiell zu einer leichten Absenkung der Rauchgastemperatur, die jedoch in unserem Fall in den Betriebsdaten an der Messstelle im dritten Zug hinter dem ersten Überhitzerrohrbündel nicht erkennbar war und somit keinen wesentlichen Einfluss auf die Messergebnisse haben sollte. Die Probenahme wurde zu dem Zeitpunkt gestartet als die Lanze zur Hälfte in den Kessel eingefahren war. Abbildung 47 zeigt die Anzahl- und Massengrößenverteilung während des Rußblasens im Vergleich zu den Ergebnissen im Normalbetrieb.

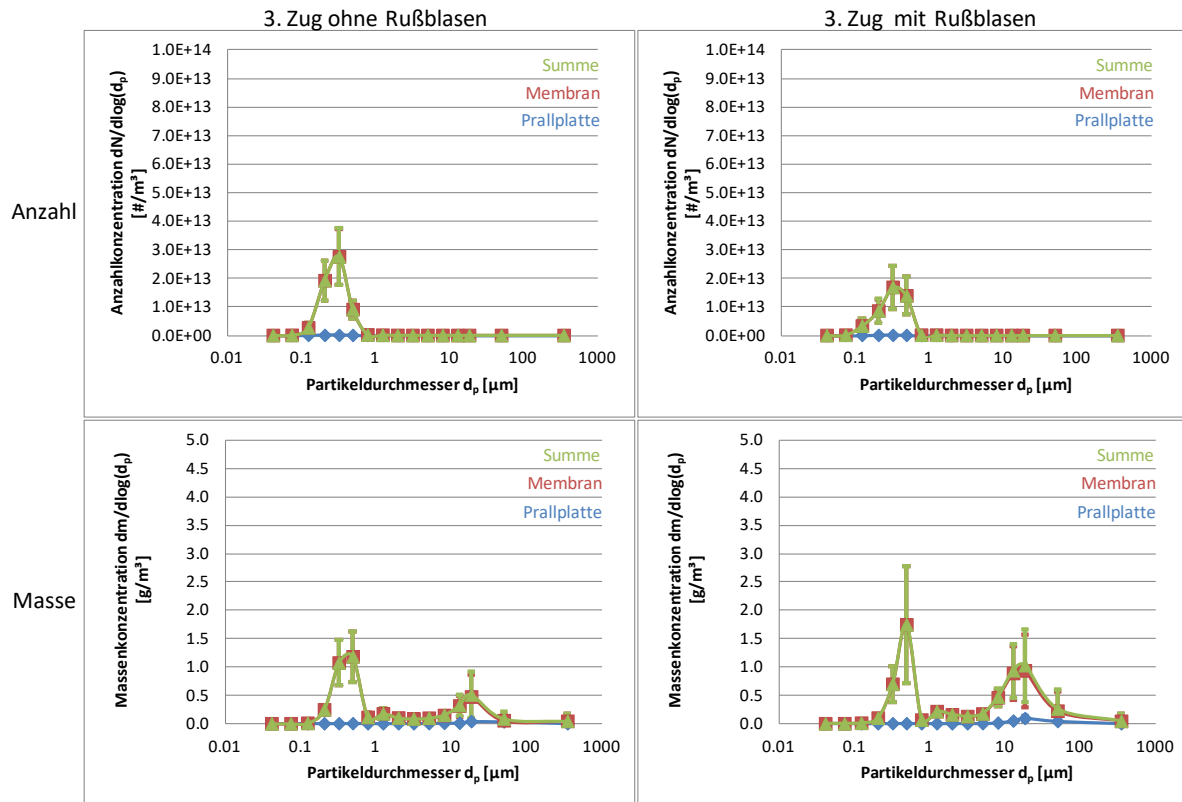


Abbildung 47: Anzahl- und Massengrößenverteilung im 3. Zug im Normalbetrieb (links) sowie während des Rußblasens (rechts).

Im Bereich der submikronen Partikel ist kein signifikanter Unterschied zu beobachten. Dies entspricht den Erwartungen, da die losgelösten Partikel im Wesentlichen nicht in der Größenordnung einiger hundert Nanometer liegen sollten. Im Bereich größerer Partikel zwischen etwa 5 und 50  $\mu m$  ist hingegen eine leichte Zunahme der Partikelkonzentration zu verzeichnen. Allerdings steigt die Gesamtstaubmenge lediglich von  $(0,9 \pm 0,2) g/m^3$  auf  $(1,3 \pm 0,4) g/m^3$  an, zu erwarten sind jedoch deutlich höhere abgetragene Staubmengen. Dies kann zwei Gründe haben: Zum einen wird der Wasserdampf sehr gerichtet auf das Rohrbündel geblasen, sodass womöglich ein Großteil des abgetragenen Staubs an der Sonde vorbeifliegt, da ein ganz exaktes Abstimmen des Starts der Probenahme auf die genaue Position der Düse kaum möglich ist. Zum anderen ist ein Großteil der abgeplatzten Partikel vermutlich deutlich zu groß, um in die kleine Öffnung der Sonde zu gelangen, bzw. fällt aufgrund der Schwerkraft zu Boden statt mit der Strömung mitgetragen zu werden.

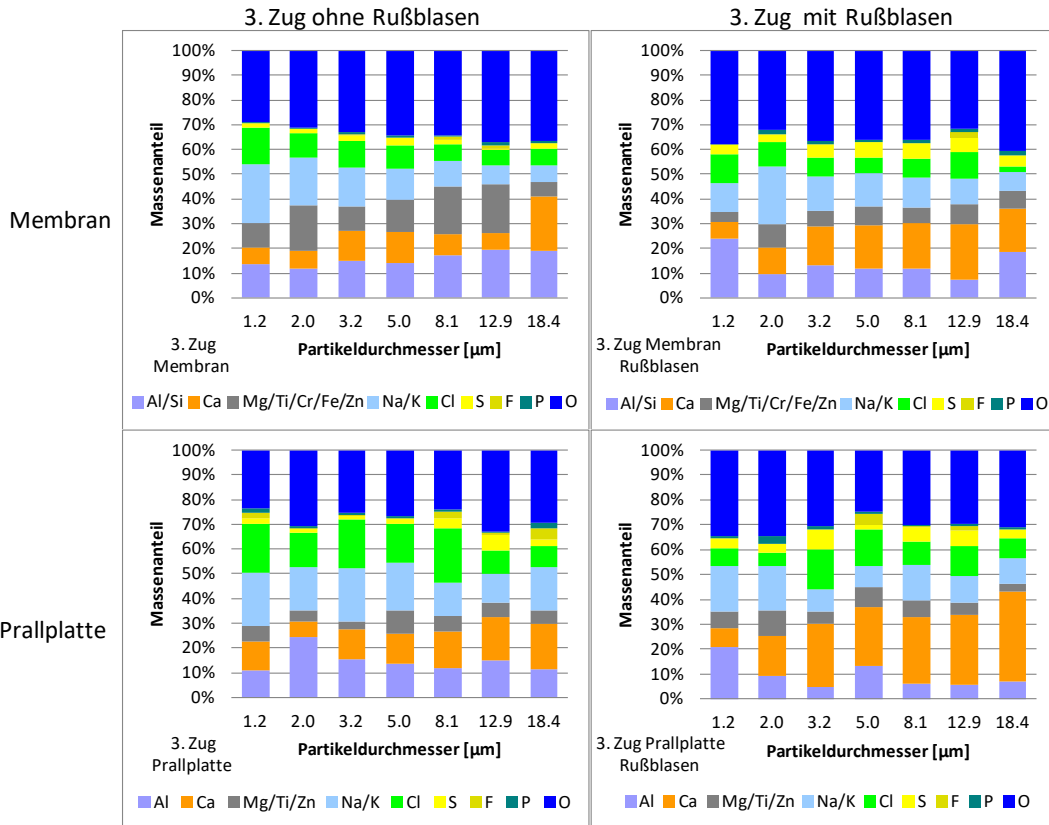


Abbildung 48: Vergleich der chemischen Zusammensetzung der Partikel auf den Membranen bzw. Prallplatten im 3. Zug im Normalbetrieb (links) sowie während des Rußblasens (rechts).

Auch in der chemischen Zusammensetzung zeigen sich keine signifikanten Unterschiede zwischen Normalbetrieb und Rußblasen, wie in Abbildung 48 zu erkennen ist. Dies bestätigt wiederum die These, dass im Wesentlichen die üblichen Rauchgaspartikel und keine Bestandteile des Belages gemessen wurden, für die eine signifikant andere Zusammensetzung zu erwarten wäre. Denn für die beim Rußblasen remobilisierten Partikel beträgt die mittlere Verweilzeit im Kessel 4 h (das halbe Intervall zwischen zwei Rußblasvorgängen), sodass deutlich mehr Zeit für z.B. Sulfatierungsreaktionen bleibt als für die Partikel im Rauchgas, die den Kessel in weniger als 20 s passieren. Beim genaueren Betrachten der Daten zeigt sich lediglich die Tendenz, dass bei der Rußblasmessung die Unterschiede im Salzgehalt zwischen Membran und Prallplatte geringer ausfallen als im Normalbetrieb, was konsistent mit der 30% längeren Vorheizzeit durch das Warten auf die richtige Position des Rußbläfers und der damit verbundenen besseren Aufheizung der Prallplatte ist.

### C.2.5 Chemische Zusammensetzung der submikronen Partikel

Die chemische Zusammensetzung der submikronen Partikel wurde im Rahmen des Projektes bisher nicht untersucht. Dies liegt daran, dass solch kleine Partikel im EDX bei den gewählten Integrationszeiten kein ausreichendes Signal-zu-Untergrund-Verhältnis liefern. Die Gesamtstaubproben bieten jedoch einen indirekten Weg, um mehr Kenntnis über die chemische Zusammensetzung der submikronen Partikel zu erhalten. Dazu wurden die belegten Quarzfaserfilter, die eine repräsentative Zusammensetzung aller Partikelgrößen enthalten, zunächst mit einer dünnen Goldschicht

bedampft und anschließend pro Probe an fünf verschiedenen Stellen EDX Spektren über je 480 µm x 360 µm Bildfläche aufgenommen.

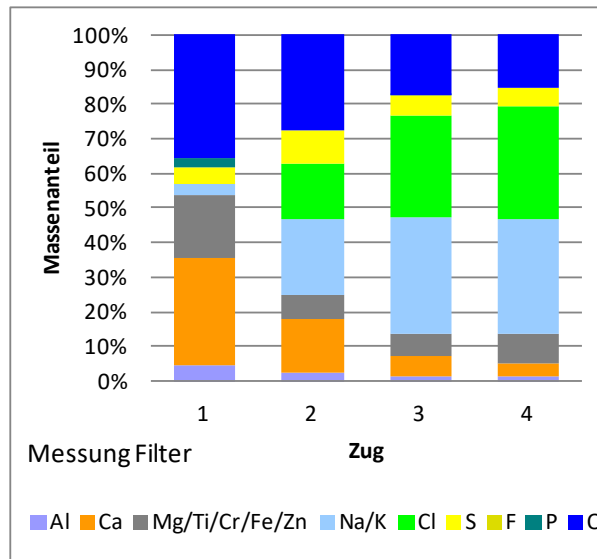


Abbildung 49: Mittlere chemische Zusammensetzung der Partikel auf den Quarzfaserfiltern in allen vier Zügen.

Die Ergebnisse sind in Abbildung 49 zu sehen. Da die Quarzfaserfilter aus  $\text{SiO}_2$  bestehen, musste Si aus der Analyse ausgenommen werden. Die anderen Elemente wurden wieder in Gruppen zusammengefasst und der Sauerstoffanteil rechnerisch ermittelt. Es sei erwähnt, dass die so erhaltene chemische Zusammensetzung sicher nicht exakt der mittleren Zusammensetzung der luftgetragenen Partikel entspricht, da die Partikel abhängig von ihrer Größe unterschiedlich tief im Filter deponiert werden und die EDX-Analyse eine gewisses Eindringtiefenprofil aufweist. Dennoch können die Ergebnisse als gute Näherung angenommen werden und wurden wie bereits zuvor beschrieben durch eine nasschemische Analyse validiert.

Die Ergebnisse aus Abbildung 49 setzen sich zusammen aus einem gewissen Anteil an kleinen Partikeln mit einer bestimmten Zusammensetzung und einem Anteil an großen Partikeln mit anderer Zusammensetzung. Im Detail bedeutet dies, dass für jedes chemische Element  $[X]$  der elementare Massenanteil  $m_{[X],\text{Filter}}$  auf dem Quarzfaserfilter als eine Linearkombination aus einem gewissen Größenanteil  $f_{<2\mu\text{m}}$  an kleinen Partikeln mit Massenanteil  $m_{[X],<2\mu\text{m}}$  und einem Größenanteil  $f_{>2\mu\text{m}}$  an groben Partikeln mit Massenanteil  $m_{[X],>2\mu\text{m}}$  aufgefasst werden kann:

$$m_{[X],\text{Filter}} = f_{<2\mu\text{m}} \cdot m_{[X],<2\mu\text{m}} + f_{>2\mu\text{m}} \cdot m_{[X],>2\mu\text{m}} \quad (38)$$

Der relative Anteil der kleinen und großen Partikel lässt sich leicht aus den bereits vorgestellten Gesamtstaubmengen entnehmen und ist in Tabelle 5 aufgelistet. Der massengewichtete Durchschnitt der auf den Membranen gesammelten Partikel liefert eine gute Näherung für die Zusammensetzung  $m_{[X],>2\mu\text{m}}$  der Partikel größer etwa 2 µm. Die Ergebnisse sind in Abbildung 50 gezeigt. Si wurde aus der Verteilung herausgerechnet, sodass wieder  $\sum_{[X]} m_{[X],>2\mu\text{m}} = 1$  erfüllt ist. Da der Si-Anteil typischerweise unter 5% liegt, führt diese Korrektur nur geringen Änderungen für die anderen Elemente. Auf den ersten Blick lässt sich erkennen, dass die Zusammensetzung

zung im ersten Zug gut mit der auf den Quarzfaserfiltern übereinstimmt, da es hier fast ausschließlich grobe Partikel gibt. In den anderen Zügen finden sich auf den Quarzfaserfiltern jedoch deutlich höhere Salzkonzentrationen, die folglich von den submikronen Partikeln herrühren müssen.

Zug	$f_{<2\mu\text{m}}$	$f_{>2\mu\text{m}}$
1	6%	94%
2	37%	63%
3	63%	37%
4	65%	35%

Tabelle 5: Relative Anteile an submikronen und supermikronen Partikeln in allen vier Zügen.

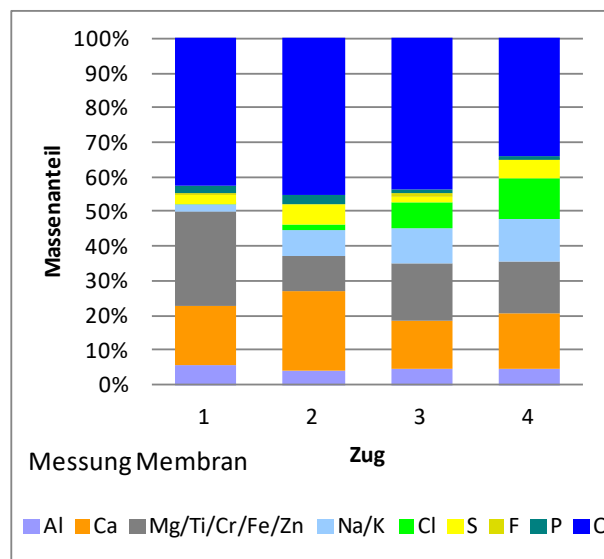


Abbildung 50: Massengewichtete mittlere chemische Zusammensetzung der auf den Membranen gesammelten Partikel in allen vier Zügen.

Im Prinzip ist nun  $m_{[X],<2\mu\text{m}}$  die einzige verbleibende Unbekannte in Gleichung (38) und kann berechnet werden. Das Ergebnis erfüllt jedoch manchmal nicht die Randbedingung  $0 < m_{[X]} < 1$ . In anderen Worten bedeutet dies, dass in diesen Fällen der gemessene chemische Unterschied zwischen den Partikeln  $> 2\mu\text{m}$  und dem Mittelwert über alle Partikel zu groß ist, um durch den vorhandenen Anteil  $f_{<2\mu\text{m}}$  an kleinen Partikeln erklärt werden zu können. Dies trifft insbesondere im ersten Zug zu, wo der geringe Anteil an kleinen Partikeln von lediglich 6% nur geringe Unterschiede zwischen den beiden Messungen erklären kann.

Deshalb wurde die chemische Zusammensetzung  $m_{[X],<2\mu\text{m}}$  der kleinen Partikel so gefittet, dass die Abweichungen zwischen der Berechnung nach Gleichung (38) und der Messung auf dem Quarzfaserfilter minimal werden und gleichzeitig die Bedingungen  $0 < m_{[X]} < 1$  und  $\sum_{[X]} m_{[X],<2\mu\text{m}} = 1$  erfüllt bleiben. Im zweiten bis vierten Zug zeigt dieser Ansatz, dass die Partikel kleiner  $2\mu\text{m}$  zu mehr als 80% aus Alkalichloriden bestehen, was unsere vorherigen Vermutungen bestätigt. Das nächst häu-

figste Element ist S, was auf einen gewissen Anteil an Sulfaten hinweist. Im dritten und vierten Zug finden wir zusätzlich Zn, das dafür bekannt ist, eutektische Verbindungen mit anderen Metallchloriden einzugehen [Li2004, Bankiewicz2009)]. Wegen der niedrigen Schmelzpunkte dieser Verbindungen kondensieren sie erst gegen Ende des Kessels aus. Im ersten Zug offenbart der beste Fit eine vollkommen andere Zusammensetzung als für die anderen drei Züge. Die Partikel enthalten keinerlei Chloride, sondern scheinen hauptsächlich aus Ca, K und S zu bestehen, was auf die Anwesenheit von  $\text{CaSO}_4$  and  $\text{K}_2\text{SO}_4$  hindeutet. Es sei angemerkt, dass der Fit für ein vollständig konsistentes Bild auch O als Komponente liefern sollte, aber dieser Widerspruch ist innerhalb der Ungenauigkeit unseres einfachen Ansatzes vertretbar.

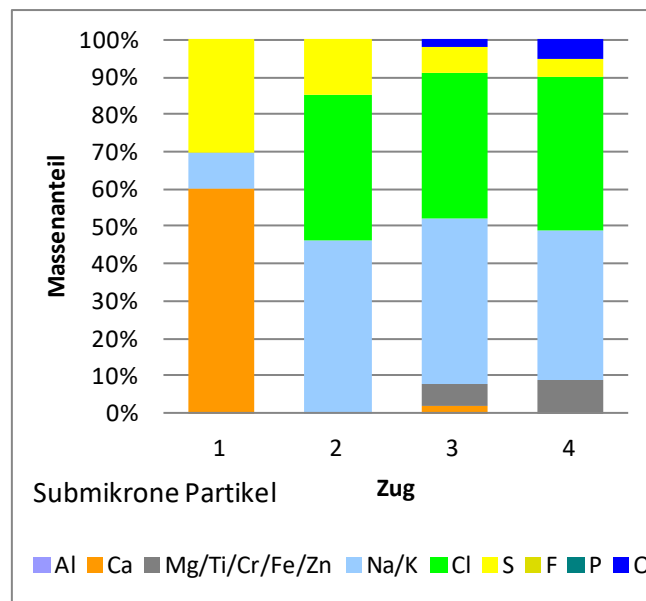


Abbildung 51: Bester Fit für die mittlere chemische Zusammensetzung der submikronen Partikel nach dem im Text beschriebenen Verfahren.

### C.2.6 Zusammenhang von Partikelmorphologie und Chemie

Bisher wurde die chemische Zusammensetzung der Partikel rein größenabhängig aufgetragen, ohne dass die Morphologie der Partikel dabei berücksichtigt wurde. Im Folgenden sollen die Daten nochmals in Hinblick auf die Partikelmorphologie untersucht. Dazu wurden alle Partikel, für die EDX-Spektren aufgenommen wurden, unabhängig von der Partikelgröße in drei verschiedene Morphologieklassen einsortiert: (i) kugelförmige Partikel, (ii) kompakte, aber irregulär geformte Partikel und (iii) Agglomerate aus kleineren Partikeln. Eine feinere Differenzierung hat sich als nicht möglich erwiesen, da keine weiteren klaren Klassifizierungsmerkmale gefunden werden konnten. Zudem sinkt die Zahl der Partikel pro Klasse mit steigender Klassenanzahl, sodass statistische Schwankungen immer mehr ins Gewicht fallen.

Die chemische Zusammensetzung für die drei Morphologieklassen ist im Verlauf des Kessels für die Messkampagne im Februar 2015 in Abbildung 52 und für die Messkampagne im August 2015 in Abbildung 53 gezeigt. In beiden Abbildungen sieht man, wie bereits zuvor diskutiert, den zunehmenden Salzanteil im Kesselverlauf aufgrund von Kondensation, jedoch lassen sich keine systematischen Unterschiede zwischen den einzelnen Morphologieklassen ausmachen (man bedenke die relativ

großen Standardabweichungen der Daten, die hier der Übersichtlichkeit halber nicht eingetragen wurden).

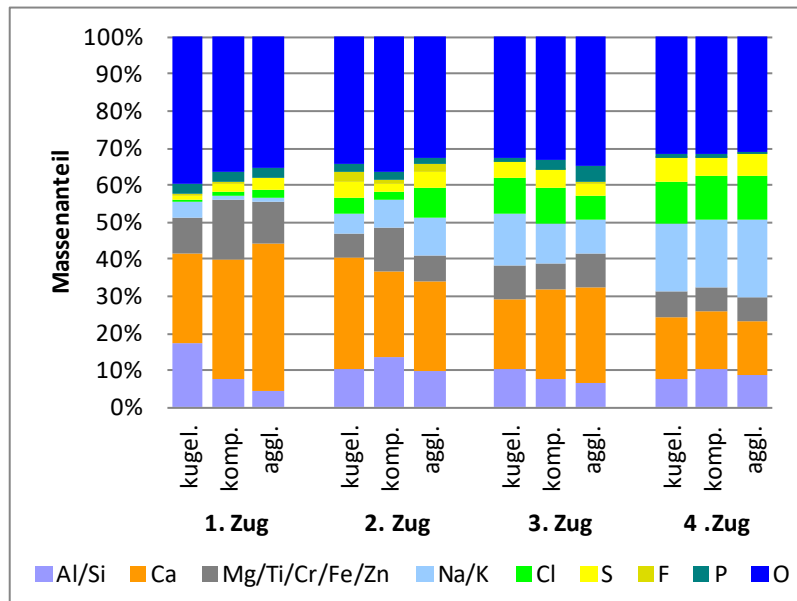


Abbildung 52: Chemische Zusammensetzung der Partikel in allen vier Zügen des GKS für drei verschiedene Partikelmorphologien im Februar 2015.

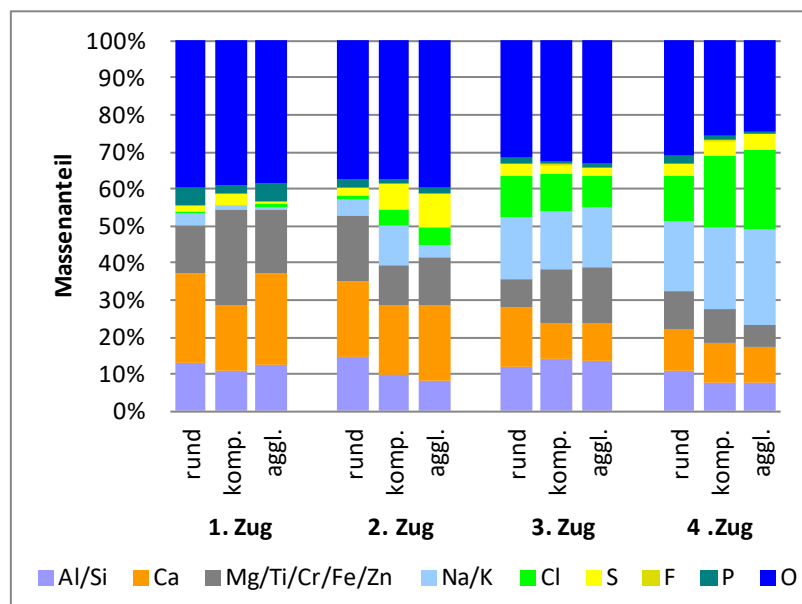


Abbildung 53: Chemische Zusammensetzung der Partikel in allen vier Zügen des GKS für drei verschiedene Partikelmorphologien im August 2015.

Daraus lassen sich verschiedene Schlussfolgerungen ziehen: Dass kein Unterschied zwischen den kugelförmigen und unregelmäßig geformten Partikel im 1. Zug besteht, zeigt, dass offenbar nicht substantielle Unterschiede in der chemischen Zusammensetzung Ursache dafür sind, ob ein Partikel aufschmilzt oder nicht. Vielmehr hängt dies von der Maximaltemperatur, die das Partikel während seiner Reisezeit gesehen hat, oder von Feinheiten in der chemischen Zusammensetzung, die bereits starke Änderungen in der Schmelztemperatur bewirken können, ab. Die Tatsache, dass runde und kompakte Partikel sich chemisch kaum von Agglomeraten unterscheiden,

zeigt, dass die kleinen Primärpartikel, aus denen die Agglomerate bestehen, offenbar im Mittel die gleiche Zusammensetzung haben wie die größeren einzelnen Primärpartikel. Letztlich zeigt die in etwa gleiche Zunahme der Salzkonzentration im Kesselverlauf für alle drei Partikelmorphologien, dass die Kondensation auf den Partikeln offenbar nicht wesentlich von der Morphologie der Partikel abhängt.

### C.2.7 Untersuchungen zur Rundheit der Partikel

Bei der Größenbestimmung der Partikel auf REM-Bildern wurden die Partikel durch eine projektionsflächengleiche Ellipse angenähert. Das Seitenverhältnis dieser Ellipse liefert ein Schätzmaß für die Rundheit der Partikel: ein Seitenverhältnis von 1 steht für ein kugelförmiges Partikel (oder genauer gesagt ein Partikel mit kreisförmiger Projektionsfläche), Partikel mit größeren Seitenverhältnissen sind dementsprechend länglich. Die Seitenverhältnisse wurden bei der Auswertung immer mit aufgezeichnet und im Anschluss daraufhin untersucht, ob sich systematische Zusammenhänge ableiten lassen.

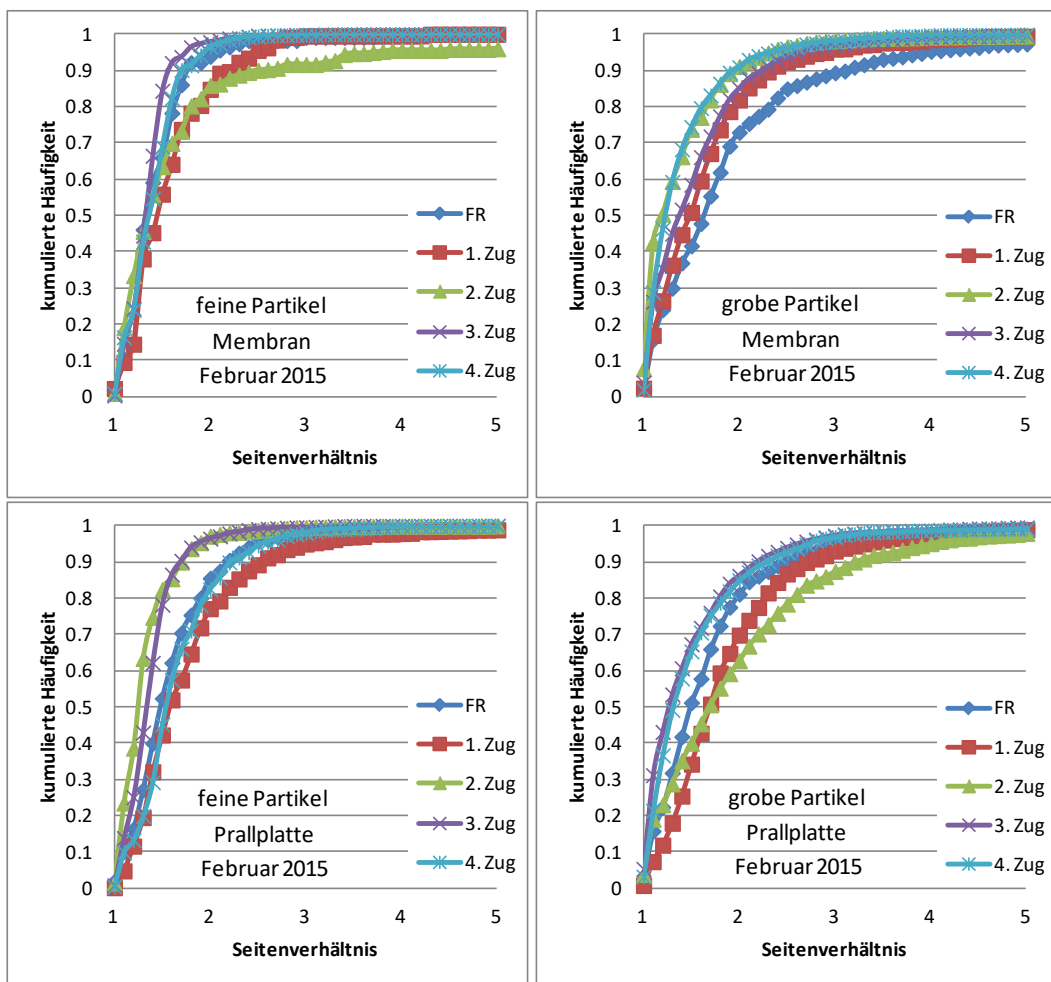


Abbildung 54: Kumulierte Häufigkeitsverteilungen des Seitenverhältnisses für feine und grobe Partikel auf Membran bzw. Prallplatte im Februar 2015.

Abbildung 54 zeigt für die Messkampagne im Februar 2015 die kumulierten Häufigkeitsverteilungen des Seitenverhältnisses für die einzelnen Züge eingeteilt in feine ( $< 1 \mu\text{m}$ ) und grobe ( $> 1 \mu\text{m}$ ) Partikel sowie für Partikel auf der Membran bzw. Prallplatte.

te. Abbildung 55 zeigt den gleichen Datensatz für die Messkampagne im August 2015. Der Übersichtlichkeit halber wurde auf Fehlerbalken verzichtet.

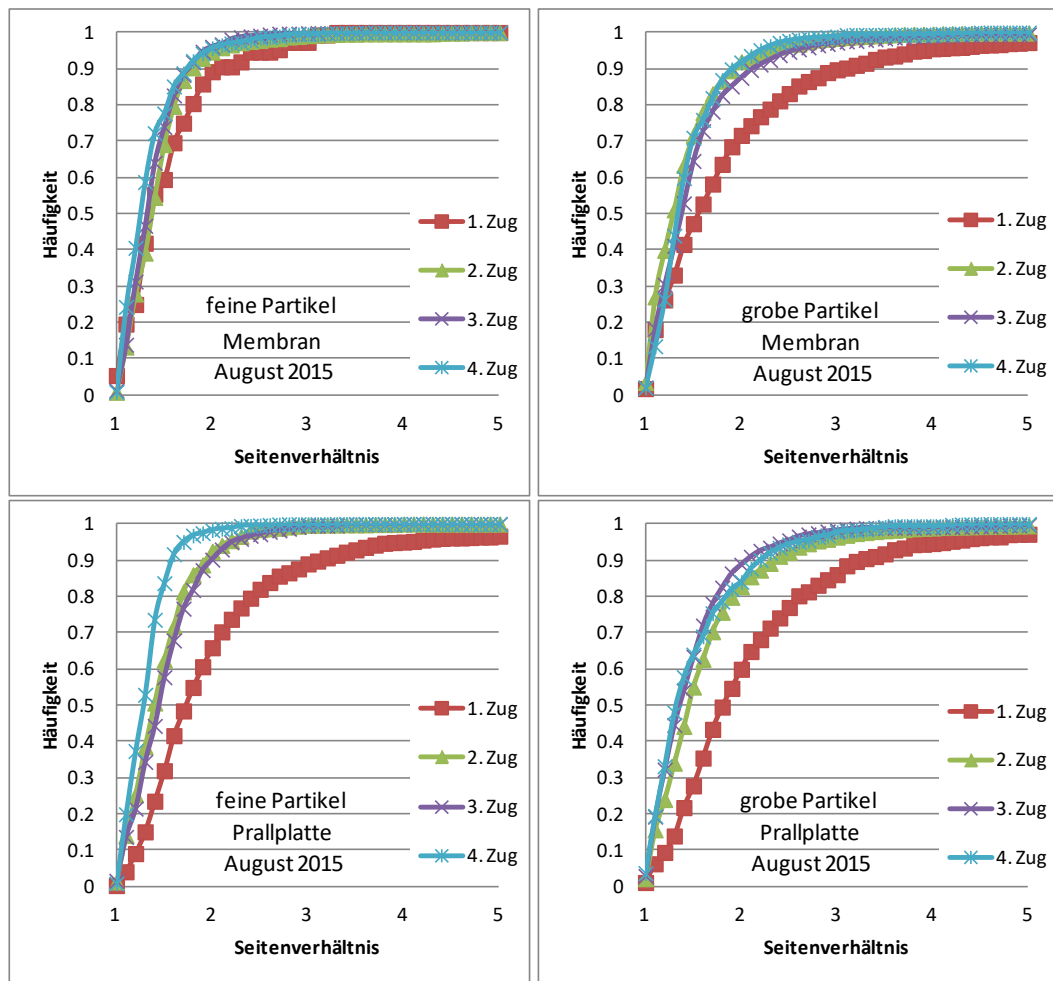


Abbildung 55: Kumulierte Häufigkeitsverteilungen des Seitenverhältnisses für feine und grobe Partikel auf Membran bzw. Prallplatte im August 2015.

Die Kurven zeigen alle einen ähnlichen Verlauf. Die kumulierte Häufigkeit steigt schnell an, sehr längliche Partikel sind also äußerst selten. Im Kesselverlauf lässt sich kaum eine systematische Abhängigkeit ausmachen; es zeigt sich lediglich eine leichte Tendenz zu weniger elongierten Partikeln im dritten und vierten Zug im Vergleich zum ersten Zug. Dies entspricht den Erwartungen, da das Aufkondensieren einer flüssigen Salzschrift in Form eines Tropfens tendenziell eher zu kugelförmigen Partikeln führt, auch wenn der ursprüngliche Kern länglich ist.

Um die Unterschiede zwischen feinen und groben Partikeln, sowie zwischen Partikeln auf der Membran bzw. Prallplatte besser erfassen zu können, wurde in Abbildung 56 über alle Züge gemittelt und die Kurven in einem Diagramm pro Messkampagne zusammengefasst. Die über alle Züge gemittelten Beobachtungen spiegeln sich in einer Betrachtung der einzelnen Züge bis auf einige Ausnahmen wider. Es zeigt sich in beiden Messkampagnen, dass die submikronen Partikel tendenziell kleinere Seitenverhältnisse haben als die supermikronen Partikel. Dies lässt sich damit erklären, dass die submikronen Partikel hauptsächlich auskondensiert sind, während die Form der gröberen aus dem Brennbrett ausgetragenen Primärpartikel eher zufällig und somit oft stärker elongiert ist. Ebenso zeigt sich, dass die Partikel auf der

Prallplatte offenbar größere Seitenverhältnisse als die Partikel auf den Membranen haben. Dafür gibt es zurzeit jedoch noch keine schlüssige Erklärung.

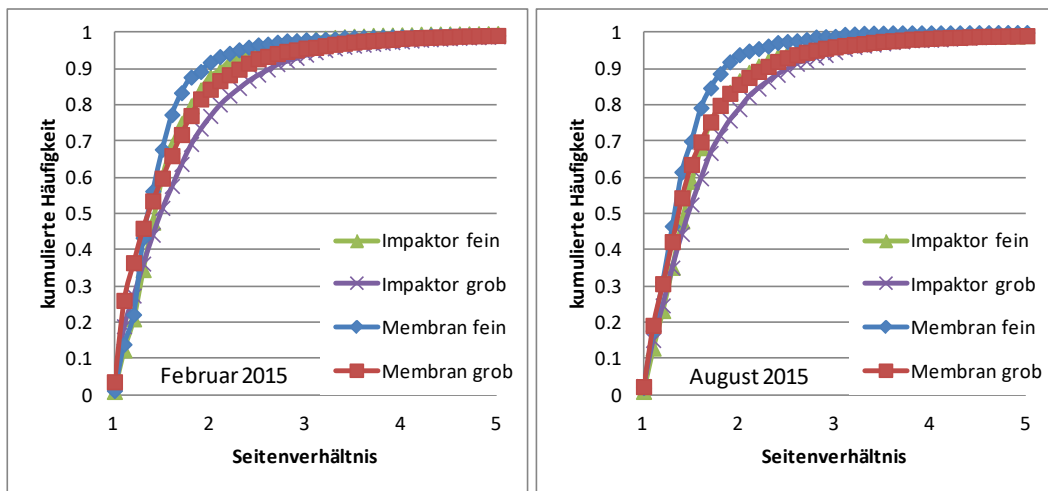


Abbildung 56: Kumulierte Häufigkeitsverteilungen des Seitenverhältnisses gemittelt über alle Züge für feine und grobe Partikel auf Membran bzw. Prallplatte für beide Messkampagnen.

### C.3 Messkampagne im Mai 2016 am AEZ Asdonkshof

Um den Einfluss von Partikelgrößenverteilung und chemischer Zusammensetzung auf die Korrosion im Kessel weiter zu ergründen, wurden Messungen an einer weiteren Anlage durchgeführt, die deutlich geringere Korrosionsraten aufweist. Ein wesentlicher Unterschied zwischen den beiden Anlagen besteht in der Art der Feuerung, die an der Vergleichsanlage im Gegensatz zum GKS als Gleich- statt Gegenstromfeuerung ausgelegt ist.

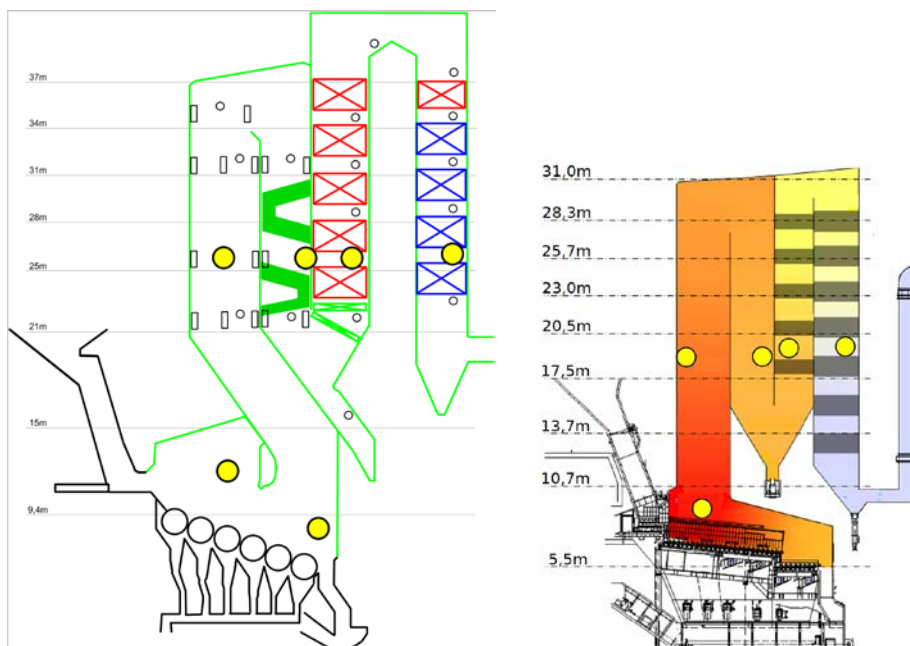


Abbildung 57: Schematische Kesselschnitte des AEZ Asdonkshof (links) und des GKS Schweinfurt (rechts). Die Lage der Messstellen ist jeweils gelb markiert.

Die Partikelmessungen am AEZ Asdonkshof wurden an sechs verschiedenen Messstellen in Feuerraum und Kessel durchgeführt, wie durch gelbe Punkte in Abbildung 1 gezeigt. Die Lage der Messstellen im Kessel ist vergleichbar mit den Messungen am GKS: Mittig im ersten Zug, gegen Ende des zweiten Zuges an der Kesselrückwand, hinter dem ersten Überhitzerrohrbündel im dritten Zug und hinter dem dritten Economizer im vierten Zug. Die Lage der ersten Messstelle im Feuerraum ist in Bezug auf den Rost ähnlich wie am GKS (über Zone 2), jedoch aufgrund der Gleich- statt Gegenstromfeuerung strömungstechnisch deutlich verschieden. Dementsprechend lag die Temperatur mit etwa 1000°C auch deutlich unter den 1250°C, die an der vergleichbaren Messstelle am GKS gemessen wurden. Schließlich wurden noch Messungen direkt über dem Schlacketrichter durchgeführt, wo die Temperatur mit knapp 700°C deutlich niedriger als im übrigen Feuerraum lag. Während der Messungen wurde aus Sicherheitsgründen die sechste Rostwalze leergefahren, da in den Trichter fallende Schlacke zu plötzlichen Druckschwankungen führen kann. Pro Messstelle wurden mindestens drei Proben genommen, um zeitliche Schwankungen erfassen zu können. Zudem wurde nach jeder Probenahme eine zusätzlich Gesamtstaubmessung mittels eines Quarzfaserfilters durchgeführt.

In Abbildung 58 ist der Temperaturverlauf über die Flugstrecke im Kessel für beide Anlagen im Vergleich gezeigt. Die Werte basieren auf eigenen Messungen während der Partikelprobenahme mit einem Thermoelement und gemittelten Angaben aus den Betriebsdaten der Betreiber. Am AEZ Asdonkshof werden jedoch nur wenige Temperaturdaten in der Leittechnik mitgeschrieben, sodass hier eine geringere Datedichte im Kesselverlauf vorliegt als am GKS. Um die Vergleichbarkeit der beiden Anlagen zu ermöglichen, wurde die Auftragung so gewählt, dass das erste Überhitzerrohrbündel (1. ÜH) jeweils bei einer Wegstrecke von 40 m liegt.

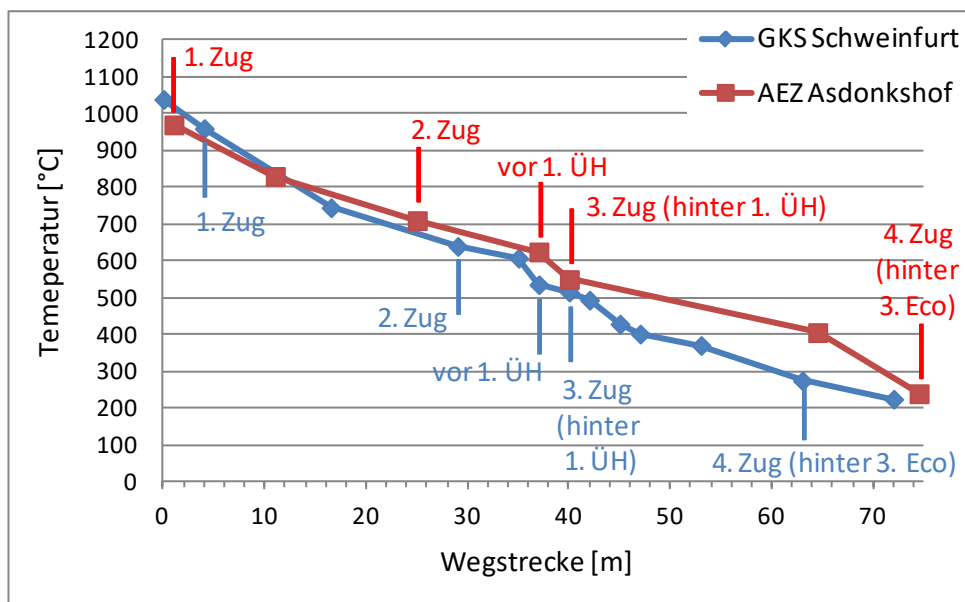


Abbildung 58: Temperaturverlauf im Kessel des GKS Schweinfurt (blau) und des AEZ Asdonkshof (rot). Die Lage der vier Messstellen sowie des 1. Überhitzerrohrbündels und des 3. Economizers sind jeweils markiert.

Von der Messstelle im ersten Zug bei etwa 1000°C bis zum Ende des zweiten Zuges ist der Temperaturverlauf in beiden Anlagen relativ ähnlich. Während am GKS jedoch offenbar viel Wärme durch die Wärmefalle in der Umlenkung zwischen zweitem und

drittem Zug entnommen wird und die Temperatur nur wenig über dem ersten ÜH abfällt, erreicht das Rauchgas am AEZ Asdonkshof den ersten ÜH mit höherer Temperatur und gibt dort viel Wärme ab. Hinter dem ersten ÜH sind die Temperaturen dann mit etwa 520 - 540°C wieder vergleichbar. Im Folgenden fällt die Temperatur am AEZ Asdonkshof langsamer mit der Wegstrecke ab als am GKS. Dies ist jedoch einfach der Tatsache geschuldet, dass sich der Überhitzer- und Economizerbereich über eine größere Strecke zieht. So sind an der Messstelle im vierten Zug, die jeweils hinter dem dritten Economizer liegt, die Temperaturen wieder vergleichbar. Der Temperaturverlauf vom Rost durch den Feuerraum bis zur ersten aufgetragenen Messposition ist aufgrund des Fehlens eines ausreichend feinen Netzes von Temperaturmessstellen nicht im Detail bekannt. Es ist jedoch zu erwarten, dass sich dieser aufgrund der unterschiedlichen Bauart der beiden Anlagen signifikant unterscheidet.

### **C.3.1 Partikelgrößenverteilungen und Gesamtstaub**

Im Folgenden wird die Analyse der Proben mittels REM vorgestellt. Die in Abbildung 59 dargestellte Anzahlverteilung ist wie bereits am GKS dominiert durch submikrone Partikel. Während im ersten Zug nur sehr geringe Konzentrationen an submikronen Partikeln vorhanden sind, nimmt deren Zahl im Kesselverlauf durch Kondensation von Salzen stetig zu. Die stärkste Konzentrationszunahme ist dabei zwischen den Messstellen im zweiten und dritten Zug zu beobachten. Beim in Abbildung 60 dargestellten Verlauf der Massenkonzentrationen sieht man wie schon in der Anzahlkonzentration eine Zunahme im Kesselverlauf aufgrund von Kondensation. Die Massenkonzentration der groben Partikel nimmt hingegen vom ersten bis zum vierten Zug durch Verluste an Umlenkungen und Strömungshindernissen ab.

An den beiden Messstellen im Feuerraum sind deutlich weniger grobe Partikel als im ersten Zug vorhanden. An der ersten Messstelle lässt sich dies durch die für die Messung ungünstige Strömungsführung an dieser Stelle erklären: Während die Sondenöffnung nach unten in Richtung des Brennbetts gehalten wurde, kommt die Strömung der Primärluft von schräg oben. Somit wurde vermutlich nur ein geringer Teil der groben Partikel erfasst. An der zweiten Messstelle wurde über dem Schlacketrichter gemessen und wie zuvor erwähnt die letzte Rostwalze zuvor leergefahren. Somit sind hier auch keine hohen Konzentrationen an groben Partikeln zu erwarten.

Um einen Vergleich mit den beiden Messzeiten am GKS zu ziehen, beschränken wir uns der Übersichtlichkeit halber im Folgenden auf die in Abbildung 61 gezeigten totalen Gesamtstaubmengen (grün), die hier zusätzlich in die Anteile an Partikeln größer (gelb) bzw. kleiner (orange) 2 µm eingeteilt ist. Diese wurden durch Integration der Massenkonzentrationskurven über die entsprechenden Bereiche gewonnen.

Zwischen der zweiten Messkampagne am GKS und den Messungen am AEZ Asdonkshof zeigt sich generell eine gute Übereinstimmung in den vier Zügen. Die Gesamtstaubmengen liegen auf ähnlichem Niveau und auch die Fraktionierung in feine und grobe Partikel ist vergleichbar. Im Vergleich zur ersten Messung am GKS weisen die beiden anderen Messkampagnen jedoch deutlich niedrigere Staubmengen, sowohl an groben Partikeln als auch an auskondensierten feinen Salzpartikeln auf. Ob dies allein auf unterschiedliche Betriebsbedingungen zwischen den beiden Messungen zurückzuführen ist oder noch andere Ursachen hat, konnte bis zum Projektende nicht abschließend geklärt werden.

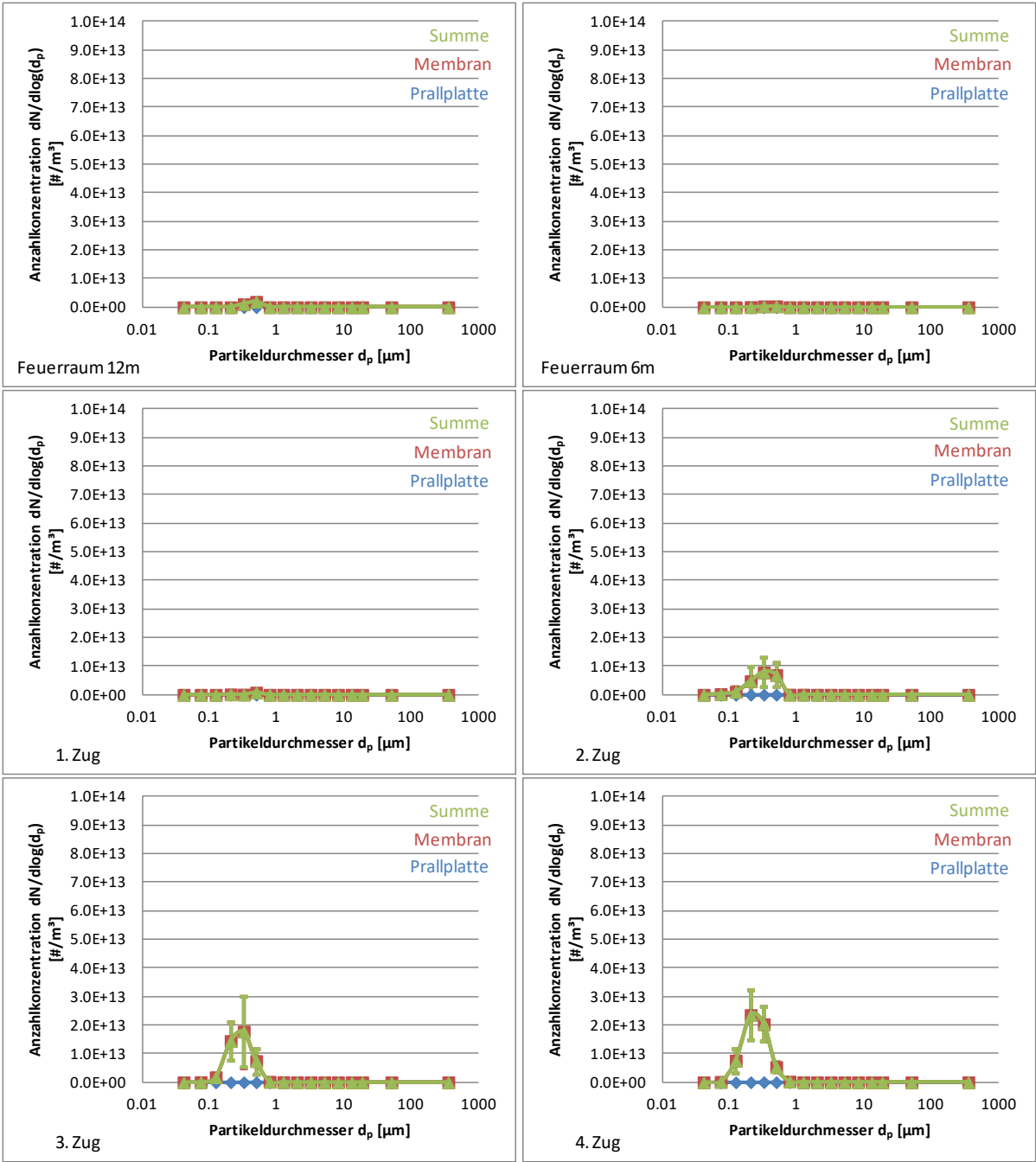


Abbildung 59: Partikelgrößenabhängige Anzahlkonzentration im Kesselverlauf gemessen am AEZ Asdonkshof.

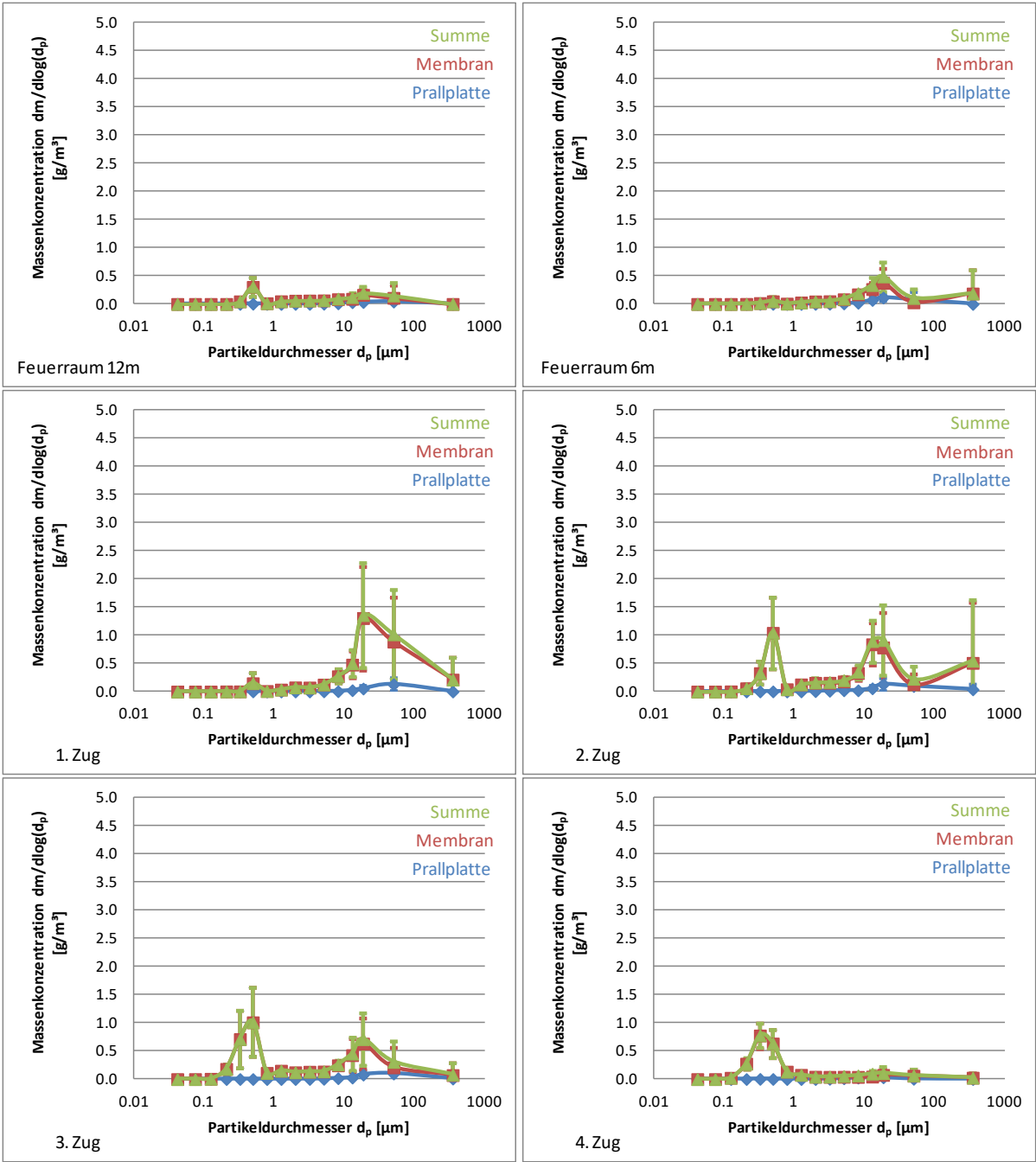


Abbildung 60: Partikelgrößenabhängige Massenkonzentration im Kesselverlauf gemessen am AEZ Asdonkshof.

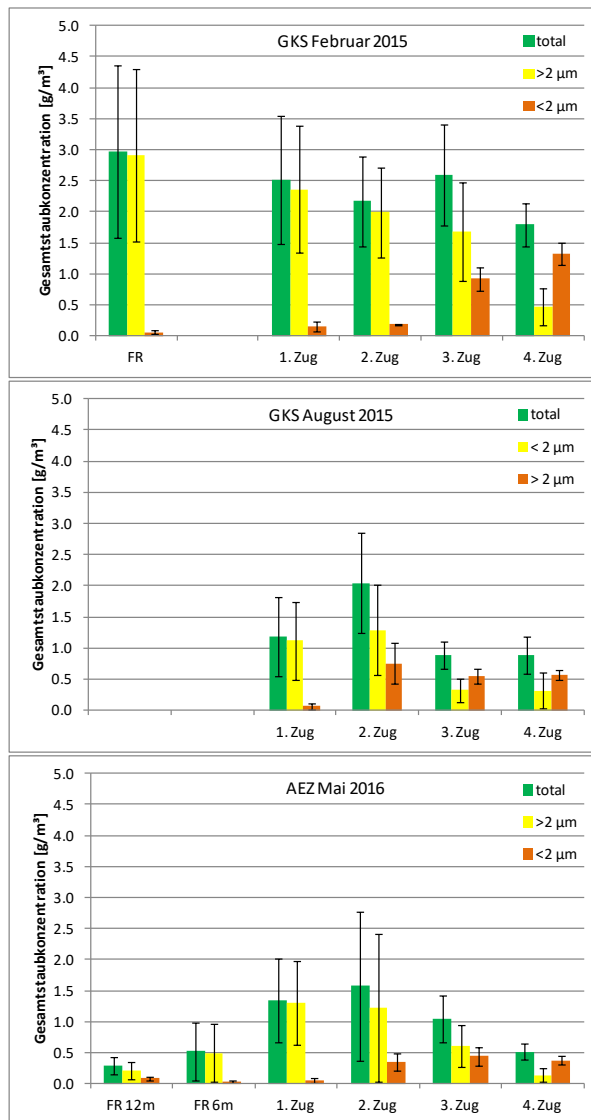


Abbildung 61: Entwicklung der Gesamtstaubmenge (grün) im Kesselverlauf für alle drei Messkampagnen. Zusätzlich sind die Anteile an Partikeln > 2 µm (gelb) und < 2 µm (orange) dargestellt. Im Feuerraum wurden nicht in allen Fällen Messungen durchgeführt.

Die Gesamtstaubmessungen wurden wie bereits zuvor am GKS durchgeführt, indem die Nickelmembran durch einen Quarzfaserfilter ersetzt und die Prallplatte weggelassen wurde. So können alle Partikel nahezu unabhängig von ihrer Größe gesammelt werden. Die Quarzfaserfilter wurden vor der Messung bei  $(20 \pm 1) ^\circ\text{C}$  und  $(50 \pm 5) \% \text{ rF}$  konditioniert und zweimal im Abstand von 24 h gewogen. Die belegten Proben wurden unter den gleichen Bedingungen ausgelegt und wiederum zweimal gewogen. Die Ergebnisse sind in Abbildung 46 im Vergleich zur den Messungen der letzten Messkampagne am GKS gezeigt.

Leider sind trotz der positiven Erfahrungen bei der letzten Messkampagne diesmal wieder einige Filter beim Ausbau aus dem Sondengehäuse teilweise zerbrochen, sodass eine gravimetrische Analyse kein verlässliches Ergebnis liefert. Diese Filter wurden in Abbildung 46 nicht berücksichtigt, sodass es sich im ersten und zweiten Zug nur um Einzelmessungen handelt. Insgesamt zeigt sich in guter Übereinstim-

mung mit den Messungen am GKS eine Gesamtstaubmenge von durchschnittlich etwa  $1,2 \text{ g/m}^3$ .

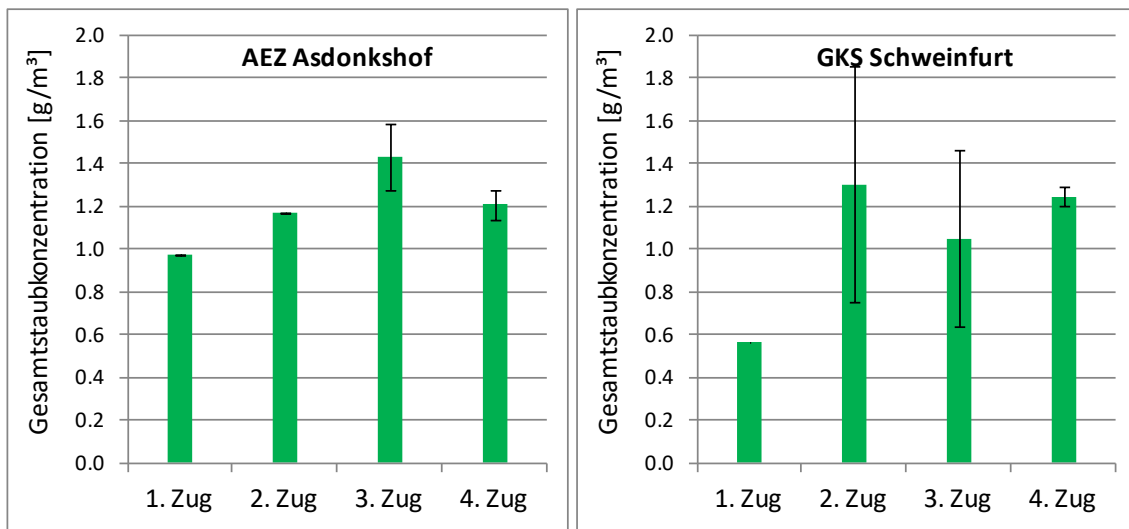


Abbildung 62: Gesamtstaubmessungen aus der aktuellen Messkampagne am AEZ Asdonkshof (links) sowie aus der letzten Messkampagne am GKS Schweinfurt im August 2015 (rechts).

### C.3.2 Chemische Zusammensetzung

Die chemische Analyse der Partikel wurde mittels EDX durchgeführt. Insgesamt zeigen die Messungen das erwartete Bild: Im ersten Zug machen den größten Anteil Ca, Al und Si, sowie weitere Kationen wie Mg, Ti, Cr, Fe und Zn aus. Die Elemente liegen hauptsächlich als Oxide vor, während der Anteil weiterer Anionen wie Cl, S, P und F sehr gering ist. Zudem finden sich nur sehr geringe Anteile an den Alkalimetallen Na und K. Im weiteren Kesselverlauf steigt der Salzanteil an, da Kondensation durch Abkühlung im Kessel stattfindet. Besonders hoch ist der Anteil an Salzen bei kleineren Partikeln.

Auffällig sind die hohen Chromgehalte bei einigen Messungen, die bei vorherigen Messungen in Müllverbrennungsanlagen nie beobachtet wurden. Diese treten insbesondere bei den Messungen in Feuerraum und erstem Zug auf. Dies deutet entweder auf Partikel hin, die bereits im Feuerraum vorhanden sind, aber auf dem Weg durch die Anlage schnell verloren gehen, oder auf ein mögliches Artefakt durch die dort vorherrschenden hohen Temperaturen. Ein denkbarer Erklärungsansatz wäre, dass sich Teile der Oxidschicht an der Innenseite des Sondengehäuses ablösen und fälschlicherweise als Partikel aus dem Rauchgasstrom gewertet werden. Da der verwendete Stahl jedoch etwa ein Eisen-zu-Chrom-Verhältnis von 2:1 aufweist, erklärt dies allein nicht die hohen Chromgehalte bei vergleichsweise wenig Eisen. Hier wäre eine deutliche Anreicherung von Chrom in der oberflächennahen Oxidschicht nötig, was jedoch im Rahmen des Projekts aus Zeitgründen nicht mehr näher untersucht werden konnte.

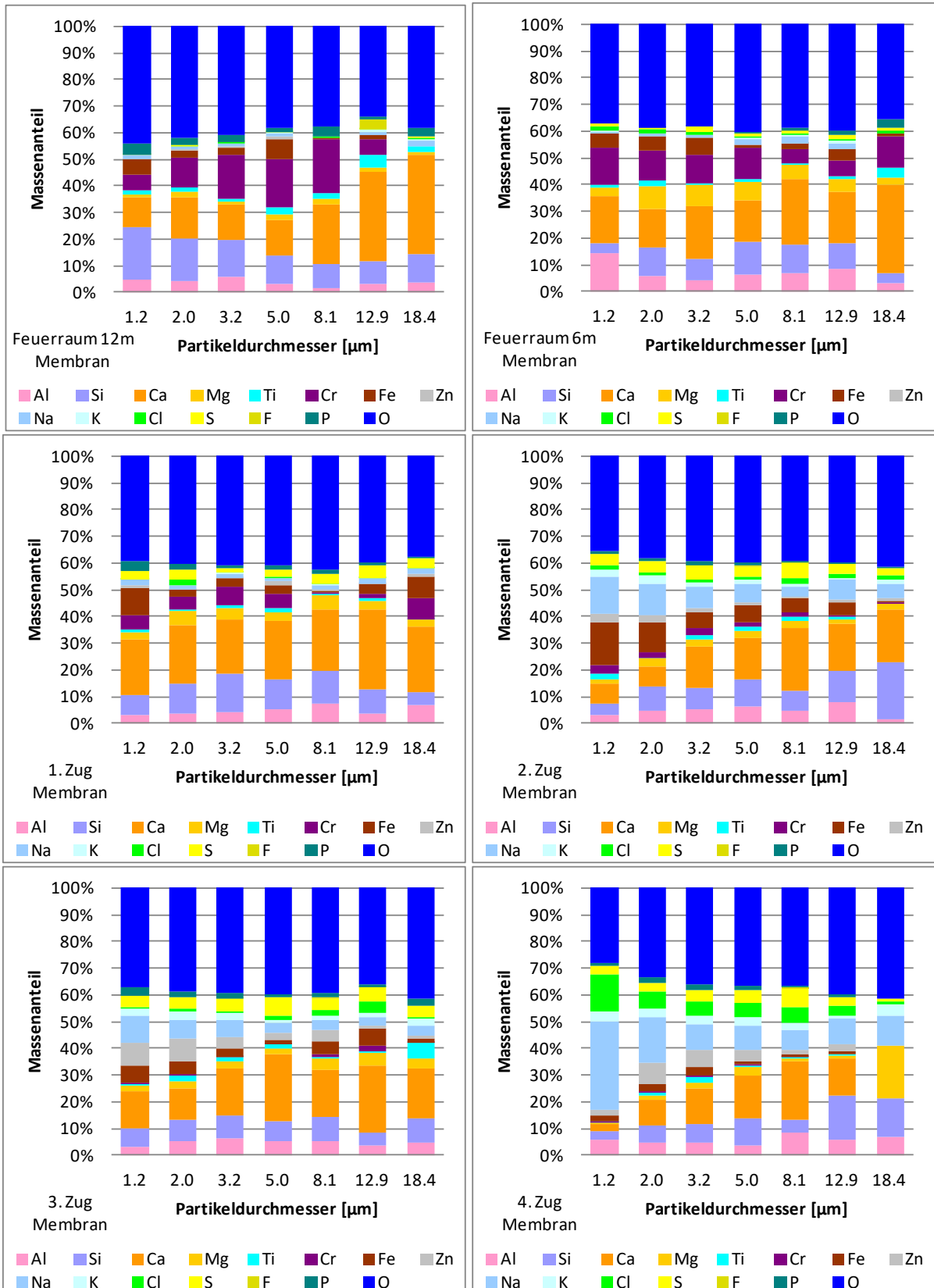


Abbildung 63: Chemische Zusammensetzung der auf den Membranen gesammelten Partikel im Feuerraum und allen vier Zügen am AEZ Asdonkshof.

Im Vergleich zu den Messungen am GKS zeigt sich insgesamt eine gute Übereinstimmung. Deutliche Abweichungen erkennt man hauptsächlich im Chloranteil. Um

dies zu verdeutlichen wurde für jede Messung in allen Zügen der Chloranteil über alle Partikelgrößenklassen gemittelt, wohlwissend, dass dies keine physikalisch sinnvolle Größe ist, sondern allein der Illustration dient. Die Ergebnisse sind in Abbildung 64 gezeigt. Trüge man den Verlauf für jede einzelne Größenklasse auf, würde sich ein ähnliches Bild ergeben, jedoch aufgrund der Vielzahl an Diagrammen nicht der Übersichtlichkeit dienen.

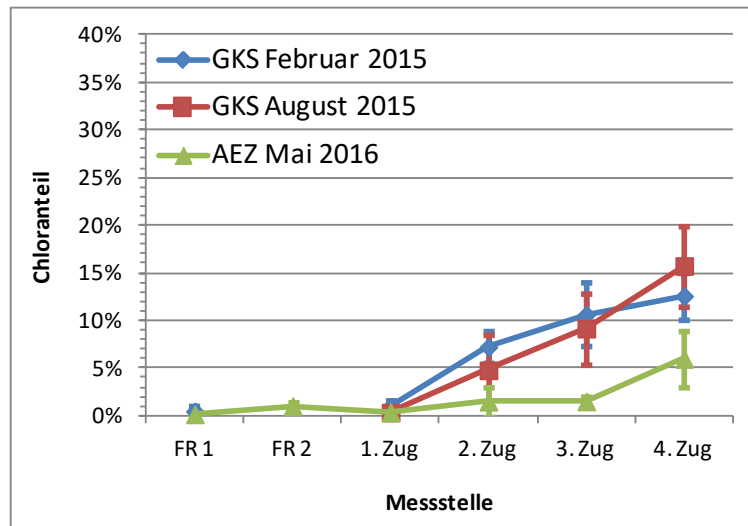


Abbildung 64: „Mittlerer“ Chloranteil der auf den Membranen gesammelten Partikel im Kesselverlauf für alle drei Messkampagnen.

Der Vollständigkeit halber ist in Abbildung 65 abschließend noch die chemische Zusammensetzung der Partikel, die auf der Prallplatte gesammelt wurden, gezeigt. Im dritten und vierten Zug ist die chemische Zusammensetzung ähnlich zu derjenigen auf der Prallplatte. Systematische Unterschiede gibt es lediglich dadurch, dass Fe, Cr und Si als Partikelbestandteile nicht detektiert werden können, da sie vom Untergrundsignal der Stahlplatte überlagert werden. Wie bereits bei den Messkampagnen am GKS beobachtet, ist der gefundene Alkalianteil teils deutlich höher als bei den Partikeln auf der Membran, was zeigt, dass auf der Prallplatte noch unerwünschte Kondensationsartefakte auftreten, die sich am stärksten bei den höchsten Temperaturen bemerkbar machen. Diese konnten bisher auch durch längere Vorheizzeiten nicht vollständig unterdrückt werden.

Betrachten wir wiederum den Chloranteil im Kesselverlauf an den beiden Anlagen im Vergleich (siehe Abbildung 66), so zeigt sich auch hier ein höherer Chloranteil am GKS als in Asdonkshof, wie bereits bei den auf den Membranen gesammelten Partikeln beobachtet. Eine Ausnahme stellt lediglich die Messung im dritten Zug da, wo am AEZ Asdonkshof ungewöhnlich viel Chlor auf den Prallplatten gefunden wurde.

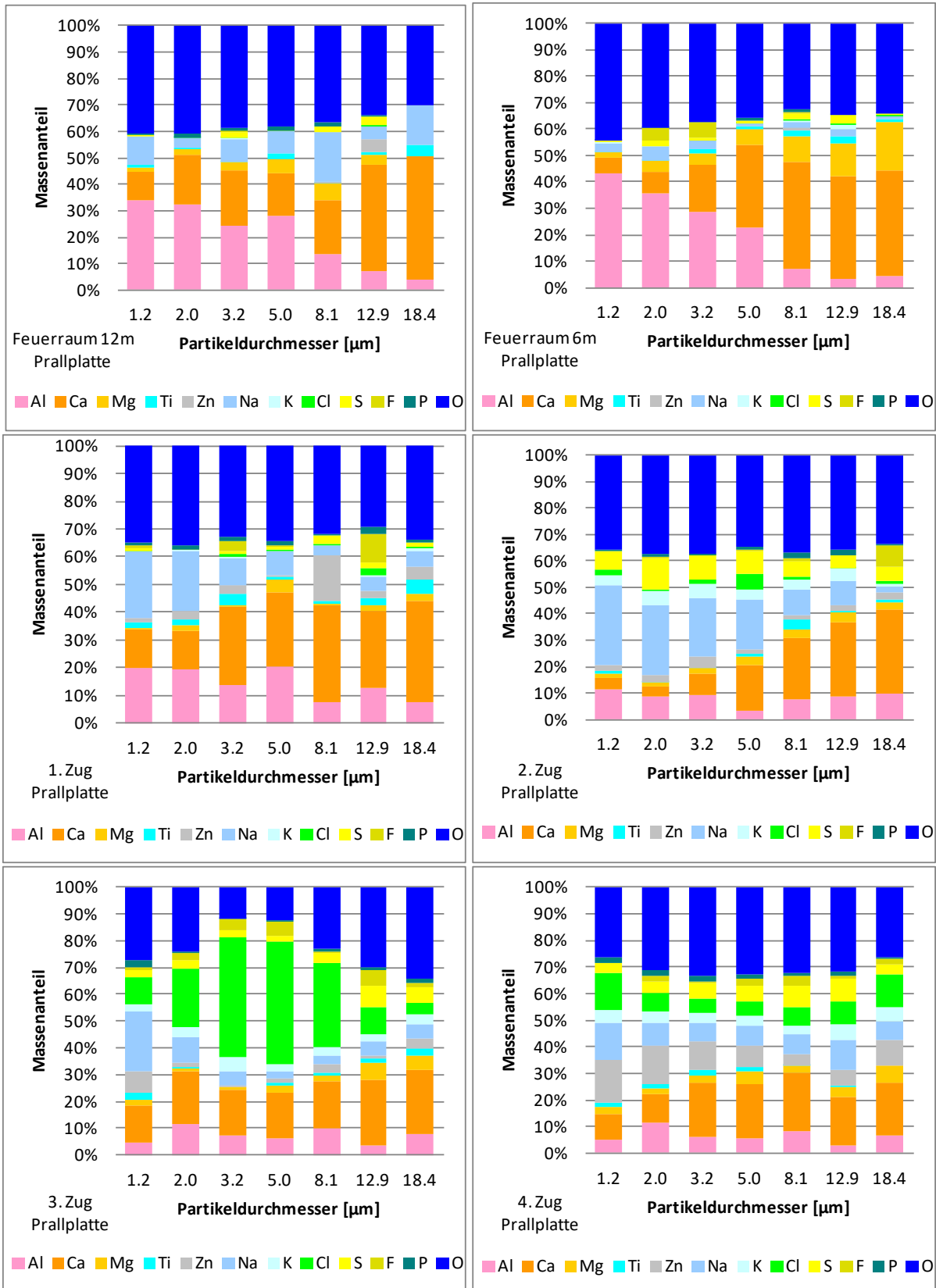


Abbildung 65: Chemische Zusammensetzung der auf den Prallplatten gesammelten Partikel im Feuerraum und allen vier Zügen am AEZ Asdonkshof.

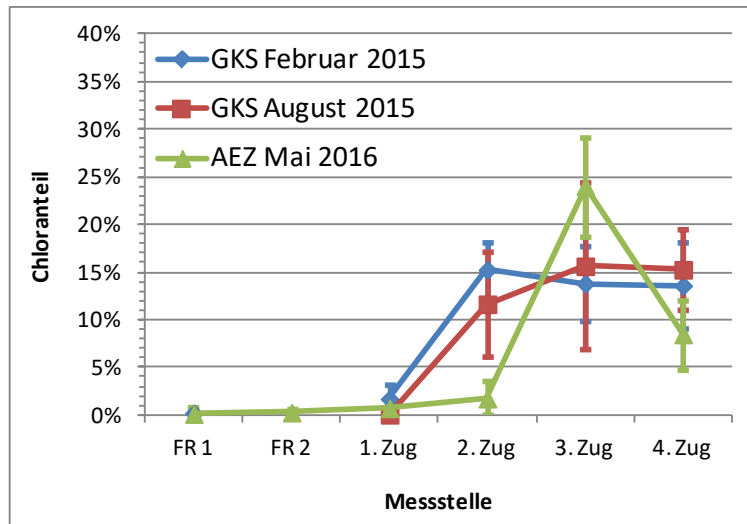


Abbildung 66: „Mittlerer“ Chloranteil der auf den Prallplatten gesammelten Partikel im Kesselverlauf für alle drei Messkampagnen.

#### C.4 Zusammenführung und Interpretation der Ergebnisse

Mit Hilfe der neuen Probenahmetechnik konnten wertvolle Erkenntnisse zu Größenverteilung, Konzentration und chemischer Zusammensetzung der Partikelphase im Rauchgas von Müllverbrennungsanlagen gewonnen werden. Die Methode besitzt jedoch auch Nachteile: Die chemische Zusammensetzung der sehr feinen und sehr groben Partikel ist nicht zugänglich, da diese entweder als Einzelpartikel ein zu schwaches Signal liefern oder zu selten vorkommen. Zudem gibt es Anzeichen, dass die sehr feinen Partikel bei der Bestimmung der Anzahlkonzentrationen unterrepräsentiert sind. Aus diesen Gründen wurden die Messungen mit der Heißgasprobenahme mit solchen des bifa Umweltinstituts mit einer Verdünnungssonde verglichen.

Wie bereits zu Beginn diskutiert, birgt jedoch auch die Messung mit der Verdünnungssonde zwei wesentliche Nachteile: Zum einen werden die meist klebrigen Partikel ab einer Größe von wenigen Mikrometern zu einem Großteil bereits im Schwannenhalskrümmer abgeschieden werden. Darüber hinaus sind die Ergebnisse je nach Temperatur im Kessel mehr oder weniger stark von Artefakten durch Kondensation von Salzdämpfen während der Abkühlung in der Sonde beeinflusst. Um die Ergebnisse mit anderen Messmethoden vergleichbar zu machen, müssen diese Artefakte somit zunächst korrigiert werden. Dazu wird zum einen die im Krümmer gefundene Massenkonzentration anhand ihrer chemischen Zusammensetzung auf die einzelnen Partikelgrößenklassen aufgeteilt. Um die bei der Probenahme kondensierten Alkalichloride herauszurechnen, wird die Menge kondensierbarer Salze bei der jeweiligen Probenahmetemperatur berechnet und oberflächenproportional auf die Partikel verteilt. Experimentell zeigt sich jedoch, dass deutlich mehr Salz auf den groben Partikeln zu finden ist, als es ihr vergleichsweise geringer Anteil an der Gesamtoberfläche erwarten lässt. Dies kann zum einen an der Agglomeration zwischen feinen und groben Partikeln (Scavenging) liegen, die entsprechend mehr Salz auf die groben Partikel transportiert, zum anderen an einer möglichen Unterschätzung des Oberflächenanteils der groben Partikel bei der Annahme kugelförmiger Partikel. Da diese Effekte schwer theoretisch zu erfassen sind, wurde der Korrekturalgorithmus entsprechend um empirische Faktoren erweitert. Weiterhin wird korrigiert, dass durch die artifizielle Kondensation auch eine Veränderung der Korngröße eintritt.

### C.4.1 Partikelgrößenverteilungen

Im Folgenden sollen die Partikelmassengrößenverteilungen, die zum einen mit der Verdünnungssonde, zum anderen mit der Heißgasprobenahme gemessen wurden, miteinander verglichen werden. Die jeweiligen Ergebnisse gemittelt über sämtliche durchgeführten Einzelmessungen sind in Abbildung 67 dargestellt. Beide Methoden zeigen übereinstimmend, dass das Aerosols eine bimodale Größenverteilung aufweist mit einer Feinfraktion im Größenbereich einiger 100 nm und einer Grobfraktion mit einem Maximum zwischen etwa 10 und 100  $\mu\text{m}$ . Im Bereich zwischen etwa 1 und 5  $\mu\text{m}$  liegt ein ausgeprägtes Minimum, in dem nur ein geringer Anteil der Gesamtpartikelmasse zu finden ist.

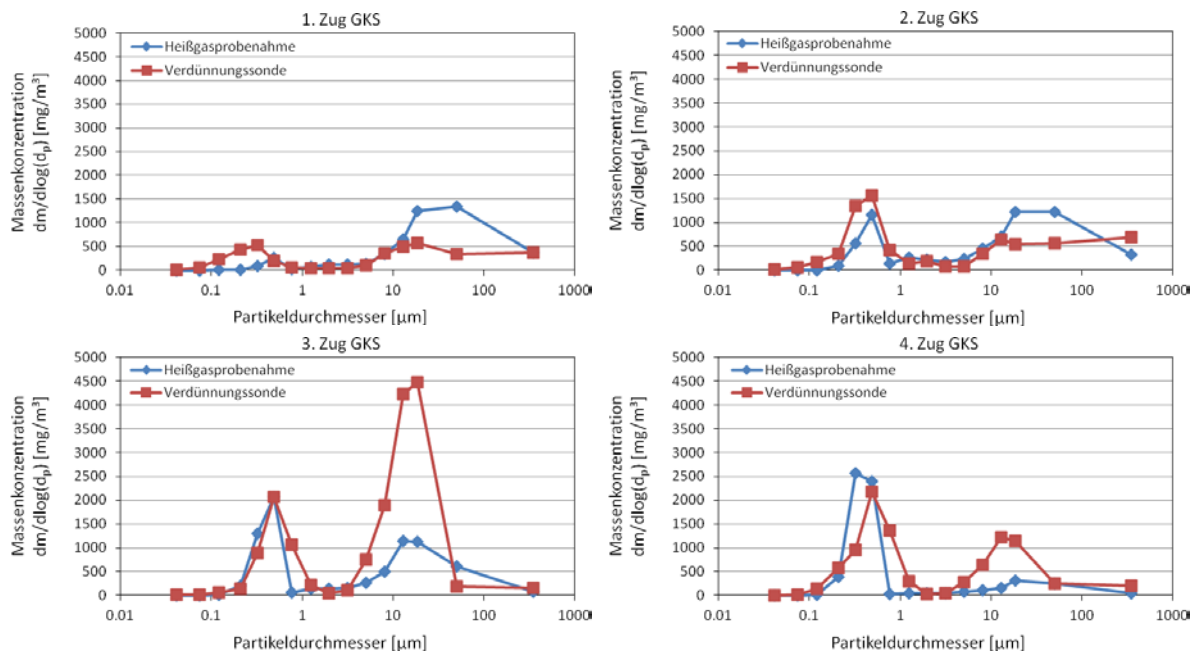


Abbildung 67: Partikelmassengrößenverteilungen in den vier Zügen des Kessels des GKS gemessen mit der Heißgasprobenahme (blau) und der Verdünnungssonde (rot).

Im Detail ergeben sich jedoch einige Unterschiede zwischen den beiden Messmethoden. So zeigt sich insbesondere im ersten Zug, dass bei der Heißgasprobenahme offenbar Partikel bis etwa 0,4  $\mu\text{m}$  im Vergleich zur Messung mit der Verdünnungssonde deutlich unterrepräsentiert sind. Dies lässt sich dadurch erklären, dass bei der manuellen Analyse der REM-Bilder solch kleine Partikel teilweise irrtümlich nicht mitgezählt werden, da sie sich nur schlecht vom Untergrund unterscheiden lassen, während sie bei der Messung mit der Verdünnungssonde vom elektrischen Niederdruckimpaktor (ELPI) erfasst werden. Die Zuverlässigkeit der Ergebnisse der Verdünnungssonde im Größenbereich zwischen 0,04 und 0,4  $\mu\text{m}$  wird dadurch bestärkt, dass von Brunner et al. durchgeführte Messungen mit einem Hochtemperaturkaskadenimpaktor dort gut übereinstimmende Ergebnisse liefern [Brunner 2013].

Eine weitere Diskrepanz zeigt sich speziell in der Größenklasse um 0,77  $\mu\text{m}$ , bei der die Heißgasprobenahme deutlich weniger Partikel findet als die Verdünnungssonde, was zu einer scheinbaren Verschmälerung der Feinfraktion führt. Dies ist ein systematischer Fehler, der durch den Wechsel von stark vergrößerten REM-Bildern zur

Zählung sehr kleiner Partikel zu weniger vergrößerten REM-Bildern zur Zählung größerer Partikel bedingt ist. Es hat sich gezeigt, dass dies für die entsprechende Größenklasse entweder zu einer starken Unter- oder Überschätzung der Partikelmasse führt.

Im Größenbereich um 10  $\mu\text{m}$  sieht die Verdünnungssonde im dritten und vierten Zug deutlich höhere Partikelmassenkonzentrationen als die Heißgasprobenahme. Eine starke Massenzunahme in diesem Größenbereich im Kesselverlauf ist jedoch nicht konsistent zu erklären ist, da (i) eher eine Abnahme durch Verluste an Umlenkungen und Strömungshindernissen zu erwarten ist, (ii) Kondensation auf die groben Partikel nicht entscheidend die Masse erhöhen sollte und (iii) ein Entstehen des neuen Maximums der Massenkonzentration durch Agglomeration gleichzeitig zu einer deutlichen Massenabnahme in der Feinfraktion führen sollte, was ebenfalls nicht zu beobachten ist. Hinzu kommt, dass sich die mit der Verdünnungssonde bestimmte chemische Zusammensetzung in diesem Größenbereich nicht harmonisch in das Gesamtbild einfügt (siehe später folgende Diskussion), während die für die Heißgasprobenahme der Fall ist. Insgesamt erscheinen hier die Ergebnisse der Heißgasprobenahme, die zudem speziell zur optimalen zur Vermessung dieses Größenbereichs ausgelegt wurde, somit plausibler. Dass die Verdünnungsmethode aufgrund der starken Abscheidung mittelgroßer, klebriger Partikel im Einlasskrümmer eine bekannte Schwäche aufweist, die womöglich mit der entsprechenden Korrektur nicht ideal kompensiert wird, mag zudem auch die Ursache dafür sein, dass die Heißgasprobenahme in den ersten beiden Zügen hier höhere Konzentrationen findet.

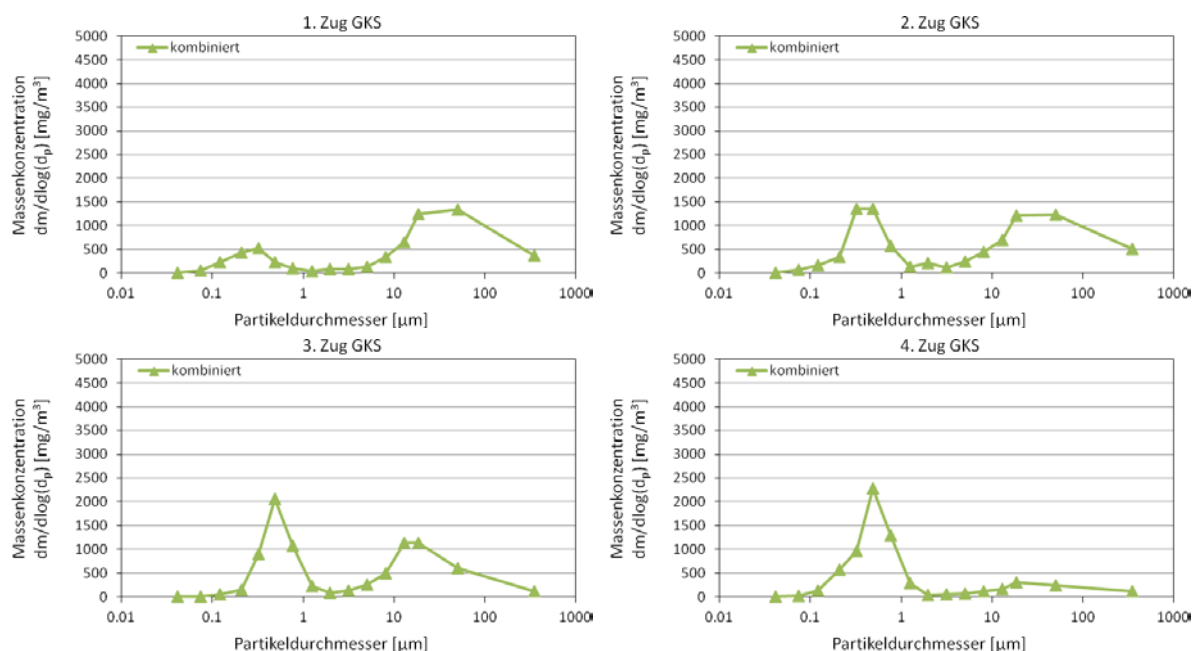


Abbildung 68: Partikelmassengrößenverteilung in den vier Zügen des GKS-Kessels kombiniert aus Messungen mit der Verdünnungssonde und der Heißgasprobenahme.

Basierend auf der zuvor geführten Diskussion, wurden die Ergebnisse der beiden Messmethoden wie in Abbildung 68 gezeigt zusammengeführt, sodass sich ein Gesamtbild ergibt, das nach aktuellem Wissensstand die reale Entwicklung der Partikelgrößenverteilung im Kesselverlauf widerspiegelt. Bis 0,4  $\mu\text{m}$  wurden nur die Daten

der in diesem Größenbereich verlässlicheren Verdünnungssonde berücksichtigt. Zwischen 0,4 und 4  $\mu\text{m}$  liefern beide Methoden prinzipiell vergleichbare Ergebnisse, sodass hier ein Mittelwert zwischen den beiden Methoden gebildet wurde. Dabei wurde die bei der Heißgasprobenahme methodenbedingt diskriminierte Partikelgrößenklasse bei 0,77  $\mu\text{m}$  durch Interpolation zwischen der darunter und darüber liegenden Größenklassen angenähert. Im Größenbereich zwischen 4 und 100  $\mu\text{m}$  liefert die Heißgasprobenahme plausible Ergebnisse, sodass hier die Daten dieser Methode verwendet werden. In der Größenklasse um 350  $\mu\text{m}$  liegen beide Methoden wieder nah beieinander, sodass hier der Mittelwert aus beiden Methoden verwendet wird.

#### **C.4.2 Chemische Zusammensetzung**

Ebenso wie die Größenverteilungen, sollen nun auch die mit den beiden Messmethoden erhaltenen chemischen Zusammensetzungen der Partikel miteinander verglichen werden. Bei der Verdünnungssonde wurden die einzelnen Stufen des Kaskadenimpaktors sowie der Inhalt von Zyklon und Krümmer chemisch untersucht, sodass sich hier Zusammensetzungen für den gesamten betrachteten Größenbereich ergeben. Dabei wurden Kondensationsartefakte wieder herausgerechnet und der Inhalt des Krümmers anhand der chemischen Zusammensetzung auf die verschiedenen Größenklassen aufgeteilt. Bei der Heißgasprobenahme wurden die auf den Membranen gesammelten Partikel mittels energiedispersiver Röntgenspektroskopie (EDX) chemisch untersucht. Da Partikel kleiner 1  $\mu\text{m}$  ein sehr niedriges Signal-zu-Untergrund-Verhältnis aufweisen und Partikel größer 25  $\mu\text{m}$  sehr selten sind, sind die Verteilungen auf den Bereich zwischen etwa 1 und 25  $\mu\text{m}$  eingeschränkt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 69 gezeigt.

Beide Methoden zeigen übereinstimmend, dass die Partikel im Wesentlichen zum einen aus verschiedenen Oxiden wie bspw.  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{CaO}$ ,  $\text{MgO}$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  oder  $\text{TiO}_2$  bestehen, zum anderen aus Alkalichloriden, deren Anteil im Kesselverlauf durch Kondensation deutlich zunimmt und hauptsächlich auf die feinen Partikel konzentriert ist. In dem mit beiden Methoden vermessenen Größenbereich zwischen etwa 1 und 25  $\mu\text{m}$  ergeben sich jedoch auch hier gewisse Abweichungen. So zeigt die Messung mit der Verdünnungssonde im ersten Zug eine höhere Konzentration an Alkalisulfaten, die womöglich auch bei der Probenahme auskondensiert sind und bei der Korrektur nicht berücksichtigt wurden. Die Heißgasprobenahme weist hingegen ungewöhnlich hohe Anteile an Fe und insbesondere Cr auf. Es konnte noch nicht abschließend geklärt werden, ob dies ein Artefakt durch Abplatzen von Oxidpartikeln von der Innenseite des stählernen Sondengehäuses sein könnte.

Im zweiten Zug stimmen die Ergebnisse im Rahmen der zu erwartenden Schwankungen gut miteinander überein, während sich im dritten und vierten Zug eine deutliche Diskrepanz zwischen den beiden Messmethoden zeigt. Während die Heißgasprobenahme einen recht kontinuierlichen Übergang zwischen den salzreichen submikronen Partikeln und den calciumreichen groben Partikeln liefert, findet die Verdünnungssonde hier sehr salzreiche Partikel mit nahezu größenunabhängiger Zusammensetzung. Da solch hohe Salzanteile in diesem Größenbereich und auch ein drastischer Bruch in der chemischen Zusammensetzung zwischen den Größenklassen bei 18 und 50  $\mu\text{m}$  nicht plausibel zu erklären ist, bestätigt die chemische Betrachtung unsere obige These, dass die Heißgasprobenahme in diesem Größenbe-

reich verlässlichere Ergebnisse liefert. Eine genaue Erklärung der Ursache für die starken Abweichungen ist zurzeit noch in Diskussion.

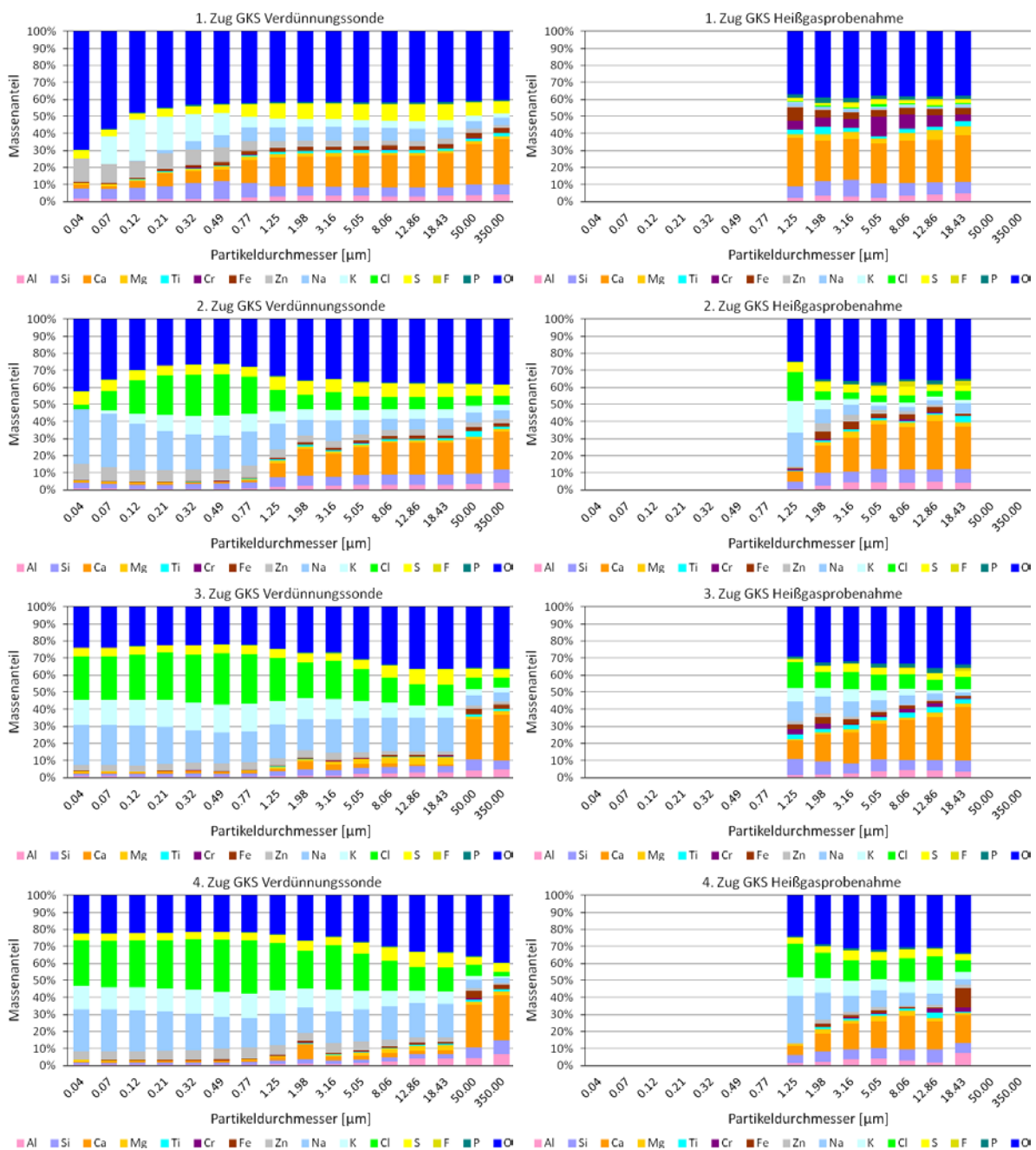


Abbildung 69: Größenaufgelöste chemische Zusammensetzung in den vier Zügen des GKS gemessen mit Verdünnungssonde (links) bzw. Heißgasprobenahme (rechts).

In Abbildung 70 wurden basierend auf der obigen Diskussion die Ergebnisse der beiden Methoden so kombiniert, dass zwischen 1 und 25 µm die Resultate der Heißgasprobenahme und ansonsten die der Verdünnungssonde verwendet wurden. Zu großen Partikeln hin ergibt sich ein sehr konsistentes Bild, während um 1 µm noch ein deutlicher Bruch in der chemischen Zusammensetzung zu verzeichnen ist, der jedoch nicht grundsätzlich im Widerspruch zur bimodalen Größenverteilung steht.

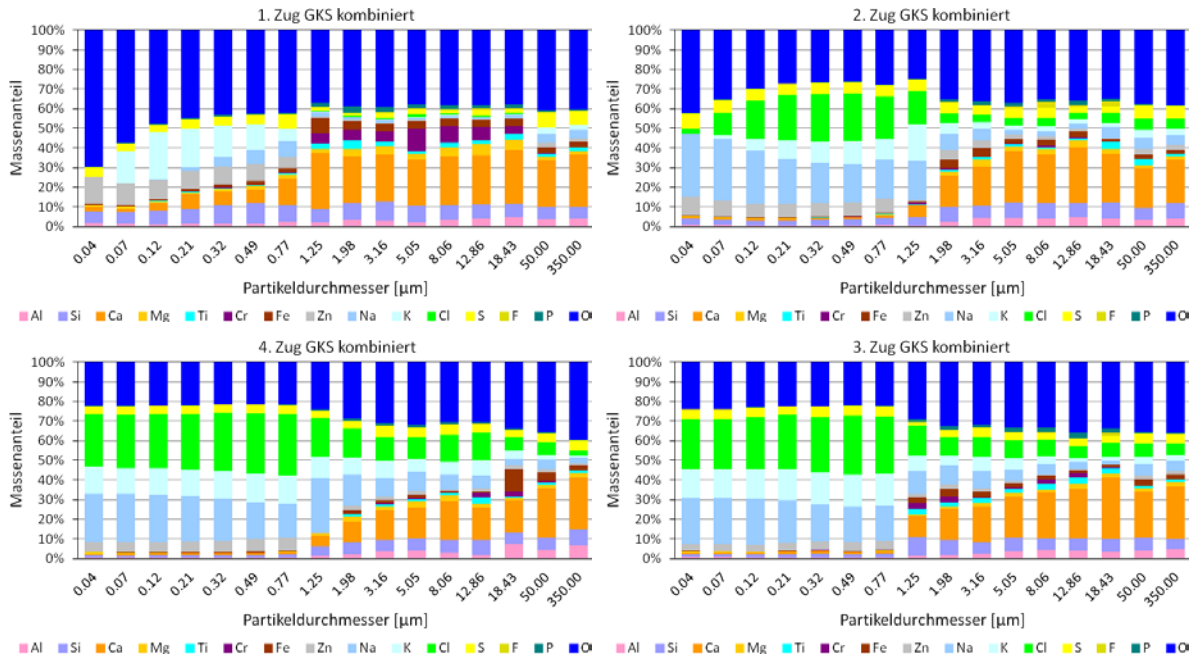


Abbildung 70: Größenaufgelöste chemische Zusammensetzung in den vier Zügen des GKS kombiniert aus Messungen mit Verdünnungssonde und Heißgasprobenahme.

### C.4.3 Vergleich der beiden Anlagen

Gemäß dem oben beschriebenen Schema zur Zusammenführung der Daten der beiden Messmethoden zeigen Abbildung 71 und Abbildung 72 die Partikelgrößenverteilung und chemische Zusammensetzung im Kesselverlauf für die Vergleichsanlage.

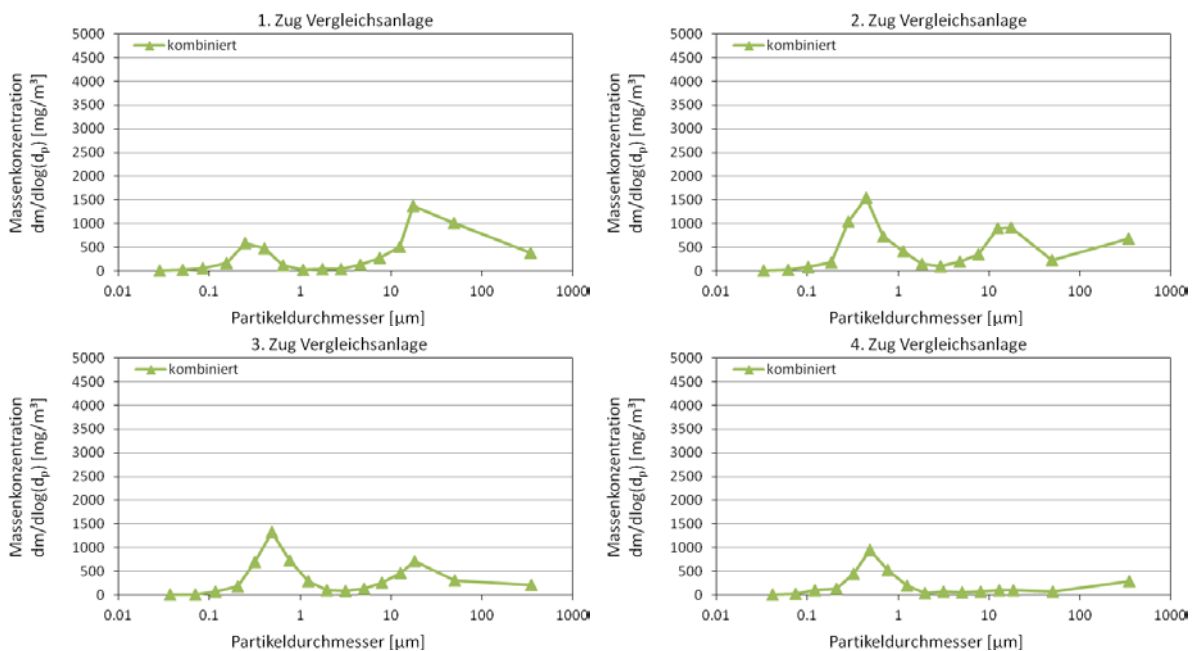


Abbildung 71: Partikelmassengrößenverteilung in den vier Zügen der Vergleichsanlage kombiniert aus Messungen mit Verdünnungssonde und Heißgasprobenahme.

Insgesamt zeigt sich beim Vergleich der beiden Anlagen ein ähnliches Bild, sowohl in Bezug auf die Partikelgrößenverteilungen als auch auf die chemische Zusammensetzung. Ein auffälliger Unterschied zwischen GKS und Vergleichsanlage liegt jedoch darin, dass auf Partikeln zwischen etwa 1 und 25  $\mu\text{m}$  prozentual deutlich weniger Cl zu finden ist. Im zweiten Zug ist dies lediglich der Tatsache geschuldet, dass die Messung bei einer höheren Temperatur (700°C statt 650°C) durchgeführt wurden, im dritten und vierten Zug bei nahezu identischen Temperaturen weist dies jedoch auf einen tatsächlich geringeren Chloranteil hin. Der geringe prozentuale Chlorgehalt zusammen mit der niedrigeren Massenkonzentration im mittleren Partikelgrößenbereich im Vergleich zum GKS, kann ein erster Hinweis zu Erklärung für die stark unterschiedlichen Korrosionsraten sein, da gerade Partikel in diesem Größenbereich mit hoher Effizienz auf den Überhitzerrohrbündeln abgeschieden werden. Nach einer genauen Ursache für die Unterschiede zwischen den beiden Anlagen wird derzeit noch gesucht.

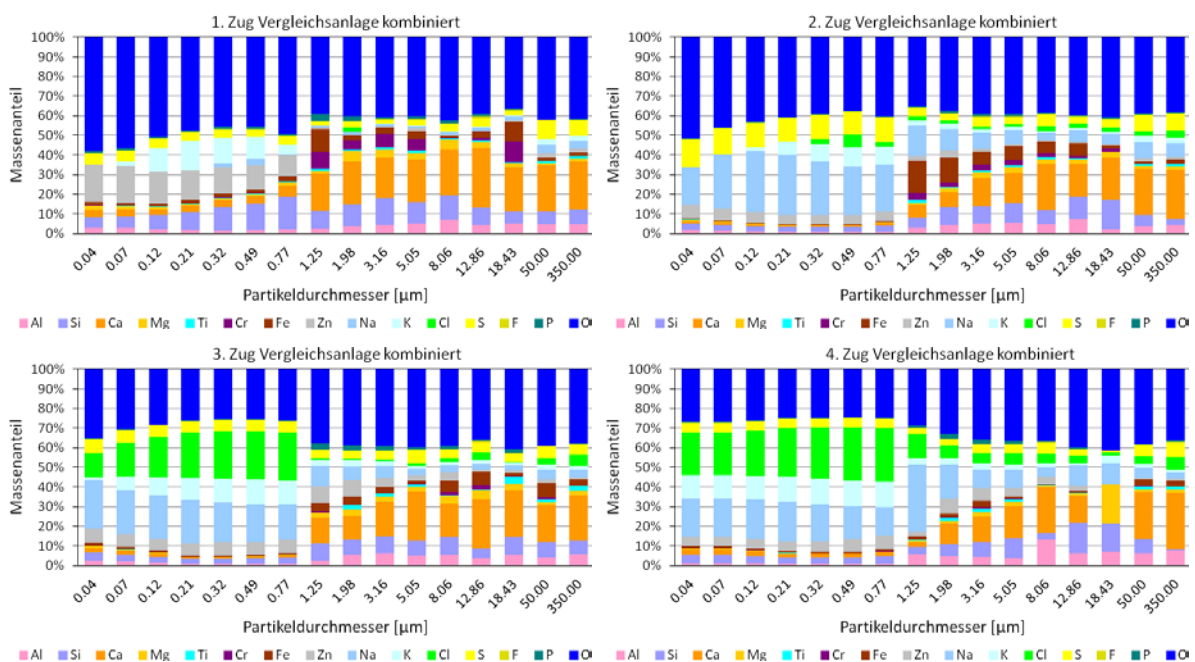


Abbildung 72: Größenaufgelöste chemische Zusammensetzung in den vier Zügen der Vergleichsanlage kombiniert aus Messungen mit Verdünnungssonde und Heißgasprobenahme.

## D Partikeldynamiksimulationen

Es wurde während der Bearbeitung des Vorhabens beschlossen, die geplanten Simulationen in zwei unterschiedliche Simulationsräume aufzuteilen. Simulationsraum 1 (siehe Abbildung 73 (grün)) umfasst dabei den Gasraum zwischen dem Brennbett und dem ersten Rohrbündel im Kessel. In diesem Raum soll eine detaillierte Berechnung der Partikeldynamik erfolgen, wobei hier jedoch nur numerisch effiziente Euler-Methoden zur Betrachtung der Partikeldynamik eingesetzt werden. Ziel dieser Untersuchungen ist es, die resultierende Partikelgrößenverteilung zu ermitteln, die letztendlich an den Rohrbündeln anliegt. Darüber hinaus dient diese Berechnung der Abschätzung des elektrischen Ladungszustands der Partikel im Verlauf der Anlage. Simulationsraum 2 (siehe Abbildung 73 (orange)) wird den Nahbereich um das Rohrbündel erfassen. Hier sollen im weiteren Verlauf detaillierte Partikeldynamikbe-

rechnungen durchgeführt werden mit dem Ziel, die Partikeldeposition auf den Rohrbündeln zu erfassen. Hierzu wird eine kombinierte Euler- und Lagrange-Betrachtung durchgeführt.

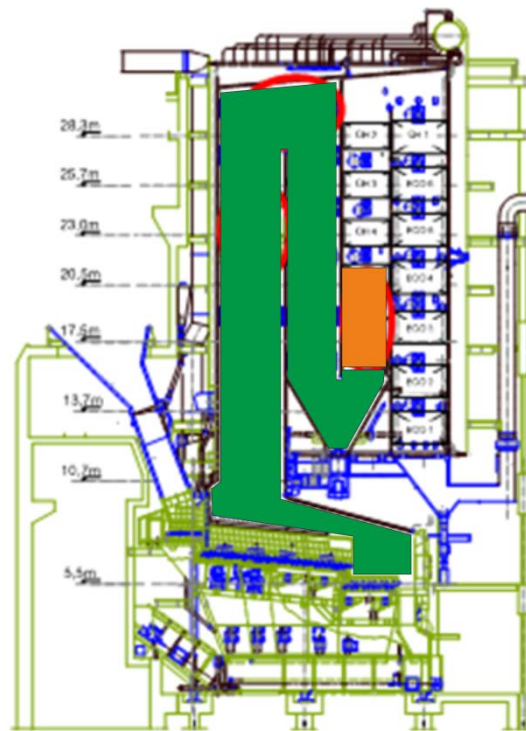


Abbildung 73: Simulationsräume zur Berechnung der Partikeldynamik.

Weiterhin sollte die Partikeldynamiksimulation auf die bereits von der Weghaus GmbH entwickelte Verbrennungssimulation aufgesetzt werden. Da die Verbrennungssimulation mit dem CFD-Programm CFX berechnet wurde und die Partikeldynamiksimulationen mit FLUENT und CFX durchgeführt werden sollten, war es nötig, die mit CFX berechneten Feldgrößen, wie Strömungsgeschwindigkeiten, Temperatur, etc. in FLUENT nutzbar zu machen. Diese Vorgehensweise ermöglicht neben der Zeitersparnis vor allem eine optimale Vergleichbarkeit beider Partikelmodelle (FPM (FLUENT); MOM (CFX)). Darüber hinaus mussten die Stoffdaten der zu betrachtenden Partikelspezies in das FPM implementiert werden. Die durchgeführte Methodenentwicklung ist im Folgenden detailliert beschrieben.

## D.1 Methodenentwicklung

Als Modellstoffsystem wird hier im Folgenden ein Aerosol bestehend aus  $\text{SiO}_2$ -Primärpartikeln und einer Dampfphase aus NaCl und KCl beschrieben. Dabei kommt es im Verlauf durch die zu betrachtenden MVA-Rauchgaszüge zur Kondensation der Dampfphase auf den bestehenden Primärpartikeln und zur Agglomeration der Partikel untereinander. Die homogene Nukleation von Partikeln aus der Dampfphase ist nicht wahrscheinlich, wird aber bei den Simulationen mit betrachtet. Ergebnis der durchgeführten Simulationsrechnungen ist u.a., welche partikeldynamischen Prozesse oberhalb des Brennbetts und in den Rauchgaszügen maßgeblich sind. Mit Hilfe der zur Verfügung stehenden Modellbildung sind folgende Mechanismen abbildbar: Nukleation, Kondensation, Koagulation, Diffusion, Sedimentation, Impaktion, Thermophorese und Elektrophorese.

## Implementierung der Stoffdaten

Um die partikeldynamischen Prozesse numerisch berechnen zu können, müssen die nachfolgend aufgetragenen Stoffdaten in die CFD-Software implementiert werden. Abbildung 74 bis Abbildung 76 zeigen die jeweiligen funktionellen Zusammenhänge zwischen Dampfdruck, Oberflächenspannung, Diffusionskoeffizient und der Temperatur für NaCl und KCl.

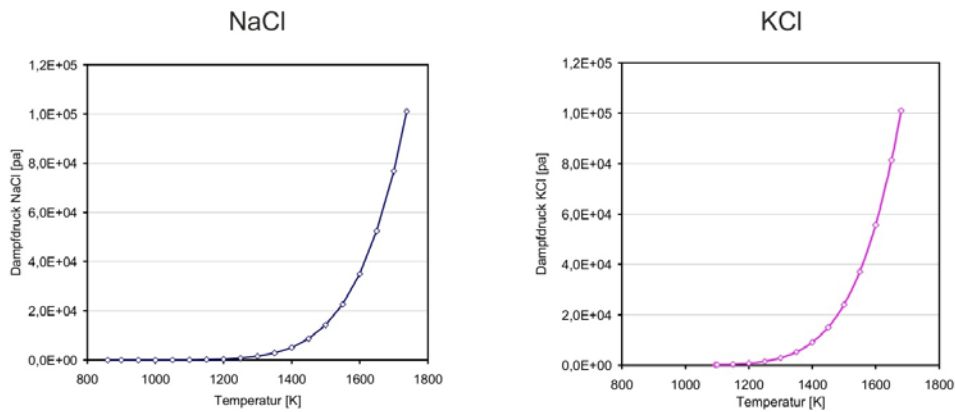


Abbildung 74: Dampfdruckverlauf für NaCl und KCl [Ewing1974, Stull1947].

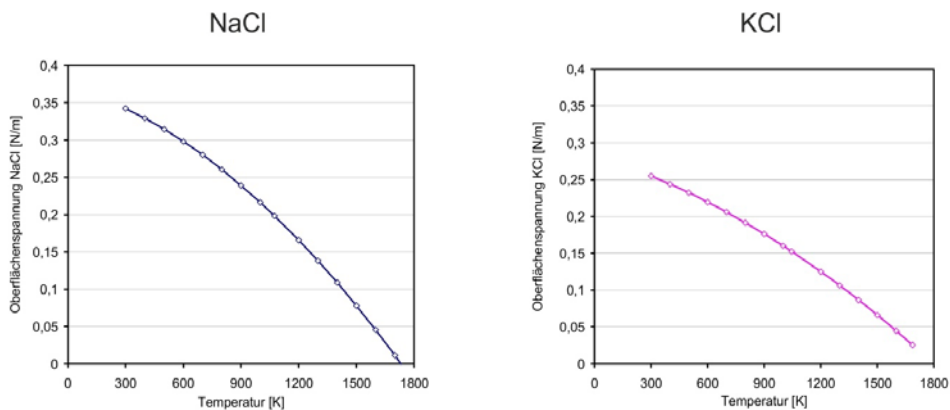


Abbildung 75: Verlauf der Oberflächenspannung für NaCl und KCl [Ewing1974].

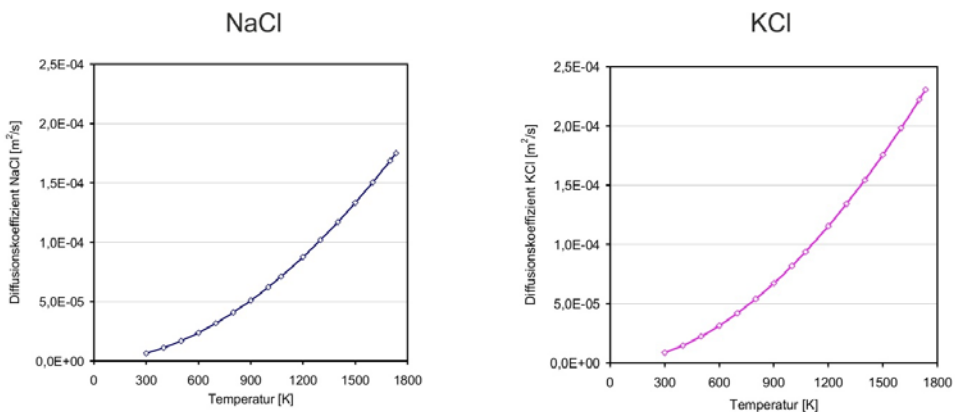


Abbildung 76: Verlauf des Diffusionskoeffizienten für NaCl und KCl [Jensen2000].

## Übernahme der CFX-Daten in FLUENT

Zur Entwicklung der Methode wurde ein sehr grobes 3D-Rechengitter erzeugt, das die Geometrie der GKS-Rauchgaszüge vereinfacht abbildet. Für dieses Gitter wurde mit Hilfe von CFX eine Strömungs- und Verbrennungssimulation durchgeführt und die Ergebnisse der CFX-Berechnung in FLUENT als „Profiles“ importiert. Die hinterlegten Profile werden dabei als „Fixed Values“ abgelegt und ermöglichen eine überlagerte Berechnung der Alkalispezies sowie der Partikeldynamik. Abbildung 77 zeigt den Vergleich des in CFX berechneten und in FLUENT als Profile importierten Strömungsprofils. Abbildung 78 zeigt die entsprechenden Temperaturprofile.

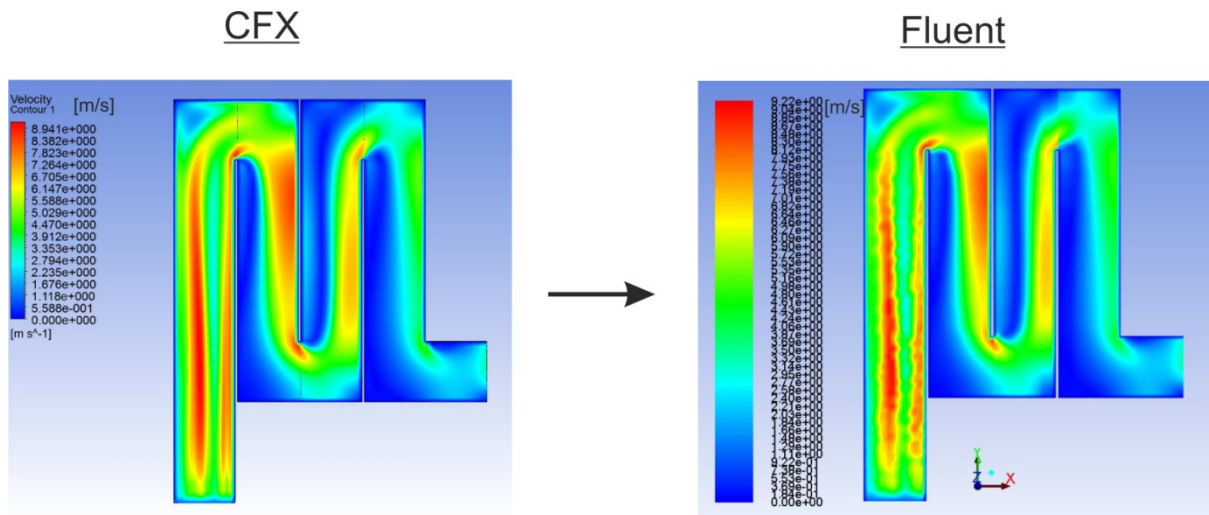


Abbildung 77: Strömungsprofil in CFX (berechnet) und FLUENT (importiert).

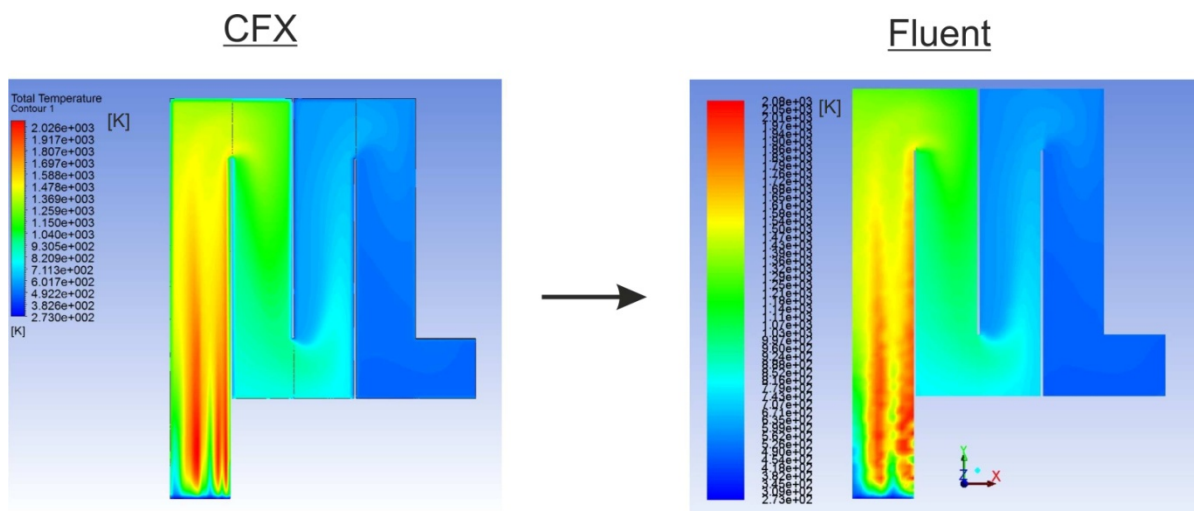


Abbildung 78: Temperaturprofil in CFX (berechnet) und FLUENT (importiert).

Es ist deutlich zu erkennen, dass die in CFX berechneten Profile beim Import in FLUENT an Schärfe verlieren. Dies liegt an der Interpolation der Profilwerte auf dem verwendeten Rechengitter. Der Effekt ist umso größer, je grober die Gitterauflösung ist. Daher tritt er hier, bei Verwendung der vereinfachten GKS-Geometrie sehr deutlich zu Tage. Abbildung 79 zeigt das nicht numerisch geglättete Strömungsprofil und das verwendete Gitter.

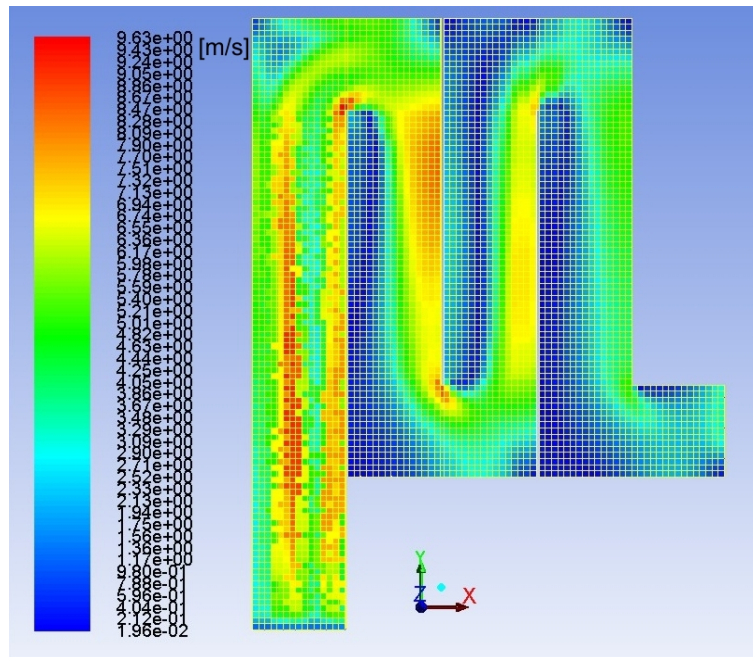


Abbildung 79: Zellwerte der Strömungsgeschwindigkeit und Gitterauflösung.

Es ist zu erwarten, dass Interpolationseffekte bei Verwendung eines feiner aufgelösten Gitters deutlich minimiert werden und nicht mehr ins Gewicht fallen, so dass eine sehr gute Vergleichbarkeit der Partikelmodelle durch die hier entwickelte Methode gegeben ist. Erste Tests für die Partikeldynamiksimulation auf diesem Gitter zeigten eine stabile numerische Lösung und waren problemlos auf dem Rechnercluster parallelisierbar.

### Partikeldynamiksimulation

Zur Modellierung der Partikeldynamik innerhalb des GKS stehen am IUTA verschiedene Partikelmodelle zur Verfügung, die, an die Schnittstelle der Software ANSYS FLUENT gekoppelt, verschiedene physikalische Effekte darstellbar machen.

### Fine Particle Model (FPM)

Zur Abbildung von Partikelgrößenverteilungen und deren Änderung durch partikeldynamische Prozesse wird häufig die modale Betrachtungsweise verwendet. Hierbei wird die Größenverteilung eines Aerosols anhand von drei charakteristischen Parametern beschrieben: Die Anzahldichte  $N$ , den mittleren Partikeldurchmesser  $d_{gn}$  und die Standardabweichung  $\sigma_g$ . Hierzu wird die Partikelgrößenverteilung  $n(d_p)$  über eine endliche Anzahl ihrer Momente  $M_k$  beschrieben:

$$M_k = \int_0^{\infty} d_p^k n(d_p) d(d_p) \quad (39)$$

Häufig führt die Momenten-GDE nur zu einer geschlossenen Lösung, wenn für die Partikelgrößenverteilung  $n(d_p)$  ein fester funktionaler Verlauf, z. B. die logarithmische Normalverteilung, vorgegeben wird und dieser während der ablaufenden aerosoldynamischen Prozesse erhalten bleibt. Dann geht die Momenten-GDE in die als "Modal Dynamics Equation" (MDE) bezeichnete Gleichung über:

$$\underbrace{\frac{dM_k}{dt}}_{\text{instationär}} + \underbrace{\nabla \cdot (\vec{u} M_k)}_{\text{Konvektion}} = \underbrace{\nabla \cdot (D_k \nabla M_k)}_{\text{Diffusion}} - \underbrace{\nabla \cdot (\vec{c}_k M_k)}_{\text{externe Kräfte}} + \underbrace{(S_{\text{int}})_k}_{\text{Quellen/Senken}} \quad (40)$$

Dies hat den Vorteil, dass die drei charakteristischen Größen der Partikelgrößenverteilung durch die Lösung der Erhaltungsgleichungen für drei Momente ermittelt werden können, was den numerischen Aufwand zwar erhöht, aber die Änderung der Partikelgrößenverteilung durch dynamische Prozesse beschreibbar macht [Stratmann1991, Wilck1998]. Diese Methode wird auch als modale Aerosoldynamik-Modellierungstechnik (MAD-Technik) bezeichnet. Zur Modellierung partikeldynamischer Vorgänge nach der MAD-Technik steht am IUTA das Fine-Particle-Model (FPM) als Erweiterung der genutzten CFD-Software FLUENT zu Verfügung. Mithilfe dieses Modells können Nukleations-, Kondensations- und Koagulationsprozesse berechnet werden [Whitby2003].

### Homogene Nukleation

Bei der homogenen Nukleation werden aufgrund von örtlichen Übersättigungen aus der Gasphase stabile Partikel gebildet. Das FPM ermöglicht die Auswahl dreier Ansätze zur Berechnung der homogenen Nukleation [Whitby2003]:

$$J_{\text{frenkel}} = \frac{(\rho_g \xi_i)^2}{\rho_i w_i} \sqrt{\frac{2\sigma_i}{\pi w_i}} \exp\left(-\frac{\Delta G^*}{k_B T}\right) \quad (41)$$

$$J_{\text{becker}} = J_{\text{frenkel}} \cdot \left(\frac{m_p^*}{w_i}\right)^{2/3} \quad (42)$$

$$J_{\text{girshick}} = J_{\text{frenkel}} \cdot \frac{1}{S_i} \exp\left(\frac{\sigma_i (36\pi (w_i / \rho_i)^2)^{1/3}}{k_B T}\right) \quad (43)$$

Hierin sind:

$\rho_{g/i}$	Dichte des Gases und der Flüssigkeit,
$w_i$	Molekülgewicht
$\xi_i$	Massenanteil in der Gasphase
$\sigma_i$	Oberflächenspannung
$\Delta G^*$	Gibbsche freie Enthalpie
$k_B$	Boltzmann Konstante
$T$	Temperatur
$S_i$	Sättigung in der Gasphase
$m_p^*$	kritische Masse des Nukleationskeims

### Kondensation und Verdampfung

Bei der Kondensation handelt es sich um Gas-Partikel-Wechselwirkungen, wobei sowohl der Masse- als auch der Energietransfer bilanziert werden müssen. Die Wachstumsrate ist wie folgt definiert [Whitby2003]:

$$g_i = 2\pi d_p \frac{w_i p_i^o}{k_B T} \frac{S_i - S_i^*}{\frac{1 - \xi_i w_g / w_i}{f_{mass,i}(m_p) D_i} + \left( \frac{L_i w_i}{k_B T} \right)^2 \frac{p_i^o}{f_{heat}(m_p) T \kappa_g}} \quad (44)$$

mit:  $p_i^o$  Gleichgewichtsdampfdruck  
 $S_i^*$  Sättigung an der Partikeloberfläche  
 $L_i$  latente Wärme

Für ein flüssiges Partikel oder ein Partikel mit einer flüssigen Grenzschicht gilt:

$$S_i^* = a_i \exp\left(\frac{4v_i \sigma_p}{d_p R_G T}\right) \quad (45)$$

mit:  $a_i$  Aktivität der Spezies i  
 $v_i$  molares Volumen  
 $\sigma_p$  Oberflächenspannung  
 $R_G$  universelle Gaskonstante

Die Übergangsfunktion, die das Verhalten im Übergangsbereich zwischen Kontinuum und freimolekularem Bereich beschreibt, ergibt sich zu:

$$f_{trans} = \frac{1 + AKn}{1 + Kn(B_1 + (B_2 + CKn)/\alpha)} \quad (46)$$

mit:  $Kn$  Knudsenzahl  
 $A, B_{1/2}, C$  Konstanten (hier:  $A = 1, B_1 = 0,377, B_2 = C = 4/3$ )  
 $\alpha$  Haftwahrscheinlichkeit

### Brownsche (thermische) Koagulation

Die thermische Koagulation wird im Kontinuumsbereich durch die Diffusion kontrolliert und kann somit aus der Diffusionstheorie abgeleitet werden [Friedlander2000].

$$\beta_K(d_{p1}, d_{p2}) = 2\pi \cdot (D_1 + D_2) \cdot (d_{p1} + d_{p2}) \quad (47)$$

mit:  $D_{1,2}$  Diffusionskoeffizient  
 $d_{p1,p2}$  Partikeldurchmesser

Um diesen Ansatz über den Kontinuumsbereich hinaus anwenden zu können, bedarf es einer Erweiterung der Betrachtung. Weite Verbreitung hat der Ansatz nach Fuchs gefunden [Fuchs1964]. Der Koagulationskoeffizient nach Fuchs hat die Form:

$$\beta_K(d_{p1}, d_{p2}) = 2\pi \cdot (D_1 + D_2) \cdot (d_{p1} + d_{p2}) \beta \quad (48)$$

mit:  $\beta$  Korrekturfunktion

$$\beta = \left( \frac{d_{p1} + d_{p2}}{d_{p1} + d_{p2} + 2\delta(d_{p1}, d_{p2})} + \frac{8(D(d_{p1}) + D(d_{p2}))}{v_{th}(d_{p1}, d_{p2}) \cdot (d_{p1} + d_{p2})} \right)^{-1} \quad (49)$$

mit:  $\delta$  Fuchssche Distanz  
 $v_{th}$  thermische Partikelgeschwindigkeit

Die Größe des Brownschen Koagulationskoeffizienten hängt maßgeblich von den Partikelgrößen der koagulierenden Partikeln ab, wobei die Kollisionswahrscheinlichkeit um so höher wird, je unterschiedlicher die Partikeldurchmesser der beteiligten Partikeln sind.

### Electro-Hydrodynamics Model (EHDM)

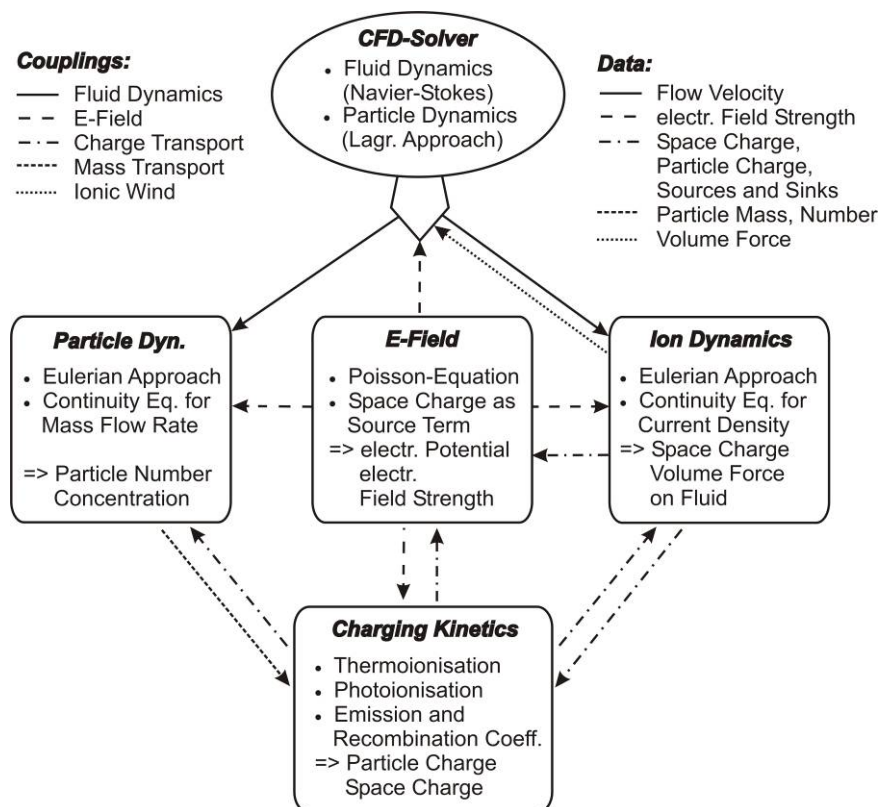


Abbildung 80: Schematischer Aufbau des Electro-Hydrodynamics Models (EHDM).

Zur Beschreibung des Verhaltens elektrisch leitfähiger Gase unter dem Einfluss elektrischer Felder bei hohen Temperaturen wurde am IUTA ein Modell entwickelt, das an der Schnittstelle von FLUENT die Berechnung der Ionen- und Partikeldynamik, gekoppelt mit der Lösung des elektrischen Potenzialfeldes und der Aufladungskinetik der Partikeln, ermöglicht [vanderZwaag2005, vanderZwaag2008]. Dieses Modell wurde im Rahmen des Projekts eingesetzt, um die resultierende mittlere Partikel-

ladung im Verlauf des GKS zu berechnen. Die Modellbildung erlaubt die gekoppelte Berechnung von Fluid-, Partikel- und Ionendynamik, inhomogenen elektrischen Feldern und der Aufladungskinetik der Partikeln für ein monodisperses Aerosol. Abbildung 80 zeigt den schematischen Aufbau des Modells.

Bei Hochtemperaturprozessen werden die Partikel im Gas durch Elektronenabgabe positiv aufgeladen. Im thermodynamischen Gleichgewicht ist der Elektronenstrom, den die Partikel über ihre Oberfläche abgeben, genau so groß, wie der Rekombinationsstrom der die Partikel umgebenden Ionenwolke. Dieses Verhalten ist charakteristisch für den Prozess der Thermo-Diffusionsaufladung. Abbildung 81 verdeutlicht die Modellvorstellungen.

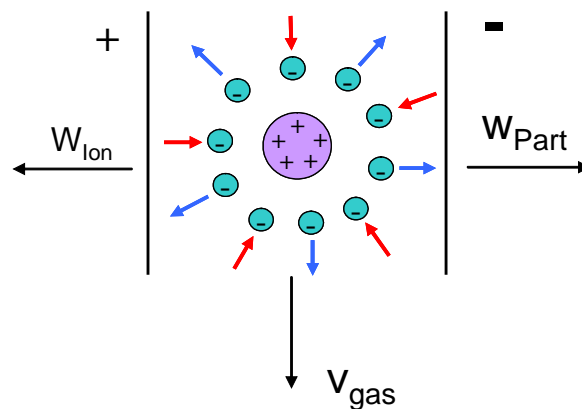


Abbildung 81: Grundlegende Modellvorstellung bei der numerischen Simulation der Aufladungskinetik.

Die von den Partikeln emittierten Elektronen führen dabei zur Bildung von einfach negativ geladenen Gasionen. Daraus resultiert ein Netzwerk von elektrohydrodynamischen Wechselwirkungen zwischen dem elektrischen Potenzialfeld, den elektrisch aufgeladenen Partikeln, den Gasionen und der neutralen Fluidströmung. Dabei beruht der Modellansatz auf der Bilanzierung der Ladungsströme an der Partikeloberfläche, woraus eine resultierende Partikelladung berechnet wird. Hierbei stellt die Elektronenemission von der Partikeloberfläche die Quelle für die Ausbildung der Partikelladung und die Ionenrekombination die entsprechende Senke dar. Die Partikelladung im thermodynamischen Gleichgewicht der Ströme ist konstant. Um den Transport der geladenen Ionen und Partikeln im elektrischen Feld zu erfassen, muss die Aufladungskinetik gekoppelt mit der Berechnung der Elektro-Hydrodynamik gelöst werden. Die Bestimmung der Emissions- und Rekombinationskoeffizienten zur Bilanzierung der Ladungsströme wurde wie folgt umgesetzt. Die Formulierung des Emissionskoeffizienten wurde in der folgenden Form verwendet [Sorokin2003]:

$$\alpha^{q \rightarrow q+1} = \pi d_p^2 A T^2 e^{-\frac{W_A}{k_B T}} \quad (50)$$

mit:

$\alpha^{q \rightarrow q+1}$	Emissionskoeffizient
$d_p$	Partikeldurchmesser
$A$	Richardsonkonstante
$T$	Temperatur
$W_A$	Elektronenaustrittsarbeit eines sphärischen Partikels

$k_B$  Boltzmannkonstante

Die Elektronenaustrittsarbeit eines sphärischen Partikels ist definiert zu [Maisels2002]:

$$W_A = W_{A_0} + \frac{e^2(q_{P,e} + 1)}{2\pi\epsilon_0 d_p} - \frac{5}{8} \frac{e^2}{2\pi\epsilon_0 d_p} \quad (51)$$

mit:  $W_{A0}$  Elektronenaustrittsarbeit einer ebenen Oberfläche  
 $q_{P,e}$  Partikelladung  
 $e$  Elementarladung  
 $\epsilon_0$  Permittivität

Als Rekombinationsmodell wird das Field-Modified Diffusion (FMD)–Modell nach Lawless benutzt [Lawless1996, Schmid1998]. Dieses Modell erlaubt die Berechnung von Feld- und Diffusionsaufladung und wurde für den Einsatz als Rekombinationsmodell bei der Thermoionisation geringfügig modifiziert. Der Rekombinationskoeffizient wird für drei unterschiedliche Bereiche der Partikelladung definiert:

$$1.) \quad -q_{P,F\infty} \leq q_P \leq q_{P,F\infty}$$

$$\rho_{Ion} \beta^{q \rightarrow q-1} = \frac{q_{P,F\infty}}{\tau_q} \cdot \left(1 + \frac{q_P}{q_{P,F\infty}}\right)^2 + a(\tilde{E}) \frac{8\pi\epsilon_0 k_B T}{e} \frac{d_p}{\tau_q} \quad (52)$$

$$2.) \quad q_P < -q_{P,F\infty}$$

$$\rho_{Ion} \beta^{q \rightarrow q-1} = \frac{4a(\tilde{E})}{\tau_q} \cdot \frac{-q_{P,F\infty} - q_P}{\exp\left\{\frac{(-q_{P,F\infty} - q_P)e}{2\pi\epsilon_0 k_B T d_p}\right\} - 1} \quad (53)$$

$$3.) \quad q_P > q_{P,F\infty}$$

$$\rho_{Ion} \beta^{q \rightarrow q-1} = \frac{4}{\tau_q} \cdot \left( q_P + a(\tilde{E}) \frac{q_P - q_{P,F\infty}}{\exp\left\{\frac{(q_P - q_{P,F\infty})e}{2\pi\epsilon_0 k_B T d_p}\right\} - 1} \right) \quad (54)$$

mit:  $\rho_{Ion} \beta^{q \rightarrow q-1}$  Rekombinationskoeffizient  
 $q_P$  Partikelladung  
 $q_{P,F\infty}$  Sättigungsladung für reine Feldaufladung  
 $a(\tilde{E})$  Oberflächenfaktor  
 $\tau_q$  charakteristische Zeitkonstante

Die charakteristische Zeitkonstante  $\tau_q$  des Aufladungsprozesses ergibt sich aus:

$$\tau_q = \frac{4\epsilon_0}{\rho_{Ion} b_{Ion}} \quad (55)$$

mit:  $\rho_{Ion}$  Ionenraumladung  
 $b_{Ion}$  Ionenmobilität

Der Faktor  $a(\tilde{E})$  definiert den Anteil der Partikeloberfläche, der für die Rekombination von Ionen zur Verfügung steht. Er hängt von der dimensionslosen elektrischen Feldstärke  $\tilde{E}$  ab.

$$\begin{aligned} a(\tilde{E}) &= 1 && \text{für: } \tilde{E} < 0,525 \\ a(\tilde{E}) &= \frac{1}{(\tilde{E} + 0,457)^{0,575}} && \text{für: } \tilde{E} \geq 0,525 \end{aligned} \quad (56)$$

Die dimensionslose elektrische Feldstärke  $\tilde{E}$  wiederum hängt von der Temperatur, der Partikelgröße und der lokalen elektrischen Feldstärke  $E$  ab und berechnet sich wie folgt:

$$\tilde{E} = \frac{d_p \cdot E}{2k_B T / e} \quad (57)$$

Die Sättigungsladung einer Partikel für reine Feldaufladung ( $Kn \rightarrow 0$ ) ergibt sich zu:

$$q_{p,F\infty} = 3\pi\epsilon_0 \frac{\epsilon_r}{\epsilon_r + 2} d_p^2 E \quad (58)$$

mit:  $\epsilon_r$  Dielektrizitätskonstante.

### Kombination von FPM und EHDM

Zur Berechnung der elektrischen Aufladung der Partikel und der elektrostatischen Wechselwirkungen in den GKS-Rauchgaszügen wurde zusätzlich das am IUTA entwickelte EHDM mit dem FPM kombiniert, um so Aussagen über die örtliche Verteilung der mittleren Partikelladung generieren zu können. Dabei liefert das FPM die Partikelanzahl und den mittleren Durchmesser der Verteilung und das EHDM berechnet die resultierende Aufladungskinetik der Partikel, die Ionendynamik und das elektrische Raumladungsfeld. Aufgrund der Komplexität des Modells ist die Berechnung der Partikelladung nur für ein monodisperses Aerosol durchführbar. Es muss daher einschränkend in Kauf genommen werden, dass keine Ladungsverteilung im Aerosol berechnet wird, sondern nur die räumliche Verteilung der mittleren Partikelladung. Abbildung 82 zeigt die weiterentwickelte Modellstruktur.

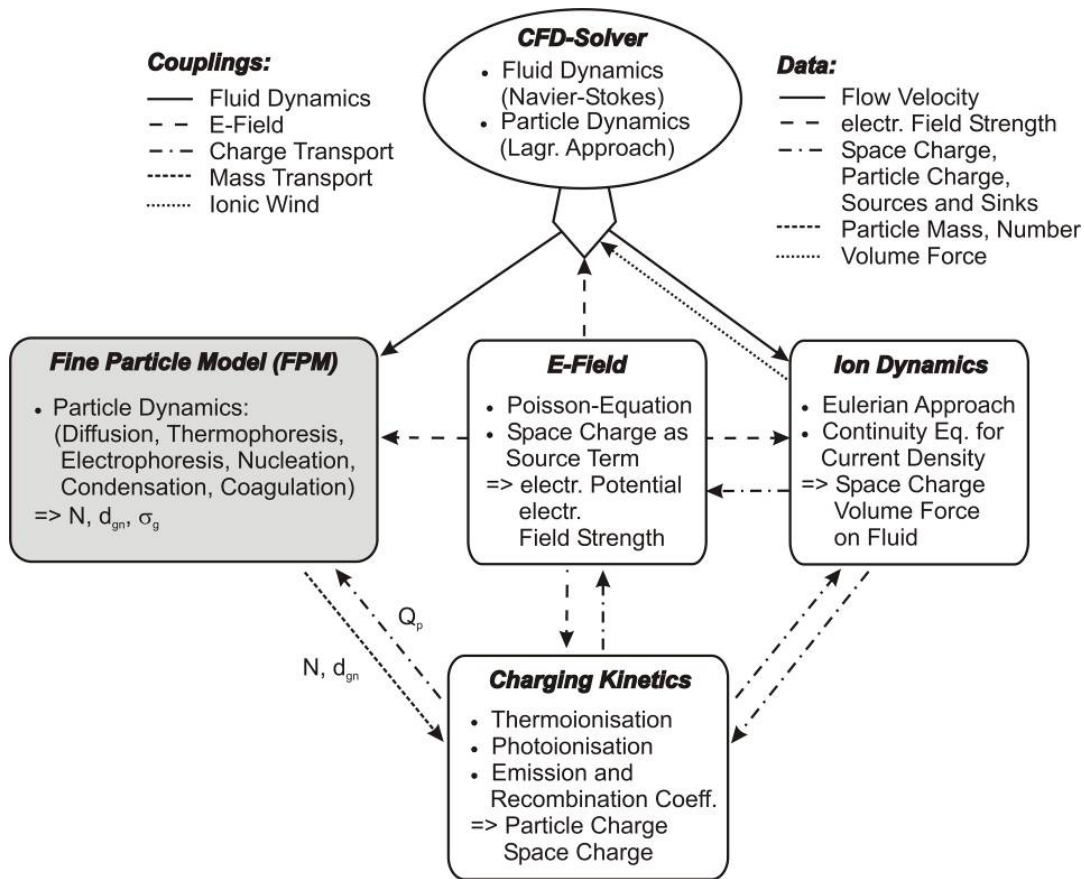


Abbildung 82: Schematischer Aufbau des gekoppelten EHDM/FPM-Modells

## D.2 Eindimensionale Betrachtung am GKS

Vorab zur angestrebten 3D-Simulation des GKS für einen Referenz-Betriebszustand, wurde ein Abgleich des Modells und eine Sensitivitätsstudie anhand einer 1D-Betrachtung durchgeführt. Um die Randbedingungen des GKS möglichst gut in einer 1D-Betrachtung abbilden zu können, wurde die Müllverbrennungsanlage als Reaktionsstrecke mit einer Länge von 80 m umgesetzt. Die Strömungsgeschwindigkeit wurde im Mittel mit 5 m/s angenommen und das gemessene Temperaturprofil mit einer linearen Approximation zwischen den gemessenen Extremtemperaturen vorgegeben. Abbildung 83 zeigt das gemessene und das in der 1D-Simulation vorgegebene Temperaturprofil. Durch diese Vorgehensweise sind die Verweilzeit im System und die maximale und minimale Temperatur des Aerosols vergleichbar mit der realen Anlage. Abweichungen gibt es bei der örtlichen Lage bestimmter Zustände innerhalb der Anlage sowie durch die Vernachlässigung von Strömungs-, Temperatur- und Konzentrationsprofilen über dem Querschnitt der Anlage.

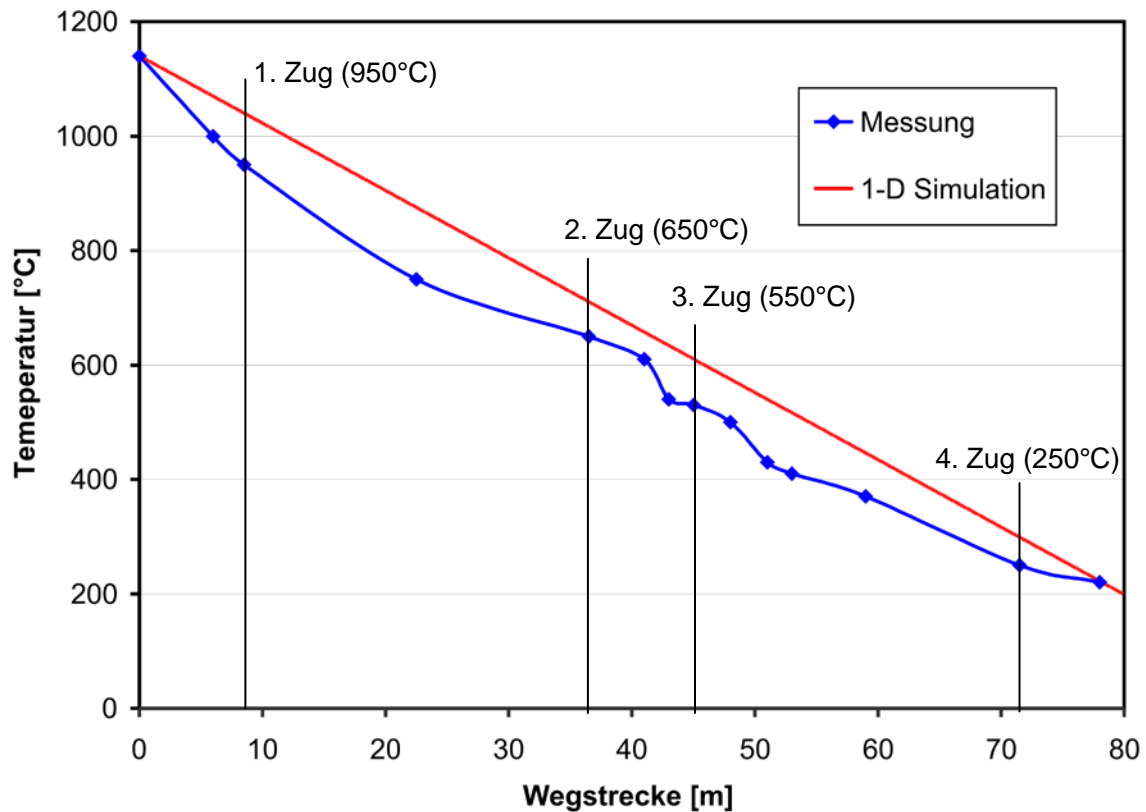


Abbildung 83: Gemessenes Temperaturprofil innerhalb der GKS und Temperaturrandbedingung der eindimensionalen Simulation

Als Modellstoffsystem wurde ein Aerosol bestehend aus  $\text{SiO}_2$ -Primärpartikeln und einer Dampfphase aus  $\text{NaCl}$  und  $\text{KCl}$  generiert. Im Verlauf durch die GKS-Rauchgaszüge kommt es zur Kondensation der Dampfphase auf den bestehenden Primärpartikeln und zur Agglomeration der Partikel untereinander. Die homogene Nukleation von Partikeln aus der Dampfphase spielt unter den gegebenen Randbedingungen keine Rolle, da sich aufgrund der hohen Anzahl an Primärpartikeln keine Übersättigungen deutlich größer 1 aufbauen können, die für eine homogene Nukleation notwendig wären. Abbildung 84 zeigt die  $\text{NaCl}$ - und  $\text{KCl}$ -Massenanteile und die entsprechenden Sättigungen im Verlauf der Anlage. Die Dampfkonzentration wurde mit  $0,67 \text{ g/m}^3$  für Natriumchlorid und  $0,52 \text{ g/m}^3$  für Kaliumchlorid angenommen [EFRE-KORR2008]. Unter den gegebenen Randbedingungen setzt die  $\text{NaCl}$ -Kondensation nach etwa 31 m Wegstrecke bei einer Temperatur von etwa  $750 \text{ }^\circ\text{C}$  ein. Ab einer Wegstrecke von etwa 36 m beginnt die  $\text{KCl}$ -Kondensation. Die Kondensationszone beginnt damit im zweiten Zug unmittelbar vor der Messstelle. Das Rauchgas befindet sich von dort an bis zum Austritt des Kessels im gesättigten Zustand, wobei der wesentliche Massenübergang von der Dampfphase auf die Partikelphase bis zu einer Wegstrecke von etwa 50 m erfolgt. Damit liefert die 1D-Simulation eine Kondensationszone von der Mitte des zweiten Zugs bis etwa zum Ende des dritten Zugs. Dies korrespondiert in guter Näherung mit den Messwerten der Partikelgrößenverteilungen.

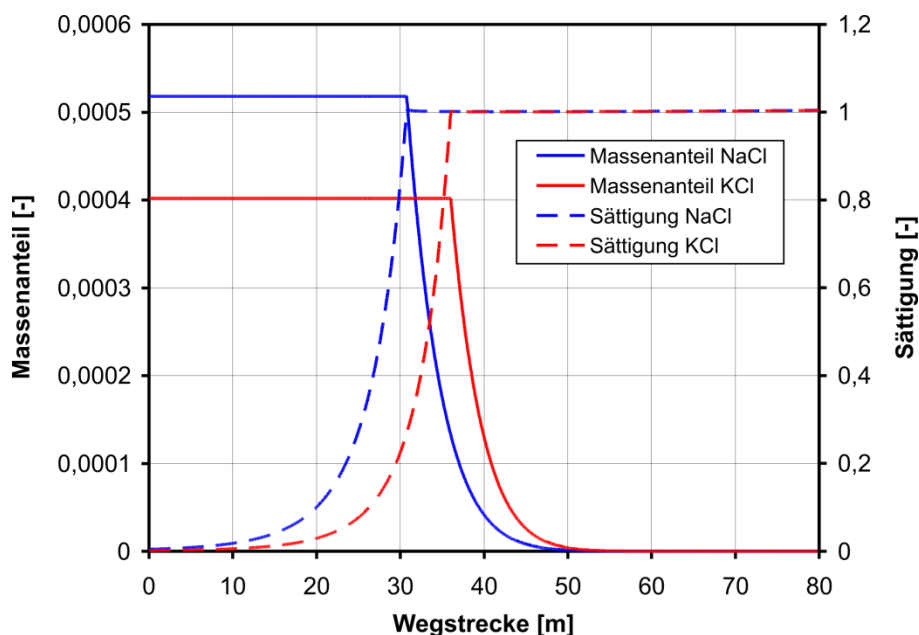


Abbildung 84: Massenanteile und Sättigung von dampfförmigem NaCl und KCl im Verlauf des GKS.

Für die Simulation der Partikeldynamik wurde ein Modellaerosol basierend auf den Daten der Partikelmessung im Feuerraum generiert. Die Messergebnisse zeigen eine bimodale Partikelgrößenverteilung, die zur Verwendung im Simulationsmodell mit zwei Lognormalverteilungen angenähert wurde. Abbildung 85 zeigt die beiden Modes der Anzahlverteilungen.

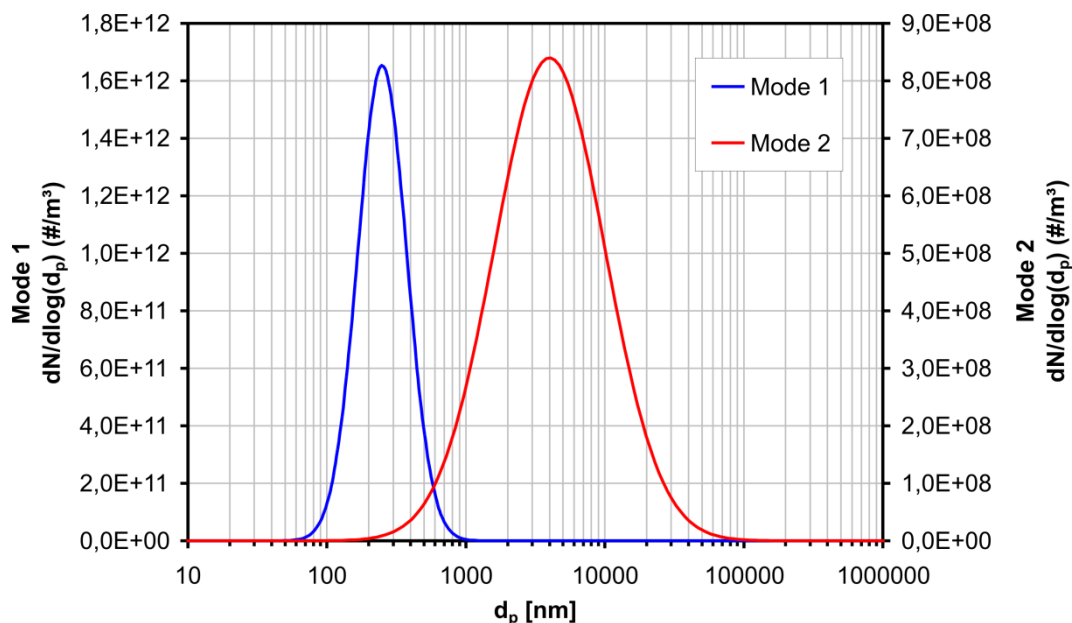


Abbildung 85: Modellaerosol im Feuerraum zur Berechnung der Partikeldynamik im GKS.

Deutlich zu erkennen ist ein ausgeprägter Feinstpartikelmode und eine grobe Partikelfraktion mit um drei Größenordnungen niedrigerer Anzahl. Die Parameter der beiden Lognormalverteilungen ergeben sich wie folgt:

Mode 1	Mode 2
$N = 7,3 \times 10^{11} \text{ 1/m}^3$	$N = 8,38 \times 10^8 \text{ 1/m}^3$
$d_{gn} = 250 \text{ nm}$	$d_{gn} = 4 \text{ }\mu\text{m}$
$\sigma = 1,5$	$\sigma = 2,5$

Tabelle 6: Aus Messwerten generiertes Modellaerosol als Randbedingung der Partikeldynamiksimulation.

Werden diese Anzahlverteilungen auf die entsprechenden Massenverteilungen umgerechnet, so dominiert erwartungsgemäß die grobe Partikelfraktion. Die gesamte Staubmasse des Abgases beläuft sich in der Simulation auf  $2,7 \text{ g/m}^3$ . Sowohl der Verlauf als auch die Gesamtmasse des Modellaerosols geben die gemessenen Werte in guter Näherung wieder und dienen als Ausgangsbasis für die Simulation der Partikeldynamik.

Abbildung 86 zeigt die Massenverteilung des generierten Modellaerosols und die gemessenen Verteilungen am GKS in Schweinfurt.

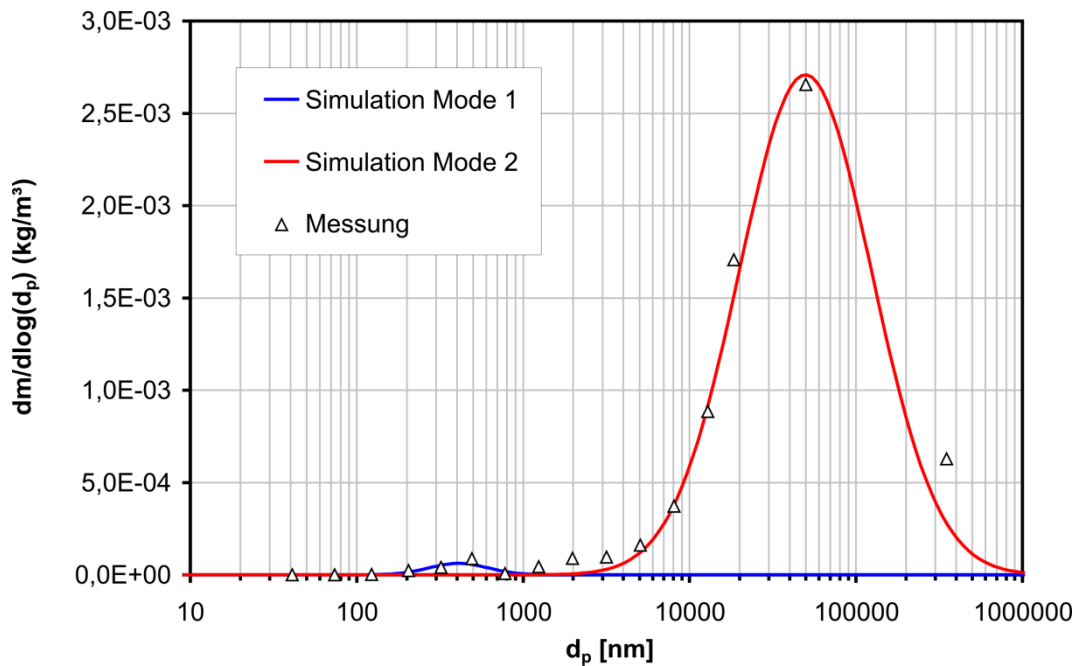


Abbildung 86: Gemessene und generierte Massenverteilung im Feuerraum des GKS.

Das so erzeugte Modellaerosol dient als Randbedingung am Eingang der 1D-Simulation. Die Salzdämpfe kondensieren beim Abkühlen des Rauchgases auf beiden partikulären Modes. Gleichzeitig koagulieren die Partikel sowohl intramodal als auch intermodal miteinander. Abbildung 87 zeigt die Entwicklung des mittleren Partikeldurchmessers des Feinstpartikelmodes der Partikelgrößenverteilung. Deutlich zu erkennen ist, dass am Anfang des Rauchgaswegs und am Ende praktisch kein Partikelwachstum stattfindet. Diese Bereiche werden durch Brownsche Koagulation dominiert, die jedoch bei der hier vorgegebenen geringen Partikelkonzentration ( $7,3 \times 10^{11} \text{ 1/m}^3$ ) vernachlässigbar ist. Die Kondensationszone hingegen kann deutlich anhand des starken Partikelwachstums ab Wegstrecke 31 m nachvollzogen werden, wobei anhand des Kurvenverlaufs im vorderen Teil der Kondensationszone (bis etwa 36 m) die NaCl-Kondensation und im hinteren Teil die KCl-Kondensation dominiert.

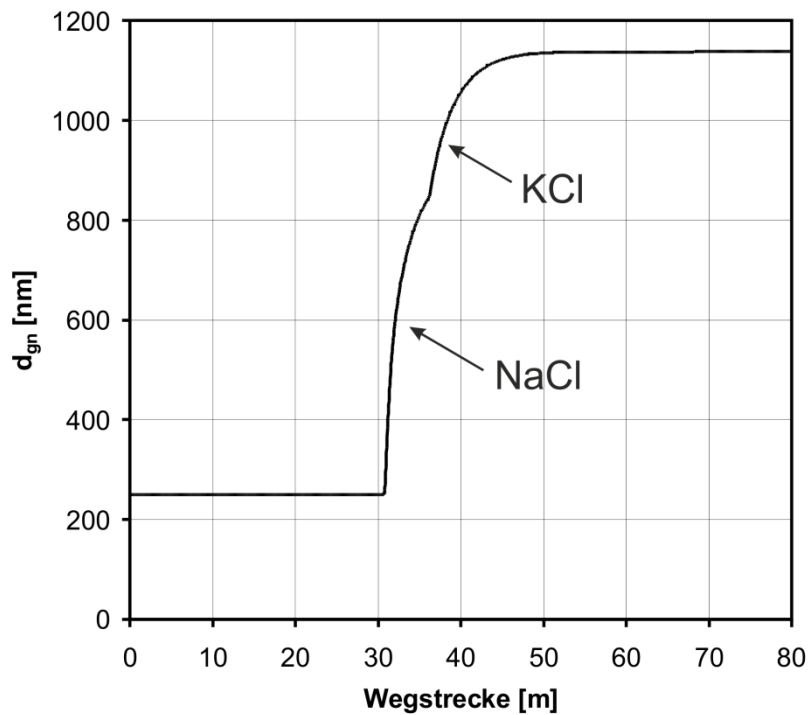


Abbildung 87: Entwicklung des mittleren Durchmessers des Feinstpartikelmodes entlang der Wegstrecke aufgrund Brownscher Koagulation und Kondensation.

In Abbildung 88 wurde die resultierende Partikelgrößenverteilung im vierten Zug des GKS aus den drei charakteristischen Größen der Lognormalverteilung ( $N$ ,  $d_{gn}$ ,  $\sigma$ ) rekonstruiert und mit den Messergebnissen verglichen.

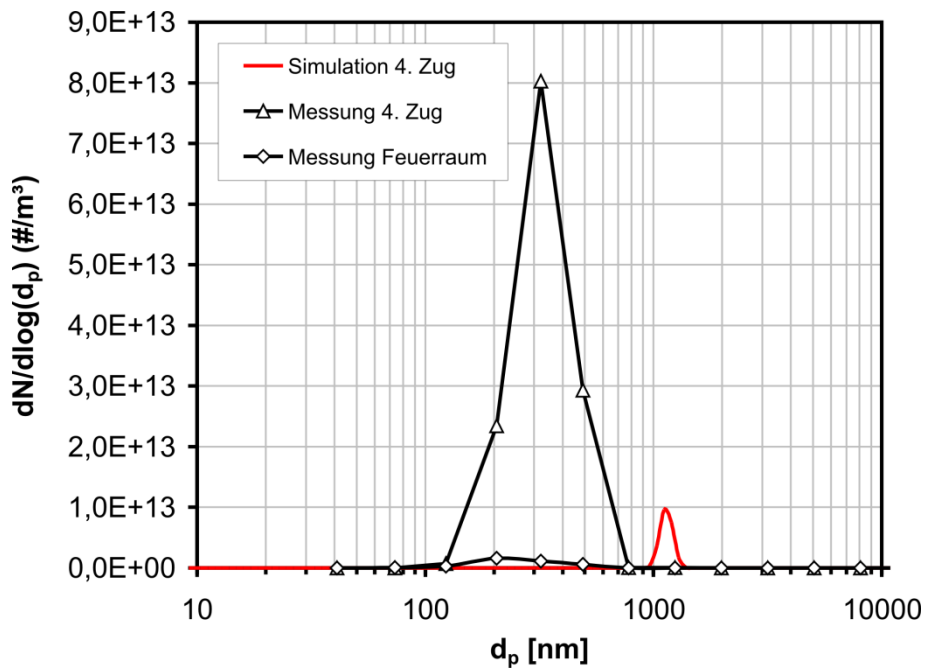


Abbildung 88: Vergleich der gemessenen und numerisch bestimmten Größenverteilungen im Feuerraum und im 4. Zug.

Deutlich zu erkennen ist die starke Zunahme der Feinstpartikelkonzentration zwischen 100 nm und 1 µm Partikelgröße im Verlauf des Rauchgaswegs bei den Messergebnissen. Weder die Zunahme noch die Größe und Form der Verteilung kann von der Simulation unter den gegebenen Randbedingungen wiedergegeben werden. Bei der Simulation wachsen die Partikel deutlich stärker aufgrund von Kondensation. Allerdings liegt dies darin begründet, dass die Salzfracht auf einer deutlich geringeren Partikelanzahl kondensiert als es die Messungen zeigen. Die Zunahme der Partikelanzahl bei der Messung ist jedoch auf den ersten Blick nicht plausibel, kann doch eine Partikelneubildung durch Nukleation ausgeschlossen werden, wie es auch die Simulation zeigt. Die gemessenen Partikelgrößenverteilung entlang des Rauchgaswegs deuten vielmehr darauf hin, dass bereits im Feuerraum eine deutlich größere Partikelanzahl vorhanden sein muss, die jedoch aufgrund der Auflösungsgrenze der Messtechnik bei etwa 100 nm Partikelgröße nicht erfasst werden kann. Diese Feinstpartikel wachsen durch Kondensation im Kessel an und sind dadurch an weiter hinten im Rauchgasweg liegenden Messstellen dann messbar, was zu einer vermeintlichen Zunahme der Partikelkonzentration im Verlauf der Anlage führt. Die Simulationen legen grundsätzlich zwei mögliche Modellvorstellungen nahe. Entweder handelt es sich bei den nicht erfassten Partikeln um einen zusätzlichen dritten Mode, der nicht wesentlich in den messbaren Größenbereich hineinragt oder die von der Messung erfassten Feinstpartikel stellen lediglich den auslaufenden rechten Ast eines deutlich breiteren Feinstpartikelmoden dar. In beiden Fällen würde durch Anwachsen der Partikel die messbare Anzahl mit steigender Wegstrecke zunehmen. Zur Überprüfung der Vermutung wurden bimodale und trimodale Simulationsrechnungen durchgeführt. In beiden Varianten wurde ein Feinstpartikelmode mit einer gesamten Partikelanzahl von  $10^{14}/\text{m}^3$  angenommen und einer mittleren Partikelgröße von 50 nm. Bei der trimodalen Simulation wurde zusätzlich zu den bereits dargestellten beiden Partikelmodi ein schmaler Feinstmode unterhalb von 100nm berücksichtigt. Bei der bimodalen Betrachtung wurde der bisherige Feinstmode bei 250 nm durch einen sehr breiten Feinstmode bei 50 nm ersetzt. Tabelle 7 und Tabelle 8 listen die charakteristischen Größen der Verteilungsfunktionen für beide Szenarien.

<b>Mode 1</b>	<b>Mode 2</b>	<b>Mode 3</b>
$N = 1,0 \times 10^{14} \text{ 1/m}^3$	$N = 7,3 \times 10^{11} \text{ 1/m}^3$	$N = 8,38 \times 10^8 \text{ 1/m}^3$
$d_{gn} = 50 \text{ nm}$	$d_{gn} = 250 \text{ nm}$	$d_{gn} = 4 \text{ }\mu\text{m}$
$\sigma = 1,4$	$\sigma = 1,5$	$\sigma = 2,5$

Tabelle 7: Trimodales Modellaerosol als Randbedingung der Partikeldynamiksimulation.

<b>Mode 1</b>	<b>Mode 2</b>
$N = 1,0 \times 10^{14} \text{ 1/m}^3$	$N = 8,38 \times 10^8 \text{ 1/m}^3$
$d_{gn} = 50 \text{ nm}$	$d_{gn} = 4 \text{ }\mu\text{m}$
$\sigma = 1,9$	$\sigma = 2,5$

Tabelle 8: Bimodales Modellaerosol als Randbedingung der Partikeldynamiksimulation.

Abbildung 89 zeigt die Größenverteilungen der beiden Modellaerosole als Randbedingung der Partikeldynamiksimulation im Feuerraum. Der Feinstpartikelmode bei der bimodalen Betrachtung wurde dabei so ausgelegt, dass der ursprüngliche Feinstpartikelmode von dem neuen breiteren exakt überlagert wird.

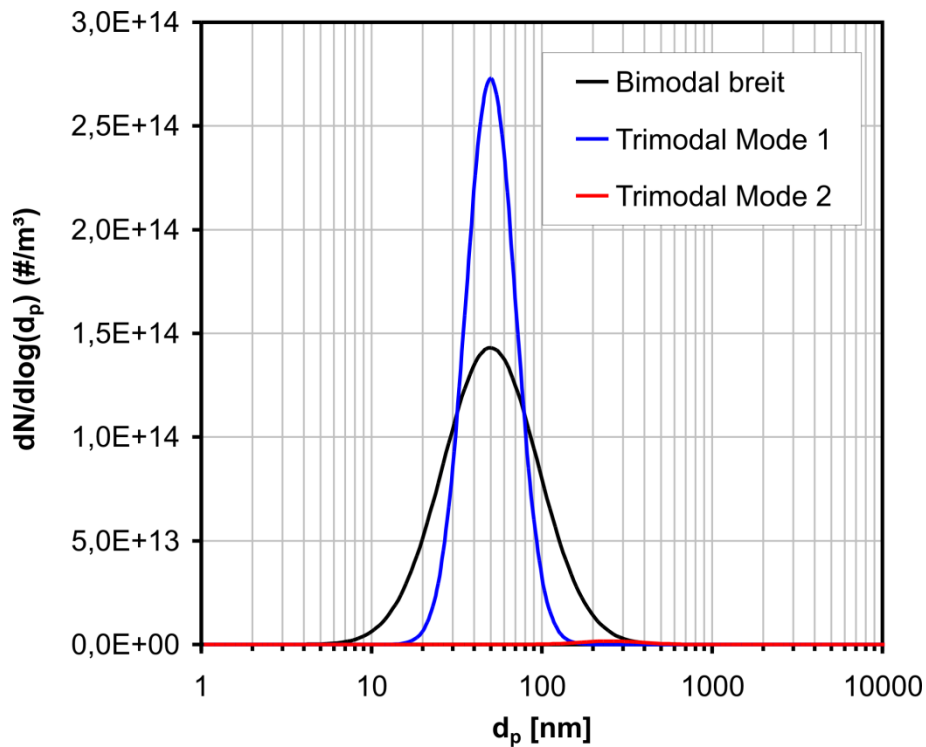


Abbildung 89: Randbedingungen der Partikeldynamiksimulation im Feuerraum.

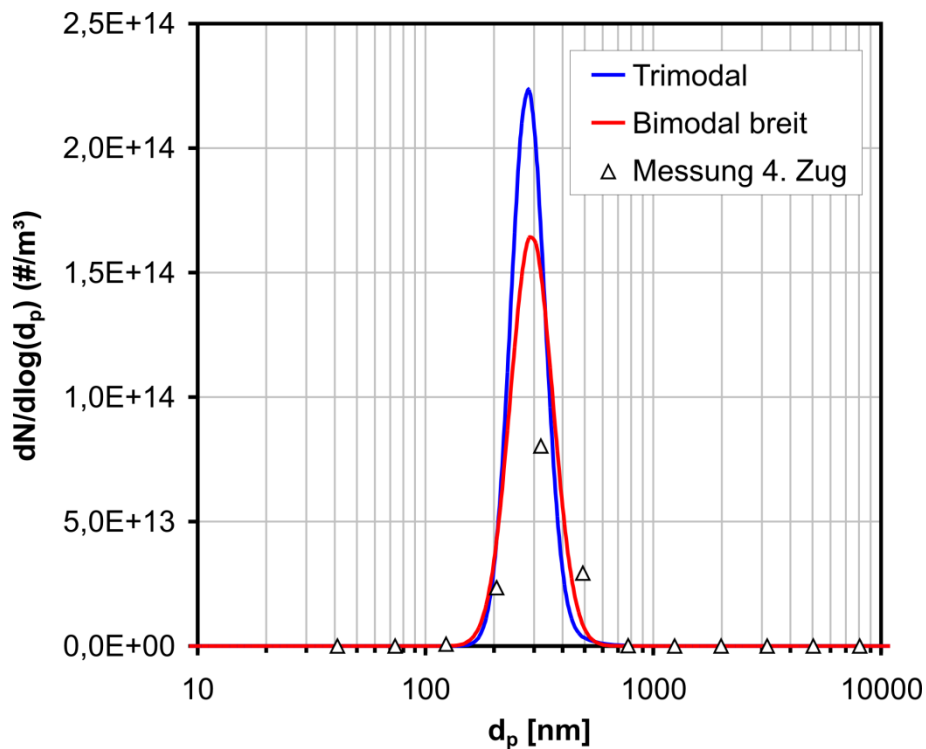


Abbildung 90: Vergleich Simulation und Messung im 4. Zug.

In Abbildung 90 sind die Ergebnisse der numerischen Simulationen für beide Fälle dem Ergebnis der Messungen im vierten Zug des GKS gegenübergestellt. Das Ergebnis zeigt, dass die Lage des Feinstpartikelmodos im vierten Zug hier bereits gut von der Simulation getroffen wird.

Im Rahmen einer Sensitivitätsstudie wurden die relevanten Größen wie Partikelanzahl, Durchmesser und Standardabweichung sowie die Konzentration der Alkalidämpfe weiter variiert. Die beste Übereinstimmung mit den Messdaten ergaben folgende Randbedingungen. Die Dampfkonzentration wurde mit  $0,582 \text{ g/m}^3$  für Natriumchlorid und  $0,453 \text{ g/m}^3$  für Kaliumchlorid angenommen. Die Konzentrationen liegen damit geringfügig unterhalb der Literaturwerte. Der Feinstpartikelmode wurde bei beiden Betrachtungsweisen deutlich verändert. Hier wurden die Partikelanzahl und der mittlere Durchmesser reduziert und gleichzeitig die Breite der Verteilung vergrößert. Tabelle 9 und Tabelle 10 listen die charakteristischen Größen der Verteilungsfunktionen für beide Szenarien.

Mode 1	Mode 2	Mode 3
$N = 5,5 \times 10^{13} \text{ 1/m}^3$	$N = 7,3 \times 10^{11} \text{ 1/m}^3$	$N = 8,38 \times 10^8 \text{ 1/m}^3$
$d_{gn} = 10 \text{ nm}$	$d_{gn} = 250 \text{ nm}$	$d_{gn} = 4 \text{ }\mu\text{m}$
$\sigma = 2,0$	$\sigma = 1,5$	$\sigma = 2,5$

Tabelle 9: Angepasstes trimodales Modellaerosol als Randbedingung der Partikeldynamiksimulation.

Mode 1	Mode 2
$N = 5,5 \times 10^{13} \text{ 1/m}^3$	$N = 8,38 \times 10^8 \text{ 1/m}^3$
$d_{gn} = 30 \text{ nm}$	$d_{gn} = 4 \text{ }\mu\text{m}$
$\sigma = 2,5$	$\sigma = 2,5$

Tabelle 10: Angepasstes bimodales Modellaerosol als Randbedingung der Partikeldynamiksimulation.

Abbildung 91 zeigt die Größenverteilungen der beiden Modellaerosole als Randbedingung der angepassten Partikeldynamiksimulation im Feuerraum. Hierbei wurde wieder die bereits oben vorgestellte Modellvorstellung umgesetzt. Im Gegensatz zur ersten Betrachtung kann hier allerdings, aufgrund der größeren Breite der Verteilung, nicht der gleiche mittlere Partikeldurchmesser für beide Varianten verwendet werden, sondern damit der Feinstmode bei der trimodalen Betrachtung nicht in den messbaren Größenbereich hineinragt, muss der mittlere Partikeldurchmesser auf  $10 \text{ nm}$  reduziert werden.

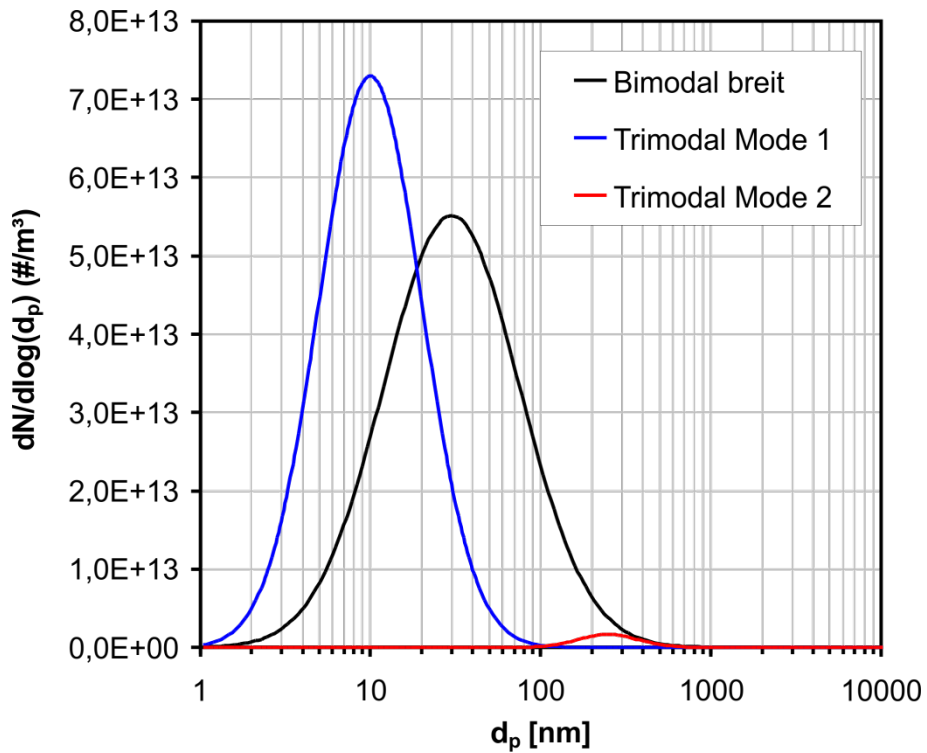


Abbildung 91: Angepasste Randbedingungen der Partikeldynamiksimulation im Feuerraum.

Abbildung 92 zeigt die resultierenden Partikelgrößenverteilungen im vierten Zug.

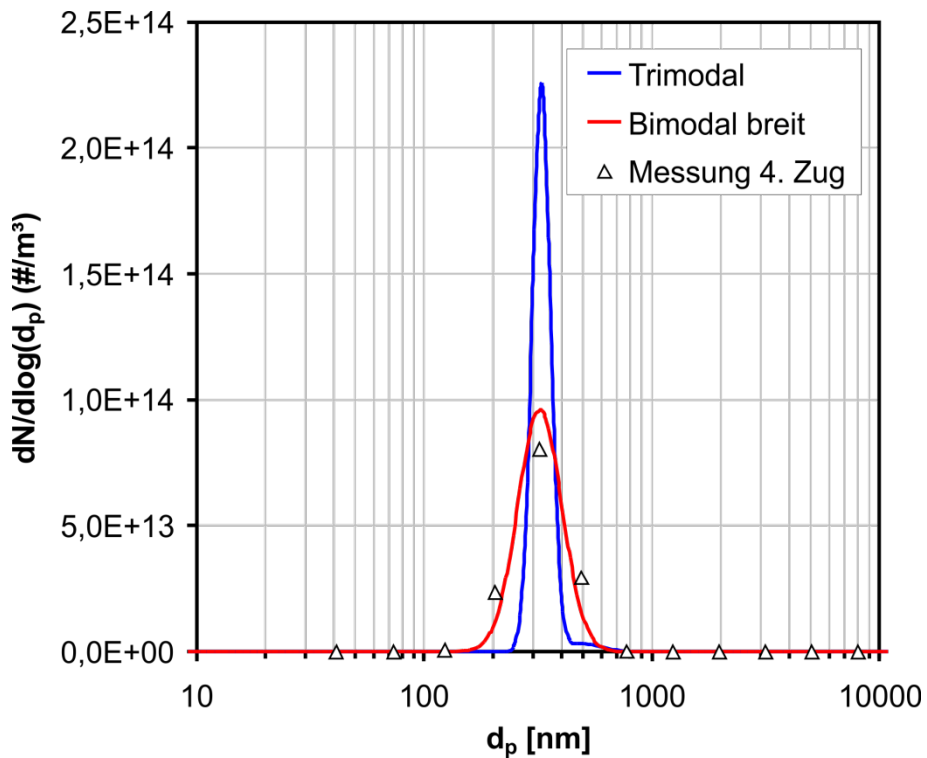


Abbildung 92: Vergleich Simulation und Messung im 4. Zug bei angepassten Randbedingungen.

Es fällt auf, dass die Lage des Maximums in beiden Fällen nahezu identisch ist und darüber hinaus relativ zur Messung noch besser übereinstimmt als bei der vorhergehenden Betrachtung. Bei der bimodalen Simulation konnte die Größenverteilung nahezu exakt an die Messwerte angepasst werden. Bei der trimodalen Simulation ist die Breite der Größenverteilung reduziert und auch der Unterschied zwischen den beiden Betrachtungsweisen größer. Die größere Abweichung zwischen den beiden Simulationen liegt in den unterschiedlichen mittleren Partikeldurchmessern begründet. Bei der trimodalen Betrachtung führt der kleinere mittlere Partikeldurchmesser der Verteilung zu einer deutlich schmaleren Verteilung, so dass geschlussfolgert werden kann, dass ein kleinerer mittlerer Partikeldurchmesser im Feuerraum zu einer schmaleren Verteilungsfunktion im vierten Zug führt. Dies liegt an dem steigenden Einfluss der Kondensation an der Durchmesserergrößerung. Bei größerem mittlerem Partikeldurchmesser im Feuerraum erfährt das Aerosol ein stärkeres Größenwachstum aufgrund von Koagulation. Dies wiederum führt tendenziell zu breiteren Partikelgrößenverteilungen ( $\sigma \rightarrow 1,32$ ) wohingegen stärkere Kondensationseffekte zu schmaleren Partikelgrößenverteilungen führen ( $\sigma \rightarrow 1$ ). Es ist darüber hinaus festzustellen, dass sowohl im Hinblick auf die Breite der Verteilung als auch auf die Partikelanzahl die Annahme eines breiten Feinstpartikelmodes (bimodale Betrachtungsweise) zu einer besseren Übereinstimmung führt als die trimodale Betrachtungsweise. Beide Varianten der Simulation stützen den oben formulierten Erklärungsansatz und geben das tendenzielle Verhalten des Aerosols in der GKS gut wieder. Die durchgeführten Simulationsrechnungen erweisen sich daher als ideale Ergänzung zu den Messungen der Partikelgrößenverteilungen am GKS. Sie leisten einen substantiellen Beitrag bei der Deutung der Messergebnisse und untermauern, trotz der aufgezeigten Grenzen, die Konsistenz der Messmethode. Darüber hinaus ermöglichen die Simulationsrechnungen einen detaillierten Einblick in die Kinetik des Stoffsystems (Lage der Kondensationszone, Partikelneubildung, Gewichtung der Koagulation).

### **D.3 Dreidimensionale Betrachtung am GKS**

Die aus CFX-Simulationen vorliegenden 3D-Strömungssimulationsdaten der Weghaus GmbH wurden entsprechend der zu Beginn des Projektes entwickelten Methode in FLUENT importiert. Abbildung 93 und Abbildung 94 zeigen die in FLUENT importierten Geschwindigkeits- und Temperaturprofile.

Die Geschwindigkeits- und Temperaturprofile sollten als Basis für die 3D-Partikeldynamiksimulationen dienen. Aufgrund technischer Probleme mit der Partikeldynamiksoftware (FPM), war jedoch eine Parallelisierung der Rechnungen auf dem vorhandenen Rechnercluster für den hier betrachteten Fall, entgegen der positiven Erfahrungen mit dem groben Testgitter, nicht möglich. Dieses Problem taucht sporadisch bei Partikeldynamiksimulationen mit dem FPM immer wieder auf und konnte bislang nicht geklärt und vom Hersteller abgestellt werden. Somit müssen sämtliche Simulationen für die gegebene Rechendomäne auf einem einzelnen Rechenknoten durchgeführt werden. Die benötigten Rechenzeiten steigen damit immens. Im hier gezeigten Fall beträgt die Zahl der Finiten Volumina 500.000. Diese soll in den abschließenden Simulationsrechnungen weiter erhöht werden auf etwa 2.000.000 Zellen. Da das FPM zur Betrachtung der Partikeldynamik die Berechnung weiterer 15, an FLUENT gekoppelter, Differentialgleichungen notwendig macht, ist eine 3D-Lösung im Rahmen des Vorhabens nicht praktikabel. Alternativ wurde daher eine quasi 3D-Simulation anhand mehrerer verschiedener Stromfäden aus den 3D-Simulationen durchgeführt.

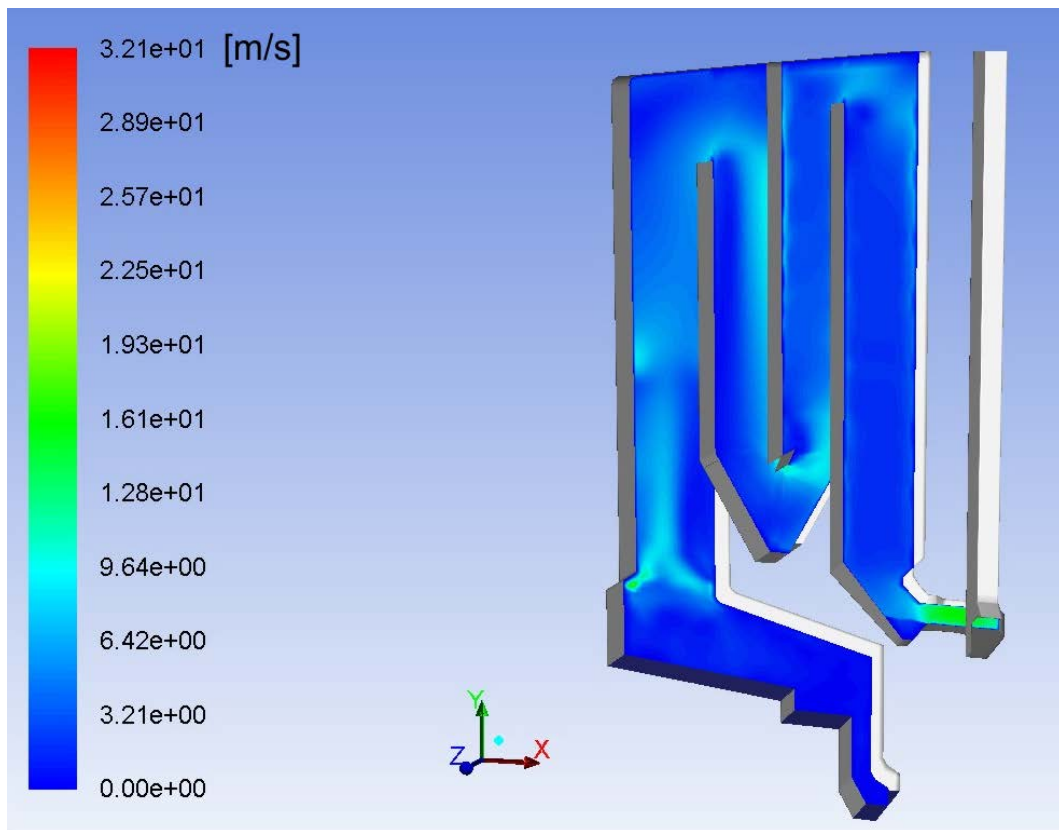


Abbildung 93: 3D-Strömungsprofil aus CFX in FLUENT importiert.

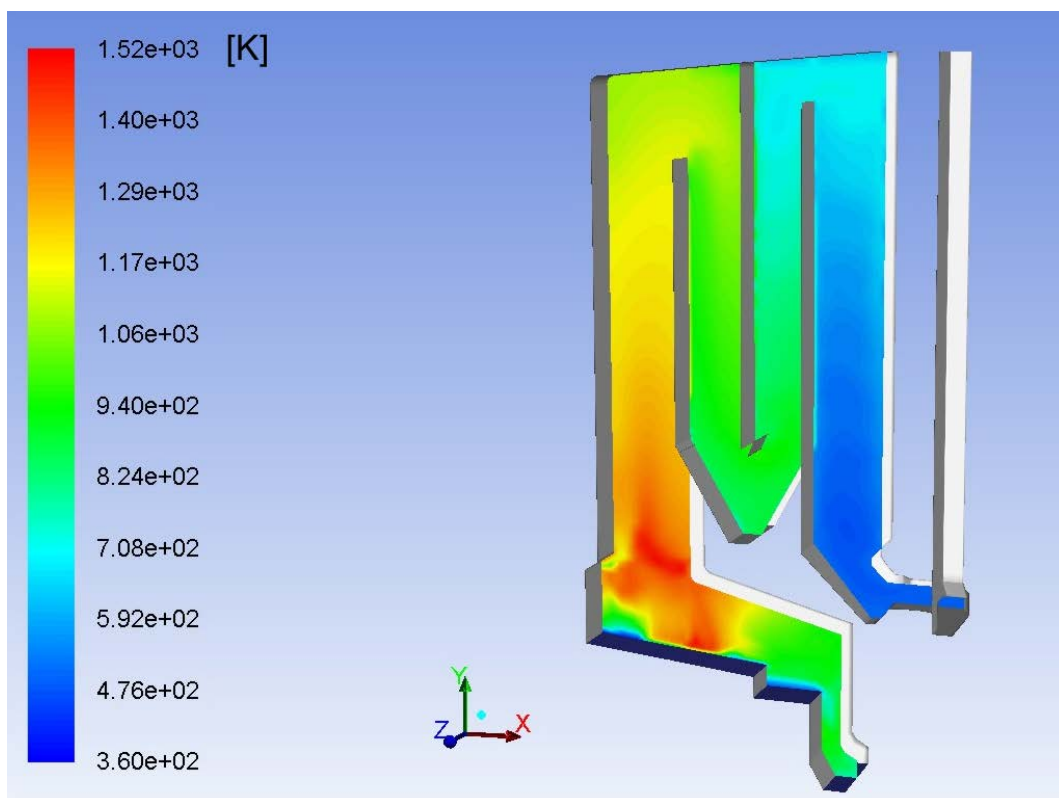


Abbildung 94: 3D-Temperaturprofil aus CFX in FLUENT importiert.

## D.4 Betrachtung einzelner Stromfäden am GKS

Ziel dieser Untersuchungen war es, aufzuzeigen, inwieweit verschiedene Partikelbahnen innerhalb der GKS, mit den zugehörigen leicht abweichenden Temperaturverläufen und Verweilzeiten, zu einer Streuung der Partikeleigenschaften um den bereits betrachteten mittleren Anlagenzustand führen. Abbildung 95 zeigt das 3-D-Temperaturprofil aus CFX und die ausgewählten Stromfäden als vorgegebene Partikelbahnen durch die GKS.

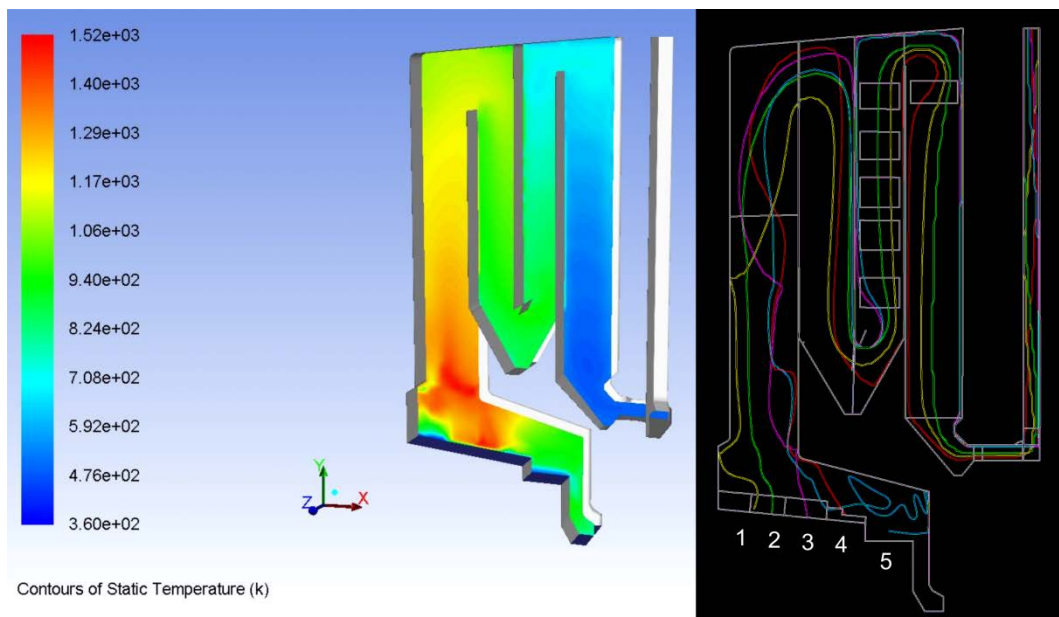


Abbildung 95: 3D-Temperaturprofil aus CFX und die ausgewählten Stromfäden als vorgegebene Partikelbahnen durch die GKS.

Dabei wurde, ausgehend von jeder Brennbettzone, ein Stromfaden anhand einer 1D-Simulation betrachtet. Da hier submikrone Partikel betrachtet werden, die keine signifikante Trägheit besitzen, kann davon ausgegangen werden, dass die Stromfäden mit den resultierenden Partikelbahnen übereinstimmen. Es ergeben sich durch diese Betrachtungsweise somit 5 deutlich verschiedene Partikelbahnen durch die Anlage. Abbildung 96 zeigt die Temperaturverläufe der unterschiedlichen Stromlinien entlang der Anlage sowie das gemessene Temperaturprofil.

Deutlich sind die Abweichungen der Temperaturverläufe über der Stromfadenlänge erkennbar. Vergleicht man diese mit dem an der Anlage gemessenen Temperaturprofil, so fällt auf, dass die Stromfäden 1 und 2 sehr gut mit dem gemessenen Profil übereinstimmen. Bei genauerer Betrachtung der Partikelbahnen (siehe Abbildung 95), wird deutlich, dass diese beiden Bahnen überwiegend in der Mitte der Rauchgaszüge verlaufen. Die drei anderen Bahnen zeigen teilweise abweichende Wege durch die Anlage. Es ist damit sichergestellt, dass eine deutliche Varianz in den betrachteten Partikelbahnen abgebildet ist.

Abbildung 97 zeigt die resultierenden Partikelgrößenverteilungen (PGV) für die 5 Partikelbahnen im Vergleich zur Messung und dem bislang verwendeten linearen Temperaturprofil.

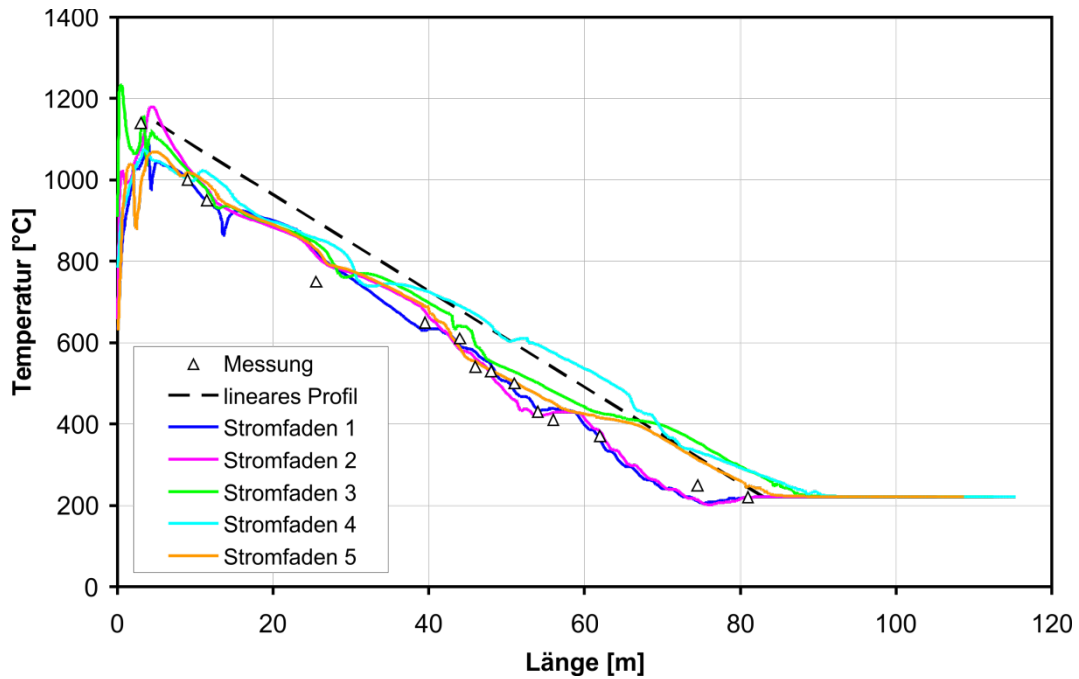


Abbildung 96: Temperaturverläufe der unterschiedlichen Stromlinien entlang der Anlage und gemessenes Temperaturprofil.

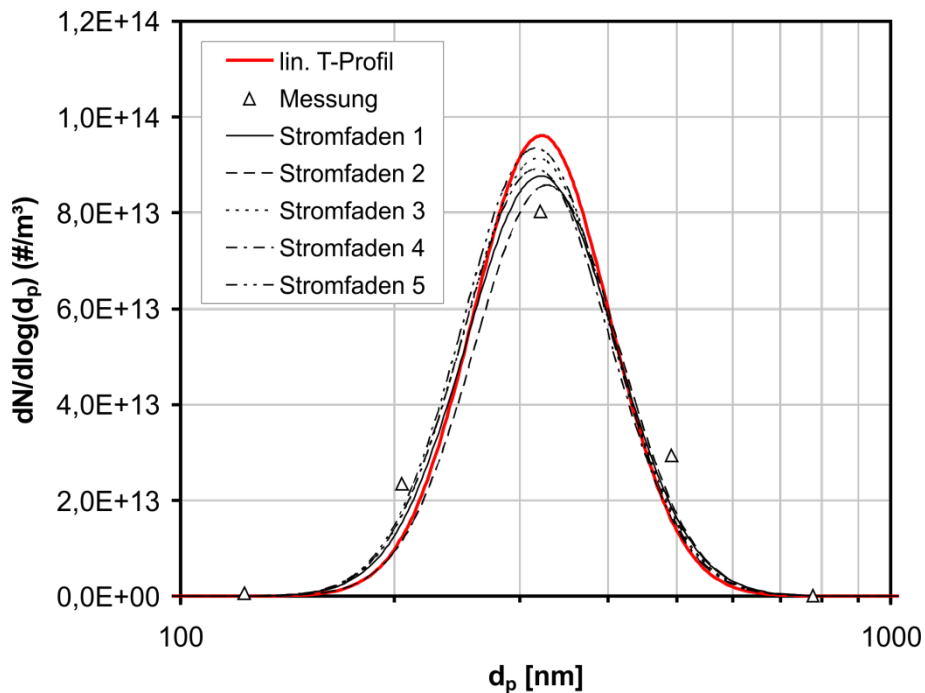


Abbildung 97: Resultierende Partikelgrößenverteilungen (PGV) im 4. Zug für fünf Partikelbahnen im Vergleich zur Messung und dem bislang verwendeten linearen Temperaturprofil.

Es ist deutlich erkennbar, dass die unterschiedlichen Temperatur- und Verweilzeitverläufe der verschiedenen Stromfäden keinen signifikanten Einfluss auf die entstehende PGV besitzen. Es ergibt sich eher eine geringfügige Streuung und eine minimale Verbreiterung der PGV, was die gemessenen Werte nochmals besser abbildet.

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass die Betrachtung der Partikeldynamik anhand einer 1D Simulation bereits bei Verwendung eines mittleren Temperaturprofils eine gute Vergleichbarkeit mit Messergebnissen liefert, welche durch die Betrachtung von „realen“ Stromfäden noch erhöht werden konnte.

## D.5 Untersuchungen zur Kinetik der Partikeldynamik

Neben den bislang gezeigten Vergleichen der Partikeldynamik im vierten Zug der GKS werden im Folgenden auch Vergleiche zwischen Messungen und Simulationen über alle Rauchgaszüge der GKS durchgeführt und interpretiert. Dabei dienen zwei Messkampagnen, die im Februar und August 2015 durchgeführt wurden, als Basis. Abbildung 98 zeigt die gemessenen Gesamtstaubkonzentrationen im Verlauf der Anlage.

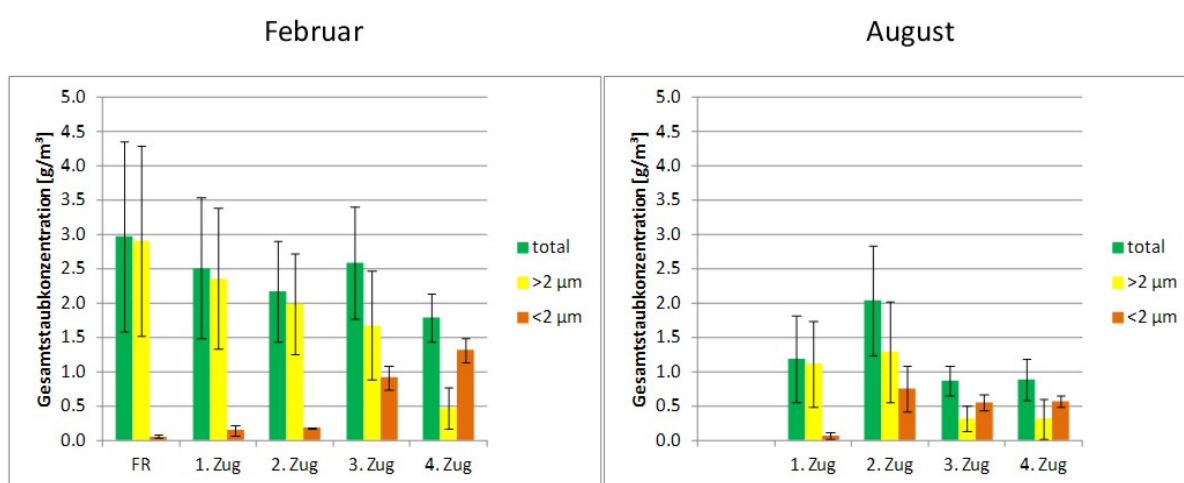


Abbildung 98: Gesamtstaubkonzentration Messungen Februar und August 2015.

Es ist deutlich zu erkennen, dass bei beiden Messungen eine unterschiedliche Gesamtstaubkonzentration zugrunde liegt. Die Gesamtstaubkonzentration im August beträgt nur etwa die Hälfte der Konzentration im Februar. Darüber hinaus ist zu erkennen, dass in beiden Messungen der Anteil der Partikelmasse unterhalb 2 µm Größe im Anlagenverlauf ansteigt, wohingegen die Masse der Partikel größer 2 µm aufgrund von Deposition auf Oberflächen abnimmt. Vergleicht man die Zunahme der Masse in der Fraktion < 2 µm, so fällt auf, dass auch diese bei der Messung im August nur etwa halb so groß ist, wie im Februar. Dies deutet darauf hin, dass neben der deutlich geringeren aus der Feuerung freigesetzten Partikelmasse auch die freigesetzte Salzmenge in etwa halb so groß sein sollte.

Es fällt jedoch auch auf, dass die Lage der Kondensationszone bei beiden Messungen unterschiedlich zu sein scheint. Während die Hauptkondensationszone in der Messung vom Februar 2015 zwischen der Messstelle im zweiten Zug und der Messstelle im dritten Zug liegt, scheint sie bei der Messung im August noch vor der Messstelle im zweiten Zug zu liegen. Dies scheint vorläufig einen Widerspruch darzustellen, da die geringere Dampfmenge im August eher zu einer späteren Kondensationszone führen sollte. Der Vergleich mit Simulationsrechnungen soll im Folgenden einen tieferen Einblick in die Kinetik des Prozesses liefern. Abbildung 99 und Abbildung 100 zeigen die berechneten PGV entlang der GKS Rauchgaszüge. In bei-

den Fällen wird eine gute Übereinstimmung mit den Messungen im vierten Zug erreicht.

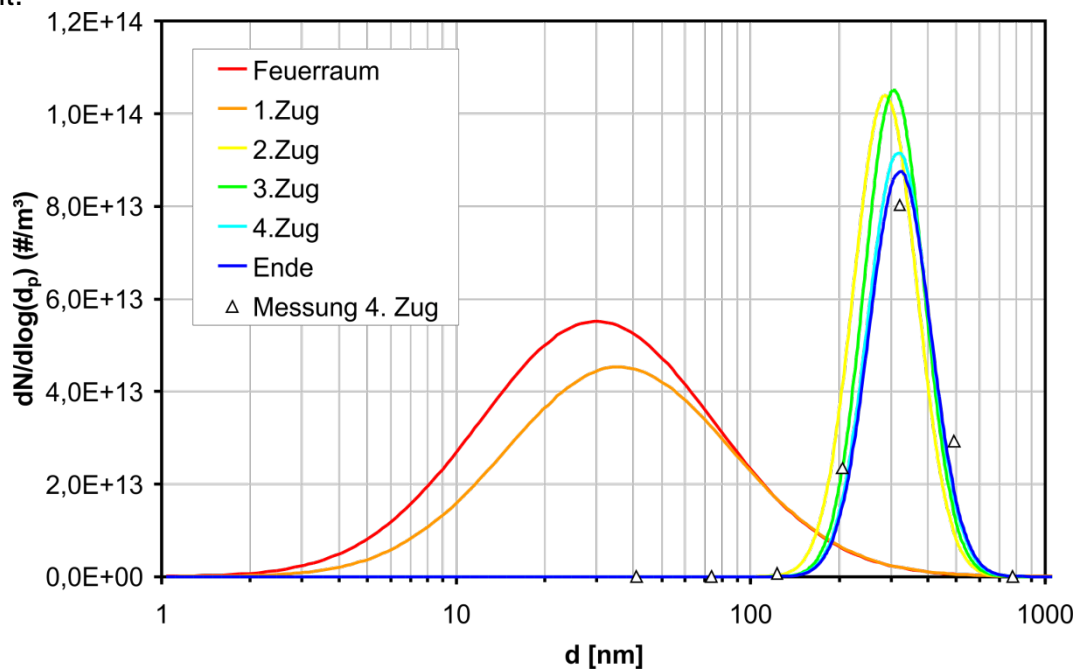


Abbildung 99: Berechnete PGV im Verlauf der GKS (Randbedingungen Februar 2015).

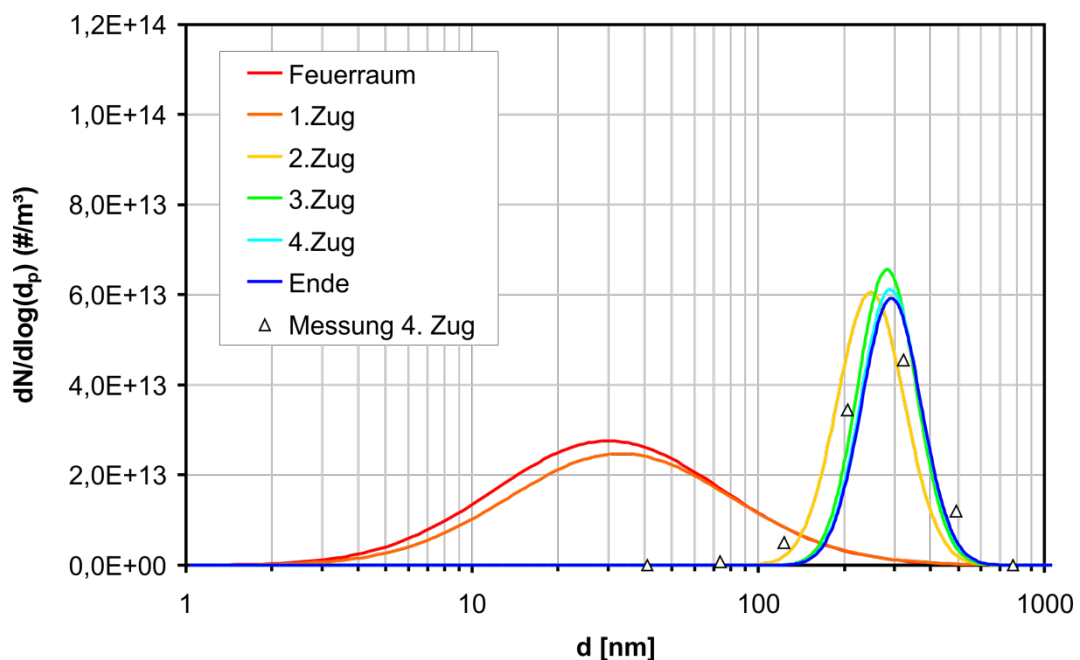


Abbildung 100: Berechnete PGV im Verlauf der GKS (Randbedingungen August 2015; halbierte Partikelanzahl und Dampfkonzentration).

Neben der guten Übereinstimmung mit Messdaten im vierten Zug fällt sehr deutlich die Lage der Kondensationszone auf. Während die Messungen hier unterschiedliches Verhalten zeigen, deuten die Simulationen unter den gegebenen Randbedingungen in beiden Fällen auf eine Kondensationszone vor der Messstelle im zweiten Zug (Abbildung 99) bzw. hauptsächlich vor der Messstelle im zweiten Zug

(Abbildung 100) hin. Die Lage der Kondensationszone lässt sich gut erkennen an der starken Veränderung der Form der PGV. Während die PGV sich zwischen dem Feuerraum und dem ersten Zug nur geringfügig aufgrund von Koagulationseffekten verändert, führt das Einsetzen der Salzkondensation zu einer schlagartigen Verschmälerung der PGV. Danach verändert sich die PGV wiederum nur geringfügig durch Koagulation. Um diese Diskrepanz im gezeigten Verhalten des Aerosols zu erklären, wurde im Folgenden das Temperaturprofil im Bereich um die Messstelle im 2. Zug in der 3-D-Simulation sehr fein aufgelöst. Abbildung 101 zeigt den Temperaturplot um die 2. Messstelle.

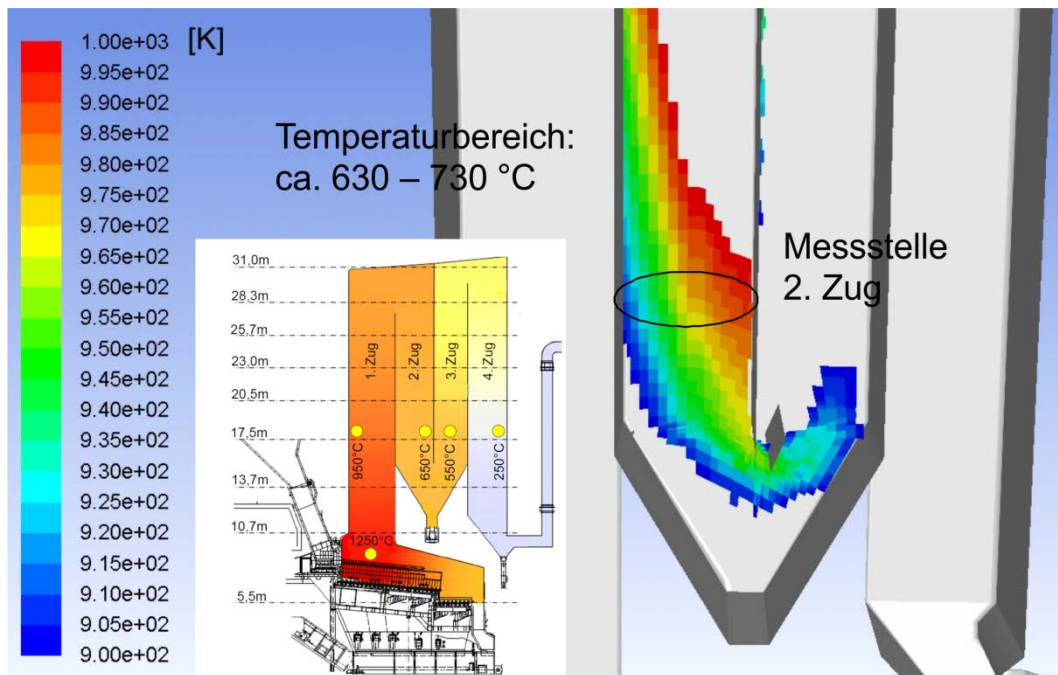


Abbildung 101: Temperaturplot im Bereich der Messstelle des 2. Zugs.

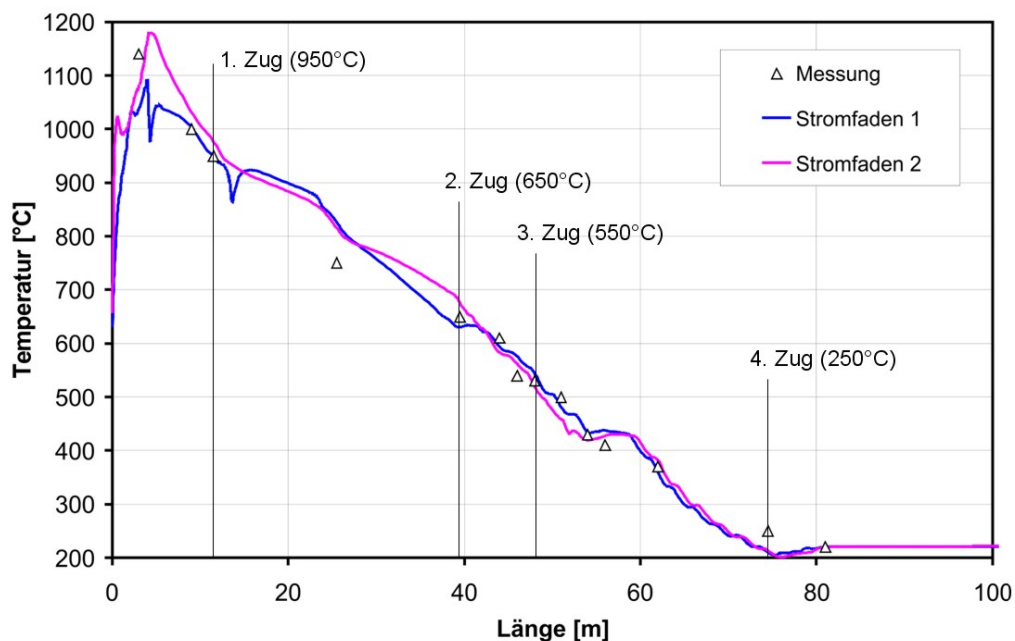


Abbildung 102: Temperaturverlauf zweier Stromfäden durch die Anlage (vgl. nominelle Messstellentemperatur und Stromlinien).

Hier zeigt sich ein ausgeprägtes Temperaturprofil im Bereich der Messstelle im zweiten Zug, das zwischen Vorder- und Rückwand des Kanals zwischen ca. 630 und 730 °C schwankt. Es handelt sich hierbei exakt um den Temperaturbereich, in dem die Sättigung des Rauchgases erfolgt und Kondensationseffekte einsetzen. Wird zusätzlich davon ausgegangen, dass im Betrieb der Anlage Fluktuationen stattfinden sowie eventuell geringfügig unterschiedliche Sondenpositionen bei den beiden Messkampagnen vorgelegen haben könnten, so ist denkbar, dass dies zu einer deutlichen Verschiebung der Kondensationszone bzw. zu Variationen im Messergebnis führen kann. Abbildung 102 zeigt die Temperaturverläufe zweier Stromfäden durch die Anlage.

Besonders hervorzuheben ist hier die Abweichung im Bereich der Messstelle im zweiten Zug aufgrund der verschiedenen Flugbahnen. Die nominelle Messstellentemperatur liegt bei etwa 650 °C. Um den Effekt einer Temperaturschwankung nach oben um 100 °C zu simulieren, sind die Ergebnisse aus Abbildung 99 und Abbildung 100 im Folgenden dargestellt mit einer Temperatur von 750 °C an der Messstelle im zweiten Zug.

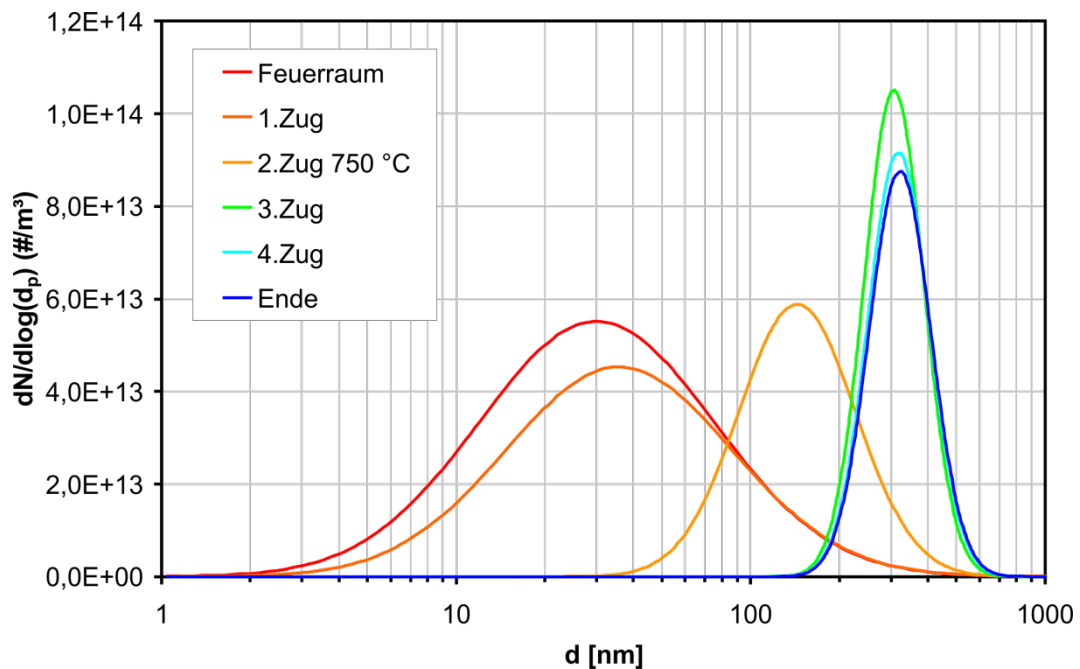


Abbildung 103: Berechnete PGV im Verlauf der GKS (Randbedingungen Februar 2015); Messstelle 2. Zug auf 750 °C gesetzt.

Vergleicht man Abbildung 103 und Abbildung 99, so ist deutlich die Veränderung der PGV im 2. Zug erkennbar. Unter den Randbedingungen der Messung im Februar 2015 kommt es zu einer deutlichen Verschiebung der Kondensationszone. Die Messstelle würde nun mitten in der Kondensationszone liegen und ein nur teilweise kondensiertes Aerosol zeigen. Abbildung 104 zeigt die Simulation unter den Bedingungen der Messung vom August 2015 mit einer Messstellentemperatur im 2. Zug von 750 °C.

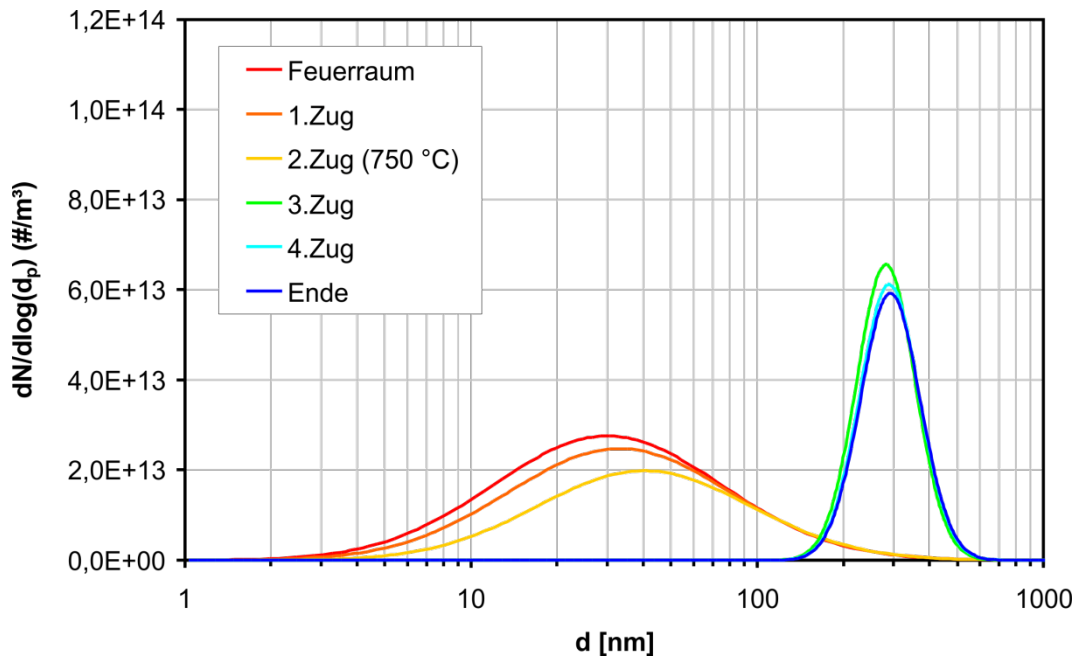


Abbildung 104: Berechnete PGV im Verlauf der GKS (Randbedingungen August 2015); Messstelle 2. Zug auf 750 °C gesetzt.

Aufgrund der halbierten Dampfkonzentration liegt hier die Messstelle im zweiten Zug nun deutlich vor der Kondensationszone. Die PGV ist durch Koagulationseffekte dominiert. Um die physikalischen Zusammenhänge weiter zu verdeutlichen, zeigt Abbildung 105 den mittleren Partikeldurchmesser und die Dampfkonzentrationen aufgetragen über der Temperatur innerhalb der Anlage für beide Randbedingungen. Der Temperaturbereich der Messstelle im zweiten Zug und im dritten Zug ist hier grau hinterlegt.

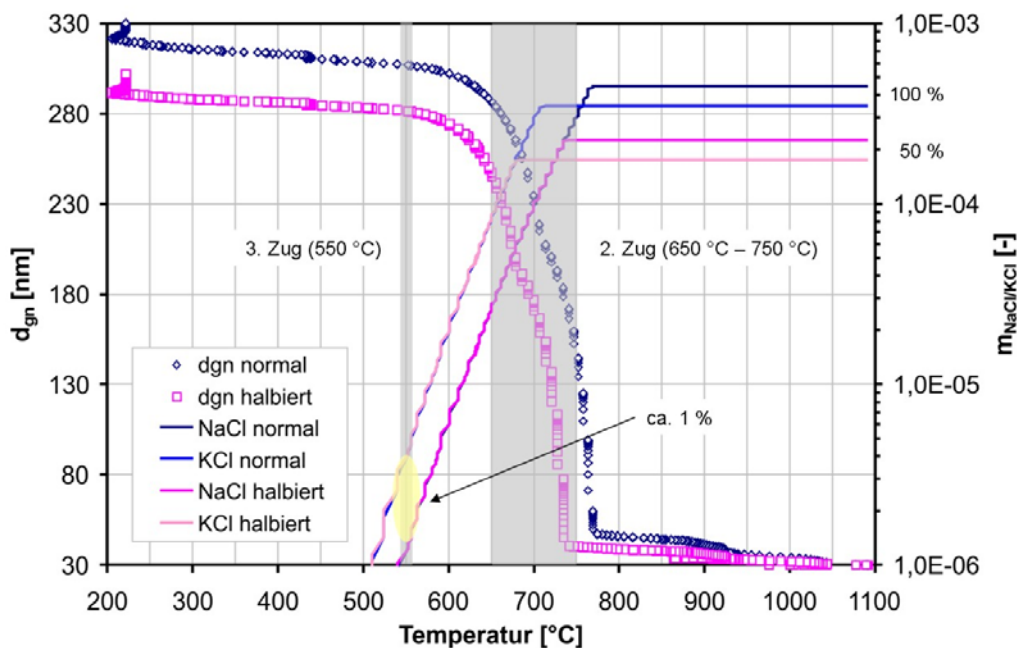


Abbildung 105: Mittlerer Partikeldurchmesser und Dampfkonzentrationen aufgetragen über der Temperatur für beide Randbedingungen.

Es lässt sich sehr gut erkennen, dass geringfügige Temperaturschwankungen an der Messstelle im zweiten Zug zu stark veränderten Ergebnissen führen können, während die Messstelle im dritten Zug deutlich außerhalb der Hauptkondensationszone liegt und hier immer ein vollständig auskondensiertes Aerosol gemessen werden sollte. Darüber hinaus lässt sich jedoch auch erkennen, dass im Bereich des besonders korrosionsgefährdeten Überhitzers, kurz vor der Messstelle im dritten Zug, noch eine Restdampfkonzentration von etwa 1 % der im Feuerraum freigesetzten Menge im Rauchgas vorliegt. Aufgrund der deutlich niedrigeren Temperatur der Überhitzeroberfläche gegenüber dem Rauchgas, ist davon auszugehen, dass es dort zu einer direkten Kondensation der Salze auf den Rohroberflächen kommen kann.

## D.6 Vergleich mit dem AEZ Asdonkshof

Als Vergleichsanlage wurde das Abfallentsorgungszentrum Asdonkshof (AEZ) in Kamp-Lintfort ausgewählt, da diese Anlage deutlich niedrigere Korrosionswerte aufweist als das GKS. Wesentlicher Unterschied der beiden Anlagen ist die Gestaltung der Rostfeuerung. Während das GKS mit einer Gegenstromfeuerung arbeitet, ist das AEZ mit einer Gleichstromfeuerung ausgestattet. Die Messwerte am AEZ zeigen einen vergleichbaren Temperaturverlauf, jedoch deutlich niedrigere Partikelkonzentrationen (siehe Abbildung 106)

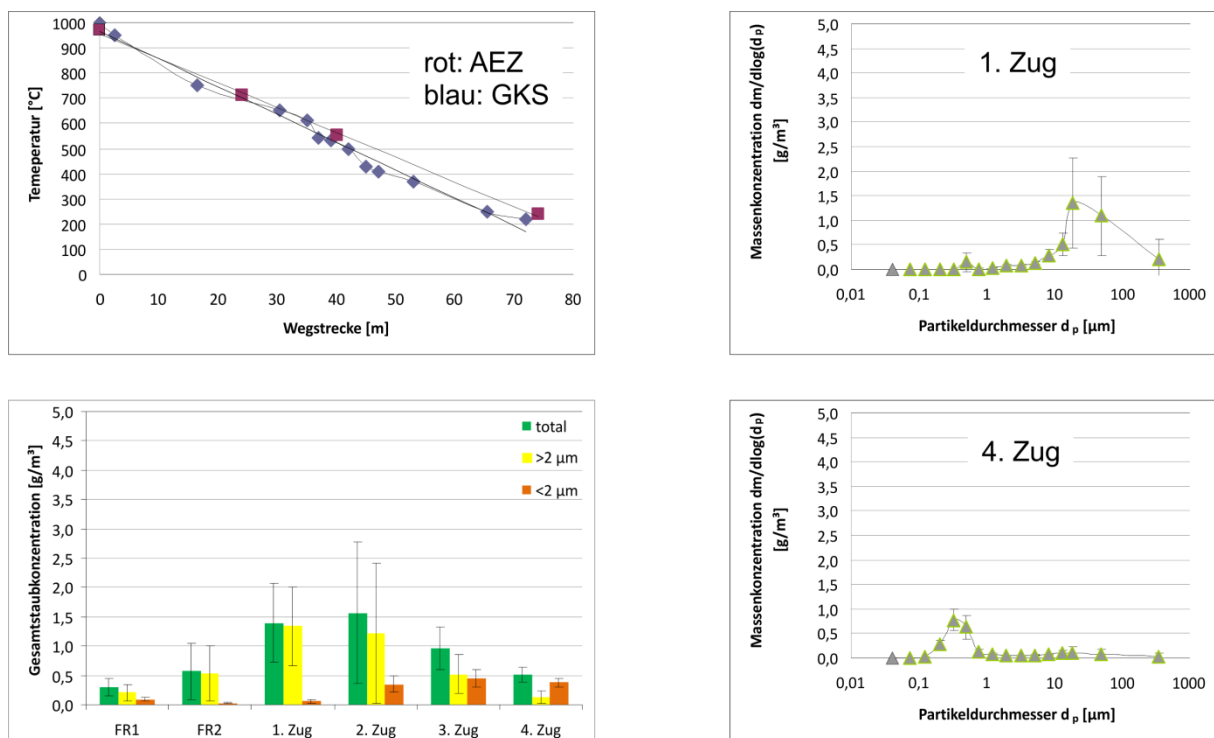


Abbildung 106: Temperaturverlauf und Partikelkonzentrationen am AEZ in Kamp-Lintfort.

Die Größenverteilung des Aerosols ähnelt in Bezug auf die Lage der Konzentrationsmaxima sehr der am GKS gemessenen Verteilung. Aus den Messwerten wurde, analog zur Vorgehensweise am GKS, wieder ein Modellaerosol als Randbedingung für die Simulationsrechnungen generiert. Abbildung 107 zeigt das an die Messwerte im ersten Zug angenäherte bimodale Modellaerosol.

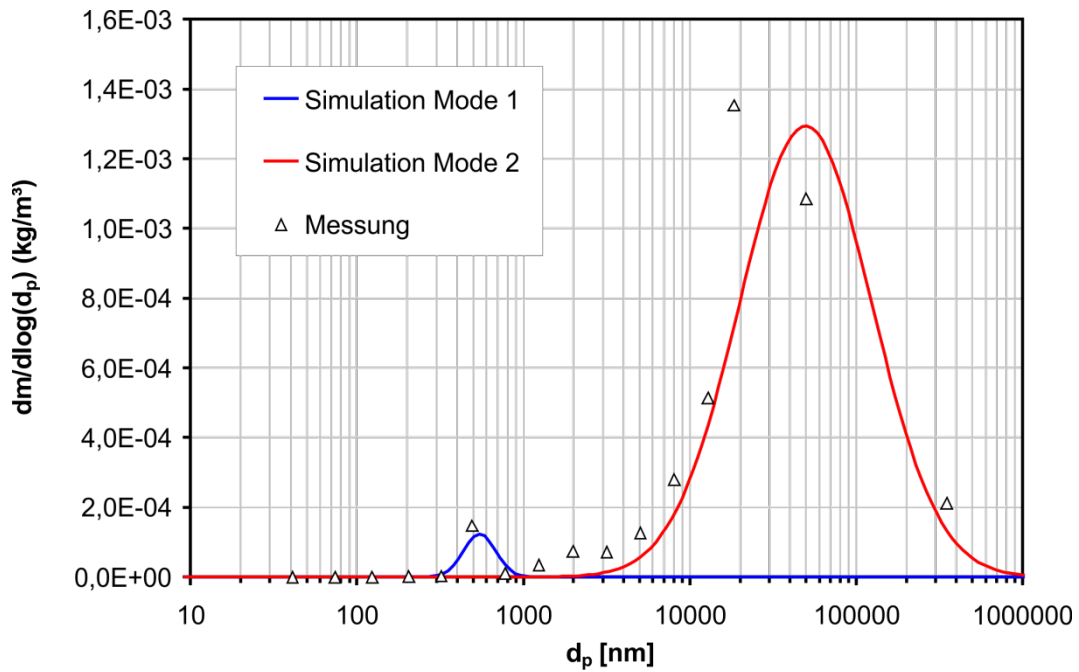


Abbildung 107: Gemessene und generierte Massenverteilung im 1. Zug des AEZ

Aus den Erkenntnissen am GKS wurde der gemessene Feinstpartikelmode wiederum angepasst und sowohl eine bimodale als auch trimodale Simulation durchgeführt. Abbildung 108 zeigt die gewählten Randbedingungen in graphischer Form.

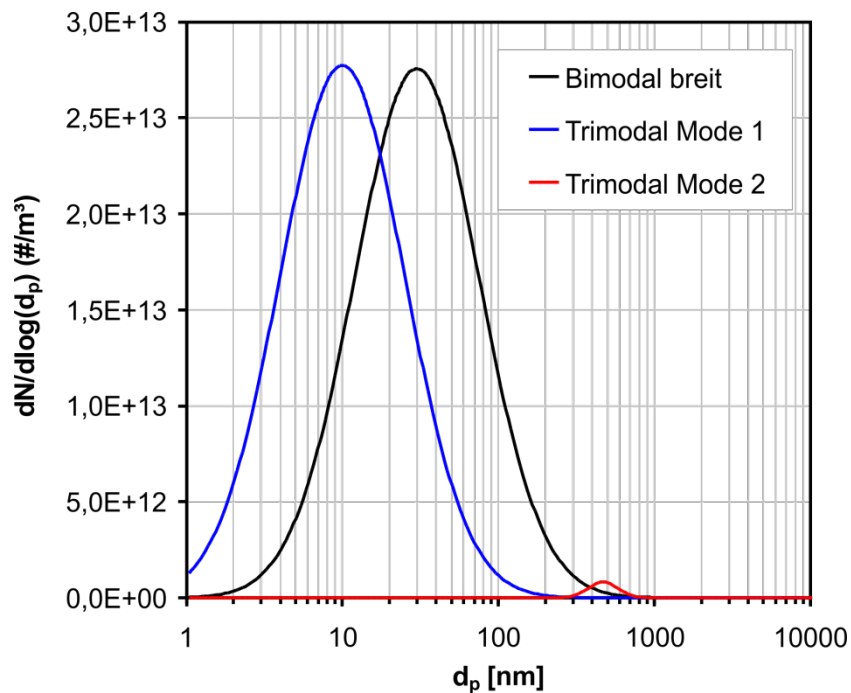


Abbildung 108: Randbedingungen der Partikeldynamiksimulation im 1. Zug des AEZ.

Tabelle 11 zeigt die gewählten Randbedingungen der Simulationen für die GKS und AEZ tabellarisch gegenübergestellt. Die Partikelkonzentration im groben Mode beim AEZ beträgt in etwa die Hälfte. Entsprechend wurde die Anzahl des Feinstpartikelmodes ebenfalls halbiert angenommen. Die Vorgabe für die aus dem Feuerraum

ausgasende Salzfracht wurde mit  $0,32 \text{ g/m}^3$  deutlich niedriger angesetzt und orientiert sich, analog zur Vorgehensweise beim GKS, an der Gewichtszunahme im Partikelgrößenbereich  $< 2 \mu\text{m}$  vom ersten bis zum vierten Zug (vgl. Abbildung 106).

GKS

AEZ

Trimodale Betrachtung:

Mode1	Mode2	Mode3	Mode1	Mode2	Mode3
$N = 5,5 \text{ E}+13 \text{ 1/m}^3$	$N = 7,3 \text{ E}+11 \text{ 1/m}^3$	$N = 8,38 \text{ E}+08 \text{ 1/m}^3$	$N = 2,75 \text{ E}+13 \text{ 1/m}^3$	$N = 2,0 \text{ E}+11 \text{ 1/m}^3$	$N = 4,0 \text{ E}+08 \text{ 1/m}^3$
$d_{gn} = 10 \text{ nm}$	$d_{gn} = 250 \text{ nm}$	$d_{gn} = 4\mu\text{m}$	$d_{gn} = 10 \text{ nm}$	$d_{gn} = 470 \text{ nm}$	$d_{gn} = 4\mu\text{m}$
$\sigma = 2,0$	$\sigma = 1,5$	$\sigma = 2,5$	$\sigma = 2,5$	$\sigma = 1,25$	$\sigma = 2,5$

Bimodale Betrachtung mit breitem Feinstpartikelmode:

Mode 1	Mode 2	Mode 1	Mode 2
$N = 5,5 \text{ E} 13 \text{ 1/m}^3$	$N = 8,38 \text{ E}+08 \text{ 1/m}^3$	$N = 2,75 \text{ E}+13 \text{ 1/m}^3$	$N = 4,0 \text{ E}+08 \text{ 1/m}^3$
$d_{gn} = 30 \text{ nm}$	$d_{gn} = 4\mu\text{m}$	$d_{gn} = 30 \text{ nm}$	$d_{gn} = 4\mu\text{m}$
$\sigma = 2,5$	$\sigma = 2,5$	$\sigma = 2,5$	$\sigma = 2,5$

Randbedingung Salzkonzentration:

$$\left. \begin{array}{l} \text{NaCl} = 0,582 \text{ g/m}^3 \\ \text{KCl} = 0,453 \text{ g/m}^3 \end{array} \right\} 1,035 \text{ g/m}^3 \qquad \left. \begin{array}{l} \text{NaCl} = 0,18 \text{ g/m}^3 \\ \text{KCl} = 0,14 \text{ g/m}^3 \end{array} \right\} 0,32 \text{ g/m}^3$$

Tabelle 11: Angepasstes Modellaerosol als Randbedingung der Partikeldynamiksimulation; Gegenüberstellung GKS und AEZ.

Die Ergebnisse der Simulationsrechnungen im vierten Zug sind grafisch dargestellt in Abbildung 109.

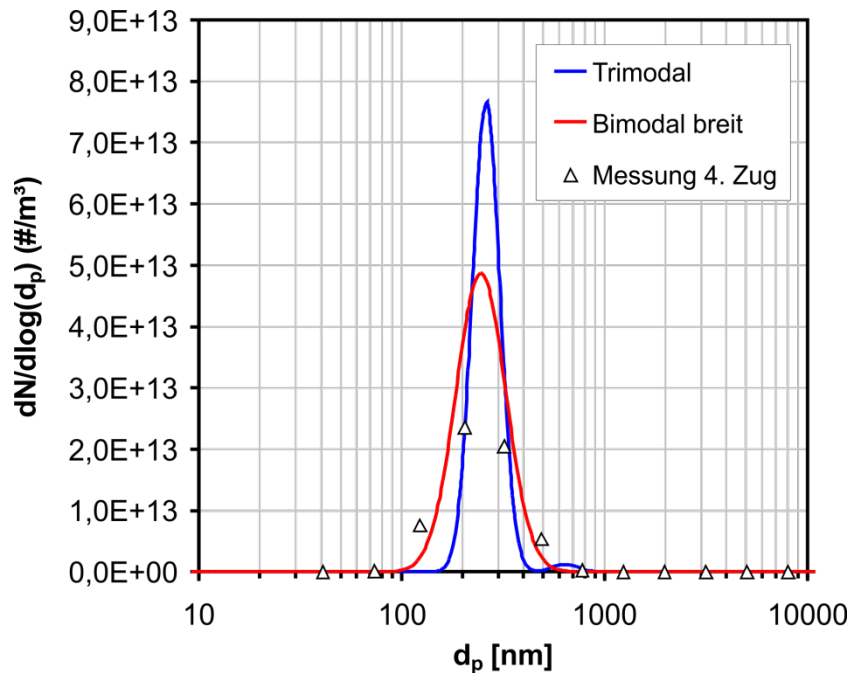


Abbildung 109: Vergleich Simulation und Messung im 4. Zug des AEZ.

Es zeigt sich auch hier eine gute Übereinstimmung mit den Messwerten für die bimodale Betrachtungsweise mit extrem breitem Feinstpartikelmode. Allerdings ist die Lage des Feinstpartikelmodes auch bei der trimodalen Simulationsrechnung gut getroffen. Lediglich die Breite der Verteilung wird, wie bereits bei der Simulation des GKS, unterschätzt. Da die Salzkonzentration im Feuerraum nicht messtechnisch bestimmt wird, sondern aus den Messdaten der Gewichtszunahme im Feinstpartikelmode zurückgerechnet wird, wurde zusätzlich die Sensitivität des Systems auf schwankende Salzkonzentrationen überprüft. Das Verhältnis von NaCl und KCl wurde dabei konstant gehalten. Das Ergebnis dieser Sensitivitätsstudie ist graphisch in Abbildung 110 dargestellt.

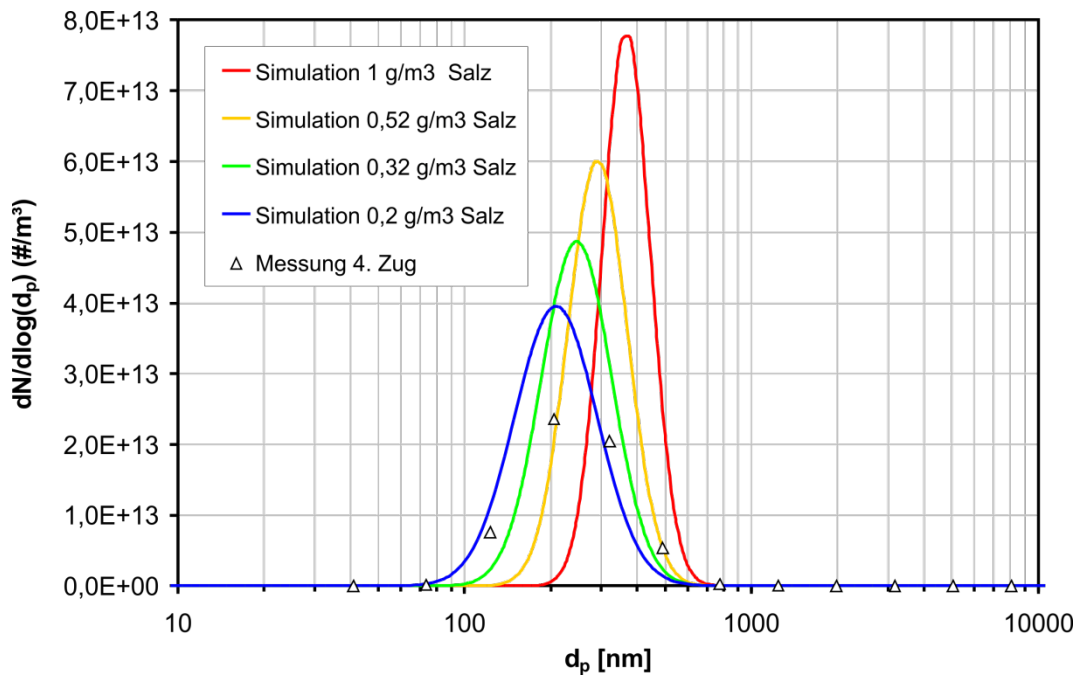


Abbildung 110: Partikelgrößenverteilung im 4. Zug des AEZ bei verschiedenen Salzdampfkonzentrationen.

Deutlich zu erkennen ist die Verschiebung der Größenverteilung zu größeren Partikeldurchmessern bei steigendem Salzgehalt. Gleichzeitig wird die Verteilung schmaler und damit das Konzentrationsmaximum höher. Eine Veränderung der Größenverteilung im vierten Zug, wie bei Erhöhung der Salzkonzentration von  $0,32 \text{ g/m}^3$  auf  $1 \text{ g/m}^3$  in der Simulation zu beobachten, sollte messtechnisch an der MVA nachvollzogen werden können, so dass es plausibel scheint, dass die Salzkonzentration in der MVA Asdonkshof bei der durchgeführten Messkampagne deutlich unterhalb der in Schweinfurt ermittelten Werte lag.

## E Elektrostatische Partikelabscheidung

Bei der Abscheidung von Partikeln an Kesselwänden oder Überhitzerrohren können elektrostatische Effekte eine große Rolle spielen. Zum einen sind die Oberflächen oxidiert und somit vermutlich schlecht leitfähig, sodass sich hier Ladungen ansammeln und elektrische Felder aufbauen können. Zum anderen verschiebt sich bei hohen Temperaturen durch Thermoionisation das Ladungsgleichgewicht von Partikeln gegenüber einer Boltzmannverteilung mit weitgehend ungeladenen Partikeln deutlich hin zu stark geladenen Partikeln. Um die Relevanz der elektrostatischen Effekte ab-

schätzen zu können, ist es somit essentiell den Ladungszustand der luftgetragenen Partikel zu kennen. Neben numerischen Simulationen sollten dazu im Rahmen des Projektes auch Messungen durchgeführt werden.

Ursprünglich war dazu die Absaugung des Aerosols zur anschließenden Messung der Summenladung mit einem Aerosolelektrometer oder die Messung der Ladungsverteilung mittels zweier differentieller Mobilitätsanalysatoren angedacht. Aufgrund der mittlerweile gewonnenen Erkenntnis, dass Kondensationsartefakte bei einer extraktiven Probenahme nicht vermieden werden können, erweist sich diese Methode jedoch nicht als erfolgversprechend. Zudem ist zu bedenken, dass sich der Ladungszustand der Partikel, welcher bei hohen Temperaturen hauptsächlich auf Thermoionisation zurückzuführen ist, während der Abkühlung stark verändert und somit nicht der tatsächliche Ladungszustand im Kessel gemessen wird.

Gegen letzteres könnte eine Ionenfalle Abhilfe schaffen, die sich beispielsweise durch ein elektrisches Wechselfeld um das Absaugrohr realisieren lässt. Die Gasionen werden aufgrund ihrer hohen elektrischen Mobilität abgeschieden, während die trägeren geladenen Partikel die Ionenfalle passieren können. Da die Partikel bei rascher Abkühlung thermisch keine weiteren Elektronen emittieren und keine Ionen zur Rekombination zur Verfügung stehen, bleibt der Ladungszustand idealerweise eingefroren und kann im Anschluss vermessen werden. Ein solcher Ansatz wurde beispielsweise zuvor im Projekt [AiF149Z] verfolgt. Hier wurden jedoch hohe negative Partikelladungen gefunden, was sich nicht durch Thermoionisation erklären lässt, da die Emission von Elektronen zu positiven Partikelladungen führen sollte. Die Beobachtung konnte durch die thermische Emission der Oberfläche des Absaugrohres erklärt werden. Dies bedeutet, dass auch bei Verwendung einer Ionenfalle der durch die Thermoemission des Absaugrohres dominierte Ladungszustand der Partikel und nicht der tatsächliche im Kessel gemessen.

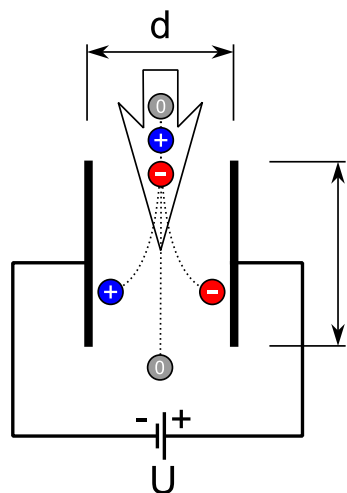


Abbildung 111: Plattenkondensator zur Bestimmung des Ladungszustandes der Partikel im Kessel.

Somit verbleibt nur ein Ansatz, der den Ladungszustand direkt im Heißgas zu vermessen sucht. Eine einfache Möglichkeit ist das Einbringen zweier planparalleler Kondensatorplatten in den Rauchgasstrom (siehe Abbildung 111). Unter Spannung sollte dann die bevorzugte Abscheidung von Partikeln auf einer der beiden Platten zu

beobachten sein, was einen zumindest qualitativen Rückschluss auf den Ladungszustand zulässt. Das Ergebnis kann durch Umpolen der Spannung validiert werden.

Um die Möglichkeit der Verwendung eines solchen Plattenkondensators zu prüfen, soll die folgende Abschätzung dienen: Um ein Einführen der Sonde auch durch die kleinsten Stutzen in der Kesselwand zu ermöglichen, darf die Bauhöhe  $l$  nicht mehr als 50 mm betragen. Bei einer Strömungsgeschwindigkeit von 5 m/s ergibt sich so eine Verweilzeit zwischen den Platten von 10 ms. Für die Driftgeschwindigkeit  $v$  eines Partikels mit Durchmesser  $d_p$  und Ladung  $q_p$  im elektrischen Feld  $E = U/d$  des Plattenkondensators gilt

$$v = \frac{C_C q_p U}{3\pi\eta d_p d} \quad (59)$$

Hierbei bezeichnet  $\eta$  die Viskosität des umgebenden Gases ( $5 \cdot 10^{-5}$  Pas für Luft bei 1000°C) und  $C_C$  den Cunningham-Korrekturfaktor, welcher für Partikel größer 1  $\mu\text{m}$  in guter Näherung als Eins angenommen werden kann. Die maximal mögliche Feldstärke  $U/d$  liegt aufgrund der hohen Konzentrationen von Partikeln, Ionen und Elektronen im Rauchgas vermutlich deutlich unter den bekannten 30 kV/cm in Luft bei Raumtemperatur. Da hierzu keine Literaturangaben oder Erfahrungswerte gefunden werden konnten, wurde die Maximalfeldstärke mit 1000 V/cm abgeschätzt.

Die Gleichgewichtspartikelladung hängt in guter Näherung linear mit dem Partikeldurchmesser zusammen, wobei die Proportionalitätskonstante stark von Temperatur, Austrittsarbeit der Partikel und der umgebenden Ionenkonzentration abhängt. Typische Maximalwerte von  $q_p/d_p$  liegen in der Größenordnung von 100 e/ $\mu\text{m}$ . Damit ergibt sich für die elektrophoretische Geschwindigkeit im Plattenkondensator ein Wert von 3 mm/s. Bei der Verweilzeit von 10 ms erfolgt also eine Ablenkung von gerade einmal 30  $\mu\text{m}$ , was bei Plattenabständen in der Größenordnung von 1 cm zu keiner nennenswerten Abscheidung führt. Da aber womöglich doch höhere Spannungen eingesetzt werden können und zudem der Plattenabstand verringert werden könnte, wurde eine auf diesem Prinzip basierende Sonde konstruiert und gefertigt.

## E.1 Bau einer Sonde zur Messung der Partikelladung

Die konstruierte Sonde kann mittels einer Halterung an derselben wassergekühlten Lanze befestigt werden, die auch für die Partikelmessungen verwendet wurde. Die wichtigsten Einzelteile der Sonde sind in Abbildung 112(a) gezeigt. An der Spitze der Sonde befinden sich zwei jeweils etwa 3 cm<sup>2</sup> große quadratische Plättchen, auf denen die eigentlichen Probensubstrate mittels Schrauben befestigt und somit leicht auswechselbar sind. An die Plättchen kann über zwei Drähte Hochspannung angelegt werden. Um die Drähte in festem Abstand und stabiler Position zu halten, sind sie mit einer Swagelokverbindung fixiert und zur gegenseitigen elektrischen Isolierung mit einer Gießkeramik umhüllt. Da aufgrund der hohen Staubkonzentrationen im Rauchgas zu erwarten ist, dass die Keramik schnell mit Partikeln belegt wird und somit womöglich ein leitfähiger Pfad auf der Oberfläche entsteht, wurde der Keramikkörper mit einem überstehenden Stahlrohr geschützt wie in Abbildung 112(b) gezeigt. Im Inneren der Lanze, wo durch die Wasserkühlung keine hohen Temperaturen herrschen, findet dann ein Übergang von den beiden Drähten auf zwei hochspannungstaugliche Kabel statt, die bis zum Ende der Lanze zum Anschluss an ein Hochspannungsnetzgerät geführt werden.

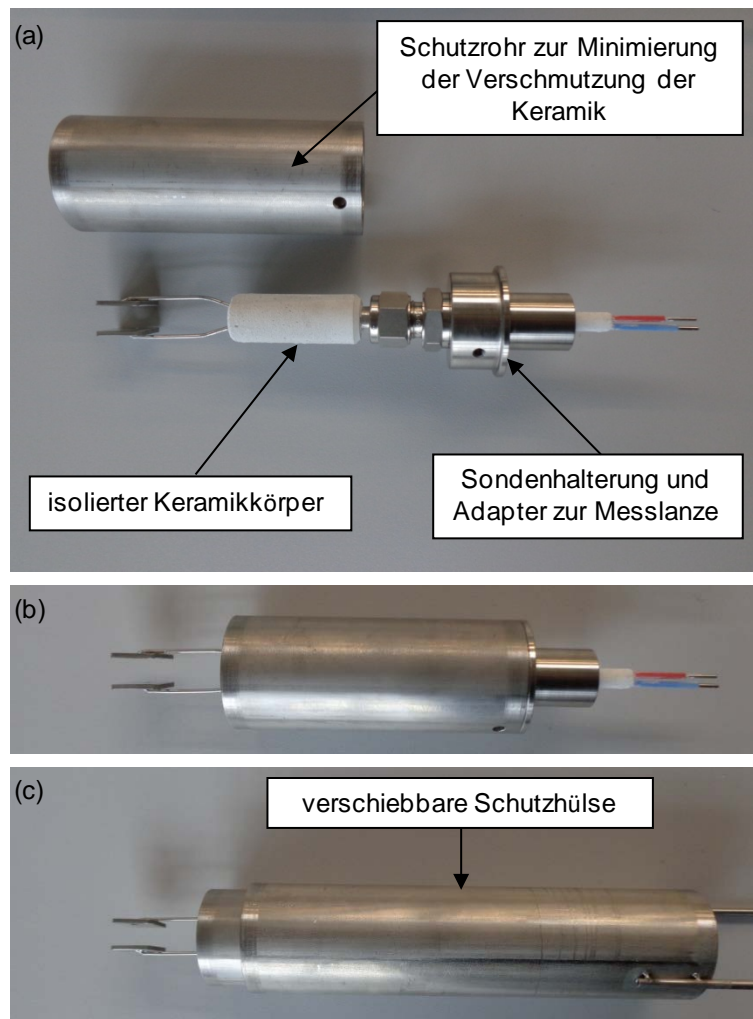


Abbildung 112: Sonde zur Untersuchung der Partikelladung.

Um die Messung zeitlich genau definieren zu können, wurde um das Schutzrohr eine weitere Hülse konstruiert, die durch zwei angeschweißte Stangen von Benutzer verschiebbar ist (siehe Abbildung 112(c)). Zu Beginn der Messung wird die Sonde in den Kessel eingeführt, wobei die äußere Schutzhülse soweit vorgeschoben ist, dass die Probensubstrate nicht dem direkten Rauchgasstrom ausgesetzt sind. Nachdem die Sonde ausreichend vorgeheizt ist, wird die äußere Schutzhülse zurückgezogen und die Belegung der Probensubstrate für eine bestimmte Zeit erfolgt. Danach wird die Schutzhülse wieder vorgeschoben und die Sonde aus dem Kessel gezogen. Die belegten Substrate können anschließend (raster)elektronenmikroskopisch auf ihre Belegung hin untersucht werden. Durch Messungen mit und ohne angelegte Spannung sowie für verschiedene Polaritäten kann so qualitativ geprüft werden, ob und wie die Partikel im Rauchgas geladen sind.

Die Sonde besitzt dennoch immer noch gewisse Nachteile, die ein hohes Risiko darstellen, keine aussagekräftigen Ergebnisse zu erhalten. Zum einen wird ein großer Teil an Partikeln durch Diffusionsabscheidung und eventuell Thermophorese auf den Platten abgeschieden werden. Somit wären kleine Unterschiede in einer großen Gesamtzahl an abgeschiedenen Partikeln zu bestimmen, was statistisch wenig genau ist. Zudem ist zu erwarten, dass bereits leichtes Verkippen, Temperaturunterschiede zwischen den Platten oder Strömungsinhomogenitäten Effekte in der gleichen Grö-

Benennung hervorrufen können. Eine mögliche Alternative, um solche Effekte zu minimieren, die hier jedoch nicht weiter verfolgt wurde, wäre die Verwendung von dünnen Spitzen, die lokal hohe Feldstärken und damit starke elektrophoretische Kräfte erzeugen.

## E.2 Simulationen zur Ladung der Partikel

Da die Messung der Partikelladung technisch eine große Herausforderung darstellt, wurde im Projektverlauf entschieden, auf den großen Zeitaufwand zum Einsatz der Sonde und insbesondere zur Datenauswertung zu verzichten und stattdessen zunächst mittels Simulationen abzuschätzen, ob überhaupt nennenswerte Ladungen auf den Partikeln zu erwarten sind. Zur Berechnung der elektrischen Aufladung der Partikel und der elektrostatischen Wechselwirkungen in den GKS-Rauchgaszügen wurde zusätzlich das am IUTA entwickelte EHDM mit dem FPM kombiniert, um so Aussagen über die örtliche Verteilung der mittleren Partikelladung generieren zu können. Dabei liefert das FPM die Partikelanzahl und den mittleren Durchmesser der Verteilung und das EHDM berechnet die resultierende Aufladungskinetik der Partikel, die Ionendynamik und das elektrische Raumladungsfeld. Aufgrund der Komplexität des Modells ist die Berechnung der Partikelladung nur für ein monodisperses Aerosol durchführbar. Es muss daher einschränkend in Kauf genommen werden, dass keine Ladungsverteilung im Aerosol berechnet wird, sondern nur die räumliche Verteilung der mittleren Partikelladung. Abbildung 113 zeigt die berechnete Gleichgewichtspartikelladung in Abhängigkeit von Partikelgröße und Konzentration.

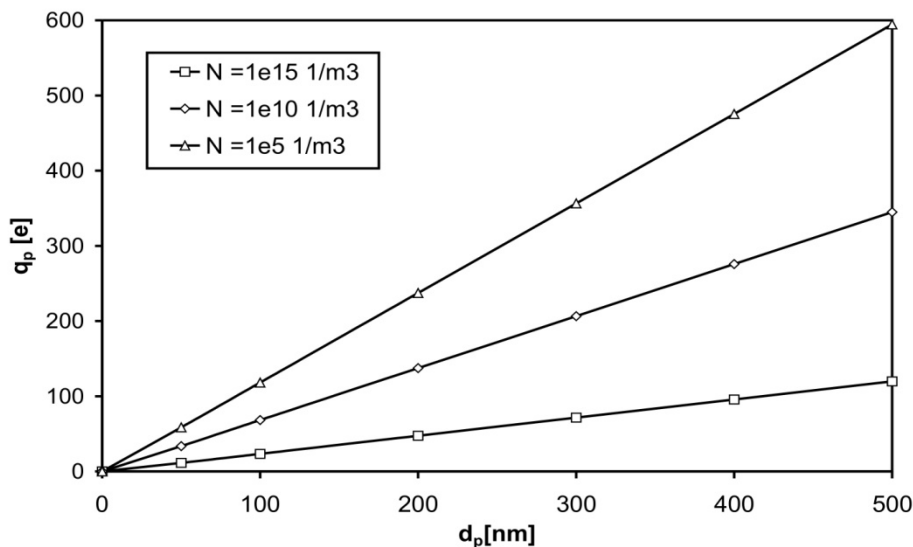


Abbildung 113: Gleichgewichtspartikelladung für unterschiedliche Partikelkonzentrationen und Partikeldurchmesser (Beispiel:  $T = 1600\text{K}$ ,  $W_{a0} = 3\text{ eV}$ )

Abbildung 114 beschreibt den Einfluss von Elektronenaustrittsarbeit und Temperatur auf die resultierende Gleichgewichtsladung. Die Elektronenaustrittsarbeit des Partikelmaterials beschreibt die Energie, die nötig ist, um ein Elektron aus einem Partikel herauszulösen. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Austrittsarbeit einen sehr großen Einfluss auf die Partikelladung besitzt. Da die genaue chemische Zusammensetzung der Partikel und damit ihre resultierende Elektronenaustrittsarbeit nicht bekannt ist, sind nachfolgend einige Austrittsarbeiten von relevanten Reinstoffen gelistet und der Verlauf über der Temperatur für einige Oxide aufgetragen.

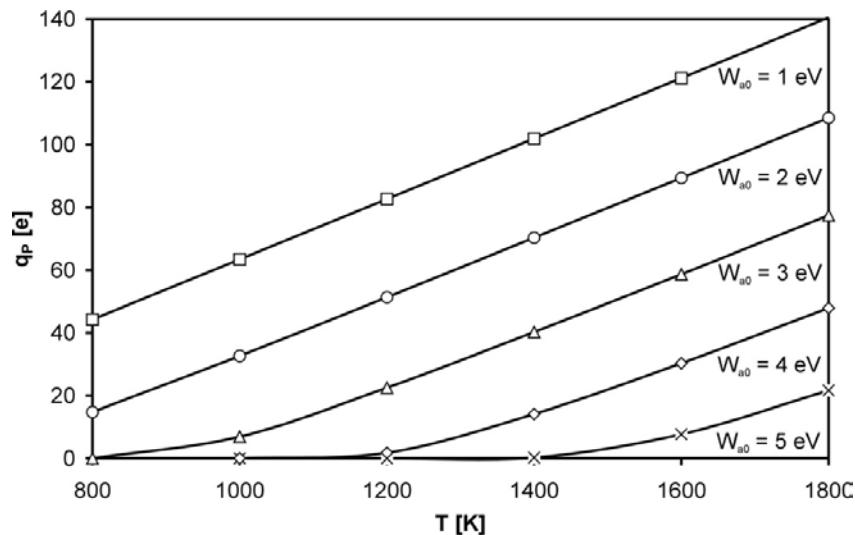


Abbildung 114: Gleichgewichtspartikelladung für unterschiedliche Elektronenaustrittsarbeiten  $W_{a0}$ ; thermische Emission nach Richardson und Rekombination nach FMD-Modell (Beispiel:  $d_p = 100 \text{ nm}$ ,  $N = 10^{11}/\text{m}^3$ ).

#### Austrittsarbeiten von Reinstoffen [CRC2008]

Si = 4,6 – 4,85 eV	Ca = 2,87 eV
Mg = 3,66 eV	Fe = 4,67 – 4,81 eV
Cr = 4,5 eV	Ni = 5,04 – 5,35 eV
Mo = 4,36 – 4,95 eV	Ti = 4,33 eV
Zn = 3,63 – 4,9 eV	Na = 2,66 eV
K = 2,29 eV	

#### Austrittsarbeiten von Oxiden

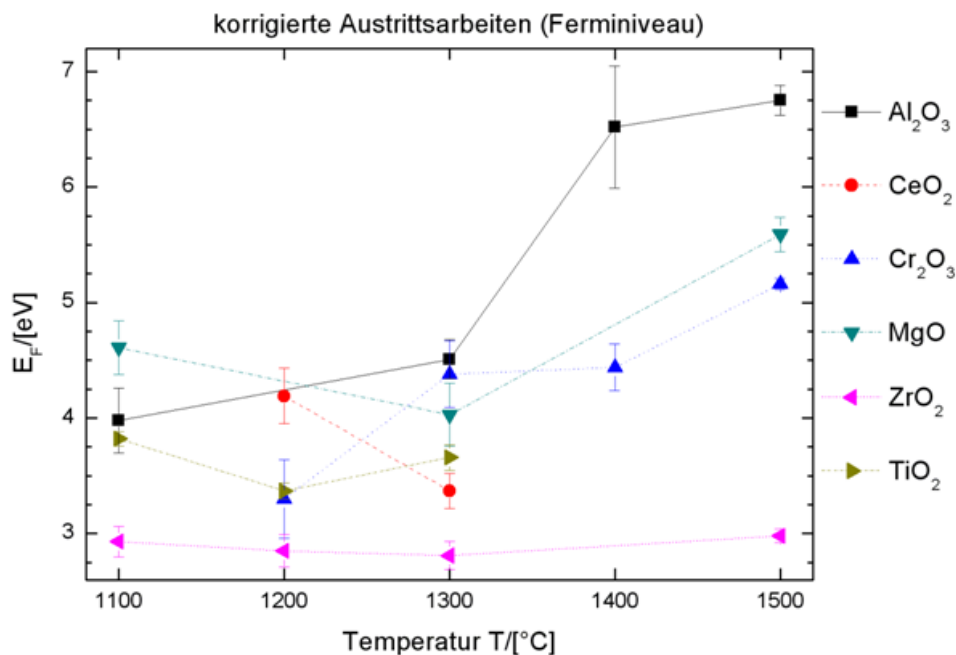


Abbildung 115: Gemessene Austrittsarbeiten von Metalloxiden (Fermi-niveau) [AiF275ZN].

Die Austrittsarbeiten liegen sowohl für Reinstoffe als auch für Oxide im relevanten Temperaturbereich zwischen 3 und 5 eV. Lediglich die (Erd-)Alkalimetalle Ca, Na und K besitzen als Reinstoffe Austrittsarbeiten zwischen 2 und 3 eV. Für NaCl ist jedoch tendenziell eine Austrittsarbeit von ca. 5 eV zu erwarten [Vasek1959]. Es ist davon auszugehen, dass die Partikel im ersten Zug der GKS-Anlage, im Temperaturbereich oberhalb von 1000 K, deutlich positive Ladungen besitzen und diese im Verlauf mit sinkender Temperatur kontinuierlich abgebaut werden.

In den folgenden Simulationen wird die resultierende Partikelladung entlang der GKS berechnet und dabei die Austrittsarbeit im Bereich zwischen 2 und 5 eV variiert. Es werden zwei Szenarien betrachtet:

### 1. Thermoionisation der Partikel

Hierbei entstehen ausnahmslos positiv geladene Partikel, da die von den Partikeln abgegebenen Elektronen zur Bildung von einfach negativ geladenen Gasionen führen. Die Raumladungen für Partikel- und Ionenphase verlaufen somit invers, sofern die Ladungen nicht separiert werden. Abbildung 116 zeigt den Verlauf der Raumladungen aufgetragen über der Wegstrecke innerhalb der Anlage. Das Temperaturprofil aus Abbildung 83 wurde dabei zugrunde gelegt.

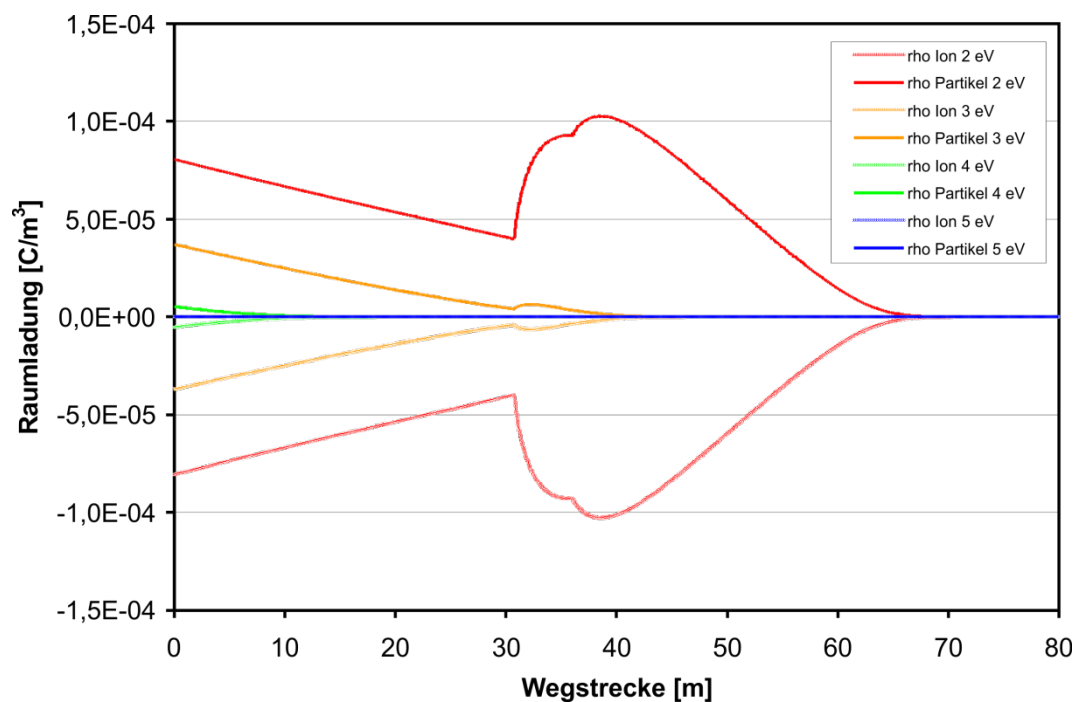


Abbildung 116: Ionen- und Partikelraumladungen entlang der Anlage (Thermoionisation).

Es ist deutlich zu erkennen, dass die Ionen- und Partikelraumladungen einen spiegelbildlichen Verlauf besitzen. Darüber hinaus wird die Korrelation zum einen mit der Temperatur deutlich, denn die Raumladungen besitzen eine sinkende Tendenz mit steigender Wegstrecke und damit fallender Temperatur. Zum anderen wird der Einfluss der Partikelgröße deutlich sichtbar. Mit Einsetzen der Kondensation steigt die Raumladung sprunghaft an, da die Partikelgröße hier abrupt ansteigt.

Abbildung 117 zeigt die resultierende Partikelladung im Verlauf der Anlage. In Bezug auf die Elektronenaustrittsarbeiten wird deutlich, dass die Aufladungseffekte nur dann im Bereich des Überhitzers bei etwa 40 m noch signifikant sind, wenn die Partikel eine Austrittsarbeit kleiner 3 eV aufweisen würden. Dies ist jedoch eher unwahrscheinlich. Zusätzlich zur resultierenden Partikelladung wurde in Abbildung 117 die elektrische Mobilität der Partikel aufgetragen, um den Einfluss des Partikelwachstums auf die Mobilität zu charakterisieren. Hier wird deutlich, dass die Zunahme der mittleren Partikelladung nicht mit einer Zunahme der elektrischen Mobilität korreliert. Es kommt vielmehr durch das Wachstum zu einer sinkenden Mobilität, da die resultierende Partikelladung linear mit dem Durchmesser korreliert, die Mobilität jedoch zusätzlich die Slipkorrektur beinhaltet, die mit steigendem Durchmesser sinkt und gegen Eins konvergiert.

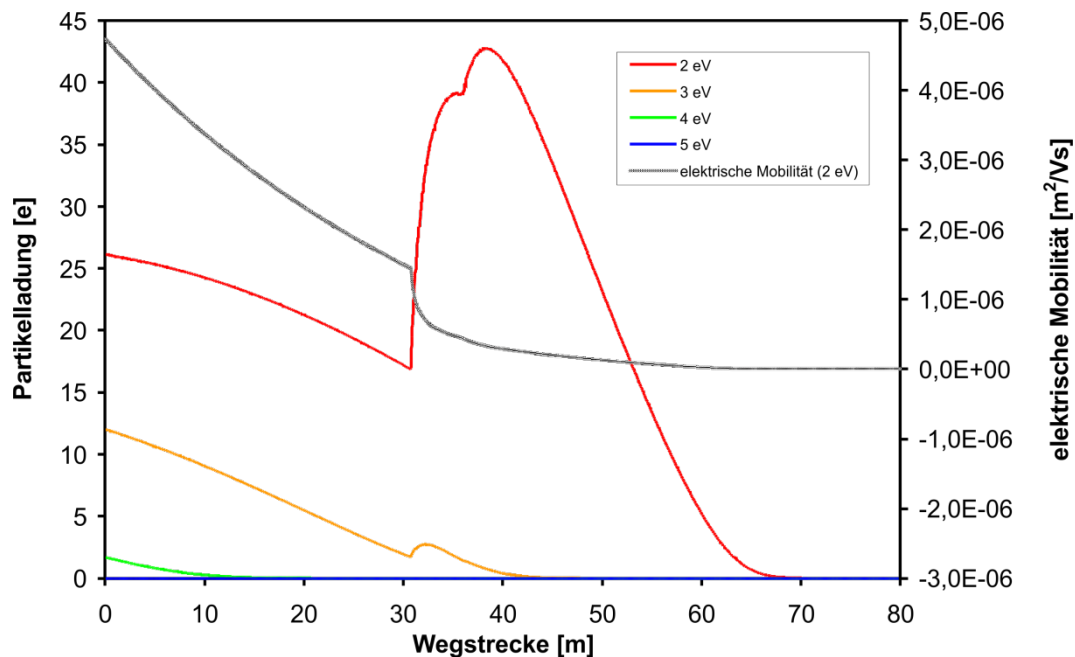


Abbildung 117: Partikelladung und elektrische Mobilität entlang der Anlage (Thermoionisation).

## 2. Thermoionisation der Partikel und zusätzliche Ionenfreisetzung durch Glühemission der keramischen Ausmauerungen im Feuerraum

Im Folgenden wurde zusätzlich zur Ionenfreisetzung durch Thermoionisation ein Überschuss an Ionen im Feuerraum angenommen. Dieser Überschuss ist frei gewählt, sollte in seiner Größenordnung jedoch eher eine Abschätzung nach oben bedeuten, da Ionenraumladungen von  $10^{-5} \text{ C/m}^3$  durchaus in der Größenordnung von Elektroabscheidern einzuordnen sind. Abbildung 118 zeigt die Raumladungsverläufe entlang der Anlage.

Es wird deutlich, dass der Überschuss an Ionen im Verlauf der Anlage bei sinkender Temperatur, und damit abnehmender Thermoionisation der Partikel, an die Partikelphase angelagert wird, so dass bei Nachlassen der Thermoionisation eine negative Partikelraumladung resultiert, die selbstverständlich mit negativen Partikelladungen korreliert. Abbildung 119 zeigt die resultierende Partikelladung.

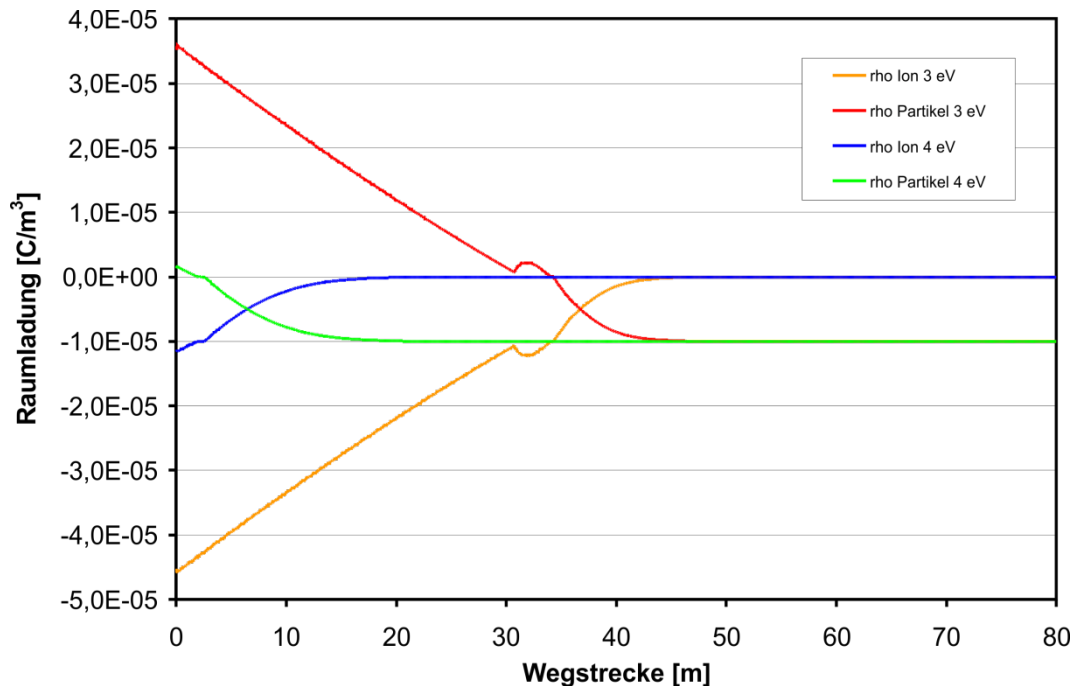


Abbildung 118: Ionen- und Partikelraumladungen entlang der Anlage (Thermoionisation + Ionenüberschuss).

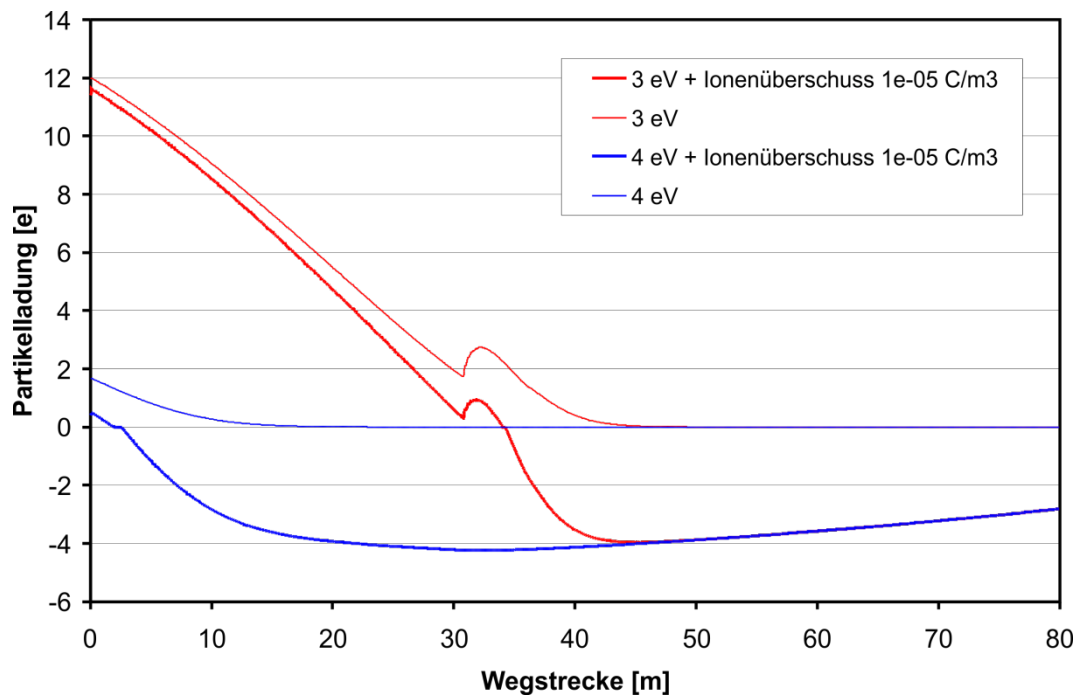


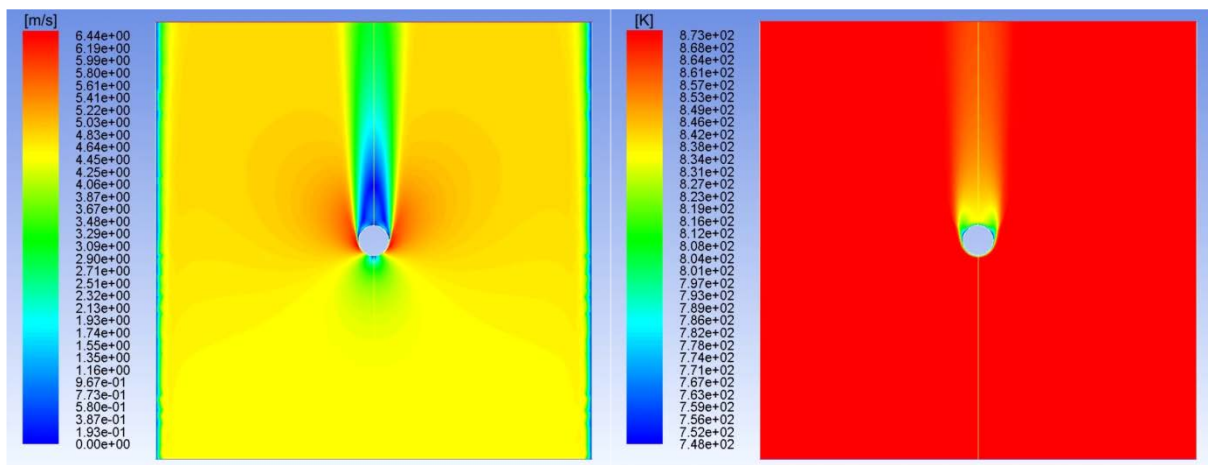
Abbildung 119: Partikelladung entlang der Anlage (Thermoionisation+ Ionenüberschuss).

Hier zeigt sich ohne Ionenüberschuss eine sinkende positive Partikelladung, die im Verlauf der Anlage gegen null konvergiert, wohingegen sie bei Ionenüberschuss die Polarität im Verlauf der Anlage wechselt. Es entstehen jedoch nur schwach negativ geladene Partikel, die ohne das Anlegen eines elektrischen Feldes keine signifikanten elektrophoretischen Effekte erwarten lassen. Auch hier handelt es sich um eine Abschätzung nach oben, da Ionenverluste im Verlauf der Anlage nicht berücksichtigt

wurden, aber aufgrund der elektrostatischen Dispersion der Ladungsträger zu den geerdeten Anlagenwänden in Realität zu erwarten sind.

## F Partikelabscheidung an den Überhitzerrohrbündeln

Zusätzlich zur Betrachtung der Partikeldynamik im Kessel der GKS, wurde die Partikelabscheidung am Überhitzer detailliert betrachtet. Hierzu wurde das Discrete Phase Model (DPM) verwendet, das, auf einer Lagrangeschen Betrachtungsweise basierend, die Berechnung der Partikeldynamik unter Berücksichtigung von Diffusion, Trägheit, Thermo- und Elektrophorese ermöglicht. Dabei wurde zuerst ein einzelner, quer angeströmter Zylinder modelliert und darauf basierend das gesamte Rohrbündel betrachtet. Abbildung 120 zeigt die Geometrie und die verwendeten Randbedingungen, die die Betriebsweise des Überhitzers am GKS charakterisieren.



### Randbedingungen:

$d = 37 \text{ mm}$   
 $v = 4,5 \text{ m/s}$   
 $T = 600 \text{ °C}$   
 $\Delta T = 125 \text{ °C}$   
 $\eta_{\text{haft}} = 100 \%$

$$\rightarrow Re_{\text{Zylinder}} = 1671$$

### Particle Tracking:

- Lagrange
- Trägheit
- Diffusion
- Thermophorese
- Elektrophorese

Abbildung 120: Quer angeströmter Zylinder (Strömungs- und Temperaturfeld)

An diesem Modell wurde ein Abgleich mit analytischen Betrachtungen von Benker durchgeführt. Hierbei wurde für verschiedene Partikelmaterialien die Abscheidung berechnet. Besondere Beachtung fand die Modellierung von Turbulenzen auf die Partikelabscheidung. Abbildung 122 zeigt den Vergleich der numerisch und analytisch gewonnenen Trenngradkurven. Dabei werden im CFD-Modell Partikel nur im Bereich der Projektionsfläche des Zylinders aufgegeben, so dass bei hundertprozentiger Abscheidung der Startpunkt der Grenztrajektorie gleich dem Radius des Zylinders ist (siehe Abbildung 121).

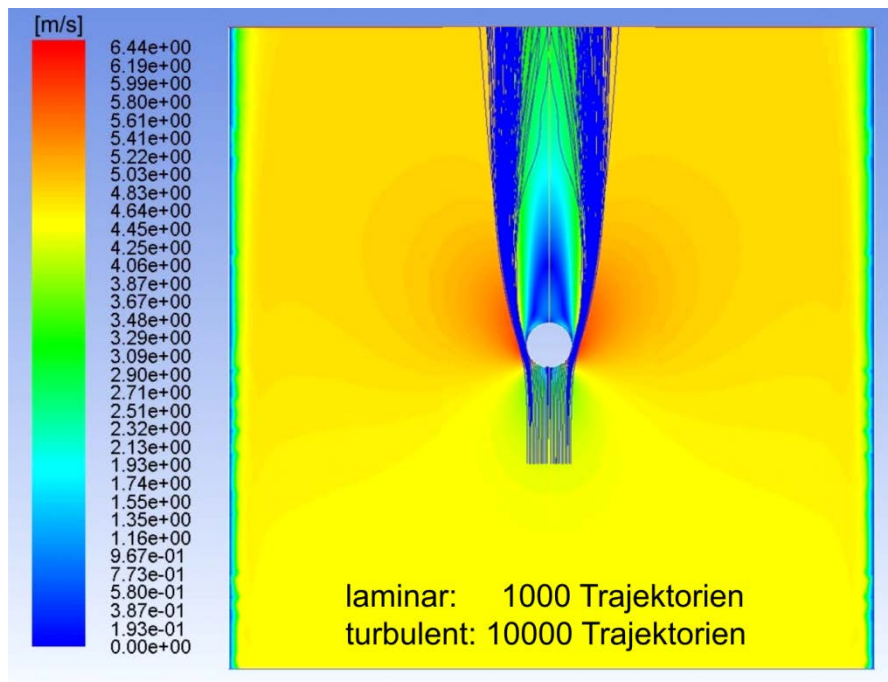


Abbildung 121: Partikeltrajektorien am quer angeströmten Zylinder.

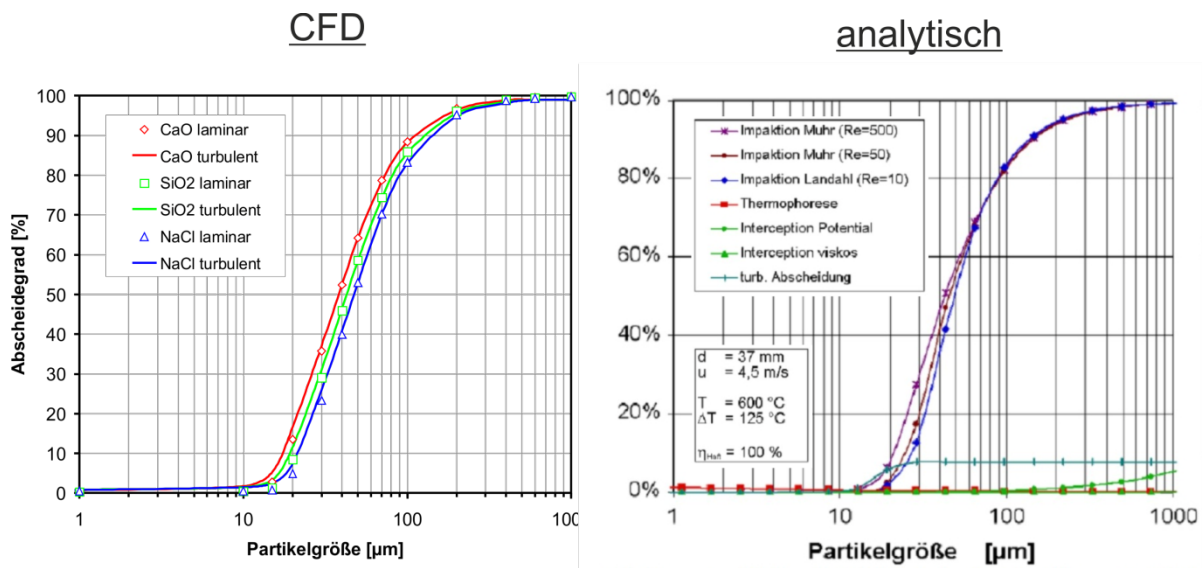


Abbildung 122: Vergleich Partikelabscheidung quer angeströmter Zylinder (CFD und Analytik) [Benker2005].

Der Vergleich der beiden Simulationen zeigt eine sehr hohe Übereinstimmung für reine NaCl-Partikel. Die CFD-Methode ist damit in der Lage die bereits vorhandene analytische Betrachtung wiederzugeben. Es lässt sich jedoch darüber hinaus ableiten, dass die Partikelmasse zwar deutliche, aber nicht drastische Auswirkungen auf das Abscheideverhalten besitzt, sofern die Partikeldichte keinen extremen Schwankungen unterliegt. Diffusion und Thermophorese als Abscheidemechanismen spielen eine eher untergeordnete Rolle. Es dominiert erwartungsgemäß die Impaktionsabscheidung. Im hier betrachteten Fall eines einzelnen Zylinders trägt auch der Einfluss von Turbulenzen nur geringfügig zur Abscheidung bei, da Turbulenzeffekte erst auf der Abströmseite des Zylinders zum Tragen kommen. Hier ist auch eine deutliche Veränderung der Trajektorien zu beobachten. Der Einfluss von Turbulenzeffekten

wurde daraufhin detailliert für die Rohrbündelanordnung des GKS-Überhitzers untersucht. Sämtliche Betrachtungen des einzelnen Zylinders und der Überhitzeranordnung beinhalten die Annahme einer hundertprozentigen Haftwahrscheinlichkeit der Partikel bei Berührung mit den Wandoberflächen. Die realen Haftwahrscheinlichkeiten der Schlackepartikel wurden bislang nicht untersucht. Es kann jedoch davon ausgegangen werden, dass die Vorgabe einer hundertprozentigen Haftwahrscheinlichkeit eine deutliche Überschätzung der Deposition zur Folge hat. Abbildung 123 zeigt das Strömungsprofil innerhalb des Rohrbündels.

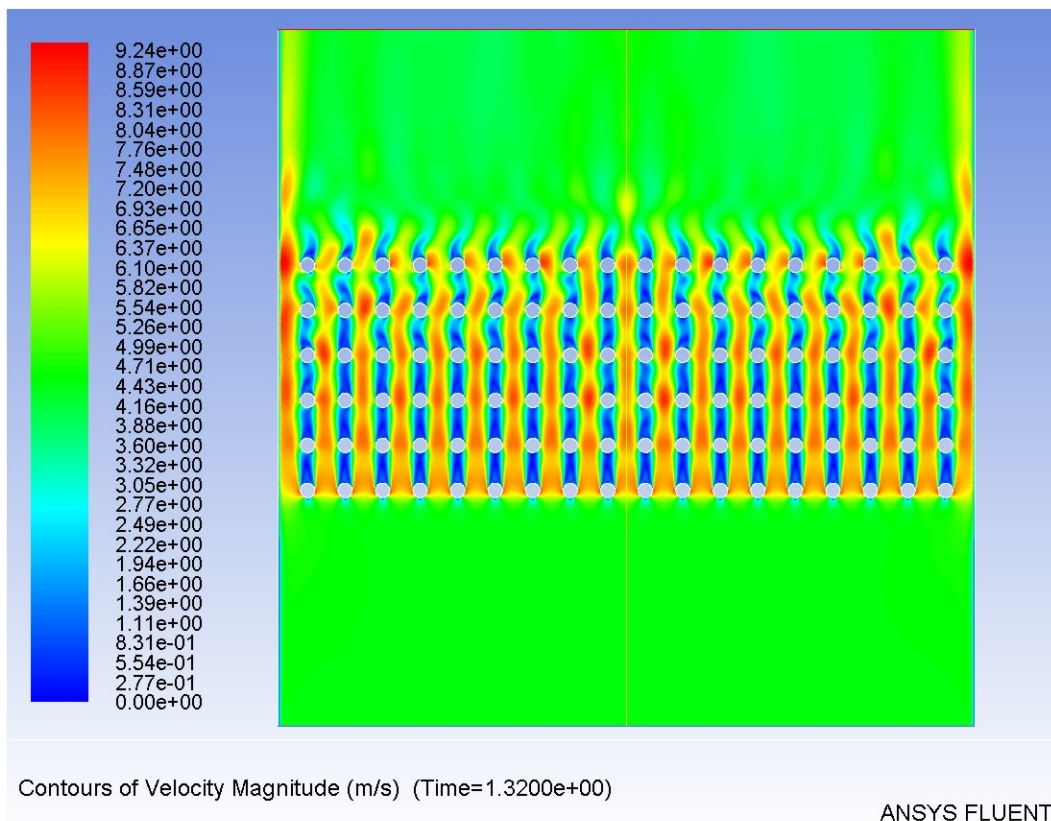


Abbildung 123: Strömungsprofil im Querschnitt des Rohrbündels.

Die Strömung ist aufwärts gerichtet. Die Rohroberflächen sind 125 °C kühler als der Gasstrom. Die entstehende Strömung ist aufgrund der starken Turbulenzen nicht stationär, sondern transient und wurde mit einer Zeitauflösung von  $5 \times 10^{-4}$  s berechnet, um die entstehenden Verwirbelungen abbilden zu können. Besonders gut lässt sich die entstehende Karmansche Wirbelstraße ab der dritten Rohrreihe im Temperaturprofil (siehe Abbildung 124) erkennen. Ebenfalls lässt sich hier die Abkühlung des Gasstroms nachvollziehen. Der Wärmetauscher kühlt den Gasstrom unter den gegebenen Randbedingungen um etwa 30 °C ab. Da die Wände hier adiabatisch modelliert wurden, ist die Abkühlung geringfügig schwächer als experimentell ermittelt.

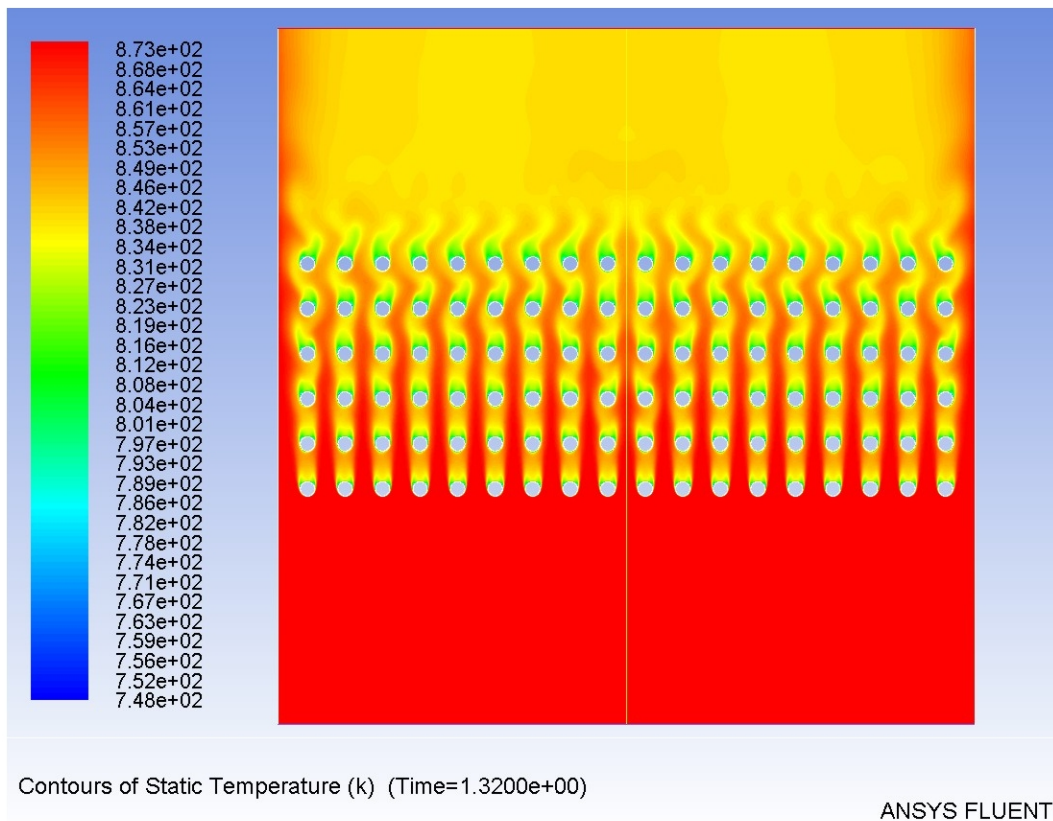


Abbildung 124: Temperaturprofil im Querschnitt des Rohrbündels.

Die starken Turbulenzen innerhalb des Wärmetauschers wirken sich deutlich sichtbar auf den Partikeltransport aus. Abbildung 125 zeigt Partikeltrajektorien für verschiedene große Partikel für die laminare sowie die turbulente Berechnung. Die Berechnung der Strömung erfolgte in beiden Fällen turbulent unter Verwendung des realizable  $k-\epsilon$  Turbulenzmodells mit erweiterten Wandfunktionen. Das Tracking wurde laminar mit 1000 Partikeln und turbulent mit 10000 Partikeln durchgeführt.

Es fällt auf, dass der Unterschied zwischen den beiden Betrachtungsweisen mit zunehmender Partikelgröße kleiner wird. Das bedeutet, dass der Einfluss der Turbulenz sinkt. Dies liegt an der zunehmenden Trägheit der schwereren Partikel. Während bei 255nm und 20  $\mu\text{m}$  Partikelgröße die Turbulenzen zu lokal höheren Partikelgeschwindigkeiten, und damit verbunden, auch zu Depositionen auf der Rückseite der Rohre führen, lassen sich beide Effekte bei einer Partikelgröße von 100  $\mu\text{m}$  nicht mehr beobachten. Die ermittelten Trenngradverläufe des Rohrbündels sind in den folgenden Abbildungen dargestellt.

Abbildung 126 zeigt die ermittelte Abscheidung für eine rein laminare Betrachtung der Partikeldynamik, jedoch für unterschiedliche Partikeldichten. Als Referenz ist die Abscheidung des quer angeströmten einzelnen Zylinders ebenfalls aufgetragen.

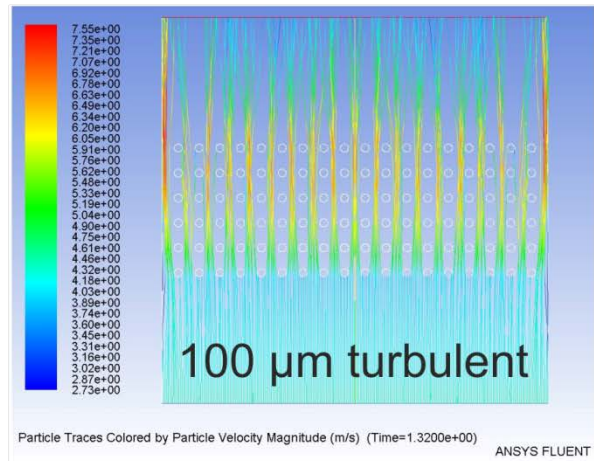
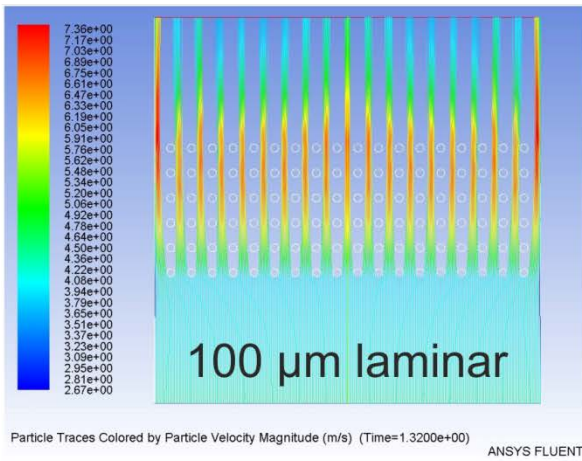
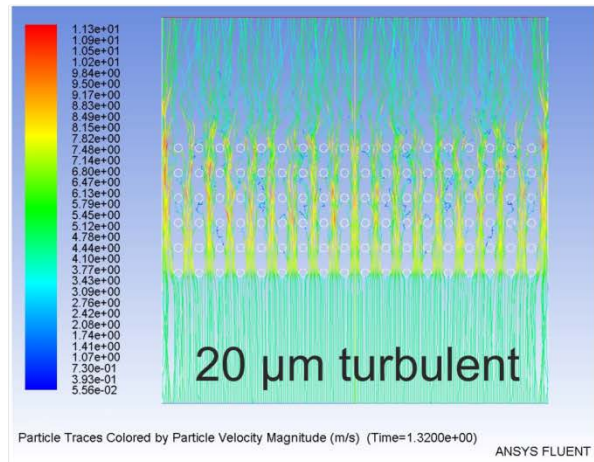
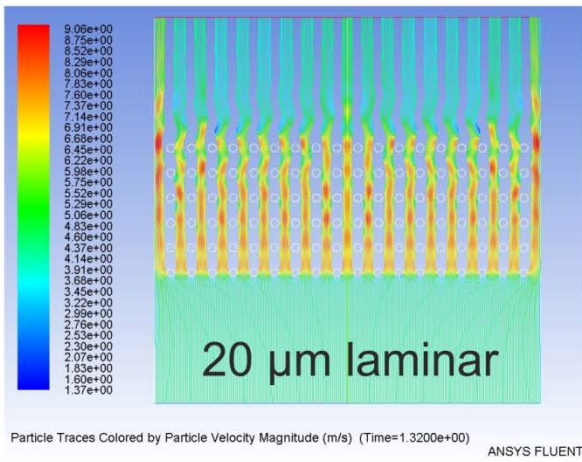
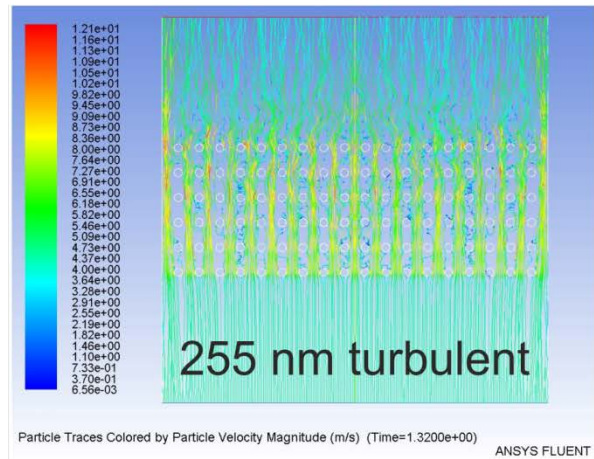
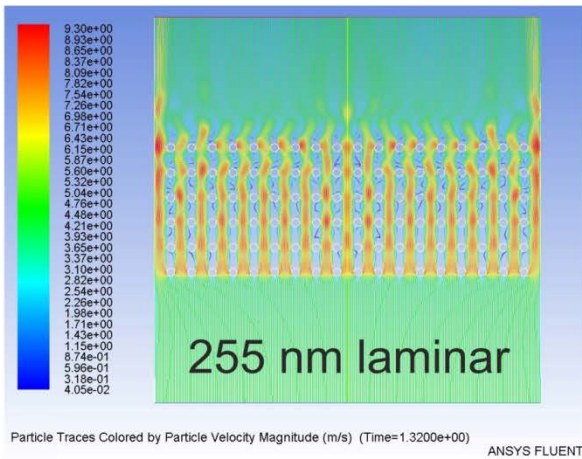


Abbildung 125: Partikeltrajektorien bei laminarer und turbulenter Modellierung.

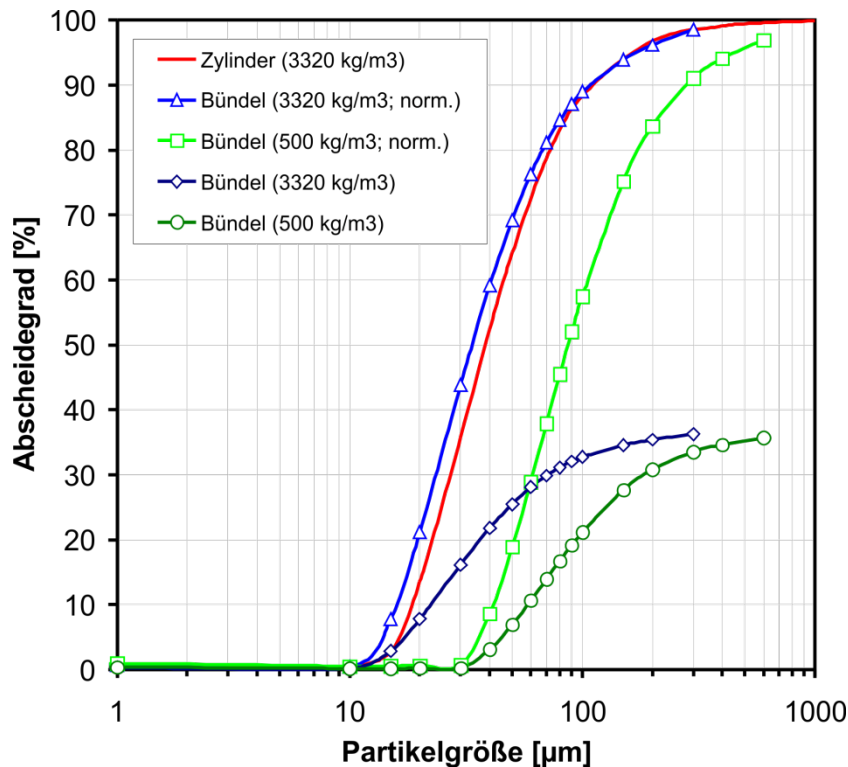


Abbildung 126: Trenngradverläufe Rohrbündel (laminares Tracking, 100% Haftwahrscheinlichkeit).

Die maximal erreichbare Abscheidung liegt bei etwa 38 % der aufgegebenen Partikel. Dies entspricht in etwa dem Anteil an Projektionsfläche der Rohre zur gesamten Querschnittsfläche. Wird die Abscheidung auf die Projektionsfläche normiert, so dass nur die Partikel, die direkt vor den Rohren starten berücksichtigt werden, kann man die Abscheidetabelle mit dem einzelnen Zylinder vergleichen. Es wird deutlich, dass das Rohrbündel bei laminarer Betrachtung ein vergleichbares Abscheideverhalten wie der einzelne Zylinder besitzt. Das bedeutet, die Deposition findet fast ausschließlich auf der ersten Rohrreihe statt. Unter Verwendung der Partikeldichte von CaO ( $3320 \text{ kg/m}^3$ ) war darüber hinaus oberhalb von  $300 \mu\text{m}$  Partikelgröße der Schwerkrafteinfluss so groß, dass die Partikel nicht mehr im aufwärts gerichteten Gasstrom transportiert werden können. Sie sedimentieren auf der Rückseite des Rohrbündels. Bei Reduktion der Partikeldichte auf nur  $500 \text{ kg/m}^3$  fand die Sedimentation oberhalb einer Partikelgröße von  $600 \mu\text{m}$  statt. Da an der GKS auch sehr große Partikel oberhalb von  $300 \mu\text{m}$  messtechnisch erfasst werden konnten, könnte dies darauf hindeuten, dass diese eine deutlich niedrigere Dichte und damit keinen CaO oder  $\text{SiO}_2$  Kern besitzen.

Abbildung 127 zeigt die Trenngradkurven unter Berücksichtigung der Turbulenzeinflüsse. Hier zeigt sich deutlich, dass der Turbulenzeinfluss im Rohrbündel zu einem deutlich abweichenden Verhalten der Partikel führt. Zum einen werden Partikel bis zu einer Größe von wenigen  $\mu\text{m}$  mit einem konstanten Abscheidegrad von etwa 2,5 % abgeschieden, zum anderen ist der Turbulenzeinfluss am größten bei Partikeln zwischen  $10$  und  $100 \mu\text{m}$ . Bei Partikeln größer  $100 \mu\text{m}$  nähert sich das Abscheideverhalten wieder dem laminaren Verhalten an. Bei normierter Darstellung lässt sich deutlich die Abweichung vom einzelnen Zylinder erkennen.

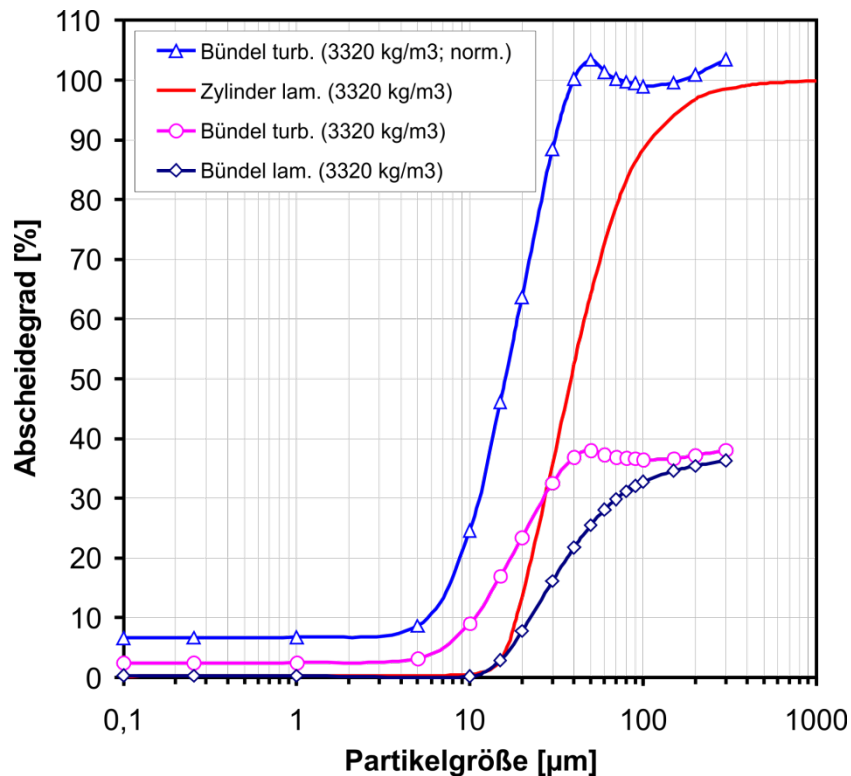


Abbildung 127: Trenngradverläufe Rohrbündel (turbulentes Tracking, 100% Haftwahrscheinlichkeit).

### F.1 Einfluss der elektrophoretischen Abscheidung

Zusätzlich zur Abschätzung der elektrischen Ladung der Partikel entlang des Kessels, wird im Folgenden eine Abschätzung zur elektrophoretischen Deposition der Partikel im Überhitzer durchgeführt. Die Abschätzung des Ladungszustands im Kessel ergab signifikante Partikelladungen nur für geringe Elektronenaustrittsarbeiten der Partikel von etwa 2 - 3eV (siehe Abschnitt: Elektrische Aufladung der Partikel im Verlauf der GKS). Obwohl typische Elektronenaustrittsarbeiten eher im Bereich zwischen 4 und 5 eV liegen, wird hier trotzdem eine Abschätzung für eine gewählte Elektronenaustrittsarbeit von 2 eV durchgeführt. Dies führt zu einem theoretischen positiven Ladungsüberschuss der Partikel am Überhitzer von etwa 40 Elementarladungen bei einer Partikelgröße von 255 nm (Median der Feinstpartikelverteilung am Überhitzer). Die resultierenden Ionen- und Partikelraumladungen lägen aufgrund der hohen Partikelkonzentration in der Größenordnung von  $10^{-4}$  C/m<sup>3</sup> am Eingang des Überhitzers. Es ist denkbar, dass durch die unterschiedlichen Mobilitäten der Ionen und Partikel bei der Umlenkung des Gasstroms im Überhitzer eine Ladungstrennung erfolgt, die, bei derart stark aufgeladenen Partikeln, zur Ausbildung von signifikanten Raumladungsfeldern führen würde. Im Folgenden wird daher an einem quer angeströmten Zylinder abgeschätzt, welche elektrische Feldstärke benötigt wird, um die Partikelbewegung signifikant zu beeinflussen. Abbildung 128 zeigt die elektrischen Potenzialverläufe um den Zylinder bei einem Oberflächenpotenzial von +/- 100 kV. Die dabei entstehenden elektrischen Feldstärken liegen mit 20 kV/cm an der Zylinderoberfläche in der gleichen Größenordnung wie in der Nähe des Sprühdrahts an konventionellen E-Filtern.

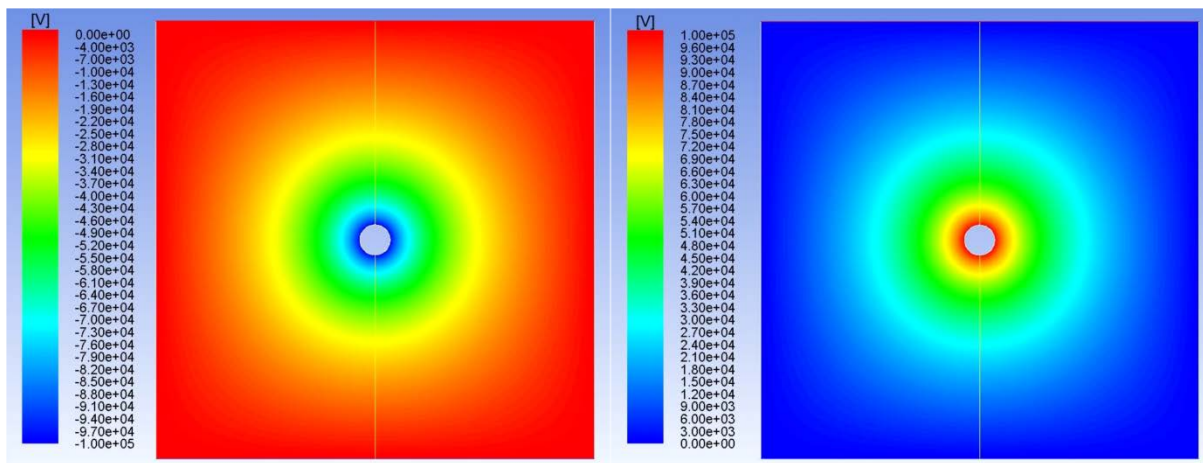


Abbildung 128: Potenzialfeld um den Zylinder.

Der hier gewählte Betriebszustand stellt somit sowohl in Bezug auf die elektrische Ladung der Partikel als auch auf die Höhe des elektrischen Feldes eine extreme Abschätzung dar. Abbildung 129 zeigt die berechneten Trenngradverläufe unter den oben beschriebenen Randbedingungen im Vergleich zum Trenngradverhalten des Zylinders ohne elektrophoretische Abscheidung. Die Partikelladung wurde dabei ausgehend von der bekannten Partikelladung bei 255 nm Partikelgröße proportional zum Durchmesser angepasst, da es sich bei der Aufladung hier um eine reine Diffusionsaufladung (vgl. Abbildung 113) handelt.

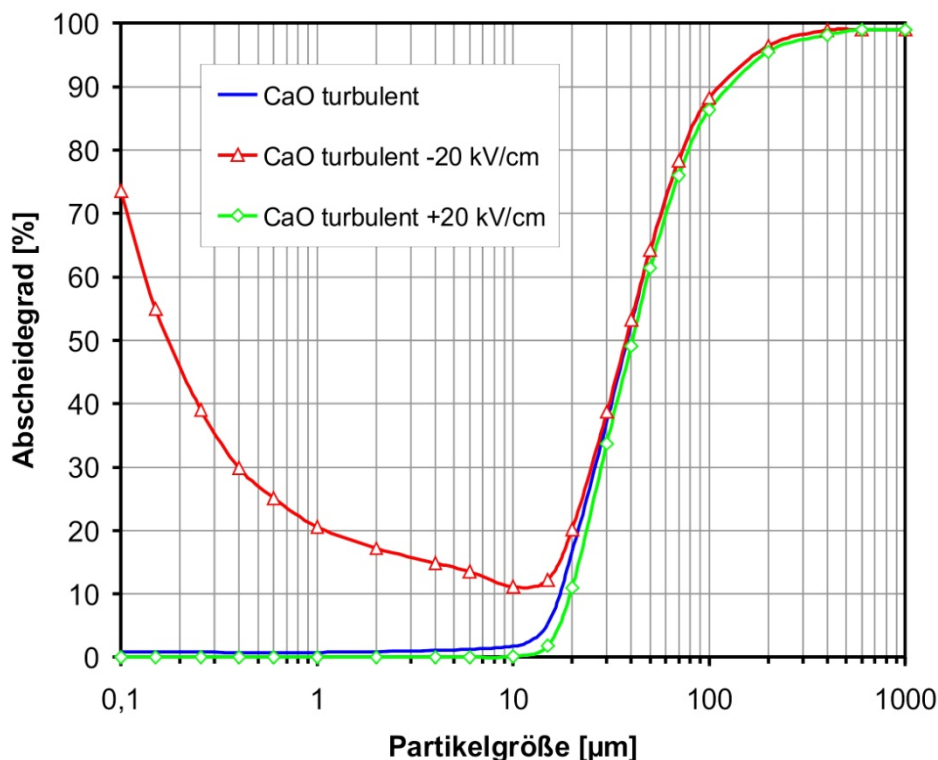


Abbildung 129: Partikelabscheidung quer angeströmter Zylinder inkl. Elektrophorese (100% Haftwahrscheinlichkeit).

Es wird deutlich, dass Elektrophorese, selbst unter diesen extremen Randbedingungen, nur bei kleinen, nicht trägheitsbehafteten Partikeln eine deutliche Wirkung zeigt. Bei größeren Partikeln überwiegt der Trägheitseinfluss. Bei negativem Oberflächen-

potenzial kommt es zur Behinderung der Partikelabscheidung, so dass Partikel kleiner 10 µm nicht mehr abgeschieden werden. Da es sich jedoch um eine extreme Abschätzung handelt und derart hohe Partikelladungen und Feldstärken in der Praxis nicht zu erwarten sind, kann davon ausgegangen werden, dass elektrophoretische Abscheideeffekte im Überhitzer der GKS keine Relevanz besitzen.

## F.2 Prognose der Salzdeposition auf den Rohrbündeln

Auf Basis der mit Hilfe der Simulationsrechnungen ermittelten Trenngradverläufe (Haftwahrscheinlichkeit 100%), kann die an den Rohroberflächen deponierte Salzmenge aus den Simulationsrechnungen und den messtechnisch gewonnenen Daten der Partikelgrößenverteilungen und Partikelzusammensetzungen am Eingang des Überhitzers ermittelt werden. Hierzu wird im ersten Schritt die Menge an Salz, die auf den Partikeln der unterschiedlichen Größenklassen kondensiert ist anhand einer Bilanzierung der Partikelvolumina an verschiedenen Stellen der Anlage ermittelt. Abbildung 130 zeigt die ermittelten Salzmassen in tabellarischer Form.

### Berechnung Salzfracht auf Partikeln:

Massenanteil NaCl	0,5623
Massenanteil KCl	0,4377
freigesetzte Salzmenge Feuerraum	1,035E-03 kg/m <sup>3</sup>
Dichte NaCl	2170 kg/m <sup>3</sup>
Dichte KCl	1980 kg/m <sup>3</sup>

	Volume Mode1 [m <sup>3</sup> ]	Volume Mode2 [m <sup>3</sup> ]	Temperatur [°C]
Eingang	3,40E-08	1,22767E-06	1139,52
31m (vor Kondensation)	3,3892E-08	1,22706E-06	774,88
46m (vor Überhitzer)	5,13188E-07	1,22928E-06	598,342
50m (nach Kondensation)	5,24781E-07	1,22929E-06	551,267
Ausgang	5,27919E-07	1,2293E-06	198,502

Kondensationsbeginn 2. Zug  
Eintritt Überhitzer  
Messstelle 3. Zug

Bilanz Eingang/Ausgang			
Volumenzuwachs [m <sup>3</sup> ]	4,93910E-07	1,63373E-09	
Masse NaCl [kg/m <sup>3</sup> ]	6,02664E-04	1,99346E-06	
Masse KCl [kg/m <sup>3</sup> ]	4,28045E-04	1,41586E-06	Summe
Masse Salz gesamt [kg/m <sup>3</sup> ]	1,03120E-03	3,41096E-06	<b>1,03461E-03</b>
Anteil absolut [%]	99,633	0,330	

kondensierbarer Rest  
0,04 %  
**3,85925E-07 kg/m<sup>3</sup>**

Bilanz 31m/50m (Beginn Kondensation/Messstelle 3. Zug)			
Volumenzuwachs [m <sup>3</sup> ]	4,90889E-07	2,22262E-09	
Masse NaCl [kg/m <sup>3</sup> ]	5,98979E-04	2,71202E-06	
Masse KCl [kg/m <sup>3</sup> ]	4,25427E-04	1,92623E-06	Summe
Masse Salz gesamt [kg/m <sup>3</sup> ]	1,02490E-03	4,64047E-06	<b>1,02954E-03</b>
Anteil absolut [%]	99,024	0,448	

kondensierbarer Rest  
0,53 %  
**5,46283E-06 kg/m<sup>3</sup>**

Bilanz 31m/46m (Beginn Kondensation/Eintritt Überhitzer)			
Volumenzuwachs [m <sup>3</sup> ]	4,79296E-07	2,21457E-09	
Masse NaCl [kg/m <sup>3</sup> ]	5,84833E-04	2,70220E-06	
Masse KCl [kg/m <sup>3</sup> ]	4,15380E-04	1,91925E-06	Summe
Masse Salz gesamt [kg/m <sup>3</sup> ]	1,00069E-03	4,62366E-06	<b>1,00532E-03</b>
Anteil absolut [%]	96,685	0,447	

kondensierbarer Rest  
2,87 %  
**2,96843E-05 kg/m<sup>3</sup>**

Abbildung 130: Bilanzierung der Salzfracht auf den Partikeln (Simulation).

Diese Betrachtung liefert neben einer Überprüfung der Massenbilanzen für die Salzfracht vor allem die auf den beiden Partikelmoden kondensierte Salzmenge und die im Gasstrom verbleibende Menge an kondensierbarem Restdampf. Betrachtet man die Bilanz bei 31 m (Beginn der Kondensationszone) im Vergleich zur Position bei 46 m (Eintritt in den Überhitzer) so zeigt sich, dass nahezu die gesamte Salzmenge auf den kleinen Partikeln in Mode 1 kondensiert (99,685%). Weniger als 0,5% der im Feuerraum freigesetzten Dampfmenge kondensiert auf der groben Partikelfraktion.

Insgesamt steht am Eintritt in den Überhitzer noch etwa 3 % des freigesetzten Salzdampfes zur Kondensation zur Verfügung. Dies entspricht einer Massenkonzentration von  $29,7 \text{ mg/m}^3$ . Da die Oberfläche der Überhitzerrohre deutlich kälter als das Abgas ist, kann davon ausgegangen werden, dass der an den Rohren vorbeiströmende Dampf an deren Oberfläche kondensiert. Zusätzlich wird es auch zu einer Kondensation von Dampf auf den im sich abkühlenden Abgas befindlichen Partikeln kommen. In welchen Mengenverhältnissen dies geschieht, kann aufgrund der Komplexität der Vorgänge nicht analytisch abgeschätzt werden. Abbildung 131 zeigt einen Vergleich der aus Simulation und verschiedenen Messungen gewonnenen Verteilung der Salzfrachten auf die verschiedenen Partikelgrößen im Abgas des GKS:

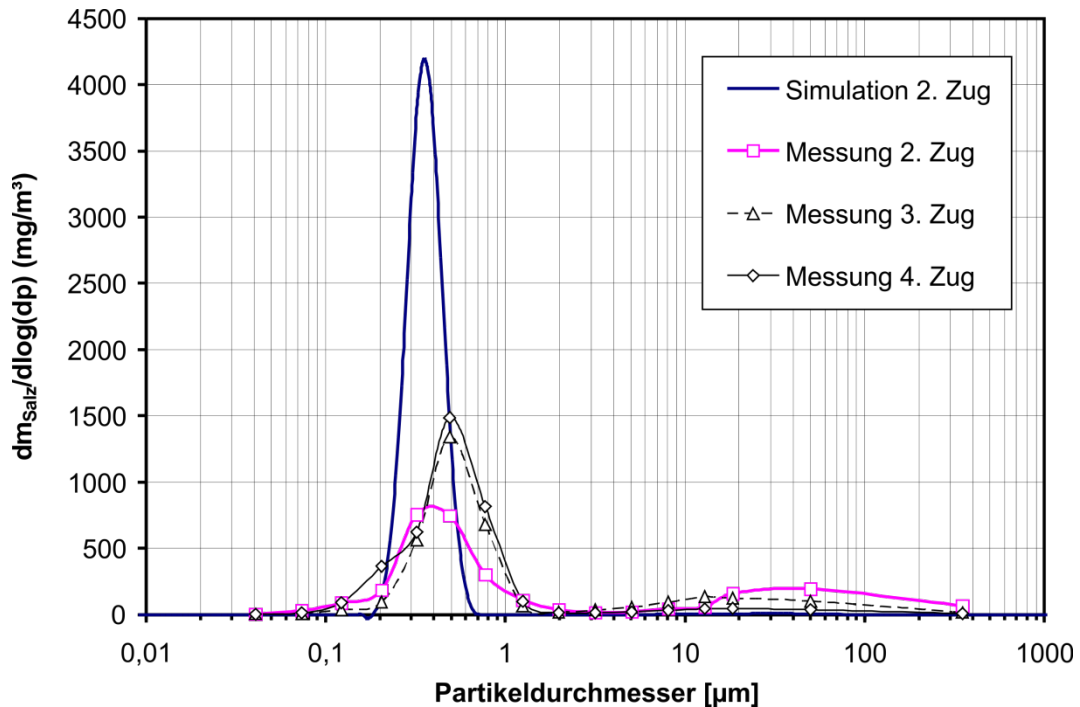


Abbildung 131: Vergleich normierte Salzfrachten Simulation und Messungen.

Deutlich ist hier die unterschiedliche Aufteilung des Salzes auf kleine und große Partikel zu erkennen. Während in der Simulation die Salzfracht fast ausschließlich auf den Partikeln  $< 1 \mu\text{m}$  lokalisiert ist, zeigen die Messungen auch einen deutlichen Salzanteil auf den Partikeln des groben Modes. Quantitativ lässt sich die Salzverteilung in einer kumulativen Auftragung erkennen (Abbildung 132).

Bei dieser Art der Auftragung zeigt sich ein signifikanter Unterschied in den Massenverläufen der Messungen in Form einer deutlichen Zunahme der Salzmasse bis in den vierten Zug. Zusätzlich lässt sich die Abnahme der Salzmasse bei Partikeln  $> 10 \mu\text{m}$  im Verlauf der Anlage erkennen. Dies liegt an der Abscheidung dieser Partikel an den diversen Einbauten im Kessel. Um die gesamte Salzmenge in der Messung abzuschätzen, wurde die Salzmasse im Größenbereich  $> 10 \mu\text{m}$  im zweiten Zug zu der Salzmasse im Bereich  $< 10 \mu\text{m}$  im vierten Zug hinzugerechnet. Die so erhaltene Salzmassenkurve (Messung vierter + zweiter Zug grün in Abbildung 132) zeigt, dass die insgesamt auf dem Aerosol verteilte Salzfracht in der gleichen Größenordnung liegt, wie in der Simulation. Allerdings wächst der Salzgehalt der Partikel bis in den vierten Zug hinein recht deutlich an und der Anteil des Salzes, der auf den Partikeln  $> 10 \mu\text{m}$  nachgewiesen wurde ist deutlich größer als in der Simulation beobachtet.

Hierfür gibt es bislang keine sichere Erklärung, da das in der Simulation beobachtete Verhalten für das betrachtete Reinstoffsystem plausibel scheint. Sowohl die Lage der sehr schmalen Kondensationszone als auch die Verteilung der Masse auf kleine und große Partikel entspricht dem theoretisch erwarteten Verhalten unter den betrachteten Randbedingungen. Die Abweichung zu den Messwerten ist jedoch recht groß und die gemessene Salzkurve ein Mittelwert aus verschiedenen Messungen, die mit unterschiedlichen Methoden durchgeführt wurden, so dass als Erklärung alleinig ein Messfehler nicht plausibel erscheint. Es scheint also physikalische oder chemische Effekte zu geben, die in den Modellrechnungen nicht berücksichtigt wurden. Eine mögliche Ursache könnte die Unterschätzung der Partikeloberfläche bei den groben Partikeln sein. Während die Simulation ausschließlich die Betrachtung sphärischer Partikel, die ihre Form nicht verändern zulässt, könnte die fraktale Dimension der Partikel in Realität deutlich davon abweichen. Ein weiterer Erklärungsansatz könnte in einem erhöhten Koagulationskoeffizienten aufgrund von ausgeprägten Turbulenzeffekten liegen, die die stark salzhaltigen Feinstpartikel verstärkt mit den groben Partikeln kollidieren lassen und dadurch die messtechnisch beobachtete Salzmenge zu den groben Partikeln transportieren [Benker 2017]. Zur Klärung der hier beobachteten Abweichungen bedarf es jedoch weiterer Untersuchungen, die im Rahmen dieses Forschungsvorhabens nicht mehr durchgeführt werden konnten.

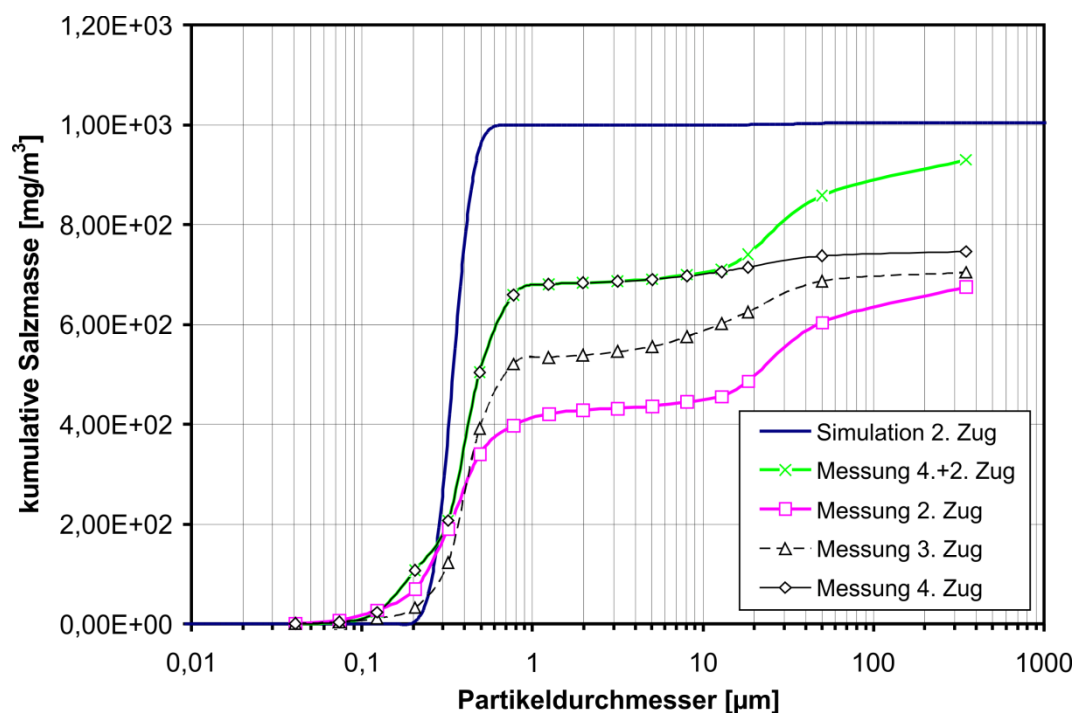


Abbildung 132: Kumulative Salzverteilung (vgl. Simulation und Messung).

In den folgenden Betrachtungen wurde für die ermittelten Salzverteilungen, unter Verwendung der numerisch ermittelten Abscheidekurve des Rohrbündels (siehe Abbildung 127, magenta), die auf den Bündeln abgeschiedene Salzmasse prognostiziert. Abbildung 133 zeigt den Vergleich der normierten Abscheidekurven für die Simulation und die Messung am Überhitzer. Grundlage dafür sind die Salzkonzentrationen im zweiten Zug kurz vor Eintritt in den Überhitzer. Auch hier ist eine hundertprozentige Haftwahrscheinlichkeit der Partikel angenommen.

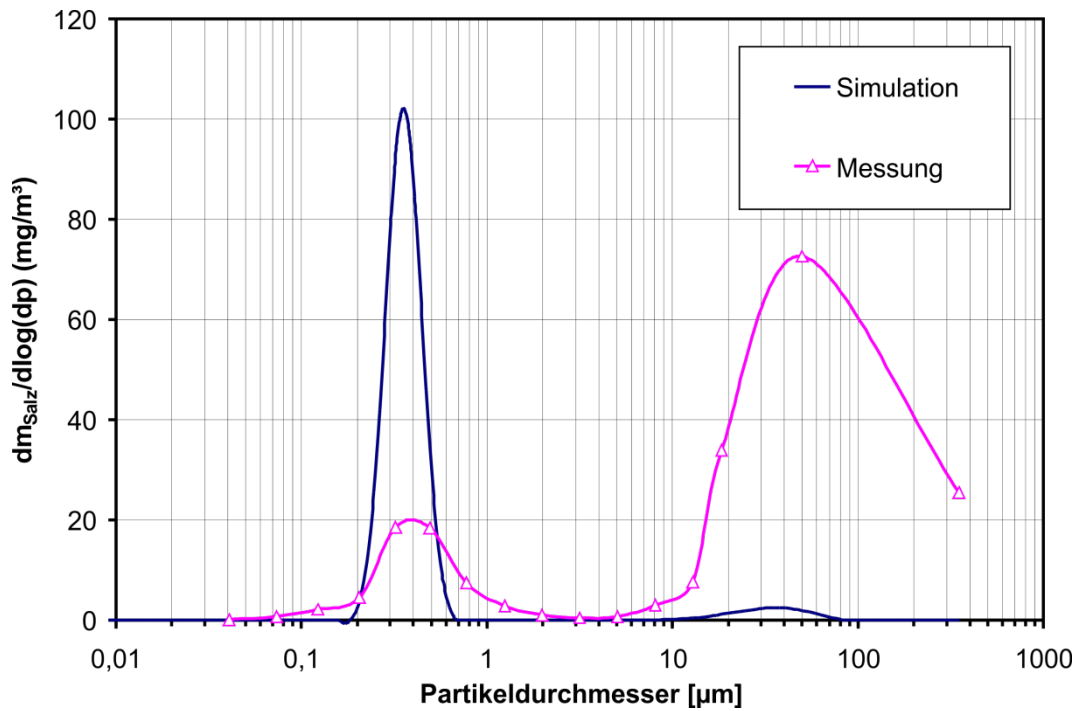


Abbildung 133: Deponierte Salzfracht auf dem Überhitzer (normierte Darstellung, 100% Haftwahrscheinlichkeit).

Aufgrund der Abscheidecharakteristik des Rohrbündels trägt die Salzfracht im groben Mode deutlich stärker zur Deposition bei als das an kleine Partikel gebundene Salz. Auch hier ist die Abweichung zwischen Simulation und Messung deutlich. Betrachtet man die entsprechende kumulative Auftragung der Deposition (Abbildung 134) so wird deutlich, dass sich aus der Abweichung zwischen Simulation und Messung erheblich unterschiedliche Salzfrachten auf das Rohrbündel ergeben.

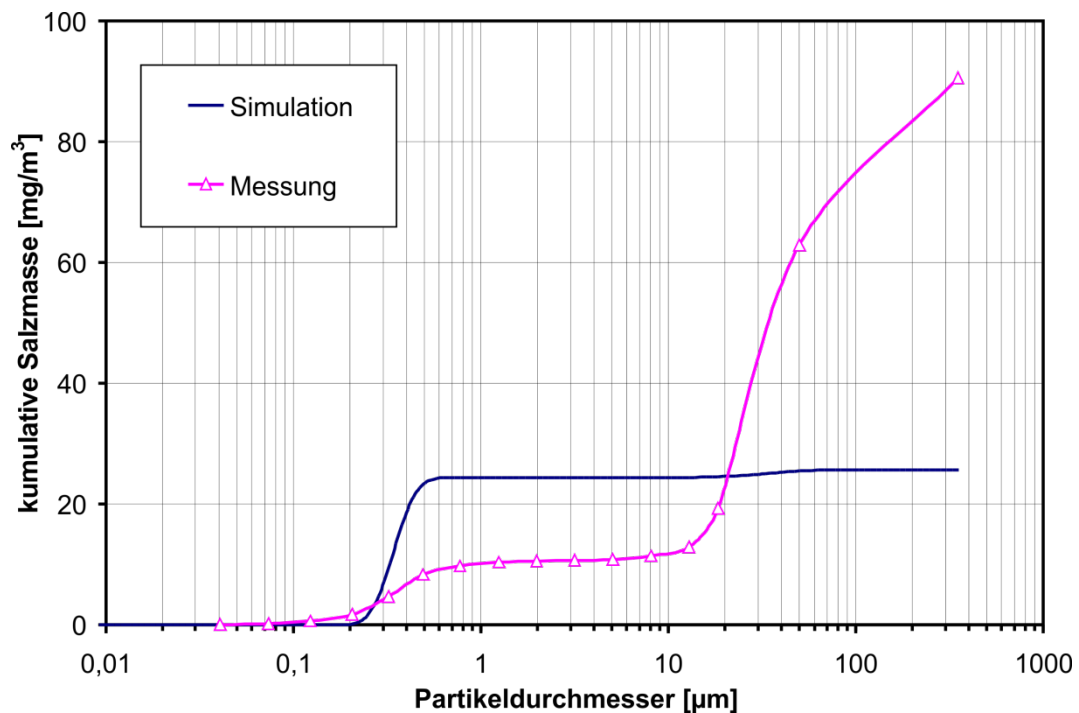


Abbildung 134: Kumulative Salzdeposition am Überhitzer.

Während die Salzfracht bei den kleinen Partikeln von der Simulation in etwa doppelt so hoch abgeschätzt wird, vervierfacht der Beitrag der Partikel > 10 µm die Salzfracht gegenüber der Simulation, so dass Simulation und Messungen zu deutlich abweichenden Depositionsprognosen führen. Tabelle 12 stellt die Salzfrachten für kleine, große Partikel und dampfförmige kondensierbare Salze tabellarisch gegenüber.

	Partikel < 10 µm	Partikel > 10 µm	kond. Dampf
Simulation	24,4 mg/m <sup>3</sup>	1,2 mg/m <sup>3</sup>	29,68 mg/m <sup>3</sup>
Messung	11,44 mg/m <sup>3</sup>	79,19 mg/m <sup>3</sup>	-

Tabelle 12: Depositionsprognose (100% Haftwahrscheinlichkeit)

Hier sind die unterschiedlichen Transportwege für die Salzfracht zum Rohrbündel getrennt erfasst, sodass daraus abgeleitet werden kann, auf welchem Weg die größte Salzfracht auf das Rohrbündel erfolgt. Die Aussage der Simulation steht hier im klaren Widerspruch zu den Ergebnissen der Messungen. Während bei der Simulation als Hauptmechanismen die turbulente Abscheidung kleiner Partikeln und vermutlich auch dampfförmige Salze, die direkt auf den Rohren deponieren, genannt werden können, ist in der Messung die Fraktion der Partikeln > 10 µm der hauptsächliche Salzlieferant. Daten über die Dampfkonzentration am Überhitzer wurden messtechnisch nicht erhoben. Diese sollte allerdings mindestens so hoch sein wie in der Simulation, da die Messungen ein weiteres, deutliches Partikelwachstum hinter dem Überhitzer zeigen. Das Depositionsverhalten der kleinen Partikel und des kondensierbaren Dampfes unterscheidet sich jedoch deutlich von dem der groben Partikel. Während die kleinen Partikel und der Dampf zu einer über das Rohrbündel verteilten Dampfdeposition führen sollten, ist davon auszugehen, dass die groben Partikel vor allem Salz auf der Vorderseite der ersten Rohrreihe deponieren und nur ein kleiner Anteil über Turbulenzen im Rohrbündel verteilt wird (siehe Abbildung 127). Die absoluten Mengen der deponierten Salzfracht sind direkt proportional zur realen Haftwahrscheinlichkeit der Partikel. Die hier durchgeführte Prognose bei einer angenommenen Haftwahrscheinlichkeit von 100 % stellt somit eine Worst-Case-Abschätzung dar.

## G Zusammenfassung

Hauptziel der Arbeiten des IUTA war es, durch die Entwicklung einer Probenahmsonde das Aerosol in Feuerraum und Kessel zweier Müllverbrennungsanlagen physikalisch und chemisch zu charakterisieren. Nachdem sich das Zurückgreifen auf eine vom bifa Umweltinstitut entwickelte Verdünnungssonde als nicht zielführend erwiesen hat, wurde ein neues Konzept erarbeitet, das es erlaubt, die Partikel direkt im Heißgas zur anschließenden Charakterisierung abzuscheiden. Die Sonde ist geeignet für den Einsatz bei Temperaturen von bis zu 1250°C unter stark korrosiven Bedingungen und erlaubt die Bestimmung von Morphologie, Größenverteilung, Konzentration und chemischer Zusammensetzung von Partikeln über einen weiten Größenbereich.

Die Sonde ist als zweistufiges System ausgelegt: Größere Partikel werden zunächst auf der Prallplatte eines Impaktors abgeschieden, während die verbleibenden Partikel auf einem Membranfilter mit wohldefinierten Poren gesammelt werden. Dazu wurde basierend auf der klassischen Impaktorthorie zunächst ein erster Prototyp

eines Impaktors ausgelegt, der schrittweise mit Hilfe weiterer Simulationen und Probemessungen optimiert wurde. Mittels eines Versuchsaufbaus konnte das Abscheideverhalten des Impaktors bei Raumtemperatur validiert werden. Bei Versuchen zur Eignung verschiedener Filtersubstrate für die zweite Stufe des Sammlers haben sich mikrogalvanisch gewachsene Nickelmembranen als am besten geeignet herausgestellt. Die größenabhängige Abscheideeffizienz der Membranen wurde durch Simulationen bestimmt. Somit lassen sich die luftgetragenen Partikelgrößenverteilungen sowie die Gesamtstaubmengen aus der Belegung der Probensubstrate bestimmen. Parallel dazu wurde die Sonde so modifiziert, dass direkte Gesamtstaubmessungen auf Quarzfaserfiltern vorgenommen werden können.

Mit der Sonde wurden zwei große Messkampagnen am GKS Schweinfurt durchgeführt, bei denen ein umfangreicher Datensatz mit Partikelmessungen in den vier Kesselzügen sowie im Feuerraum gewonnen werden konnte. Artefakte durch Kondensation von Salzdämpfen, die bisherige Studien stets beeinflusst haben, konnten dabei weitgehend unterdrückt werden. Das untersuchte Aerosol zeigt eine bimodale Größenverteilung. Die Konzentration der Feinfraktion, die hauptsächlich aus Salzen besteht, nimmt im Kesselverlauf stetig zu. Um diese Zunahme der Konzentration ohne deutliches Anwachsen des Partikeldurchmessers zu erklären, muss davon ausgegangen werden, dass sich im Feuerraum neben den beobachteten Partikeln noch eine hohe Zahl an deutlich kleineren Keimen befindet, die sich im REM aufgrund ihrer geringen Größe nicht vom Untergrund unterscheiden lassen. Diese Vermutung konnte durch CFD-Simulationen bestätigt werden. Neben den feinen Partikeln findet man eine Grobfraktion, die vom Rost freigesetzte Primärpartikel sowie größere Agglomerate enthält. Die Massenkonzentration der groben Partikel nimmt durch Verluste an Umlenkungen und Strömungshindernissen im Kesselverlauf kontinuierlich ab.

Es gibt im Wesentlichen drei Arten von Partikelmorphologien: (i) nahezu perfekt sphärische Partikel mit glatter Oberfläche, (ii) eher kompakte, aber unregelmäßig geformte Partikel und (iii) fraktale Agglomerate aus kleineren Partikeln. Die kugelförmigen Partikel sind typisch für Partikel, die durch Erstarrung von Flüssigkeitstropfen entstehen, während die kompakten unregelmäßig geformten Partikel vermutlich bereits als feste Partikel vom Rost emittiert werden. Die Agglomerate sind typisch für verbrennungsgenerierte Partikel, die auf dem Weg durch den Kessel durch Koagulation entstehen. In der chemischen Zusammensetzung ließen sich jedoch zwischen den einzelnen Morphologieklassen keine systematischen Unterschiede ausmachen.

Die Partikel bestehen zum Großteil aus Si, Al und Ca, die hauptsächlich als Oxide vorliegen. Weitere substantielle Beiträge kommen von den metallischen Kationen Mg, Fe, Ti und Zn. Die deutlichste Veränderung der chemischen Zusammensetzung im Kesselverlauf zeigt sich im Anstieg des Alkali- und Chloranteils durch Auskondensieren der gasförmigen Salze. Gleichzeitig ist eine leichte Zunahme im S-Gehalt über die Züge zu verzeichnen, was auf eine leichte Sulfatierung der chlorhaltigen Partikel während der Flugphase hindeutet. Weitere Anionen wie P und F liegen im gesamten Kessel nur in Spuren vor. Die Untersuchungen an Einzelpartikeln mittels EDX lieferten aufgrund des geringen Signals keine Informationen zur Zusammensetzung der submikronen Partikel. Diese konnte jedoch durch eine Kombination der größenfraktionierten und der Gesamtstaubmessungen abgeschätzt werden. Im zweiten bis vierten Zug zeigte dieser Ansatz, dass die submikronen Partikel zu mehr als 80% aus Alkalichloriden bestehen. Im ersten Zug bestehen sie hingegen hauptsächlich aus  $\text{CaSO}_4$  und  $\text{K}_2\text{SO}_4$ .

Bei Untersuchung der Prallplatten wurden eine relativ hohe Belegung mit submikronen Partikeln im ersten Zug und ein erhöhter Salzanteil gefunden. Dies deutet darauf hin, dass auf der Prallplatte doch noch unerwünschte Kondensationsartefakte auftreten, die vermutlich auf eine nicht ausreichende Aufheizung der Prallplatte zurückzuführen sind. Dieses Problem konnte auch durch längere Vorheizzeiten im Laufe des Projekts nicht vollständig behoben werden, beeinträchtigt jedoch nicht die Qualität der Ergebnisse.

Die beiden Messkampagnen am GKS lieferten im Wesentlichen konsistente Ergebnisse. Der Hauptunterschied zwischen den beiden Messkampagnen lag darin, dass die Gesamtkonzentration an Partikeln bei der Messung im August merklich niedriger ausfiel, was vermutlich auf unterschiedliche Betriebszustände zurückzuführen ist. Eine zusätzlich durchgeführte Messung während des Rußblasens zeigte keine signifikanten Unterschiede zum üblichen Betrieb. Es ist zu vermuten, dass aufgrund des sehr gerichteten Wasserdampfstrahls ein Großteil des abgetragenen Staubs bei der Messung nicht richtig erfasst wurde.

Um die am GKS gewonnenen Daten mit denen einer Vergleichsanlage in Bezug setzen zu können, wurde eine weitere Messkampagne am AEZ Asdonkshof durchgeführt, das für seine geringe Korrosionsrate bekannt ist. Insgesamt zeigt sich beim Vergleich der beiden Anlagen ein ähnliches Bild, sowohl in Bezug auf die Partikelgrößenverteilungen als auch auf die chemische Zusammensetzung. Lediglich waren die Gesamtstaubmengen am AEZ Asdonkshof offenbar etwas niedriger. Ein weiterer auffälliger Unterschied zwischen GKS und Vergleichsanlage lag darin, dass auf Partikeln zwischen etwa 1 und 25  $\mu\text{m}$  prozentual weniger Cl zu finden ist. Abschließend wurden die Daten mit Messungen des bifa Umweltinstituts zusammengeführt, um so eine umfassende Charakterisierung der Partikelphase in Feuerraum und Kessel unter Ausnutzung der Vorteile beider Methoden zu erlangen. Die so erhaltenen Größenverteilungen und chemischen Zusammensetzungen wurden den Projektpartnern für Simulation und Laboruntersuchung des Korrosionsverhaltens zur Verfügung gestellt.

Im Bereich der CFD-Simulationen wurde eine Methode entwickelt, die es erlaubt, die von der Weghaus GmbH mit Hilfe von CFX durchgeführten Verbrennungsrechnungen in FLUENT zu nutzen, um die im Rahmen des Vorhabens vorgesehenen Berechnungen der Partikeldynamik im Rauchgas direkt darauf aufzusatteln. Es wurde eine Kinetikstudie der Partikeldynamik unter Verwendung der Randbedingungen des GKS anhand einer eindimensionalen Betrachtung durchgeführt. Dabei wurden sowohl ein bimodales als auch ein trimodales Aerosol in Betracht gezogen. Beide Varianten der Simulation geben das tendenzielle Verhalten des Aerosols im Kessel des GKS gut wieder und erweisen sich als gute Ergänzung zu den Messungen.

Die im Rahmen des Vorhabens ursprünglich geplante vollständige dreidimensionale Betrachtung der Partikeldynamik im Kessel hat sich als sehr rechenzeitintensiv herausgestellt. Alternativ wurde daher eine quasi 3D-Simulation anhand mehrerer verschiedener Stromfäden durchgeführt. Dabei konnte gezeigt werden, dass die genaue Flugbahn der Partikel nur wenig Einfluss auf die Größenverteilung am Kesselende hat, eine eindimensionale Betrachtung also eine ausreichende Näherung liefert.

Weiterhin wurden Möglichkeiten zur Untersuchung der elektrostatischen Eigenschaften der Partikel eingehend diskutiert. Die ursprünglich angedachte Methode mittels extraktiver Probenahme erwies sich aufgrund der inzwischen bekannten Kon-

densationprobleme als nicht einsetzbar. Deshalb wurde eine Sonde mit einer Anordnung von Kondensatorplatten für in situ Messungen gefertigt. Jedoch ist nach einer Abschätzung zu erwarten, dass die elektrophoretische Sammeleffizienz gering ist und die Methode vermutlich anfällig für Artefakte ist. Aus diesem Grund wurden Simulationen zum Ladungszustand der Partikelphase durchgeführt, auf deren Basis die Schlussfolgerung gezogen werden konnte, dass keine signifikanten elektrophoretischen Abscheideeffekte innerhalb des Kessels zu erwarten sind. Somit wurde der Aufwand für eine komplex zu interpretierende Messung eingespart.

Schließlich wurde noch das Abscheideverhalten der Partikel auf den Überhitzerrohrbündeln berechnet und daraus die deponierten Salzfrachten abgeschätzt. Hier ergab sich eine deutliche Diskrepanz zwischen Messung und Simulationen. Bei letzterer findet sich das Salz fast ausschließlich auf den feinen Partikeln, während die Messung einen großen Anteil der Salzfracht auf den großen Partikeln findet. Mögliche Gründe für die Abweichung können eine Unterschätzung der Oberfläche der groben Partikel bei Annahme einer ideal runden Form oder die Vernachlässigung weiterer möglicherweise relevanter Mechanismen wie beispielsweise der turbulenten Koagulation zwischen feinen und groben Partikeln sein.

In Hinblick auf ein Gesamtkorrosionsmodell lassen sich die Ergebnisse wie folgt bewerten: Durch die neue Probenahmesonde konnte bestätigt werden, dass die mittelgroßen Partikel im Bereich zwischen 1 und 10  $\mu\text{m}$  wenig zur Gesamtstaubmasse beitragen. Nimmt man hinzu, dass sie nicht sonderlich effizient auf den Überhitzerrohrbündeln abgeschieden werden, lässt sich schlussfolgern, dass sie nur in geringem Maße am Chlortransport beteiligt sind. Somit sind die zwischen den beiden Anlagen gefundenen Unterschiede in diesem Größenbereich vermutlich nicht die maßgebliche Ursache für die starken Unterschiede in den Korrosionsraten. Der größte Teil des Chlors wird über Partikel größer 10  $\mu\text{m}$  auf die Überhitzerrohrbündel transportiert. Dies ergibt sich aus der hohen Massenkonzentration, der hohen Abscheidewahrscheinlichkeit und der relativ hohen Salzgehalte, die sich auf Basis der grundlegendsten Aerosol- und Kondensationsmechanismen nicht erklären lassen. Ein möglicher Ansatz zur Korrosionsminderung besteht also darin, den Stofftransport von feinen auf grobe Partikel, etwa durch geänderte Feuerungsbedingungen, zu minimieren. Hier besteht weiterer Forschungsbedarf.

## **H Literaturverzeichnis**

[AiF149Z] Schlussbericht zum Projekt „Untersuchung des Einflusses keramischer Dielektrika bei der Entwicklung einer elektrostatischen Feinstpartikelabscheidung für den Kombi-Kraftwerksprozess mit Druckkohlenstaubfeuerung (DKSF)“ (AiF-Vorhaben-Nr. 149 Z) (2006).

[AiF275ZN] Schlussbericht zum Projekt „Feinstpartikelabscheidung für Hochtemperaturprozesse unter Nutzung aktiver und passiver, thermisch induzierter Potenzialfelder“ (AiF-Vorhaben-Nr. 275 ZN) (2011).

[Akinyemi2012] S.A. Akinyemi, A. Akinlua, W.M. Gitari, S.M. Nyale, R.O. Akinyeye, L.F. Petrik, An investigative study on the chemical, morphological and mineralogical alterations of dry disposed fly ash during sequential chemical extraction, Energy Sci. Technol. 3 (2012) 28-37.

- [Bankiewicz2009] D. Bankiewicz, P. Yrjas, M. Hupa, High-Temperature Corrosion of Superheater Tube Materials Exposed to Zinc Salts, *Energy Fuels* 23 (2009) 3469-3474.
- [Benker2005] B. Benker, J. Harpeng, R. Warnecke, Deposition an und Permeation in Belägen, Seminar am 14.-15. Juni 2005 in Hannover, VDI-Verlag, Düsseldorf (2005).
- [Benker2017] B. Benker, Abschlussbericht VOKos, Effizienzsteigerung durch verfahrenstechnisch optimierende Korrosionsschutzkonzepte in Verbrennungsanlagen mit heterogenen Festbrennstoffen, Förderkennzeichen 03X3589D (2017).
- [Brunner2013] T. Brunner, J. Fluch, I. Obernberger, R. Warnecke, Investigations of aerosol formation pathways during MSW combustion based on high-temperature impactor measurements, *Fuel Process. Technol.* 105 (2013) 154-160.
- [Bryers1996] R.W. Bryers, Fireside slagging, fouling, and high-temperature corrosion of heat-transfer surface due to impurities in steam-raising fuels, *Prog. Energy Combust. Sci.* 22 (1996) 29-120.
- [Chang1991] Y.-N. Chang, F.-I. Wei, High-temperature chlorine corrosion of metals and alloys, *J. Mater. Sci.* 26 (1991) 3693-3698.
- [Chen2013] S.C. Chen, J. Wang, H. Fissan, D.Y.H. Pui, Exposure assessment of nanosized engineered agglomerates and aggregates using Nuclepore filters, *J. Nanopart. Res.* 15 2013 1955.
- [Chen2015] G. Chen, N. Zhang, W. Ma, V.S. Rotter, Y. Wang, Investigation of chloride deposit formation in a 24 MWe waste to energy plant, *Fuel* 140 (2015) 317-327.
- [Christensen1998] K.A. Christensen, M. Stenholm, H. Livbjerg, The formation of submicron aerosol particles, HCl and SO<sub>2</sub> in straw-fired boilers, *J. Aerosol Sci.* 29 (1998) 421-444.
- [Cyrs2010] W.D. Cyrs, D.A. Boysen, G. Casuccio, T. Lersch, T.M. Peters, Nanoparticle collection efficiency of capillary pore membrane filters, *J. Aerosol Sci.* 41 (2010) 655-664.
- [CRC2008] CRC Handbook of Chemistry and Physics, CRC Press, Boca Raton, Florida (2008).
- [Deuerling2009] C. Deuerling, J. Maguhn, H. Nordsieck, B. Benker, R. Zimmermann, R. Warnecke, Investigation of the mechanisms of heat exchanger corrosion in a municipal waste incineration plant by analysis of the raw gas and variation of operating parameters, *Heat Transfer Eng.* 30 (2009) 822-831.
- [Deuerling2010] C. Deuerling, J. Maguhn, H. Nordsieck, R. Warnecke, R. Zimmermann, Measurement System for Characterization of Gas and Particle Phase of High Temperature Combustion, *Aerosol Sci. Technol.* 44 (2010) 1-9.
- [EFRE-KORR2008] Schlussbericht zum Projekt EFRE-KORR, Teilprojekt EU13: „Korrosion in Anlagen zur thermischen Abfallbehandlung - Chemische Charakterisierung von Verbrennungsgasen in Bezug auf Korrosionsvorgänge – Partikel“ (2008)

- [Eighmy1995] T.T. Eighmy, J.D. Eusden, J.E. Krzanowski, D.S. Domingo, D. Staempfli, J.R. Martin, P.M. Erickson, Comprehensive approach toward understanding element speciation and leaching behavior in municipal solid waste incineration electrostatic precipitator ash, *Environ. Sci. Technol.* 29 (1995) 629-646.
- [Evans2000] J. Evans, P. T. Williams, Heavy metal adsorption onto flyash in waste incineration flue gases, *Process Saf. Environ.* 78 (2000) 40-46.
- [Ewing1974] C.T. Ewing, K.H. Stern, Equilibrium vaporization rates and vapor pressures of solid and liquid sodium chloride, potassium chloride, potassium bromide, cesium iodide, and lithium fluoride, *J. Phys. Chem.* 78 (1974) 1998-2005.
- [Friedlander2000] S.K. Friedlander: *Smoke, dust and haze*, Oxford Univ. Press, Oxford (2000).
- [Fuchs1964] N.A. Fuchs, *The Mechanics of Aerosols*, Mac-Millan, New York (1964).
- [Grabke1995] H.J. Grabke, E. Reese, M. Spiegel, The effects of chlorides, hydrogen chloride, and sulfur dioxide in the oxidation of steels below deposits, *Corros. Sci.* 37 (1995) 1023-1043.
- [Gehrke2008] I. Gehrke, *Metallische Mikrosiebe - Mikrotechnische Herstellung und filtertechnische Charakterisierung*, Logos Verlag Berlin GmbH, Berlin (2008).
- [Glarborg2005] P. Glarborg, P. Marshall, Mechanism and modeling of the formation of gaseous alkali sulfates, *Comb. Flame* 141 (2005) 22-39.
- [Haugen2013] N.E.L. Haugen, S. Kragset, M. Bugge, R. Warnecke, M. Weghaus, MSWI super heater tube bundle: Particle impaction efficiency and size distribution, *Fuel Process. Technol.* 106 (2013) 416-422.
- [Heidam1981] N.Z. Heidam, Review: Aerosol Fractionation by Sequential Filtration with Nuclepore Filters, *Atmos. Environ.* 15 (1981) 891-904.
- [Hinds1999] W.C. Hinds, *Aerosol technology: properties, behavior, and measurement of airborne particles*, 2nd edition, Wiley, New York (1999).
- [Huang2002] C.-H. Huang, C.-J. Tsai, Influence of Impaction Plate Diameter and Particle Density on the Collection Efficiency of Round-Nozzle Inertial Impactors, *Aerosol Sci. Technol.* 36 (2002) 714-720.
- [Jensen2000] J. R. Jensen, L. B. Nielsen, C. Schultz-Møller, S. Wedel, H. Livbjerg, The Nucleation of Aerosols in Flue Gases with a High Content of Alkali - A Laboratory Study, *Aerosol Sci. Technol.* 33 (2000) 490-509.
- [Jiménez2005] S. Jiménez, J. Ballester, A comparative study of different methods for the sampling of high temperature combustion aerosols, *Aerosol Sci. Technol.* 39 (2005) 811-821.

[Jiménez2007a] S. Jiménez, J. Ballester, Influence of operating conditions and the role of sulfur in the formation of aerosols from biomass combustion, *Combust. Flame* 140 (2007) 346-358.

[Jiménez2007b] S. Jiménez, J. Ballester, Formation of alkali sulphate aerosols in biomass combustion, *Fuel* 86 (2007) 486-493.

[Kawahara2002] Y. Kawahara, High temperature corrosion mechanisms and effect of alloying elements for materials used in waste incineration environment, *Corros. Sci.* 44 (2002) 223-245.

[Klein2011] C.L. Klein, S. Comero, B. Stahlmecke, J. Romazanov, T.A.J. Kuhlbusch, E. van Doren, P.-J. de Temmerman, J. Mast, P. Wick, H. Krug, G. Locoro, K. Hund-Rinke, W. Kördel, S. Friedrichs, G. Maier, J. Werner, T. Linsinger, B.M. Gawlik, NM-Series of Representative Manufactured Nanomaterials; NM-300 Silver Characterisation, Stability, Homogeneity. Publications Office of the European Union, Luxembourg, EUR 24693 EN, JRC 60709 (2011).

[Krause1986] H.H. Krause, High temperature corrosion problems in waste incineration systems, *J. Mater. Energy Syst.* 7 (1986) 322-332.

[Lam2010] C.H. Lam, A.W. Ip, J.P. Barford, G. McKay, Use of incineration MSW ash: a review, *Sustainability* 2 (2010) 1943-1968.

[Lawless1996] P.A. Lawless, Particle Charging Bounds, Symmetry Relations, and an Analytic Charging Rate Model for the Continuum Regime, *J. Aerosol Sci.* 27 (1996) 191-215.

[Lee2007] S.-H. Lee, H. Krumb, N.J. Themelis, M.J. Castaldi, High-Temperature Corrosion in Waste-to-Energy Boilers, *J. Therm. Spray Technol.* 16 (2007) 104-110.

[Li2004] Y.S. Li, M. Spiegel, Models describing the degradation of FeAl and NiAl alloys induced by ZnCl<sub>2</sub>-KCl melt at 400–450°C, *Corros. Sci.* 46 (2004) 2009-2023.

[Loo1988] B.W. Loo, C.P. Cork, Development of high efficiency virtual impactors, *Aerosol Sci. Technol.* 9 (1988) 167-176.

[Maguhn2003] J. Maguhn, E. Karg, A. Kettrup, R. Zimmermann, On-line analysis of the size distribution of fine and ultrafine aerosol particles in flue and stack gas of a municipal waste incineration plant: effects of dynamic process control measures and emission reduction devices, *Environ. Sci. Technol.* 37(2003) 4761-4770.

[Maisch2011] S. Maisch, Identifikation und Quantifizierung von korrosionsrelevanten Parametern in Müllverbrennungsanlagen mittels Charakterisierung der deponierten Partikel und elektrochemischer Online-Messungen, Universität Augsburg, Augsburg (2011).

[Maisels2002] A. Maisels, F. Jordan, H. Fissan, Dynamics of the aerosol particle photocharging process, *J. Appl. Phys.* 91 (2002) 3377-3383.

[Manton1978] M.J. Manton, The Impaction of Aerosols on a Nuclepore Filter, *Atmos. Environ.* 12 (1978) 1669-1675.

[Manton1979] M.J. Manton, Brownian Diffusion of Aerosols to the Face of a Nuclepore Filter, *Atmos. Environ.* 13 (1979) 525-531.

[Michelsen1998] H.P. Michelsen, F. Frandsen, K. Dam-Johansen, O.H. Larsen, Deposition and high temperature corrosion in a 10 MW straw fired boiler, *Fuel Process. Technol.* 54 (1998) 95-108.

[Miller1972] P.D. Miller, H.H. Krause, D.A. Vaughan, W.K. Boyd, The Mechanism in High Temperature Corrosion in Municipal Incinerators, *Corrosion* 28 (1972) 274-282.

[Nielsen2000] H.P. Nielsen, F.J. Frandsen, K. Dam-Johansen, L.L. Baxter, The implications of chlorine-associated corrosion on the operation of biomass-fired boilers, *Prog. Energy Combust. Sci.* 26 (2000) 283-298.

[Otsuka2011] N. Otsuka, Chemistry and melting characteristics of fireside deposits taken from boiler tubes in waste incinerators, *Corros. Sci.* 53 (2011) 2269-2276.

[Park2009] K. Park, J.S. Kim, A.L. Miller, A study on effects of size and structure on hygroscopicity of nanoparticles using a tandem differential mobility analyzer and TEM, *J. Nanopart. Res.* 11 (2009) 175-183.

[Persson2007] K. Persson, M. Broström, J. Carlsson, A. Nordin, R. Backman, High temperature corrosion in a 65 MW waste to energy plant, *Fuel Process. Technol.* 88 (2007) 1178-1182.

[Phongphiphat2010] A. Phongphiphat, C. Ryu, Y.B. Yang, K.N. Finney, A. Leyland, V.N. Sharifi, J. Swithenbank, Investigation into high-temperature corrosion in a large-scale municipal waste-to-energy plant, *Corros. Sci.* 52 (2010) 3861-3874.

[Pohl2013] M. Pohl, Methode zur Charakterisierung der freigesetzten mineralischen Bestandteile eines Brennstoffs mit Hilfe einer Partikelgitternetzsonde, Technische Universität Dresden, Dresden (2013).

[Schmid1998] H.-J. Schmid, Zum Partikeltransport in elektrischen Abscheidern, Dissertation, Karlsruhe (1998).

[Schmidt2009] F. Schmidt, B. Stahlmecke, H. Kaminski, H. Finger, Characterisation of soot as a test dust for air filters, *Filtr. Sep. Int. Ed.* 9 (2009) 24-28.

[Schlumberger2013] S. Schlumberger, J. Bühler, Metallrückgewinnung aus Filterstäuben der thermischen Abfallbehandlung nach dem FLUREC-Verfahren. Aschen-Schlacken-Stäube aus Abfallverbrennung und Metallurgie, TK Verlag Karl Thomé-Kozmiensky, Neuruppin (2013).

[Schneider2011] T. Schneider, D.H. Brouwer, I.K. Koponen, K.A. Jensen, W. Fransman, B. Van Duuren-Stuurman, M. Van Tongeren, E. Tielemans, Conceptual model for assessment of inhalation exposure to manufactured nanoparticles, *J. Expo. Sci. Environ. Epidemiol.* 21 (2011) 450-463.

- [Schumacher2016] S. Schumacher, J. Lindermann, B. Stahlmecke, A. Khot, T. Zeiner, T. van der Zwaag, H. Nordsieck, R. Warnecke, C. Asbach, Particle Sampling in Boilers of Waste Incineration Plants for Characterizing Corrosion Relevant Species, *Corros. Sci.* 110 (2016) 82-90.
- [Seipenbusch2008] M. Seipenbusch, A. Binder, G. Kasper, Temporal evolution of nanoparticle aerosols in workplace exposure, *Ann. Occup. Hyg.* 52 (2008) 707-716.
- [Sippula2012] O. Sippula, T. Koponen, J. Jokiniemi, Behavior of alkali metal aerosol in a high-temperature porous tube sampling probe, *Aerosol Sci. Technol.* 46 (2012) 1151-1162.
- [Sorell1997] G. Sorell, The role of chlorine in high temperature corrosion in waste-to-energy plants, *Mater. High Temp.* 14 (1997) 207-220.
- [Sorokin2003] A. Sorokin, X. Vancassel, P. Mirabel, Emission of ions and charged soot particles by aircraft engines, *Atmos. Chem. Phys.* 3 (2003) 325-334.
- [Spiegel2003] M. Spiegel, A. Zahs, H.J. Grabke, Fundamental aspects of chlorine induced corrosion in power plants, *Mater. High Temp.* 20 (2003) 153-159.
- [Spiegel2004] Y.S Li, M. Spiegel, Models describing the degradation of FeAl and NiAl alloys induced by ZnCl<sub>2</sub>-KCl melt at 400-450°C, *Corros. Sci.* 46 (2004) 2009-2023.
- [Spurný1969] .R. Spurný, J.P. Lodge, Jr., E.R. Frank, D.C. Sheesley, Aerosol Filtration by Means of Nuclepore Filters: Structural and Filtration Properties, *Environ. Sci. Technol.* 3 (1969) 453-464.
- [Stahl2011] E. Stahl, Charakterisierung metallischer Mikrosiebe zur Gasreinigung am Beispiel der Feinentstaubung von Holzfeuerungsabgasen, Verlag Karl Maria Laufen, Oberhausen (2011).
- [Strand2004] M. Strand, M. Bohgard, E. Swietlicki, A. Gharibi, M. Sanati, Laboratory and field test of a sampling method for characterization of combustion aerosols at high temperatures, *Aerosol Sci. Technol.* 38 (2004) 757-765.
- [Stratmann1991] F. Stratmann, Partikeltransport in einer gekühlten laminaren Rohrströmung durch gleichzeitige Konvektion, Diffusion und Thermophorese, Dissertation, Duisburg (1991).
- [Stull1947] D.R. Stull, Vapor Pressure of Pure Substances. Organic and Inorganic Compounds, *Ind. Eng. Chem.* 39 (1947) 517-540.
- [Terry1995] K.W. Terry, Particle size distribution of airborne dusts using a scanning electron microscope, *Aerosol Sci. Technol.* 23 (1995) 475-478.
- [Thiel2015] C. Thiel, M. Pohl, S. Grahl, M. Beckmann, Characterization of mineral matter particles in gasification and combustion processes, *Fuel* 152 (2015) 88-95.
- [Tuoriniemi2014] J. Tuoriniemi, A.C.J. Johnsson, J.P. Holmberg, S. Gustafsson, J.A. Gallego-Urrea, E. Olsson, J.B.C. Pettersson, M. Hassellöv, Intermethod comparison

of the particle size distributions of colloidal silica nanoparticles, *Sci. Technol. Adv. Mater.* 15 (2014) 035009.

[Uusitalo2004] M.A. Uusitalo, P.M.J. Vuoristo, T.A. Mäntylä, High temperature corrosion of coatings and boiler steels below chlorine-containing salt deposits, *Corros. Sci.* 46 (2004) 1311-1331.

[Valmari1998] T. Valmari, E.I. Kauppinen, J. Kurkela, J.K. Jokiniemi, G. Sfiris, H. Revitzer, Fly ash formation and deposition during fluidized bed combustion of willow, *J. Aerosol Sci.* 29 (1998) 445-459.

[Valmari1999a] T. Valmari, T.M. Lind, E.I. Kauppinen, G. Sfiris, K. Nilsson, W. Maenhaut, Field study on ash behavior during circulating fluidized-bed combustion of biomass. 1. Ash formation, *Energy Fuels* 13 (1999) 379-389.

[Valmari1999b] T. Valmari, T.M. Lind, E.I. Kauppinen, G. Sfiris, K. Nilsson, W. Maenhaut, Field study on ash behavior during circulating fluidized-bed combustion of biomass. 2. Ash deposition and alkali vapor condensation, *Energy Fuels*, 13 (1999) 390-395.

[vanderZwaag2005] T. van der Zwaag, S. Haep, K.G. Schmidt, Simulation of Electrical Effects with Respect to Fine Particle Separation at Conditions of Pressurized Pulverized Coal Combustion, 6th International Symposium & Exhibition "Gas Cleaning at High Temperatures", Osaka (2005).

[vanderZwaag2008] T. van der Zwaag, S. Haep, K.G. Schmidt, Simulation of Electrical Effects with Respect to Fine Particle Separation at Conditions of Pressurized Pulverized Coal Combustion, *Powder Technol.* 180 (2008) 97

[Vasek1959] L.J. Vasek, J.M. Anderson, Work Function of Sodium Chloride, *Proc. Phys. Soc.* 73 (1959) 733

[Wall2014] C. Wall, A. Pohl, M. Knapp, H. Hahn, M. Fichtner, Production of nanocrystalline lithium fluoride by planetary ball-milling, *Powder Technol.* 264 (2014) 409-417.

[Whitby2003] E. Whitby, F. Stratmann, M. Wilck, Fine particle model (FPM) for FLUENT, Chimera Technologies, Inc. (2003).

[Wilck1998] M. Wilck, Modal Modelling of Multicomponent Aerosols, Dissertation, Leipzig (1998).

[Williams2005] P.T. Williams, Waste Treatment and Disposal, 2nd edition, John Wiley & Sons, Chichester (2005).

[Yang2013] J. Yang, A. Gebremedhin, M. Strand, Characterization of particles and inorganic vapors through high-temperature extraction in a biomass-fired grate boiler, *Energy Fuels*, 27 (2013) 5915-5922.

[Yang2015] J. Yang, L. Lin, M. Morgalla, A. Gebremedhin, M. Strand, High-Temperature Characterization of Inorganic Particles and Vapors in a Circulating Flu-

idized Bed Boiler Cofiring Wood and Rubber Waste, Energy Fuels, 29 (2015) 863-871.

[Yao2002] W. Yao, G. Guangsheng, W. Fei, W. Jun, Fluidization and agglomerate structure of SiO<sub>2</sub> nanoparticles, Powder Technol. 124 (2002) 152-159.

[Zahs2000] A. Zahs, M. Spiegel, H.J. Grabke, Chloridation and oxidation of iron, chromium, nickel and their alloys in chloridizing and oxidizing atmospheres at 400–700°C, Corros. Sci. 42 (2000) 1093-1122.

## **II.2 Wichtigste Positionen des zahlenmäßigen Nachweises**

Im Teilprojekt des IUTA ist der wesentliche Teil der Kosten durch Personalausgaben entstanden. Dazu zählen auch die beiden an die Weghaus GmbH und das Ingenieurbüro Benker vergebenen Unteraufträge. Investitionen, die Kosten für Dienstreisen sowie allgemeine Verwaltungskosten nehmen eine untergeordnete Rolle ein. Weitere Details werden im Verwendungsnachweis dargestellt.

## **II.3 Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Arbeit**

Die durchgeführten Forschungsarbeiten sowie die dafür aufgewandten Ressourcen waren notwendig und angemessen, da sie der im Projektantrag formulierten Planung entsprachen und alle wesentlichen im Arbeitsplan formulierten Aufgaben erfolgreich bearbeitet werden konnten.

## **II.4 Voraussichtlicher Nutzen und Verwertbarkeit**

Im Rahmen des Teilprojekts des IUTA konnte eine neuartige Probenahmesonde entwickelt werden, die zum ersten Mal die artefaktfreie Charakterisierung der Partikelphase im Rauchgas von Müllverbrennungsanlagen erlaubt. Die Sonde an sich stellt somit ein wertvolles Werkzeug dar, das in Zukunft sowohl für wissenschaftliche als auch industrielle Zwecke eingesetzt werden kann. Die mit der Sonde gewonnenen Daten dienen den anderen Partnern innerhalb des Projekts als Ausgangspunkt für Simulationen und Laborversuche und können auch für zukünftige Untersuchungen als umfassende Datengrundlage dienen. Wie in den jeweiligen Teilschlussberichten der Projektpartner beschrieben, konnten damit neue Erkenntnisse zum Korrosionsprozess in Müllverbrennungsanlagen gewonnen werden.

Diese Erkenntnisse können in Zukunft potentiell zu erheblichen Einsparungen beim Ressourcenverbrauch an wärmeübertragenden Stahlrohren führen. Bei etwa 200 betroffenen Anlagen in Deutschland mit einem durchschnittlichen Verbrauch von 50 t Stahl pro Jahr steht eine einsparbare Masse von 10.000 t Stahl pro Jahr in Aussicht. Damit sind gleichzeitig eine Verminderung des Eisenerzimports und eine Reduktion von CO<sub>2</sub>-Emissionen, die bei der Stahlerzeugung entstehen, verbunden. Weitere Effekte können sich aus reduzierten Aufwendungen für Wartung und Instandhaltung sowie einer Steigerung der Anlagenverfügbarkeit ergeben. Eine nicht unrealistische Erhöhung der Verfügbarkeit von bis zu 10 % würde zu einer Vermeidung von zusätzlicher Anlagenkapazität führen, womit die Ressourcenaufwendungen für den Bau von etwa 20 Neuanlagen vermieden werden können. Des Weiteren kann durch optimierten Materialeinsatz ein gesteigerter Wirkungsgrad erreicht werden. Durch eine Reduzierung der Korrosionsgeschwindigkeit insbesondere bei erhöhten Temperaturen im

Bereich von 400 bis 600 °C ist eine Wirkungsgradsteigerung um 5 bis 25 % in Kraftwerken mit heterogenen Brennstoffen realistisch.

Die Schäden allein durch die Hochtemperaturkorrosion können je Anlage im Mittel mit etwa 500.000 € pro Jahr angesetzt werden. Zusätzlich führt die Minderung der Effizienz durch Belagsbildung in einer mittelgroßen Anlage zu Kosten von rund 750.000 € pro Jahr. Bei knapp 200 Anlagen, die in Deutschland heterogene Brennstoffe einsetzen, muss von einem wirtschaftlichen Schaden von etwa 250 Millionen Euro pro Jahr ausgegangen werden. Somit stehen sowohl hohe betriebswirtschaftliche Einsparungen in Aussicht, als auch ein volkswirtschaftlicher Nutzen, da das eingesparte Geld für Investitionen an anderer Stelle, beispielsweise für energieeffiziente, klimaschonende Verfahren, zur Verfügung steht.

Eine Lösung des Problems der Hochtemperaturkorrosion würde in erster Linie Unternehmen aus dem Bereich der Verbrennung von heterogenen Brennstoffen, d.h. Kraftwerke, Müllverbrennungsanlagen, Ersatzbrennstofffeuerungsanlagen und Anlagen zur Verbrennung erneuerbarer Energieträger wie Biomasseverbrennungsanlagen, stärken. Positive Effekte ergeben sich aber auch für produzierende Anlagen, die Ersatz- und Sekundärbrennstoffe verbrennen wie die Zement-, Kalk-, Gips- oder Papierindustrie. Letztere sind am Standort Deutschland teilweise nur noch wettbewerbsfähig, weil sie fossile Brennstoffe durch fossil-CO<sub>2</sub>-arme, kostengünstigere, heterogene Brennstoffe ersetzen, wodurch auch ein wesentlicher Beitrag zum Emissionsschutz geleistet wird.

Darüber hinaus werden auch die europäischen und insbesondere deutschen Anlagenbauer sowie deren Zulieferer durch eine erfolgreiche Innovation im Korrosionsschutz im internationalen Vergleich wettbewerbsfähiger. Gerade im Bereich des Feuerungs- und Kesselbaus sind die Planungs- bzw. Herstellerkapazitäten in Deutschland besonders stark vertreten, die auch die Mehrzahl der Anlagen weltweit planen und bauen. Eine Steigerung der Wirkungsgrade der Anlagen durch Veränderung der Dampfparameter schlägt zunächst kurzfristig im Wesentlichen bei Neubauten durch. Altanlagen werden im Rahmen von ohnehin geplanten Umbauten die Möglichkeit haben, eine Wirkungsgradsteigerung durch Erhöhung der Dampfparameter zu realisieren. Erkenntnisse zur Beeinflussung der partikulären Phase können durch verfahrenstechnische Maßnahmen ebenso umgesetzt werden, wie der Einsatz von Werkstoffen, die sich im Projekt als erfolgversprechend gezeigt haben.

Weiterhin sind Gesamtstaubmessungen im Rauchgas von Müllverbrennungsanlagen ein wichtiges Hilfsmittel, um beispielsweise die Einhaltung von Emissionsgrenzwerten zu kontrollieren oder die Effizienz von staubmindernden Maßnahmen zu überprüfen. Die Möglichkeit, diese bei hohen Temperaturen durchführen zu können, erlaubt zudem den Einfluss der Feuerungsbedingung oder die Wirkung chemischer Additive auf die Partikelphase nah an der Quelle zu untersuchen. Im Gegensatz zu größenfraktionierten Messungen, die einer zeitintensive Analyse und sorgfältiger Interpretation bedürfen, machen Gesamtstaubmessungen auf recht unkomplizierte Weise Änderungen in der Partikelphase zeitnah zugänglich. Da es bisher jedoch keine Methode gab, die bei hohen Temperaturen Kondensation und weitere Artefakte vermeidet, bietet die hier entwickelte Probenahmemethode ein wertvolles Werkzeug für Anlagenbetreiber und Forschungszwecke, welches vielseitig angewendet werden kann.

Durch die gute Vernetzung der Projektpartner in der Kraftwerks- und Korrosionsszene konnten frühzeitig erkannte positive Tendenzen schon während der Laufzeit des Projektes an die Nutzer weitergegeben werden. Darüber hinaus konnten die Erfahrungen und Messdaten in Modellierungswerkzeuge einfließen, um Anlagenbauer bei Um- und Neubauten zu beraten. Auf diese Weise wird der Nutzen aus dem Projekt branchenweit verfügbar und die Erfolgsaussichten in Hinblick auf einen Übergang der Ergebnisse in die Praxis realer Anlagen sind positiv. Durch die systematische Bearbeitung des Vorhabens ist zudem umfangreiches Grundlagenwissen entstanden, mit dessen Hilfe bisherige Wissenslücken teilweise geschlossen werden konnten. Dieses wurde regelmäßig auf verschiedenen Fachveranstaltungen präsentiert und in renommierten wissenschaftlichen Fachzeitschriften publiziert. Dieser Prozess zur breitenwirksamen Veröffentlichung der Ergebnisse wird auch in Zukunft fortgeführt. Über die von Mitarbeitern des IUTA gehaltenen Lehrveranstaltungen fließen die Ergebnisse zudem direkt in die universitäre Lehre ein.

Für das IUTA wurde durch die erfolgreiche Bearbeitung des Projektes die Zusammenarbeit mit den Projektpartnern und Unterauftragnehmern gestärkt. Zudem konnte das Netzwerk im Bereich der Müllverbrennung, Korrosionsforschung sowie Kraftwerks- und Verbrennungstechnik erweitert werden. Die Reputation des Instituts konnte durch Fachvorträge auf Konferenzen und Publikationen in wissenschaftlichen Journalen gesteigert werden. Durch das hinzugewonnene Know-how im Bereich der Hochtemperatur-Probenahme und den Zugang zu einer optimierten und validierten Probenahmetechnik wird erwartet, neue Kunden gewinnen sowie weitere Forschungsprojekte auf nationaler und internationaler Ebene akquirieren zu können. Neben einer Stärkung der Position des IUTA im Bereich der Aerosolmesstechnik, konnte auch das Standbein in der Modellierung weiter gefestigt werden. Die Erfahrungen mit der Modellierung in VOKos können für vielfältige Aufgaben, die IUTA im Bereich der Modellierung wahrnimmt, zukünftig eingesetzt werden. Dazu zählen neben der Modellierung des Partikelverhaltens in Hochtemperaturprozessen beispielsweise auch die Freisetzung von Nanomaterialien oder die Partikelabscheidung in Filtermaterialien. Die Erkenntnisse aus diesem Projekt haben demnach große Strahlkraft auf viele Betätigungsfelder des IUTA und können so einen wichtigen Beitrag zur nachhaltigen Entwicklung des Instituts liefern.

Die Unterauftragnehmer Benker und Weghaus werden sich durch eine erfolgreiche Bearbeitung des Projektes wissenschaftlich noch stärker etablieren und ihr Renommee steigern können. Der angestrebte Nutzen besteht unter anderen darin, die verbesserten Simulationswerkzeuge kommerziell erfolgreich einsetzen zu können.

## **II.5 Bekannt gewordener Fortschritt anderer Stellen**

Im Projektzeitraum sind uns keine Kenntnisse über Ergebnisse Dritter bekannt geworden, die neue Verfahren zur Partikelprobenahme in Kesseln von Müllverbrennungsanlagen betreffen und für die Durchführung des Vorhabens relevant waren. Die während der Projektlaufzeit veröffentlichten Ergebnisse zu Messungen an Müllverbrennungsanlagen mit einem Hochtemperaturimpaktor [Brunner2013] und einer Partikelgitternetzsonde [Thiel2015] waren den Projektpartnern durch die gute fachliche Vernetzung in diesem Bereich bereits vorher bekannt und wurden bei der Sondentwicklung mit einbezogen. Neben dem Studium einschlägiger Fachzeitschriften wurden wissenschaftliche Datenbanken explizit mit Hilfe relevanter Stichworte re-

gelmäßig durchsucht sowie die neuen Entwicklungen auf thematisch relevanten Konferenzen verfolgt.

## **II.6 Erfolgte oder geplante Veröffentlichungen**

Bisher wurden von Mitarbeitern des IUTA die im Folgenden aufgelisteten Publikationen in wissenschaftlichen Fachjournals veröffentlicht. Zudem wurden zahlreiche Vorträge auf nationalen und internationalen Konferenzen gehalten oder die Projektergebnisse als Poster präsentiert. Schließlich sind noch Publikationen Dritter aufgelistet, die über die Arbeiten des IUTA im Rahmen von VOKos berichten.

### Publikationen

S. Schumacher, C. Asbach, J. Lindermann, B. Stahlmecke, T. Zeiner, T. van der Zwaag, H. Nordsieck, R. Warnecke (2015): Partikelprobenahme in Feuerung und Kessel zur Charakterisierung korrosions- und belagskritischer Stäube, VDI-Wissensforum: „Feuerung und Kessel - Beläge und Korrosion in Großfeuerungsanlagen“, VDI-Verlag, Düsseldorf

S. Schumacher, J. Lindermann, B. Stahlmecke, A. Khot, T. Zeiner, T. van der Zwaag, H. Nordsieck, R. Warnecke, C. Asbach (2016): Particle Sampling in Boilers of Waste Incineration Plants for Characterizing Corrosion Relevant Species, Corrosion Science 110 82

S. Schumacher, J. Lindermann, B. Stahlmecke, D. Jarzyna, A. Khot, T. Zeiner, T. van der Zwaag, H. Nordsieck, R. Warnecke, C. Asbach (2016): Charakterisierung der korrosionsrelevanten Partikelphase in Feuerung und Kessel, VDI-Wissensforum: „Feuerung und Kessel - Beläge und Korrosion in Großfeuerungsanlagen“, VDI-Verlag, Düsseldorf

S. Schumacher, J. Lindermann, A.Khot, D. Jarzyna, B. Stahlmecke, H. Nordsieck, R. Warnecke, C. Asbach (2016): An Artifact-Minimizing Method for Total Dust Sampling and Chemical Characterization of Industrial High-Temperature Aerosols, Aerosol Science and Technology 51 1047-1056

S. Schumacher, J. Lindermann, B. Stahlmecke, A. Khot, T. van der Zwaag, H. Nordsieck, R. Warnecke, C. Asbach (2017): Charakterisierung korrosionsrelevanter Partikel in Feuerraum und Kessel von Müllverbrennungsanlagen, Gefahrstoffe Reinhaltung der Luft 77 185-190

S. Schumacher, J. Lindermann, B. Stahlmecke, D. Jarzyna, A. Khot, T. van der Zwaag, H. Nordsieck, R. Warnecke, C. Asbach (2017): Charakterisierung korrosionsrelevanter Partikel in Kesseln von Müllverbrennungsanlagen, VDI-Wissensforum: „Feuerung und Kessel - Beläge und Korrosion in Großfeuerungsanlagen“, VDI-Verlag, Düsseldorf

### Vorträge

C. Asbach, S. Schumacher, J. Lindermann, B. Stahlmecke, T. Zeiner, T. van der Zwaag, H. Nordsieck, R. Warnecke (2015): Partikelprobenahme in Feuerung und Kessel zur Charakterisierung korrosions- und belagskritischer Flugstäube, 14. VDI-

Fachkonferenz „Feuerung und Kessel - Beläge und Korrosion in Großfeuerungsanlagen“, 16. – 17. Juni 2015, München

S. Schumacher, J. Lindermann, B. Stahlmecke, D. Jarzyna, A. Khot, T. Zeiner, T. van der Zwaag, H. Nordsieck, R. Warnecke, C. Asbach (2015): Partikelprobenahme in Feuerräumen und Kesseln von Müllverbrennungsanlagen, 7. Filtrationstag, 5. November 2015, Duisburg

S. Schumacher, J. Lindermann, B. Stahlmecke, D. Jarzyna, A. Khot, T. Zeiner, T. van der Zwaag, H. Nordsieck, R. Warnecke, C. Asbach (2016): Partikelprobenahme in Kesseln von Müllverbrennungsanlagen zur Charakterisierung korrosionsrelevanter Spezies, Jahrestreffen der ProcessNet-Fachgruppe Partikelmessstechnik, 16. – 17. Februar 2016, Clausthal-Zellerfeld

S. Schumacher, J. Lindermann, B. Stahlmecke, D. Jarzyna, A. Khot, T. Zeiner, T. van der Zwaag, H. Nordsieck, R. Warnecke, C. Asbach (2016): Charakterisierung der korrosionsrelevanten Partikelphase in Feuerung und Kessel, 15. VDI-Fachkonferenz „Feuerung und Kessel - Beläge und Korrosion in Großfeuerungsanlagen“, 14. – 15. Juni 2016, Berlin

S. Schumacher, J. Lindermann, B. Stahlmecke, D. Jarzyna, A. Khot, T. van der Zwaag, H. Nordsieck, R. Warnecke, C. Asbach (2017): Eine artefaktminimierte Probenahme zur Charakterisierung korrosionsrelevanter Partikel in Kesseln von Müllverbrennungsanlagen, Jahrestreffen der ProcessNet-Fachgruppe Abfallbehandlung und Wertstoffrückgewinnung, 21. – 23. März 2017, Frankfurt

S. Schumacher, J. Lindermann, B. Stahlmecke, D. Jarzyna, A. Khot, T. van der Zwaag, H. Nordsieck, R. Warnecke, C. Asbach (2017): Charakterisierung korrosionsrelevanter Partikel in Kesseln von Müllverbrennungsanlagen, 16. VDI-Fachkonferenz „Feuerung und Kessel - Beläge und Korrosion in Großfeuerungsanlagen“, 30. – 31. Mai 2017, Hamburg

### Poster

S. Schumacher, J. Lindermann, B. Stahlmecke, T. Zeiner, T. van der Zwaag, H. Nordsieck, R. Warnecke, C. Asbach (2015): Entwicklung und Charakterisierung einer Sonde zur Partikelprobenahme in Kesseln von Müllverbrennungsanlagen, Jahrestreffen der ProcessNet-Fachgruppe Partikelmessstechnik, 18. – 20. März 2015, Magdeburg

S. Schumacher, J. Lindermann, B. Stahlmecke, T. Zeiner, T. van der Zwaag, H. Nordsieck, R. Warnecke, C. Asbach (2015): Design and characterisation of a probe for particle sampling in boilers of waste incineration plants, Aerosol Technology 2015, 15. – 17. Juni 2015, Tampere (Finnland)

S. Schumacher, J. Lindermann, B. Stahlmecke, T. Zeiner, T. van der Zwaag, H. Nordsieck, R. Warnecke, C. Asbach (2015): Particle sampling in boilers of waste incineration plants: Development and characterisation of a novel probe, European Aerosol Conference 2015, 6. – 11. September 2015, Mailand (Italien)

S. Schumacher, J. Lindermann, B. Stahlmecke, D. Jarzyna, A. Khot, T. Zeiner, T. van der Zwaag, H. Nordsieck, R. Warnecke, C. Asbach (2016): A novel probe to in-

investigate corrosion relevant particles in boilers of waste incineration plants, European Aerosol Conference 2016, 4. – 9. September 2016, Tours (Frankreich)

S. Schumacher, J. Lindermann, B. Stahlmecke, D. Jarzyna, A. Khot, T. van der Zwaag, H. Nordsieck, J. Harpeng, R. Warnecke, C. Asbach (2016): Particle sampling under extreme conditions: An analysis of the corrosion-relevant aerosol in boilers of waste incineration plants, European Aerosol Conference 2016, 27. August – 1. September 2017, Zürich (Schweiz)

#### Publikationen Dritter

K.G. Schmidt (2015): Partikelprobenahme in Kesseln von Müllverbrennungsanlagen, IUTA Aktuell 2/2015 2

H. Lyko (2016): Filtration, Adsorption, Messtechnik und Raumluftreinigung – Schwerpunktthema beim siebten IUTA-Filtrationstag, Filtrieren und Separieren 1/2016 21