

INTENSYFIKACJA REDUKCJI NO_x METODĄ REBURNINGU Z ODDZIAŁYWANIEM PULSACJI

LECH SZECÓWKA

Politechnika Częstochowska, Katedra Pieców Przemysłowych i Ochrony Środowiska,
Al. Armii Krajowej 19, 42-200 Częstochowa

Keywords: fuels combustion, NO_x reduction, pressure pulsation.

INTENSIFICATION OF NO_x REDUCTION WITH PULSATED REBURNING

In the paper the reburning process has been characterised. A dependence of NO_x in flue gas content decreasing efficiency on some parameters has been pointed. During experiment the reburning process has been controlled with pulse disturbance of reburning fuel injection. An increasing of NO_x reduction efficiency has been noticed, due to pulsations intensifying mixing process in reduction zone.

Streszczenie

W pracy scharakteryzowano proces reburningu. Wskazano wpływ poszczególnych parametrów na skuteczność zmniejszania zawartości NO_x w spalinach. Podczas prowadzonych badań zastosowano wspomaganie procesu reburningu pulsacyjnym zaburzeniem wprowadzonego paliwa reburningowego. Stwierdzono wzrost skuteczności redukcji NO_x wskutek wytworzonych pulsacji, które intensyfikują proces mieszania w obszarze redukcji.

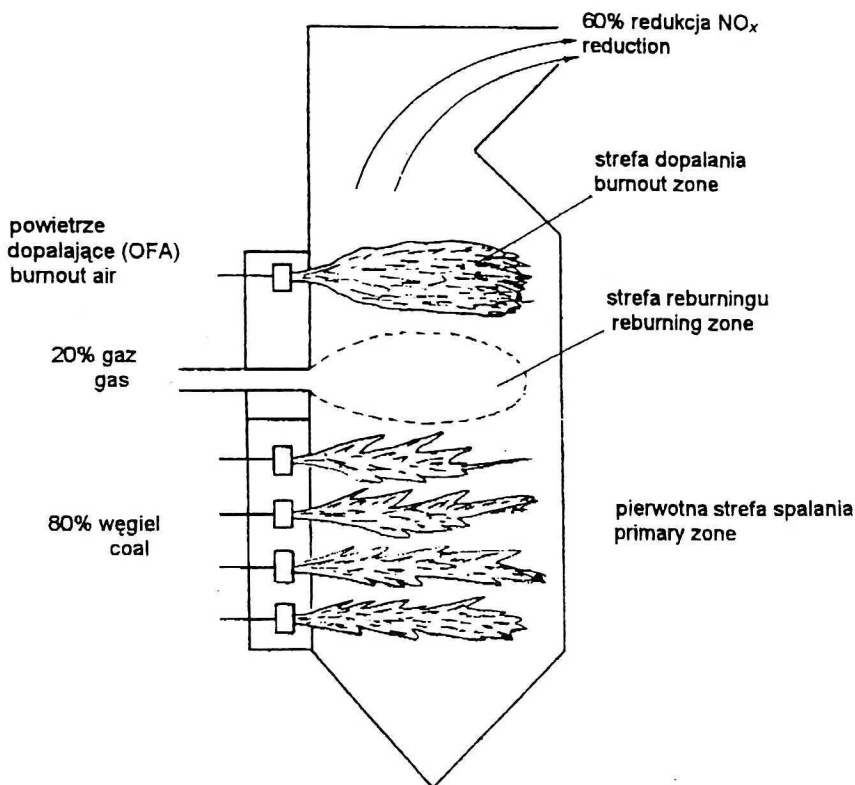
WPROWADZENIE

Wszystkie substancje emitowane podczas spalania zmieniające trwale lub częściowo środowisko traktowane są jako zanieczyszczenia. Do najczęściej emitowanych zanieczyszczeń w procesie spalania zaliczyć można: CO, pyły, sadzę, węglowodory, tlenki siarki, CO_2 (ze względu na jego udział w efekcie cieplarnianym), tlenki azotu, substancje smoliste i inne.

Stosuje się wiele sposobów zmierzających do zmniejszenia uciążliwości procesów spalania. Do skutecznych i stosunkowo tanich sposobów można zaliczyć technologie czystego spalania, uzyskane dzięki modyfikacji: techniki spalania, komór spalania oraz palników.

Znaczne obniżenie stężenia szkodliwych produktów spalania za pomocą jednej metody jest trudne do osiągnięcia. Niekiedy spadkowi zawartości w spalinach jednego składnika towarzyszy wzrost innego. Dlatego też coraz częściej stosuje się łączenie kilku sposobów, pozwalających na osiągnięcie dużej efektywności [15].

Do skutecznych metod pozwalających na zmniejszenie emisji NO_x należy zaliczyć reburning, czyli stopniowanie paliwa w komorze paleniskowej [3, 14]. W procesie reburningu tlenki azotu, a głównie NO są usuwane ze spalin przez użycie paliwa jako czynnika redukującego. Koncepcja tej techniki jest przedstawiona na rysunku 1.



Rys. 1. Technologia reburningu zastosowana do kotła pyłowego
Reburning technology applied to powder boiler

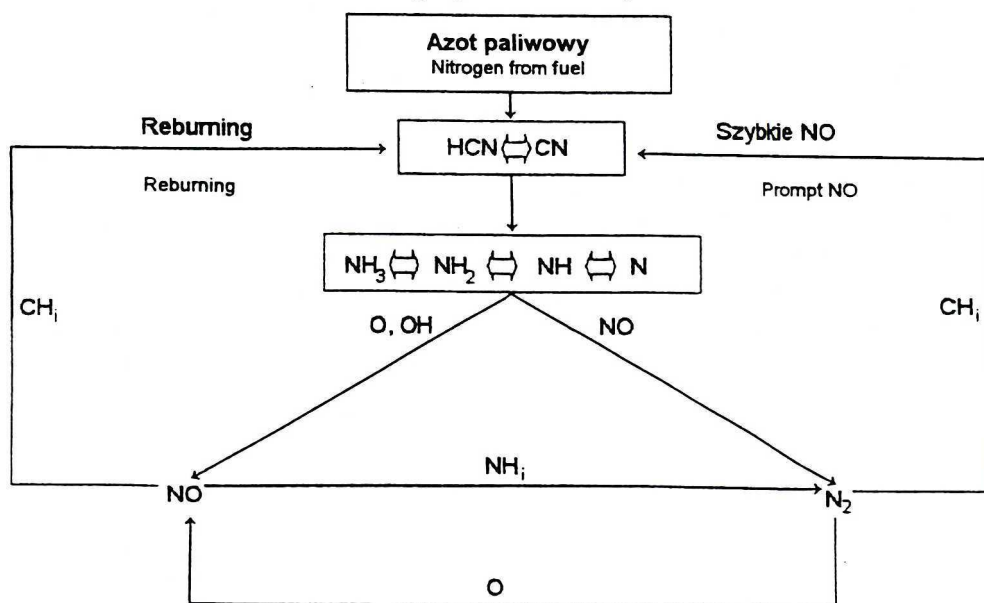
Proces spalania zostaje rozciągnięty na trzy strefy:

- strefa pierwotna, gdzie spalana jest zasadnicza część paliwa (ok. 80%) ze stechiometrycznym lub niewielkim nadmiarem powietrza ($\lambda \geq 1$),
- strefa reburningu, do której doprowadza się paliwo reburningowe stanowiące $N = 10 \div 20\%$ całkowitej ilości paliwa. W ten sposób powstaje drugi stopień spalania, gdzie NO jest redukowane ($\lambda < 1$),
- strefa dopalania, gdzie doprowadzane jest dodatkowe powietrze powodujące pełne wypalenie paliwa ($\lambda > 1$).

Najważniejszymi parametrami procesu w strefie reburningu są:

- rodzaj paliwa reburningowego,
- stechiometria strefy pierwotnej, λ_p ,
- stechiometria strefy reburningu, λ_R ,
- czas przebywania w strefie reburningu, τ_R ,
- temperatura w strefie reburningu, T_R ,
- mieszanie paliwa reburningowego ze spalinami pierwotnymi.

Efektywność reburningu jest duża w systemie spalania z relatywnie wysoką pierwotną emisją NO_x, jaka występuje np. w kotłach opalanych węglem kamiennym. Spośród paliw używanych jako paliwo reburningowe największą skuteczność uzyskuje się przy stosowaniu gazu ziemnego. Wynika to z faktu, że gaz ziemny ma dużą zdolność do tworzenia rodników CH_i. Schemat redukcji tlenków azotu w strefie reburningu przedstawia rysunek 2.



Rys. 2. Schemat tworzenia się i rozpadu NO [15]

Schematic diagram of creating and decay NO

Literaturowe dane na temat optymalnej stechiometrii w strefie reburningu nie są w pełni zgodne, ponieważ na skuteczność redukcji NO_x oddziałują także inne czynniki, jak mieszanie składników gazowych, temperatura itp. Typowe wartości stechiometrii w strefie reburningu wynoszą $\lambda_R = 0,8 \div 0,9$ [1].

W innych badaniach wysuwane są sugestie, że optymalna efektywność reburningu może być uzyskana przy $\lambda_R < 0,7$ [6] lub $\lambda_R > 0,94$ [7, 8]. Niektórzy autorzy stwierdzają natomiast brak istnienia wyraźnego optimum λ_R [2].

Efektywność reburningu może silnie zależeć od rozmiarów komory paleniskowej [1, 5] i znacznie się zmieniać wraz ze zmianami λ_R . Większą redukcję NO można osiągnąć w małych instalacjach. Zaznacza się tu wpływ mieszania, które jest znacznie skuteczniejsze w komorach spalania o mniejszych rozmia-

rach. W większych komorach wskutek gorszych warunków mieszania mogą powstawać lokalne różnice składu chemicznego.

Mieszanie paliwa reburningowego ze spalinami strefy pierwotnej jest kluczowym procesem w technologii reburningu. Na podstawie wielu przeprowadzonych badań [1, 4, 5, 8, 9, 11] można stwierdzić, że poprawa mieszania powoduje większą redukcję NO. Autorzy [4] podkreślają, że niedostateczne mieszanie może tworzyć lokalne obszary o zbyt bogatej lub zbyt ubogiej mieszance palnej. Stanowi to przeszkodę w kompleksowej optymalizacji procesu reburningu. W obszarach ubogich w paliwo brak jest dogodnych warunków do redukcji NO, natomiast w obszarach bogatych może powstawać więcej HCN.

Biorąc powyższe pod uwagę w prezentowanych badaniach własnych w strefie reburningu zastosowano zaburzenia pulsacyjne wspomagające mieszanie spalin pierwotnych z paliwem reburningowym [10, 11].

METODYKA BADAŃ

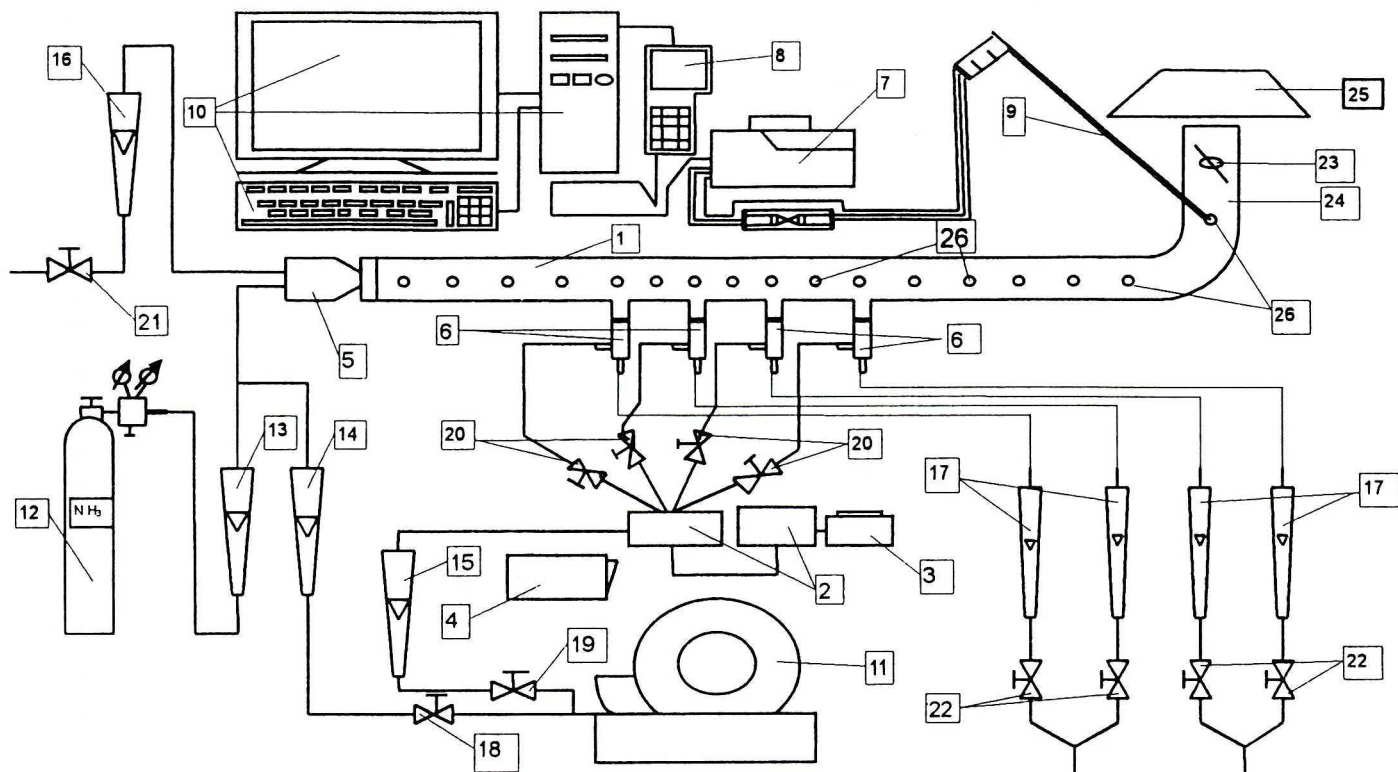
W przeprowadzonych badaniach zwrócono uwagę na możliwość obniżenia stężeń NO_x i CO w systemie reburningu pulsacyjnego. W celu zbadania zachodzących zjawisk zbudowano stanowisko doświadczalne (Rys. 3). W palniku głównym (5) spalano gaz ziemny, a przez dysze boczne (6) wprowadzano gaz ziemny poddawany zaburzeniom pulsacyjnym. Charakterystykę pulsacji wytworzonych w strefie reburningu określano piezorezystancyjnym czujnikiem ciśnieniowym i rejestrowano za pomocą zestawu pomiarowego ESAM. Skład spalin i ich temperaturę mierzono automatycznym analizatorem spalin TESTO 350 wraz z zestawem przygotowania gazów TESTO 339. Zastosowane programy umożliwiły gromadzenie i opracowanie danych pomiarowych.

BADANIA

Zasadniczym celem badań było określenie warunków niskoemisyjnego spalania gazów na stanowisku doświadczalnym.

W palniku głównym spalano gaz ziemny z dodatkiem amoniaku, co powodowało zwiększoną emisję tlenków azotu w strefie pierwotnej na poziomie $500 \div 1200$ ppm. Redukcja powstających tlenków azotu odbywała się w strefie reburningu przez doprowadzanie dodatkowej ilości gazu ziemnego. Udział paliwa reburningowego N w ogólnej ilości paliwa wynosił 15 i 20%. Istniała możliwość wprowadzania paliwa reburningowego przez cztery dysze. W prezentowanych badaniach gaz dostarczano przez pierwszą dyszę, znajdującą się w odległości 1,1 m od palnika głównego. Mieszanie w obszarze reakcji dodatkowo wspomaganego przez pulsacyjne zaburzenie paliwa reburningowego. Powietrze dopalające doprowadzano przez otwory pomiarowe (26) poza strefą reburningu.

Stosowane częstotliwości pulsacji wynosiły od 0 do 70 Hz. Spalanie w strefie pierwotnej odbywało się przy $\lambda_P = 1,0 \div 1,2$, w strefie reburningu $\lambda_R = 0,8 \div 1,0$, w strefie dopalania $\lambda_D = 1,1 \div 1,2$.



Rys. 3. Schemat stanowiska badawczego

1 – komora kwarcowa, 2 – układ pulsacyjny, 3 – autotransformator, 4 – tachometr elektroniczny, 5 – palnik główny, 6 – dysze paliwa reburningowego, 7 – analizator spalin Testo 350, 8 – aparat ręczny analizatora, 9 – sonda, 10 – komputer PC, 11 – wentylator, 12 – butla gazowa z amoniakiem, 13 – rotametr dla amoniaku, 14, 15 – rotametry dla powietrza, 16, 17 – rotametry dla gazu ziemnego, 18, 19, 20 – zawory powietrza, 21, 22 – zawory gazowe, 23 – przesłona, 24 – przewód kominowy, 25 – odciąg spalin, 26 – wzierniki pomiarowe

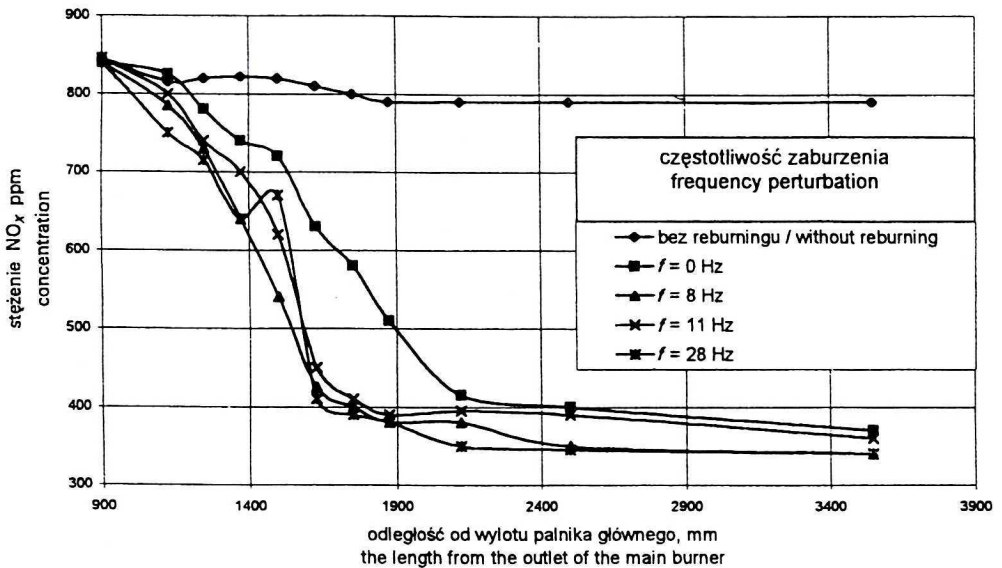
Scheme of experimental stand

1 – chamber of quartz, 2 – pulsating system, 3 – autotransformer, 4 – electronic tachometer, 5 – main burner, 6 – reburning fuel nozzles, 7 – fuel gas analyser Testo 350, 8 – hand controlled part of analyser, 9 – probe, 10 – computer PC, 11 – ventilator, 12 – bottle with ammonia, 13 – rotameter for ammonia, 14, 15 – rotameters for air, 16, 17 – rotameters for natural gas, 18, 19, 20 – air valves, 21, 22 – gas valves, 23 – diaphragm, 24 – flue gas way, 25 – flue gas extractor, 26 – measuring eyeholes

Temperatura spalin w miejscu wprowadzania paliwa reburningowego wynosiła $1100 \div 1230^\circ\text{C}$. Dla każdej serii pomiarowej określano stężenie NO_x wzdłuż komory przy następujących warunkach:

- bez stosowania reburningu,
- z reburningiem,
- z reburningiem i pulsacjami o różnej częstotliwości.

Stężenie wygenerowanych tlenków azotu było zbliżone do występujących w kotłach dużej mocy opalanych węglem. Ponadto wyższe stężenie NO_x lepiej pozwalało badać wpływ poszczególnych oddziaływań na redukcję ich zawartości. Wprowadzenie pulsacji do strefy reburningu wyraźnie intensyfikuje proces redukcji NO_x (Rys. 4, 5). Następuje skrócenie strefy i dalsze obniżenie stężenia NO_x w spalinach.

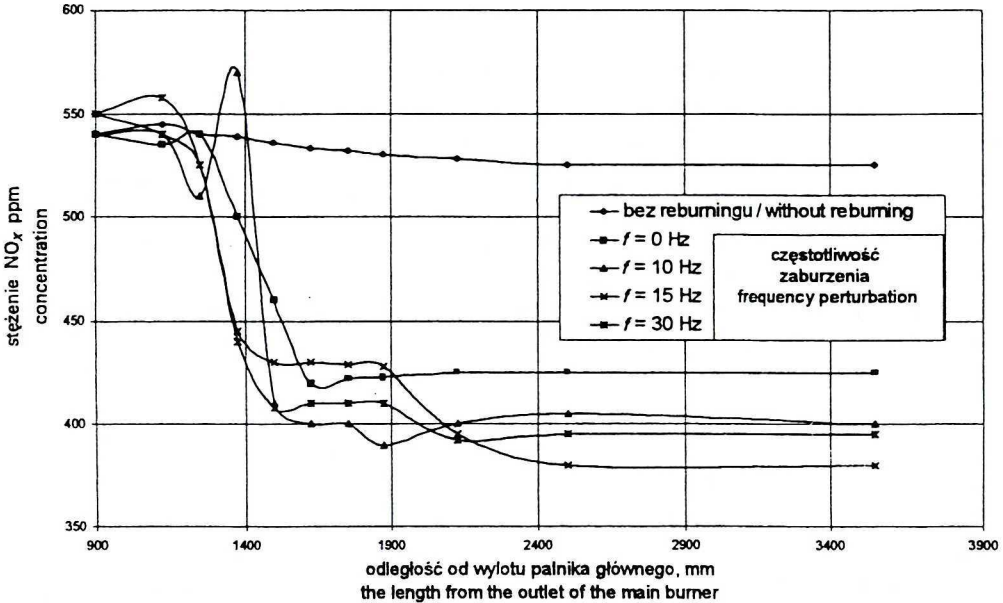


Rys. 4. Przebieg zmienności stężenia NO_x wzdłuż komory badawczej przy: $N = 0,15$; $\lambda_p = 1,04$; $\lambda_R = 0,88$; $\lambda_D = 1,06$

The changes of NO_x concentration along the research chamber by: $N = 0.15$; $\lambda_p = 1.04$; $\lambda_R = 0.88$; $\lambda_D = 1.06$

Badania pokazały, że ze wzrostem początkowego stężenia NO_x w spalinach strefy pierwotnej wzrasta wielkość redukcji tlenków azotu (Rys. 6). Pulsacyjne zaburzenie paliwa reburningowego, a w konsekwencji obszaru reakcji ze spalinami pierwotnymi, powoduje znaczne skrócenie długości strefy reburningu (od 12 do 39%). Efekt ten ma duże znaczenie użytkowe, gdyż pozwala na ograniczenie rozmiarów geometrycznych kotłów energetycznych przy stosowaniu reburningu.

Zastosowanie reburningu powodowało obniżenie stężenia NO_x w spalinach średnio o 42%. Pod wpływem pulsacji następował dalszy wzrost redukcji NO_x , średnio o około 48%. Dodatkowy przyrost redukcji tlenków azotu pod wpły-



Rys. 5. Przebieg zmienności stężenia NO_x wzdłuż komory badawczej przy: $N = 0,15$; $\lambda_p = 1,02$; $\lambda_R = 0,87$; $\lambda_D = 1,02$

The changes of NO_x concentration along the research chamber by: $N = 0.15$; $\lambda_p = 1.02$; $\lambda_R = 0.87$; $\lambda_D = 1.02$

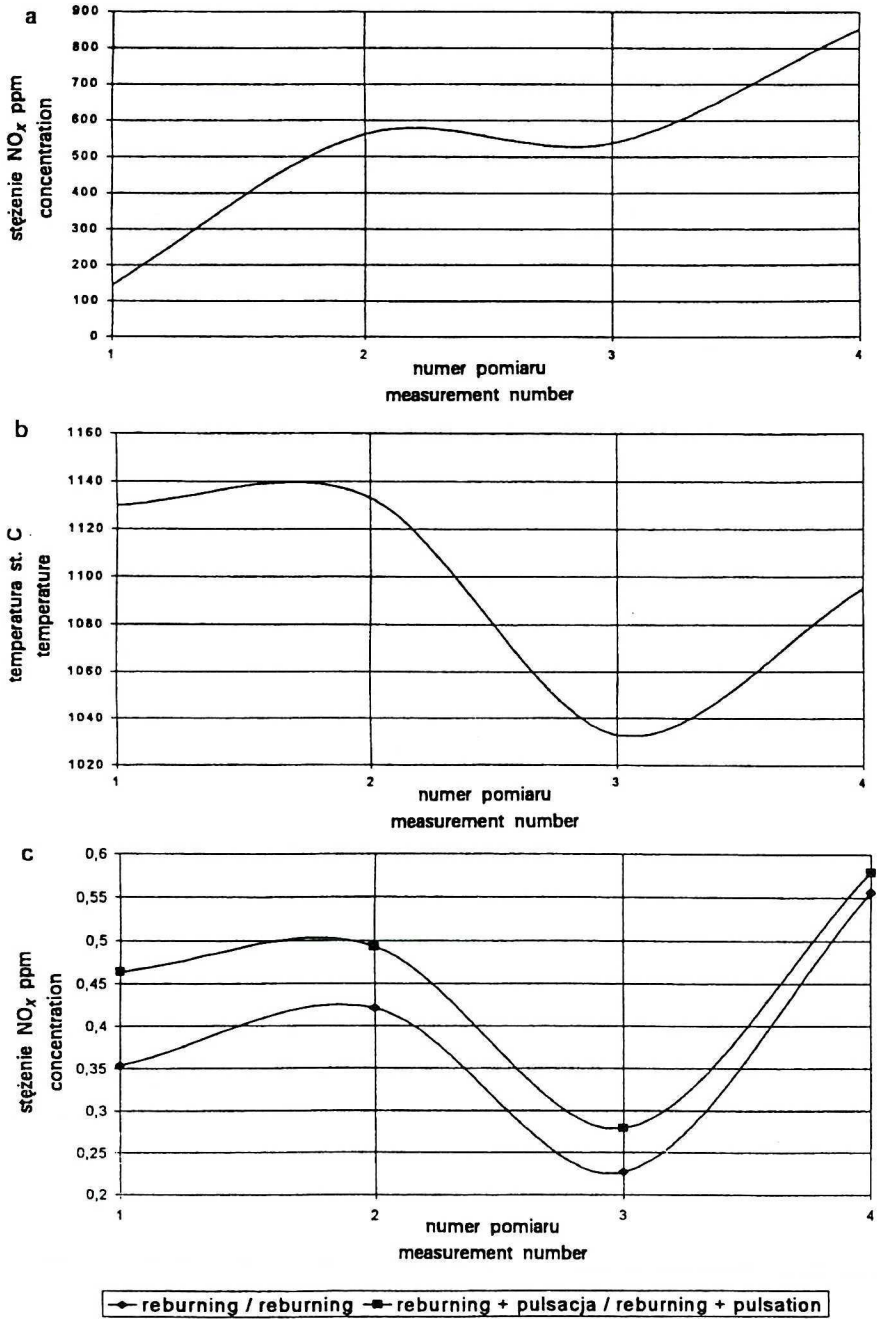
wem pulsacji wynosił 2 ÷ 11%. Należy oczekiwać, że wielopunktowe wprowadzenie paliwa reburningowego zwiększy dodatkowo efekt redukcji przy wspomaganie jej pulsacjami ciśnieniowymi.

Pulsacyjne zaburzenie w strefie reburningu intensyfikuje mieszanie spalin pierwotnych z paliwem reburningowym [11], co – jak wspomniano wcześniej – jest kluczowym procesem zmierzającym do wzrostu efektywności redukcji tlenków azotu. W wyniku lepszego wymieszania reagentów następuje silne rozprzestrzenianie się rodników CH_i [12] w strumieniu spalin, stymulując reakcję redukcji tlenków azotu.

Porównanie wyników pomiarów 1 ÷ 4 (Rys. 6), dla których udział paliwa reburningowego wynosił $N = 15\%$, wskazuje na silną zależność redukcji NO_x od temperatury zarówno w procesie reburningu, jak i reburningu z oddziaływaniem pulsacji. Potwierdza to spostrzeżenia wielu autorów w dwóch kwestiach: dużej zależności powstających rodników CH_i od temperatury (ze spadkiem temperatury maleje stężenie rodników CH_i) [13] oraz stymulującego ich oddziaływania na proces redukcji NO_x.

Stężenie CO w przeprowadzonych badaniach po chwilowym wzroście na początku strefy reburningu (Rys. 7, 8) ulegało w dalszej części dopaleniu na CO₂.

Z powyższego wynika duża złożoność zjawisk zachodzących podczas reburningu. Wymaga to prowadzenia dalszych badań zmierzających do lepszego jego poznania, a w konsekwencji uzyskania większej efektywności procesu. Jest to szczególnie ważne podczas spalania węgla w kotłach energetycznych.

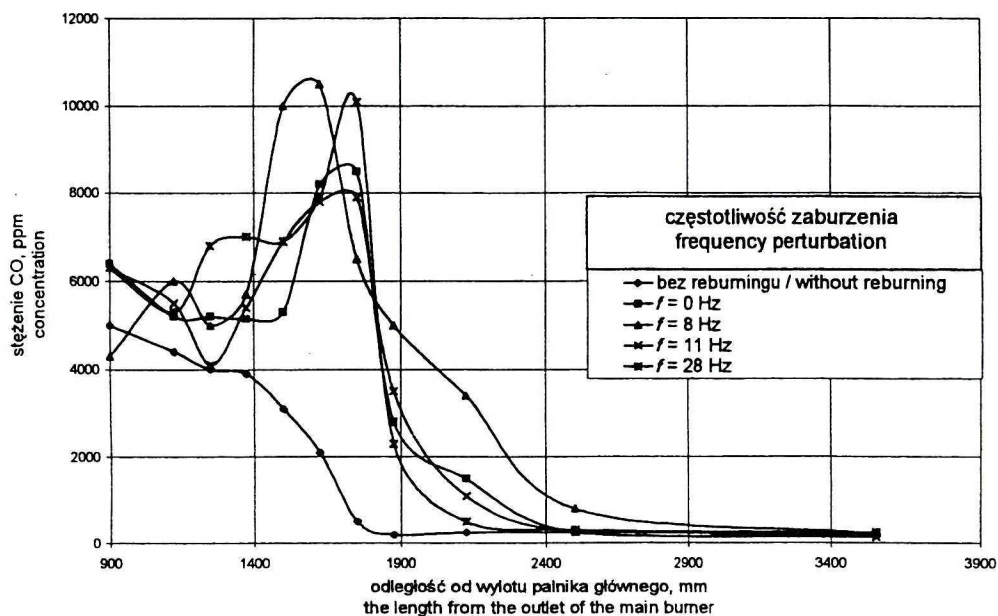


Rys. 6. Przebieg parametrów w procesie reburningu

a – stężenie NO_x w spalinach pierwotnych; b – średnia temperatura w strefie reburningu; c – wielkość redukcji NO_x

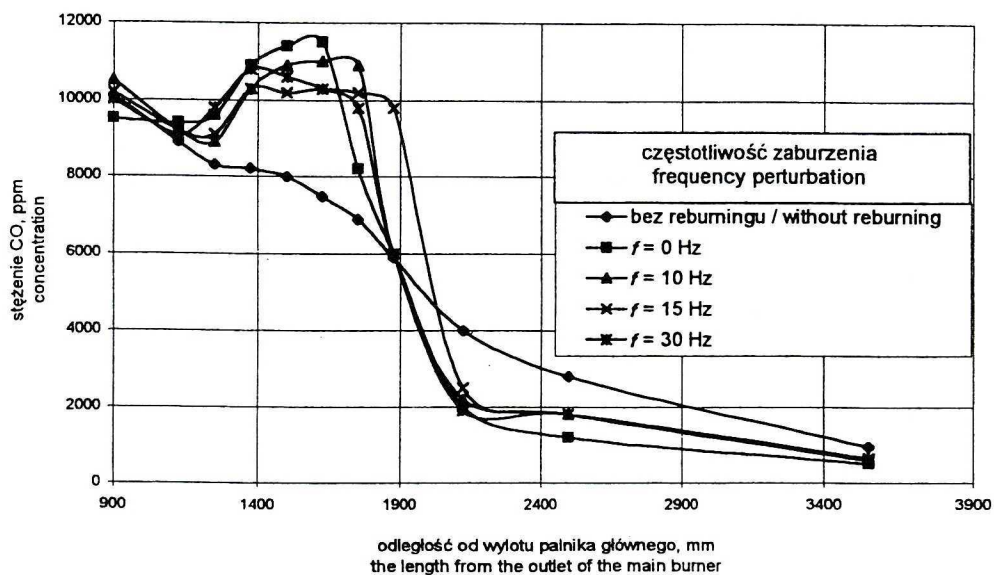
The changes parameters in reburning process

a – concentration NO_x in primary exhaust gas; b – average temperature in reburning zone; c – reduction ratio NO_x



Rys. 7. Przebieg zmienności stężenia CO wzdłuż komory badawczej przy: $N = 0,15$; $\lambda_p = 1,04$; $\lambda_R = 0,88$; $\lambda_D = 1,06$

The changes of CO concentration along the research chamber by: $N = 0,15$; $\lambda_p = 1,04$; $\lambda_R = 0,88$; $\lambda_D = 1,06$



Rys. 8. Przebieg zmienności stężenia CO wzdłuż komory badawczej przy: $N = 0,15$; $\lambda_p = 1,02$; $\lambda_R = 0,87$; $\lambda_D = 1,02$

The changes of CO concentration along the research chamber by: $N = 0,15$; $\lambda_p = 1,02$; $\lambda_R = 0,87$; $\lambda_D = 1,02$

PODSUMOWANIE

Na podstawie przeprowadzonych badań i obliczeń można sformułować następujące wnioski:

- pulsacyjne zaburzenie reagentów w strefie reburningu powoduje intensyfikację redukcji NO_x . Wzrasta wielkość redukcji tlenków azotu, a długość strefy redukcji ulega skróceniu;
- największą efektywność oddziaływań pulsacyjnych na redukcję tlenków azotu uzyskano dla $\lambda_R < 0,9$;
- wielkość redukcji tlenków azotu zależy od:
 - wysokości temperatury w strefie reburningu,
 - początkowego stężenia NO_x ,
 - ilości paliwa reburningowego.

Zaburzenia pulsacyjne wywołane w strefie reburningu należy traktować jako jeden ze sposobów intensyfikujących mieszanie w tym obszarze.

LITERATURA

- [1] Chen S.L., J.M. Mc Carthy, W.D. Clark, M.P. Head, W.P. Seek, D.W. Persching: *Beuch and Pilot Scale Process Evaluation of Reburning for In-Furnace NO_x Reduction*, Twenty-first Symposium (International) on Combustion, The Combustion Institute, Pittsburgh 1986, 1159.
- [2] Kely J.T., R.L. Pam, L. Suttman: *Fuel Staging for Pulverised Coal Furnace NO_x Control*, Proceedings of the 1982 Joint Symposium on Stationary Combustion NO_x Control, Vol 1, San Francisco 1983.
- [3] Knill K.J.: *Fuel staging and its implementation in a novel internally staged burner*, Canada 1990.
- [4] Kolb T., P. Jansohn, W. Luckel: *Reduction of NO_x Emission in Turbulent Combustion by Fuel-Staging Effects of Mixing and Stoichiometry in the Reduction Zone*, Twenty-second Symposium (International) on Combustion, The Combustion Institute, Pittsburgh 1988, 1193.
- [5] La Fond J., S.L. Chen: *An Investigation to Define the Limit NO_x Emission Reduction Achievable by Reburning U.S.*, Doe Quarterly Report DE-AC22-86 PC91025 (1987).
- [6] Lamier W.S., J.A. Mulholland, J.T. Beard: *Reburning Thermal and Chemical Processes in Two-Dimensional Pilot Scale System*, Twenty-first Symposium (International) on Combustion, The Combustion Institute, Pittsburgh 1986, 1171.
- [7] Meyerson A.L., F.R. Taylor, B.G. Faunce: *Ignition-Limits and Products of the Multi-stage Flames of Propane – Nitrogen Dioxide Mixtures*, Sixth Symposium (International) on Combustion, The Combustion Institute Pittsburgh 1957, 154.
- [8] Miyamae S., H. Jkebe, K. Makino, K. Suzuki, J. Mogi: *Evolution of In-Furnace NO_x Reduction*, Proceedings of the 1985 Joint Symposium on Stationary Combustion NO_x Control, Vol 1, Boston 1986.
- [9] Overmoe B.J., J.M. Mc Carthy, S.L. Chen, W.R. Seekler, G.D. Silcox, D.K. Resing: *Pilot Scale Evaluation of NO_x Control from Pulverized Coal Combustion by Reburning*, Proceedings of the 1985 Joint Symposium on Stationary Combustion NO_x Control, Vol 1, Boston 1986.
- [10] Szecówka L.: *Effect of pulsatory disturbances of substrates on turbulent intensity and combustion conditions*, XIII-th International Symposium on Combustion Process, Cracow 1993.
- [11] Szecówka L.: *Intensification on Mixing Process in Reburning Zone*. XV-th International Symposium on Combustion Processes, Zakopane 1997.

- [12] Szecówka L., H. Radomiak: *Pomiar intensywności promieniowania gazowych składników płomienia metodą fotoelektryczną*, Materiały Konf. Naukowo-Technicznej „Diagnostyka Jakości Spalania w Energetyce '98”, Ustroń-Zawodzie 1998.
- [13] Thorne L.R., M.C. Branch, D.W. Chandler, R.J. Kee, J.A. Miller: *Hydrocarbon/nitric oxide interactions in low pressure flames*, Twenty-first Symposium (International) on Combustion, The Combustion Institute, Pittsburgh 1986, 965–977.
- [14] Wendt J.O.L., C.V. Sterling, M.A. Matovich: *Reduction of Sulfur Trioxide and Nitrogen Oxides by Secondary Fuel Injection*. Fourteenth Symposium (International) on Combustion, The Combustion Institute, Pittsburgh 1973, 897.
- [15] Wróblewska V., T. Golec: *Zasady projektowania niskoemisyjnych palników pyłowych*, Konf. „Niskoemisyjne techniki spalania”, Ustroń-Zawodzie 1996.

Wpłynęło: 17 maja 1999, zaakceptowano do druku: 14 grudnia 1999.