

# Untersuchung eines atmosphärisch betriebenen katalytischen Gasturbinenbrenners

Dipl.-Ing. **O. Diers**, Dipl.-Ing. **D.Schneider**, Dr. rer. nat. **J. Heinze**, Dr. rer. nat. **M.Fischer**, Dr. Ing. **C. Hassa**, DLR Köln  
Dr. sc. techn. **M. Friedl**, awtech Zürich  
Dr. **R. Carroni**, Alstom Schweiz AG Birr

## Kurzfassung

Ein katalytischer Gasturbinenbrenner realer Größe wurde hinsichtlich seiner Einsatzfähigkeit als Nachrüstlösung, seines Schadstoffausstoßes, sowie der Flammenstabilisierung experimentell untersucht. In zwei Betriebspunkten konnte das weitere Reduktionspotential des schon ohne Katalysator sehr schadstoffarmen Brenner aufgezeigt werden. Mit Hilfe der optischen Messtechniken OH\* und CARS sowie traversierten Abgasmessungen direkt am Brenneraustritt wird die Funktionsweise der Flammenstabilisierung dieses Brenners dargestellt.

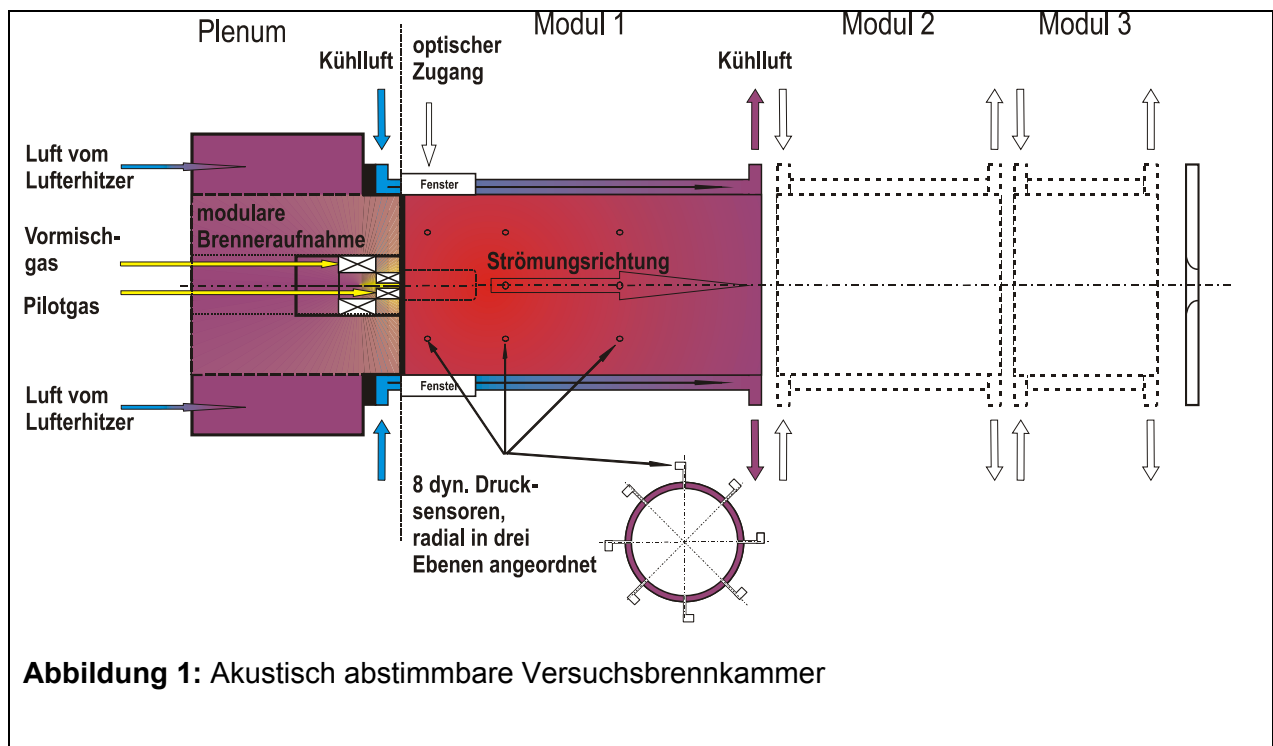
## 1. Einleitung

In der letzten Dekade sind große Fortschritte in der Reduzierung des Stickoxidausstoßes von Gasturbinen durch den Einsatz der mageren Vormischverbrennung erzielt worden. Gleichzeitig sind gesetzliche Anforderungen des Schadstoffausstoßes für gasturbinenbefeuerte Kraftwerke gestiegen. Insbesondere in dicht besiedelten Regionen wird es deswegen notwendig, möglichst den besten Technologiestandard zur Schadstoffreduzierung (LAER= lowest achievable emissions rate) einzusetzen [1]. Ein alternativer Ansatz der NO<sub>x</sub>-Reduktion ist der Einsatz der katalytisch stabilisierenden Verbrennung, ein Überblick dieses Ansatzes ist in [2] zu finden. Ein beachtlicher Erfolg dieser Technologie wurde bereits demonstriert, für kleinere Gasturbinen wird diese Technologie bereits auf dem Markt angeboten. Für die Adaption dieser Technologie auf größere Gasturbinen müssen allerdings größere Anstrengungen unternommen werden, da diese sich durch höhere Verbrennungstemperaturen und höhere Leistungsdichten auszeichnen. Ein EU gefördertes Projekt im 5. Rahmenprogramm (CATHLEAN) wurde deswegen initialisiert, um die katalytische Verbrennung auf Gasturbinen in Großkraftwerken anzuwenden [3]. Hierbei wurden im Bereich der Materialien und Materialeigenschaften, des Reaktordesigns und der Entwicklung der aerodynamischen Komponenten Forschungs- und Entwicklungsarbeiten durchgeführt. Ziel des Projektes war es, einen

mager vormischenden Hybridbrenner zur Nachrüstung zu entwickeln, der sowohl mit, als auch ohne Katalysator betrieben werden kann. Diese Abhandlung beschreibt die katalytische Verbrennung des entwickelten Brenners unter atmosphärischen Bedingungen.

## 2. Prüfstandsbeschreibung

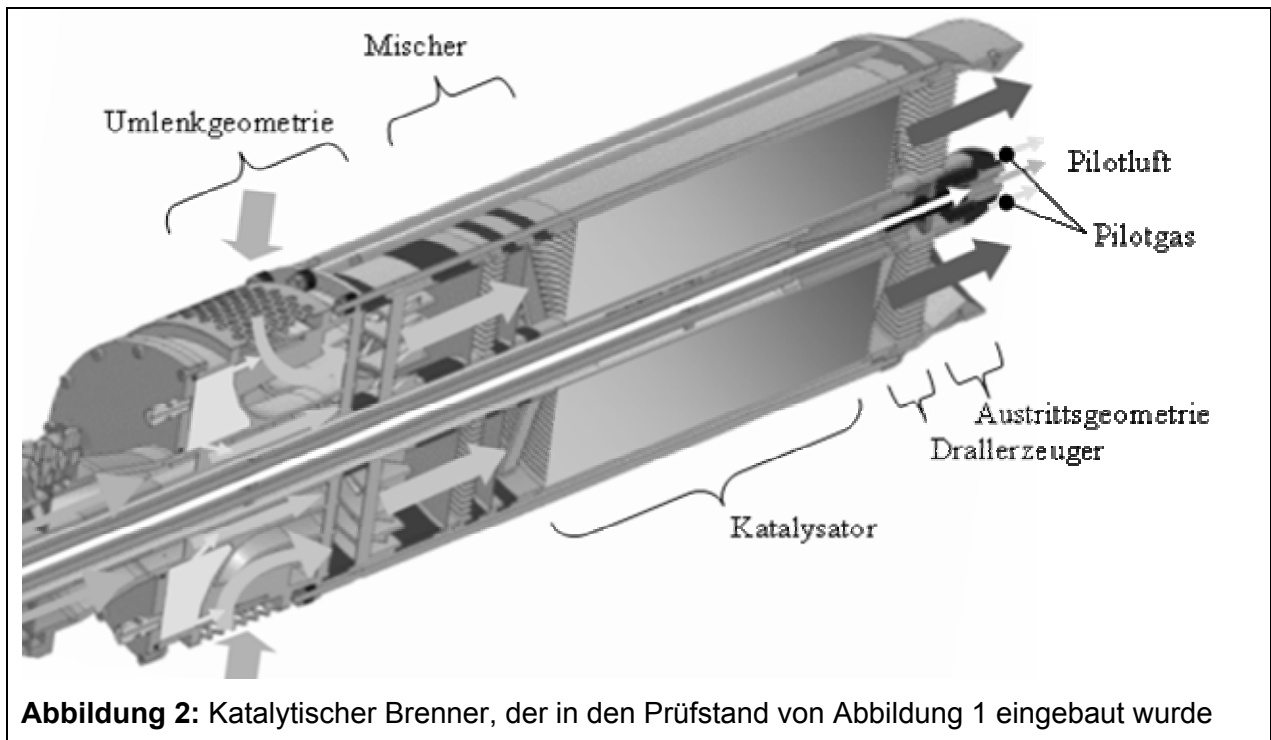
Der atmosphärische Brennkammerprüfstand mit Luftvorwärmung wurde konzipiert um die technisch und geometrisch sehr unterschiedlichen Brenner realer Größe verschiedenster Industriepartner im Kraftwerksbereich aufzunehmen. Dabei ist der Prüfstand auf einen Hauptluftmassenstrom  $\dot{m} < 625\text{g/s}$  bei einer Vorwärmung  $T_3$  von 750 K ausgelegt. Durch eine modulare Bauweise, die Brennkammer kann aus bis zu drei unterschiedlich langen konvektiv gekühlten Modulen mit einem Innendurchmesser von 500mm zusammengesetzt werden (Abbildung 1), besteht die Möglichkeit einer akustischen Abstimmbarkeit.



## 3. Katalytischer Brenner

Die äußere Abmessung des katalytischen Brenners aus Abbildung 2 ist dadurch vorgegeben, dass er an Stelle eines konventionellen Brenners eingesetzt werden kann und somit die gleiche Außengeometrie haben muss. In der Umlenkgeometrie wird der axial und radial einströmenden Luft Brennstoff beigegeben und im Mischer homogen mit der Luft vermischt, sodass am Eintritt des Katalysators eine homogene Brennstoffverteilung und ein homogenes

Geschwindigkeitsprofil vorliegen. Der Katalysator ist aus gewickelten und gewellten Blechen aufgebaut, die teilweise mit katalytischem Material (Pd/ZrO<sub>2</sub> und Pt/MI386) beschichtet und zu einem Monoblock verlötet sind. Das Gemisch wird in den drei unterschiedlich beschichteten Zonen des Katalysators thermisch umgesetzt. Nach Durchströmen des Drallerzeugers und der Austrittsgeometrie erreicht die Strömung die Brennkammer. Im Zentrum des Brenneraustritts wird durch eine Lanze die Pilotluft und in einem konzentrisch angeordneten Ring das Pilotgas zugegeben. Der Brenner ist in [4],[5] genauer beschrieben.



**Abbildung 2:** Katalytischer Brenner, der in den Prüfstand von Abbildung 1 eingebaut wurde

#### 4. Messtechnik

Abgasproben wurden durch wassergekühlte, traversierbare Sonden am Brennkammeraustritt und durch den optischen Zugang in der Nähe des Brenners genommen. Im Sondeneintritt wird das Rauchgas gequench, wobei im weiteren Leitungsverlauf der Taupunkt nicht unterschritten wird. Das Gas wird danach Analysatoren zugeführt, wobei die Konzentrationen von NO<sub>x</sub>, O<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>, CO und UHC (unverbrannte Kohlenwasserstoffe) ermittelt werden können.

Als Indikator der Wärmefreisetzung wird die Chemilumineszenz des elektronisch angeregten Hydroxylradikals OH\* im Spektralbereich 305nm-320nm [6],[7] genutzt. Aus der Chemilumineszenz-Messung kann zunächst nur die volumetrische Information der Wärmefreisetzung abgeleitet werden, d.h. die gemessene Intensität ist das Integral aller Beiträge in Kamerablickrichtung. Aber unter Annahme einer Axialsymmetrie lässt sich durch Abelinversion die

räumlich aufgelöste Verteilung der Wärmefreisetzung bestimmen [8]. Aufgrund der hohen Turbulenz ist diese Symmetrie aber nur im zeitlichen Mittel gegeben.

Das CARS-Messverfahren ist eine spektroskopische Messtechnik, die auf der Analyse der Intensitätsverteilung spektral aufgelösten Laserstreulichtes beruht. Die hier eingesetzte Breitband-BOXCARS-Messtechnik [9],[10] ermöglicht die berührungslose, orts- und zeitaufgelöste Erfassung von Temperaturen und Konzentrationen in Brennräumen. Sie wurde im DLR für den Einsatz in Brennräumen weiterentwickelt [11],[12],[13]. Die Ortsauflösung betrug für die durchgeführten Messungen etwa 4 mm in radialer Richtung und 100  $\mu\text{m}$  in axialer Richtung. Dabei wurden die signalerzeugenden Laserstrahlen aus ca. 7 m Entfernung zum Messort herangeführt und der erzeugte laserartige Signalstrahl in ca. 14 m Entfernung vom Messort analysiert. Als Temperaturindikator wurde das Stickstoffmolekül genutzt. Die Genauigkeit der CARS-Temperaturmittelwerte beträgt unter atmosphärischen Bedingungen für die meisten Messorte ca. 2 % vom Messwert.

## 5. Ergebnisse und Diskussion

Im ersten Schritt wurde die optimale Pilotierung des Brenners ohne Katalysator ermittelt. Die Pilotierung ist notwendig, um den Brenner bei den gleichen Betriebspunkten mit und ohne Katalysator betreiben und vergleichen zu können. Beim Betrieb des Brenners mit Katalysator und bei der eingestellten Pilotierung ist eine deutliche Erweiterung des Betriebsbereiches zu erkennen. Der Betriebsbereich kann von Luftzahlen  $\lambda \approx 2.5$  (ohne Katalysator) bis zu Luftzahlen von  $\lambda \approx 3.3$  (mit Katalysator) erweitert werden, bei höheren Luftzahlen steigen die CO Konzentrationen auf Werte über 10ppm an. Aufgrund dieses erweiterten Betriebsbereiches kann mit Katalysator auch die Diffusionsflamme der Pilotstufe magerer betrieben werden als ohne Katalysator. Da die Reaktivität des Katalysators bei höheren Brennstoffmassenströmen, also fetteren Betriebspunkten, zunimmt, wird allerdings die definierte Maximaltemperatur von 1115K des im Katalysator teilumgesetzten Gemisches schon bei Luftzahlen von ca. 2.4-2.5 erreicht. Um vergleichbare Messungen des Betriebes ohne und mit Katalysator durchführen zu können, wurde deswegen die definierte Maximaltemperatur des katalytischen Brennerteils teilweise überschritten. Eine irreversible Änderung der Betriebscharakteristik des Katalysators musste damit in Kauf genommen werden.

In Tabelle 1 sind die beiden Betriebspunkte aufgeführt, bei denen die weiteren Untersuchungen durchgeführt wurden. Außerdem enthält Tabelle 1 einen Vergleich der Stickoxidkonzentrationen der beiden Betriebspunkte am Brennkammeraustritt mit und ohne Katalysator. Dieser direkte Vergleich zeigt das Einsparpotential des Katalysators auf. Im Betriebs-

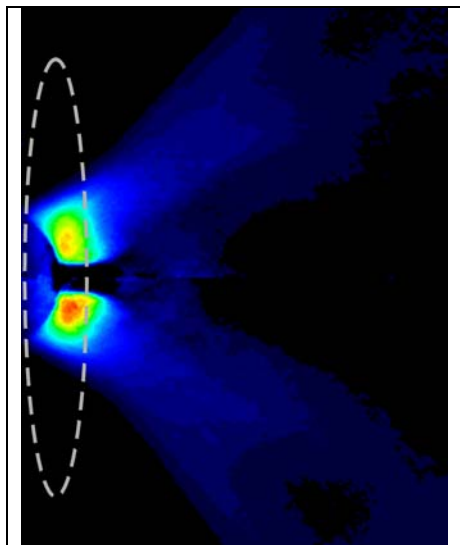
		Betriebspunkt 1	Betriebspunkt 2
Brennstoffpilotierungsverhältnis	$\alpha$	1.5 %	1.5 %
Luftpilotierungsverhältnis	$\beta$	1.5 %	1.5 %
Brennereintrittstemperatur	$T_3$	690 K	690 K
Luftzahl Lambda	$\lambda_{\text{Brenner}}$	2.4-2.5	2.0
Adiabate Flammentemperatur	$T_{\text{adiabat}}$	1621 K	1779 K
Stickoxidkonzentration ohne Katalysator	$\text{NO}_x$ @15% $\text{O}_2$	1.7 ppm	4.1 ppm
Stickoxidkonzentration mit Katalysator	$\text{NO}_x$ @15% $\text{O}_2$	0.9 ppm	3.1 ppm

**Tabelle 1:** Betriebspunkte für Vergleich des Brenners mit und ohne Katalysator.

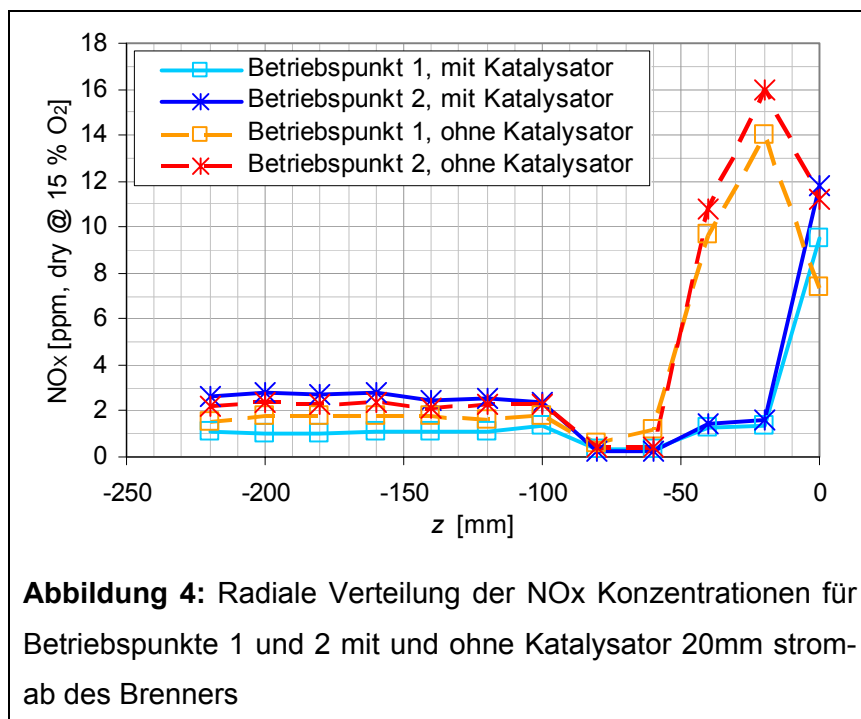
punkt 1 kann etwa 0.8ppm  $\text{NO}_x$  durch den Katalysator eingespart werden. Allerdings muss hier beachtet werden, dass für den Betriebspunkt 1 mit Katalysator die Luftzahl geringfügig magerer eingestellt war als ohne ( $\Delta\lambda \approx 0.1$ ). Für den Betriebspunkt 2 beträgt das Einsparpotential etwa 1ppm. Bezogen auf den Betrieb ohne Katalysator beträgt damit das relative Einsparpotential im Betriebspunkt 1 bis zu 46% und im Betriebs-

punkt 2 ca. 24%. Prinzipiell ist allerdings ein noch größeres Einsparpotential möglich, da die Interaktion zwischen dem Pilotbrenner und dem katalytischen Teil nicht optimal verläuft. Dies tritt durch die Betrachtung der entabelten OH-Radikalverteilung der Chemilumineszenzmesungen in Abbildung 3 hervor. Die  $\text{OH}^*$  Emission kann in erster Näherung mit der Wärme-freisetzung, also der Reaktionszone, gleichgesetzt werden [7]. Die Ausweitung der Wärme-freisetzungszone zeigt, dass es nicht zu der klaren Ausbildung einer Pilotflamme durch Pilot-gas und Pilotluft kommt, sondern beide nur ansatzweise miteinander reagieren. Der über-wiegende Teil der Pilotluft reagiert nicht mit dem Pilotgas, sondern verdünnt das Heißgas in der Brennkammer. Stärker ausgeprägt ist die Reaktion zwischen Pilotgas und teilreagiertem Gemisch stromab des Katalysators. Dadurch wird stromab des Katalysators eine Zone ange-fettet, was zwar zu einer erhöhten  $\text{NO}_x$  Produktion führt, aber auch die Flamme stabilisiert. In Abbildung 4 ist ein Vergleich der radialen Stickoxidverteilung für die beiden Betriebspunkte mit und ohne Katalysator 20mm stromab des Brenners zu erkennen. Bei allen Kurven in die-sem Diagramm lassen sich drei typische Bereiche unterscheiden. Im Bereich der äußeren Rezirkulationszone ( $z < -100\text{mm}$ ) werden mit Ausnahme des Betriebspunktes 2, ohne Kataly-

sator, Konzentrationen gemessen, die größenordnungsmäßig denen am Brennkammeraustritt entsprechen. Allerdings weisen beide Betriebspunkte ohne Katalysator hier noch erhöhte CO und UHC Konzentrationen auf, was auf eine noch nicht abgeschlossene Reaktion in diesem Bereich hindeutet. Stromab der katalytischen Sektion ( $-100\text{mm} < z < -60\text{mm}$ ) sind geringe Stickoxidkonzentrationen festzustellen. Für die katalytischen Betriebspunkte ist hier die Verbrennungstemperatur zu niedrig, ohne Katalysator ist in diesem Bereich der Reaktionsfortschritt sehr gering, so dass keine hohen thermischen  $\text{NO}_x$  Konzentrationen auftreten. An der Pilotlanze ( $z > -25\text{mm}$ ) und einem angrenzenden Bereich stromab des Katalysators ( $-40\text{mm} < z < -25\text{mm}$ ) kommt es zu erhöhten  $\text{NO}_x$ -Werten aufgrund der Interaktion zwischen dem Pilotbrennstoff und dem Gemisch aus der Vormischstufe. Dabei ist dieser Bereich für den Betrieb ohne Katalysator etwas weiter in radiale Richtung ausgedehnt. Diese erhöhte  $\text{NO}_x$  Produktion bei allen Betriebspunkten und Konfigurationen ist auf thermische Stickoxidbildung durch turbulente Diffusion zurückzuführen.



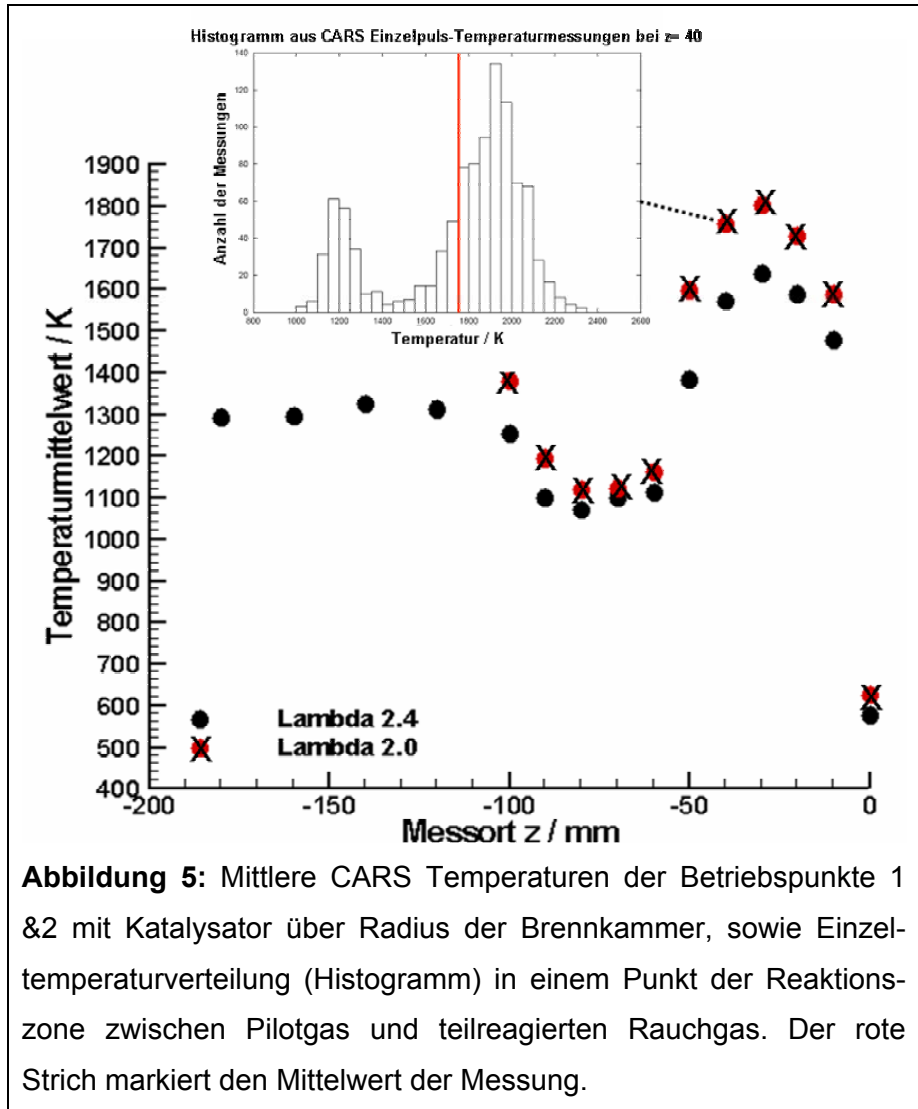
**Abbildung 3:** OH-Radikalverteilung (entabelt) aus Chemilumineszenzmessungen, Brennerdurchmesser durch unterbrochene Linie angedeutet



**Abbildung 4:** Radiale Verteilung der  $\text{NO}_x$  Konzentrationen für Betriebspunkte 1 und 2 mit und ohne Katalysator 20mm stromab des Brenners

Sichtbar wird dies bei der Betrachtung des radialen Temperaturprofils, bzw. der Temperaturverteilung in dem exemplarischen Histogramm in Abbildung 5 für den Betrieb des Brenners mit Katalysator. Bei allen erhöhten Temperaturen zwischen dem Teil hinter dem Katalysator und der Pilotlanze findet sich eine bimodale Temperaturverteilung.

In dem Beispiel für  $\lambda=2$  und der radialen Position  $z=-40\text{mm}$  entsprechen die Temperaturen unter  $1400\text{K}$  den Katalysatoraustrittstemperaturen, die Verteilungskurve darüber denen der Reaktionszone des Pilotgases. Spitzentemperaturen von weit über  $1800\text{K}$  sind hier der Grund für die erhöhten Konzentrationen thermischer Stickoxide. Interessanterweise gibt es faktisch keine Temperaturerhöhung zwischen dem Katalysatoraustritt (Temperaturmessung mit mehreren Thermoelementen im Brenner) und der Messebene  $20\text{mm}$  stromab des Brenners. Dies deutet auf eine Reaktionsverzögerung hinter dem Katalysator hin. Zur Aufklärung dieses Sachverhaltes werden momentan Reaktorrechnungen durchgeführt.



**Abbildung 5:** Mittlere CARS Temperaturen der Betriebspunkte 1 & 2 mit Katalysator über Radius der Brennkammer, sowie Einzeltemperaturverteilung (Histogramm) in einem Punkt der Reaktionszone zwischen Pilotgas und teilreagierten Rauchgas. Der rote Strich markiert den Mittelwert der Messung.

temperaturmessung mit mehreren Thermoelementen im Brenner) und der Messebene  $20\text{mm}$  stromab des Brenners. Dies deutet auf eine Reaktionsverzögerung hinter dem Katalysator hin. Zur Aufklärung dieses Sachverhaltes werden momentan Reaktorrechnungen durchgeführt.

## 6. Zusammenfassung

Die Katalytische Verbrennung für Gasturbinen mit hoher Leistungsdichte zeigt ein signifikantes  $\text{NO}_x$  Reduktionspotential. In den untersuchten Betriebspunkten zeigt der Hybridbrenner selbst ohne Katalysator eine gute Flammenstabilität und niedrige Stickoxidkonzentrationen, wodurch selbst bei der möglichen Langzeitreduktion der katalytischen Aktivität das Schadstoffreduktionspotential als sehr hoch einzustufen ist. Obgleich der schon niedrigen  $\text{NO}_x$ -Konzentrationen kann der Stickoxidausstoß noch weiter durch eine Optimierung der Pilotlanze verbessert werden.

## 7. Danksagung

Die finanzielle Unterstützung dieser Arbeit durch die EU (Cathlean ENK5-CT-2002-00683) wird dankend anerkannt. Auch wurde diese Arbeit nur durch die Unterstützung und den technischen Support der Mitarbeiter des Instituts für Antriebstechnik möglich. Allen beteiligten Personen möchten die Autoren hierfür ihren Dank aussprechen, insbesondere den Kollegen: M. Müller, F. Kaula, W. Quade, A. Langfeld, J. Lier, S. Schmitt, M. Pütz.

## 8. Literatur

- [1] National Air Pollutant Trends 1900 – 1998, EPA-454/R-00-002, March 2000.
- [2] Carroni, R., Schmidt, V., Griffin, T. (2002) "Catalytic combustion for power generation" *Catalysis Today*, vol 75, pp 287 – 295, 2002.
- [3] Carroni, R., Griffin, T., Kelsall, G. (2004) "Cathlean: catalytic, hybrid, lean-premixed burner for gas turbines" *Applied Thermal Engineering*, Vol. 24, pp. 1665 – 1676, 2004.
- [4] Schmitz, I., Paul, T., Wirtz, S., Scherer, V. and Carroni, R. (2005) "Entwicklung eines Vormischers für einen neuartigen Gasturbinenbrenner" *VDI-Berichte Nr. 1888, II-18*, 2005, pp. 241-247
- [5] Schmitz, I., Scherer, V., Wirtz, S. and Carroni, R. (2007) "CFD based development of a fuel-air premixer for a retrofittable catalytic combustion system" *Proceedings of GT2007 ASME Turbo Expo 2007*, Montreal, Canada, May 14-17 2007
- [6] Haber, L., Vandsburger, U., Saunders, W., Khanna, V., 2000, „An examination of the relationship between chemiluminescent light emissions and heat release rate under non adiabatic conditions“, *ASME- GT-0121*, 2000
- [7] Najim, H. N., Paul, P. H., Mueller, C. J., Woyckoff, P. S., "On the adequacy of certain experimental observables as measurements of flame burning rate", *Combustion and Flame*, 113, pp. 312-322, 1998
- [8] Dasch, C. J., "One-dimensional tomography: a comparison of Abel, onion-peeling, and filtered backprojection methods", *Applied Optics*, 31(8), pp. 1146 – 1152, 1992
- [9] Roh, W. B., Schreiber, P.W., Taran, J.P., "Single-Pulse Coherent Anti-Stokes Raman Scattering", *Applied Physics Letters*, Vol. 29, No. 3, 1976, pp. 174-176.
- [10] Eckbreth, A.C., "BOXCARS: Crossed-Beam Phase-Matched CARS Generation in Gases", *Applied Physics Letters*, Vol. 32, No. 7, 1978, pp. 421-423.
- [11] Plath, I., "CARS-Temperaturmessungen an laminaren und turbulenten Flammen - Untersuchungen zur Meßgenauigkeit des Einzelpulsverfahrens", *Dissertation, Universität Stuttgart (1991)*
- [12] Woyde, M., "Temperaturbestimmung hoher Genauigkeit mit CARS in Hochdruckverbrennungssystemen - Untersuchungen an einer vorgemischten CH<sub>4</sub>/Luft-Hochdruckflamme", *Dissertation, Universität Stuttgart (1992)*
- [13] Fischer, M., "Untersuchungen zur Einsatzfähigkeit der N<sub>2</sub>- und H<sub>2</sub>O-CARS-Thermometrie und H<sub>2</sub>O-CARS-Konzentrationsmessung bei der Analyse von H<sub>2</sub>-Staustrahltriebwerken", *Dissertation, Technische Universität Berlin (2006)*