



## Jahresbericht 1999

Über die Arbeiten gemäss Auftrag: EF - 55100

**Titel des Projektes: NO<sub>x</sub>-Modellierung mittels PDF-Transportgleichungen**

### Zusammenfassung:

Fuer die Entwicklung und den Bau von Verbrennungsanlagen spielt der Einsatz numerischer Methoden eine zunehmend wichtige Rolle. Die Erforschung von Verbrennungsvorgängen und deren genaue Vorhersage durch die Simulation gewinnen dadurch an Bedeutung. Die Validierung von Modellen erfolgt im direkten Vergleich der Ergebnisse aus der Simulation mit experimentellen Daten. Für die Modellenentwicklung eignen sich im besonderen labortechnische Verbrennungsexperimente, mit Eigenschaften industriechnischer Anlagen.

In diesem Projekt steht der Einsatz der PDF-Transport-Methode zur Behandlung turbulenter reaktiver Stroemungen im Vordergrund. Dabei wird eine Transportgleichung für die Wahrscheinlichkeits-Dichte-Funktion (PDF) mittels Monte Carlo Methode gelöst. Die Methode erlaubt eine geschlossene Darstellung des chemischen Quellterms bei direkter Bestimmung der Wahrscheinlichkeitsverteilungen für skalare Grössen. Die Entwicklung soll eine Modellierung der Stickoxide, die sich bei Verbrennungsvorgängen thermisch oder – wie im Fall einer Methanverbrennung – prompt bilden, ermöglichen. Dadurch soll ein Ausblick auf die Anwendung in realen Brennerkonfigurationen gegeben werden.

In diesem Jahr konnte erfolgreich die Kopplung des PDF-Transport Programms mit der Methode des Repro-Modellierens für die Behandlung komplexer chemischer Reaktionsvorgänge vorgenommen werden. Die ersten Berechnungen mit dem neuen Modul wurden an einer turbulenten Wassersoff-Flamme durchgeführt und mit experimentellen Daten verglichen.

**Dauer des Projektes: 1. Januar 96 – 31. Dezember 98, verlängert**

**Beitragsempfänger: Institut für Energietechnik, ETH**

**Berichterstatter: A. Obieglo und Dr. J. Gass**

**Adresse: Laboratorium für Thermodynamik in neuen Technologien**  
**ETH-Zentrum**

**Telephon: 8092 Zürich**  
**01 632 54 45 (Gass)**  
**gass@ltnt.iet.mavt.ethz.ch**

<http://www.ltnt.ethz.ch>

## **1 Projektziele**

Die Ziele des Projektes NO<sub>x</sub>-Modellierung in nicht vorgemischten Systemen mittels PDF-Transportgleichungen lassen sich in folgende Abschnitte einteilen:

- Koppelung des Strömungslösers TASCflow mit dem PDF-Transportgleichungs-code, der am ICA (Institut für Computeranwendungen) Stuttgart entwickelt wurde.
- Einarbeitung des Doktoranden in CFD anhand einer konkreten Aufgabe, sowie Einarbeitung in das Programmmodul TASCflow - PDF/Monte Carlo.
- Erweiterung des Programmmoduls. Als erster Schritt wird die Implementierung der Wasserstoff-Chemie durchgeführt. Die Erweiterung soll anhand von Vergleichen mit experimentellen Daten und Berechnungen früherer Arbeiten am Labor validiert werden. Für die Vorhersage der Stickoxidbildung sind zusätzliche Erweiterungen notwendig. Nach der Behandlung der Wasserstoff-Chemie ist die Behandlung der Methanverbrennung vorgesehen.

In diesem Jahr konnte die Implementierung der Wasserstoff-Chemie abgeschlossen werden. Dadurch sind die Voraussetzung geschaffen, die Stickoxid-Modellierung durchzuführen. Die Erweiterung des Modells für die Methan-Flamme baut auf die gleiche Struktur auf und ist möglich, sobald ein entsprechendes Chemie-Modell vorliegt. Die Haupziele des Projektes konnten somit in diesem Jahr erreicht werden. Die Vorbereitungen für daran anschliessende Arbeiten und Projekte konnten ebenso durchgeführt werden. Es ist zu erwarten, dass das Projekt im kommenden Jahr abgeschlossen werden kann.

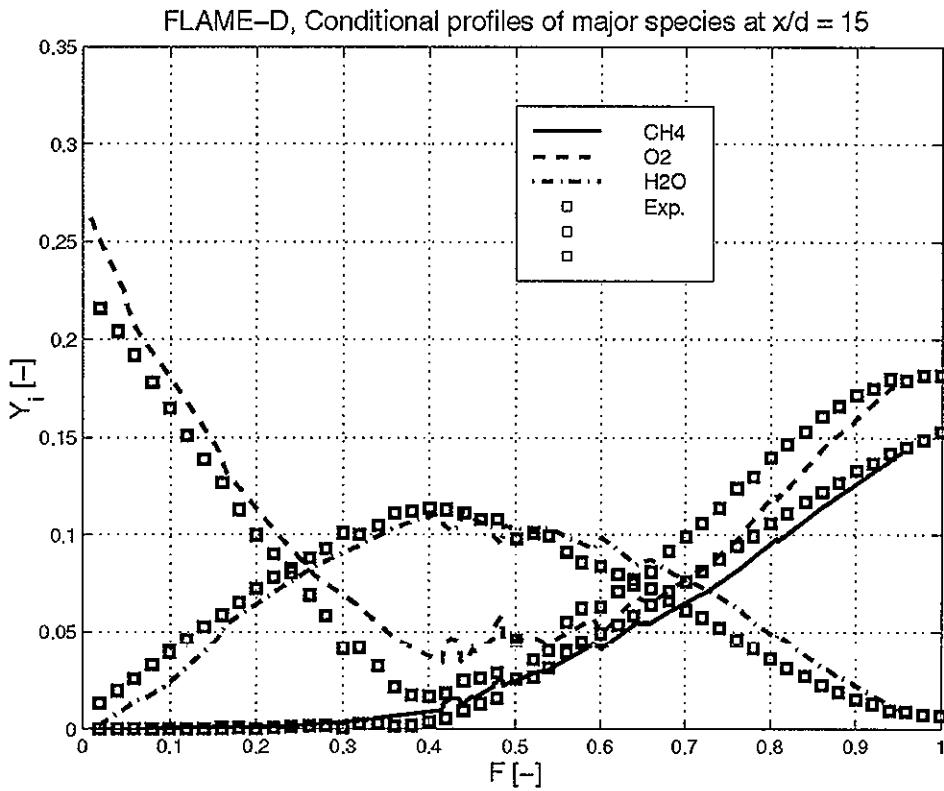
## **2 Arbeiten und Ergebnisse**

Die Verwendung von Modellen zur Simulation reaktiver Strömung erfordert die Validierung mit experimentellen Daten. Im Bereich nicht-vorgemischter Verbrennung wird seit 1996 ein internationaler workshop durchgeführt, dessen Ziel die genaue messtechnische und numerische Untersuchung unterschiedlicher turbulenter Modellflammen ist. Unser Labor ist seit Beginn dieser Veranstaltung aktiv bei der Mitwirkung beteiligt und konnte auch in diesem Jahr Ergebnisse eigener Berechnungen präsentieren. Für die laufenden Arbeiten am Projekt dienten zwei ausgewählte Standardflammen: eine turbulente Methan/Luft-Pilot-Flamme sowie eine turbulente Wasserstoff-Jet-Flamme. Die bisherigen Projektarbeiten zur Wasserstoff-Flamme basierten auf der Annahme einer Gleichgewichtschemie. Die Modellierung konnte sich dadurch auf die Lösung einer PDF-Transportgleichung für den Mischungsbruch beschränken. Für die Implementierung komplexer chemischer Reaktionen, insbesondere im Hinblick auf eine Erweiterung für die Stickstoffchemie, war es erforderlich, ein detaillierteres Chiemodell zu implementieren, das den unterschiedlichen chemischen Zeitskalen Rechnung trägt. Eine neue Methode der Darstellung komplexer Chemiereaktionen im thermochemischen Raum mittels weniger Größen ist die Methode des Repro-Modellierens. Eine Verknüpfung dieser Methode mit dem PDF-Transportgleichungsmodell ermöglicht die Behandlung detaillierter Wasserstoffchemie in turbulenten Strömungen mittels zweier Transportgleichungen für Wasser und Stickstoff. In diesem Jahr konnte die Kopplung

der Repro-Modellierung mit der PDF-Transportgleichung durchgeführt und abgeschlossen werden. Diese Entwicklung erlaubt die Verwendung der detaillierten und komplexen Wasserstoff-Chemie basierend auf einer Darstellung durch zwei Massenbrüche. Dadurch lässt sich das mehrdimensionale Problem auf die Behandlung eines zweidimensionalen Systems reduzieren. Die Methode erlaubt eine erhebliche Beschleunigung der Rechenabläufe bei Beibehaltung detaillierter chemischer Informationen über den Reaktionsablauf und Reaktionsfortschritt. Erste Berechnungen der turbulenten Wasserstoff-Jetflamme konnten mit der neuen Methode erfolgreich durchgeführt werden. Dabei waren die bisher geleisteten Arbeiten der Modellierung der Wasserstoff-Flamme mit anderen Verbrennungsmodellen sehr hilfreich. Durch die Kombination des Repro-Modellierens mit der PDF-Methode sind die Voraussetzungen geschaffen, die Behandlung der Schadstoffbildung während des Verbrennungsvorganges mit zu berücksichtigen und vorherzusagen. Insbesondere sind dadurch die Voraussetzungen zur Berechnung der Bildung thermischen Stickstoffoxides geschaffen. Bei einer Weiterentwicklung des Repro-Modellierens für die Methan-Chemie, wäre es dann einfach, dieses Modell in das vorhandene System einzubinden, ebenso wie die Vorhersage von promptem Stickoxid. Die erzielten Ergebnisse konnten an wichtigen nationalen und internationalen Veranstaltungen präsentiert werden.

## 2.1 Berechnungen einer Methan/Luft-Pilot Flamme

Im Rahmen des diesjährigen *4. International Workshop on Measurement and Computation of Turbulent Nonpremixed Flames* wurde die dort diskutierte *Flame D* mittels PDF-Methode und reduzierter Chemie behandelt und berechnet. Die Ergebnisse aus eigenen Berechnungen konnten mit in der Veranstaltung eingereicht werden und sind für detaillierte Vergleiche akzeptiert und in die Diskussion mit einbezogen worden. Bei der *Flame D* handelt es sich um eine turbulente Methan/Luft Flamme, deren Brennstoffstrahl von einem heißen, nicht-reagierenden Pilotstrom eingehüllt ist. Die restliche Luft zur Verbrennung wird durch einen Mantelstrom von aussen zugeführt. Die Austrittsgeschwindigkeiten sind dabei so gewählt, dass nur vereinzelt lokales Erlöschen auftritt. Der teilvorgemischte Brennstoffstrahl sorgt zum einen für eine ausreichende Flammenstabilität und verhindert zum anderen die Bildung von Russ, welche die optischen Messmethoden sonst einschränkte. Zur Modellierung wurde das bestehende PDF-Programm, gekoppelt mit dem CFX-TASCflow Strömungslöser verwendet [9]. Die implementierte 4-Schritt-Chemie basiert dabei auf einem reduzierten Skelett-Mechanismus und erlaubt die Beschreibung des Systems basierend auf acht Spezies mit 4 Elementen und vier globalen Reaktionen. Bereits in früheren Berechnungen konnten mit diesem Modell erfolgreiche Untersuchungen durchgeführt werden. Als Beispiel aus der Simulation ist ein Ergebnis aus einem Schnitt durch die Flamme an der Position  $x/D=15$  ausgewählt, wobei  $x$  den aktuellen Abstand zur Düse und  $D$  den Durchmesser der Düse angibt. Die Darstellung erfolgt im Mischungsbruchraum. Es werden die Massenbrüche der Hauptkomponenten Methan, Sauerstoff und Wasser angegeben.

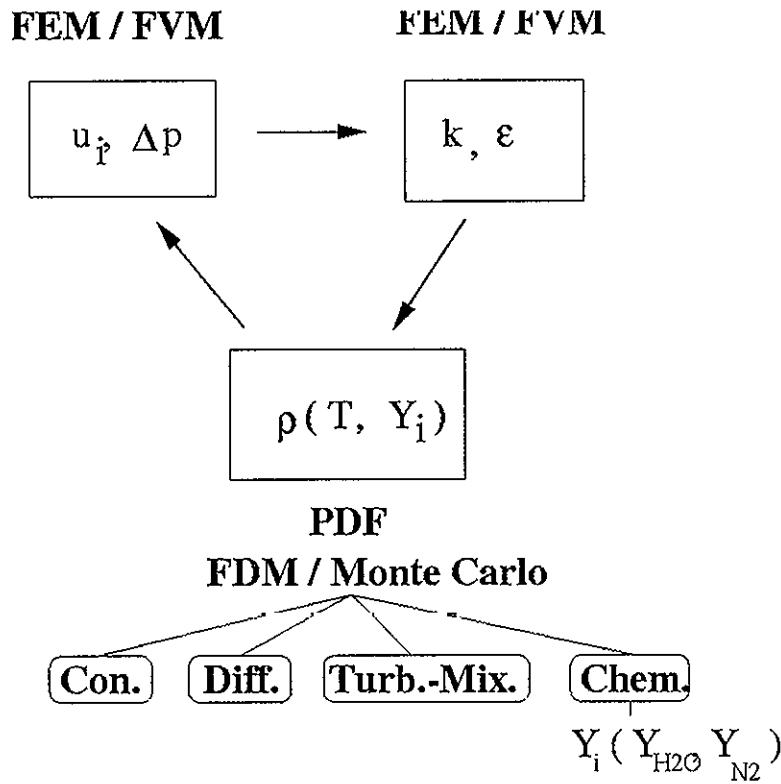


*Figur 1: Methan, Sauerstoff und Wasser im Mischungsbruchraum bei der Position  $x/D=15$  (aktueller Abstand von der Düse  $x$ , Durchmesser der Düse  $D$ ).*

In Figur 1 ist eine gute Übereinstimmung der Ergebnisse mit den experimentellen Daten zu erkennen. Die experimentellen Daten wurden mittels berührungsloser optischer Raman-Rayleigh-LIF Techniken gewonnen. Die Darstellung im Mischungsbruchraum erlaubt eine direkte Beurteilung des chemischen Modells, da die Einflüsse des Strömungsfeldes herausgefiltert werden. Man beachte, dass die Vormischung des Brennstoffstrahls mit Luft im Mischungsbruchraum auch Sauerstoffwerte bei  $F=1$  ergibt.

## 2.2 Kopplung der PDF-Transportgleichung mit Repro-Modellieren für die Verbrennung von $H_2$

Bei der Repro-Modellierung erfolgt die Darstellung der detaillierten Wasserstoffchemie durch Splines, die auf die aktuellen Zustandswerte der beiden Massenbrüche von Wasser und Stickstoff bezogen werden [10]. Die Splines wurden für Äquivalenzverhältnisse  $\Phi$  zwischen 0.5 und 6 generiert. Die Koeffizienten der Splines werden in einer Datei abgelegt. Der Stickstoff übernimmt die Rolle eines Mischungsbruches, während die Wasserkonzentration einen Reaktionsfortschritt darstellt. Aus den beiden Angaben lassen sich die Massenkonzentrationen weiterer sieben Haupt- und Nebenspezies, die Temperatur sowie die Dichte angeben. Das Repro-Modell liefert die zeitabhängigen Produktionsraten für Wasser. In unserem Fall standen die Reaktionsraten für zwei Zeitschritte,  $\Delta t_2 = 10^{-4} s$  und  $\Delta t_1 = 10^{-5} s$  zur Verfügung. Im nichtreagierenden Gemisch wird ein reines Mischungsproblem gelöst. Für die Kopplung mit dem PDF-Programm ist die Lösung einer zweidimensionalen PDF-Transportgleichung für  $Y_{H_2O}$  und  $Y_{N_2}$  erforderlich. Die Reaktionsraten für den chemischen Quellterm werden dann aus dem Repro-Modell, entsprechend der aktuellen Zustände, geliefert. Das Schema der Kopplung ist in Figur 2 dargestellt:



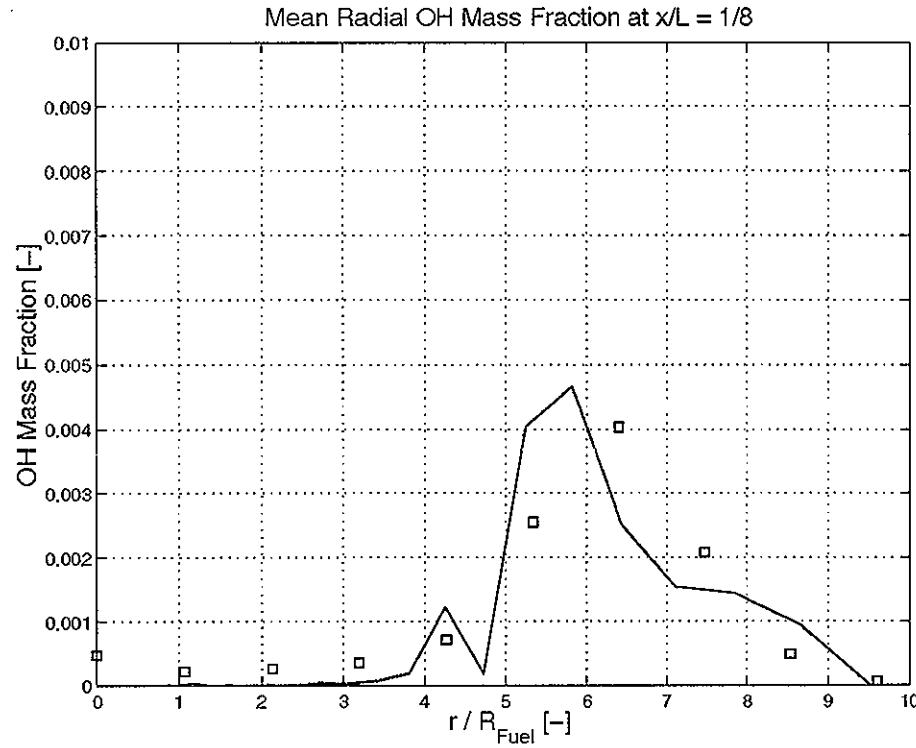
Figur 2: Kopplung des Repro-Modellierens mit der PDF-Transportgleichung

Das Modell des Repro-Modellierens konnte erfolgreich mit der Methode der PDF-Modellierung gekoppelt werden. Das Strömungsfeld wird durch den Löser CFX-TASCflow berechnet. Das Verfahren ist ein Finite Volumen Verfahren (FVM), das auf einem Finite Elemente Verfahren (FEM) basiert. Die Geschwindigkeitskomponenten  $u_i$ , die Druck-Korrelation sowie die turbulenten Parameter der kinetischen Energie  $k$  und der Dissipationsrate  $\varepsilon$  werden gelöst und anschliessend die aktuellen Werte an das PDF Programm übergeben. Die mittels Finite Differenzen Methode (FDM) diskretisierte Transportgleichung wird durch das stochastische Monte Carlo Verfahren gelöst. Dabei werden die Terme der Konvektion (Con.), der Diffusion (Diff.), des chemischen Quellterms (Chem.) sowie der turbulenten Mischung (Turb.-Mix.) nacheinander berechnet. Bei der Behandlung des chemischen Quellterms werden die Ergebnisse des Repro-Modells, basierend auf den aktuellen Massenbrüchen von Wasser und Stickstoff,  $Y_{H_2O}$  und  $Y_{N_2}$ , verwendet. Das PDF-Repro-Programm läuft stabil und erzeugt brauchbare Ergebnisse, die im folgenden Abschnitt behandelt werden.

## 2.3 Berechnung der turbulenten Wasserstoff-Flamme mit der PDF-Repro-Modellierung

Die Neuentwicklung wurde an einer turbulenten Wasserstoff-jet Flamme angewendet und getestet ([8], [11]). Dabei handelt es sich um eine Einlassdüse für den reinen Wasserstoff-Brennstoffstrahl mit einem Innendurchmesser von  $D=3.75$  mm. Der  $H_2$ -Strahl ist von einem reinen Luftstrahl umgeben. Das Gitter sowie die Definition der Randbedingungen konnte von früheren Berechnungen übernommen werden. Dadurch sollte eine Gitterunabhängigkeit

der Lösung gewährleistet sein. Die Ergebnisse konnten mit experimentellen Daten verglichen werden. Neben dem Geschwindigkeitsfeld und den Hauptkomponenten konnten auch Nebenkomponenten verglichen werden, die bei der Bildung von Schadstoffen eine wichtige Rolle spielen.



Figur 3: OH-Massenbruch Profil bei einem Schnitt  $x/L = 1/8$

In Figur 3 wird das OH-Profil der Flamme an der Position  $x/L = 1/8$  (aktueller Abstand von der Düse  $x$ , sichtbare Flammenlänge  $L=675\text{ mm}$ ) über dem normierten Radius aufgetragen und mit experimentellen Ergebnissen verglichen. Der Bereich unmittelbar nach Brennstoff-Austritt ist durch chemische Nicht-Gleichgewichtszustände gekennzeichnet. Die Ergebnisse zeigen, dass das Maximum, die Verteilung und die Lage des Maximums im Vergleich mit dem Experiment sehr gut wiedergegeben werden können. Damit sollte gewährleistet sein, dass das Modell für die Vorhersage von Schadstoffen in der Verbrennung gut geeignet ist.

### 3 Zusammenarbeit

#### 3.1 Industrie

Die enge Zusammenarbeit mit der Firma **AEA Technology** bei der Programmentwicklung sowie bei der Anwendung von Programmen wurde auch in diesem Jahr fortgesetzt. Es bestehen sehr gute Kontakte insbesondere zum ehemaligen Mitarbeiter unserer Gruppe und derzeitigem stellv. Geschäftsführer, Dr. J. Ferreira, der die laufenden Arbeiten mitverfolgt.

### 3.2 Hochschule

Die Ergebnisse werden weiterhin kontinuierlich mit dem Korreferenten der Dissertation, Prof. Roekaerts von der **TU Delft**, ausgetauscht.

Die Programm-Entwicklung bei der Kopplung des Repro-Modellierens erfolgte in enger Zusammenarbeit und intensivem Austausch mit der Gruppe von Dr. Turányi von der **Eötvös University in Budapest**.

Bei der Berechnung der Flame D für den TNF workshop war der Austausch mit den Organisatoren Dr. R. Barlow, **Sandia National Labors** sowie A. Hinz, **TU Darmstadt**, sehr hilfreich.

Auf dem TNF4 workshop sowie auf dem 19. Deutschen Flammentag war ein intensiver Austausch der Forschungsergebnisse und Behandlung offener Fragen mit Kollegen anderer Hochschulen und Partnern in der Industrie sehr gut möglich.

## 4 Transfer

Durch zahlreich Vorträge und schriftliche Publikationen ist der Transfer der Ergebnisse nach aussen auf nationaler sowie internationaler Ebene gewährleistet gewesen.

Innerhalb der Schweiz wurden die Ergebnisse auf dem diesjährigen **6. CFD day** an der ETH Zürich präsentiert [1]. Des weiteren konnten auf dem **ERCOFTAC CCC-meeting** weitere Ergebnisse vorgestellt werden [2].

Auf internationaler Ebene boten der **4th International workshop on Measurement and Computation of Turbulent Nonpremixed Flames** sowie der **19. Deutsche Flammentag** sehr gute Gelegenheit, die aktuellen Arbeiten dem Fachpublikum zu präsentieren. Dies geschah zum einen durch das Einreichen von Berechnungen mit unseren Programmen [3] und zum anderen durch die Erstellung von Konferenzartikel [4] für den Tagungsband und Poster für die Präsentation vor Ort [5].

Die Ergebnisse der PDF-Repro-Modellierung wurden in einem Artikel zusammengefasst, der für das kommende **28th Symposium (International) on Combustion** eingereicht wurde [6].

Die Ergebnisse der abgeschlossenen Arbeiten mit der Wassestoffmodellierung basierend auf dem Mischungsbruch wurden bereits im vergangenen Jahr mit einem Manuscript bei **Combustion and Flame** eingereicht. Inzwischen sind die Antworten der Schiedsrichter mit weiteren Verbesserungsvorschlägen eingetroffen. Nach Bearbeitung der offenen Fragen und Anmerkungen wurde das Manuscript erneut eingereicht [7].

Ein privater Aufenthalt in Moskau bot dieses Jahr die Gelegenheit, Kontakte zu Kollegen an der **Russischen Akademie der Wissenschaften** zu knüpfen und die aktuellen Arbeiten dort vorzustellen. Die Ergebnisse wurden interessiert aufgenommen.

## 5 Perspektiven

Für das kommende Jahr sind folgende Arbeiten geplant:

- abschliessende Berechnungen der Wasserstoff-Flamme mit dem PDF-Repro-Modellieren.
- Post-Processing der Wasserstoffberechnung zur Bestimmung der Stickoxid-Bildung.
- Zusammenfassung der Arbeiten in einer Dissertationsschrift.

## 6 Publikationen, Vorträge und Zitate

- [1] A. Obieglo, Ch. D. Taglia, D. Muhasilovic, P. Bajaj, and J. Gass. Modelling of Turbulent Combustion at LTNT. In *6<sup>th</sup> CFD Day*. ETH Zürich.
- [2] A. Obieglo, P. Bajaj, and J. Gass. PDF and Flamelet Modelling of a Turbulent piloted CH<sub>4</sub>/Air Flame. In *ERCOFTAC - Joint Meeting of the Competence Centers*. ETH, Zürich, 1999.
- [3] A. Obieglo and J. Gass. Numerical Simulation of a Piloted Methane/Air Flame (Flame D) using a Finite-Volume – Monte Carlo-PDF Code. In *computations – 4. International Workshop on Measurement and Computation of Turbulent Nonpremixed Flames*. TU Darmstadt, 1999.
- [4] A. Obieglo, J. Gass, A. Buki, and T. Turányi. Berechnung einer turbulenten Flamme unter Verwendung des Repromodellierens. In *19. Deutscher Flammenstag*. TU Dresden, 1999.
- [5] P. Bajaj, A. Obieglo and J. Gass. Numerical Simulation of a Piloted Methane/Air Flame (Flame D) using a Finite-Volume - Monte Carlo-PDF and Steady Flamelet Code. In *poster – 4. International Workshop on Measurement and Computation of Turbulent Nonpremixed Flames*. TU Darmstadt, 1999.
- [6] A. Obieglo, J. Gass, A. Buki, and T. Turnányi. PDF Simulation of a Turbulent Non-Premixed H<sub>2</sub> flame using repro-modeling. In *submitted for publication. 28<sup>th</sup> Symposium (Intern.) on Combustion*, Edinburgh, 2000.
- [7] A. Obieglo, J. Gass, and D. Poulikakos. Comparative study of hydrogen non premixed turbulent flame. *Revised version – submitted again to Combustion and Flame*, 1999.
- [8] M. Flury. Experimentelle Analyse der Mischungsstruktur in turbulenten nicht vorgemischten Flammen. *Dissertation*, ETH Zürich, 1999.
- [9] A. Laxander. Numerische Simulation von turbulenten Diffusionsflammen mit einem PDF-Transportgleichungsmodell. *Dissertation*, Universität Stuttgart, 1996.
- [10] T. Turányi. Application of repro-modlling for the ruction of combustion mechanisms. *25<sup>th</sup> Symposium (Intern.) on Combustion*, 1995.
- [11] R.S. Barlow and C.D. Carter. Raman/Rayleigh/LIF measurements of nitric oxide formation in turbulent hydrogen jet flames. *Combustion and Flame*, 97:261-280, 1994.